

## 重い遍歴電子はどこで、どのようにして生まれるか

大学院理学研究科 青木晴善 (aokih@mail.clts.tohoku.ac.jp)

大学院理学研究科 (現：原子力研究開発機構) 松本裕司

大学院理学研究科・極低温科学センター 木村憲彰

### 1. はじめに

強相関  $f$  電子系物質の  $f$  電子が結晶中を伝導電子として遍歴しているのか、あるいは局在しているのかは、物性を理解するうえで重要な問題であり、また、強相関物理の基本問題でもある。図1は  $Ce_xLa_{1-x}Ru_2Si_2$  合金の温度—Ce 濃度相図の概要を示している。通常金属である  $LaRu_2Si_2$  の La を Ce で置換していくと、反強磁性秩序が形成され、磁気転移温度は Ce 濃度とともに増大する。さらに濃度を増すと、転移温度は減少し、 $x_c=0.91$  でゼロとなる。2 次の磁気相転移が絶対零度で消失する点は量子臨界点と呼ばれている。同様な相図は、反強磁性秩序状態で圧力を印加することによって得ることができる。

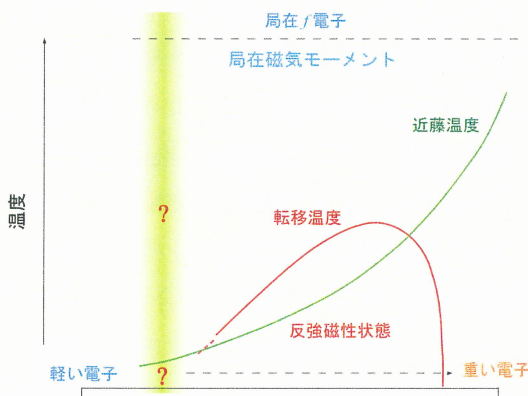


図1 :  $Ce_xLa_{1-x}Ru_2Si_2$  の温度—Ce 濃度相図。

$CeRu_2Si_2$  は典型的な重い電子系物質であり、電子の静止質量の 100 倍以上の有効質量を持つ電子の存在が観測され、また、基底状態では  $f$  電子は遍歴電子としてフェルミ面を形成していることが明らかになっている。一方、 $LaRu_2Si_2$  では  $f$

電子も重い伝導電子も存在しない。また、十分高温では  $f$  電子は局在していると考えられている。したがって、どこかの濃度と温度で  $f$  電子は遍歴電子となり、また伝導電子は重くなるはずである。この問題は最近の量子臨界点における電子状態に関する論争とも関係する。量子臨界点近傍の物性の振る舞いについては、これまで遍歴磁性を基にして理論的な枠組みが組み立てられてきた。しかし、これらの理論では説明が困難な実験結果が報告されており、新しい理論的なシナリオがいくつか提案されている。1つのシナリオでは、量子臨界点において  $f$  電子が遍歴から局在に変化することが起こりうること、また、いくつかの物質では実際におこっていることを主張している。[1]

それでは、そもそも希薄合金の状態ですでに  $f$  電子は遍歴しているのか、重い伝導電子が生まれているのかという疑問が生じる。本稿ではこの問題を実験的に明らかにした結果について述べる。

### 2. 実験方法

テトラアーク炉を用いたチョクラスキー引き上げ法により単結晶試料を作製した。dHvA 効果測定は、磁場変調法を用いた。また、周波数変化は dHvA 効果振動の位相変化から求めた。[2,3]

### 3. 実験結果と考察

強相関  $f$  電子系の希薄合金で、どのような結果が観測されれば、 $f$  電子が遍歴していると判断できるかは、理論的にも必ずしも明らかでない。ここでは、下記のような現象論的な解釈をすること

とする。

$Ce_xLa_{1-x}Ru_2Si_2$  化合物の結晶構造はいずれも  $ThCr_2Si_2$  型である。図 2 (a) および (b) にバンド計算による  $LaRu_2Si_2$  および  $CeRu_2Si_2$  のフェルミ面と磁場を [100] 方向に加えた場合の dHvA 信号を生じる軌道を示している。[4] 上および中央のフェルミ面はホール面であり、下のフェルミ面は電子面となっている。 $CeRu_2Si_2$  のフェルミ面は  $LaRu_2Si_2$  のフェルミ面に比べて、ホール面が小さくなり、電子面が大きくなっていることがわかる。この違いは、 $LaRu_2Si_2$  では  $f$  電子が存在しないのに対して、 $CeRu_2Si_2$  では  $Ce$  の  $f$  電子が遍歴電子となって、フェルミ面の形成に参加しているために生じている。また、有効質量を比べると、 $CeRu_2Si_2$  の一番上のホール面上の電子は  $2\sim 3m_0$  の有効質量を持つ。この値は、 $LaRu_2Si_2$  での似た形のホール面上の電子の  $1\sim 2m_0$  と大きな違いはない。一方、中央のホール面は  $LaRu_2Si_2$  での  $2\sim 3m_0$  に対して、 $CeRu_2Si_2$  では  $100m_0$  以上である。また、下の電子面では  $LaRu_2Si_2$  での  $1\sim 2m_0$  に対して、 $CeRu_2Si_2$  では  $10\sim 20m_0$  である。 $CeRu_2Si_2$  における有効質量の大きさは、フェルミ面における波動関数の  $f$  成分の大きさに対応する。したがって、 $La$  を  $Ce$  に置き換えて行ったときに、フェルミ面の大きさ、および有効質量の大きさが、 $LaRu_2Si_2$  から  $CeRu_2Si_2$  に向かって変化し、また、それらの変化の大きさが、中央のホール面では一番大きく、上のホール面ではほとんどなければ  $f$  電子は遍歴をし、それともなると、伝導電子の有効質量が重くなっている解釈できる。強相関  $f$  電子系においては高温では  $f$  電子は局在していると考えられる。したがって、低温で  $f$  電子が遍歴しているとすると、近藤温度  $T_K$  をまたいで、dHvA 効果を観測できれば、 $f$  電子の性質が温度とともに変化する様子を示すことができるはずである。

一方で、dHvA 効果の測定には、低温と強磁場が必要である。 $T_K$  をまたいで、dHvA 効果を観測しようとする、 $T_K$  は低い必要がある。その反面、 $T_K$  が低い (近藤効果が弱い) と、強い磁場は電子の遍歴性を生じる近藤効果を抑制してしまう。

したがって、これまで強相関  $f$  電子系を含めて、 $T_K$  をまたいでの dHvA 効果の実験は皆無であった。

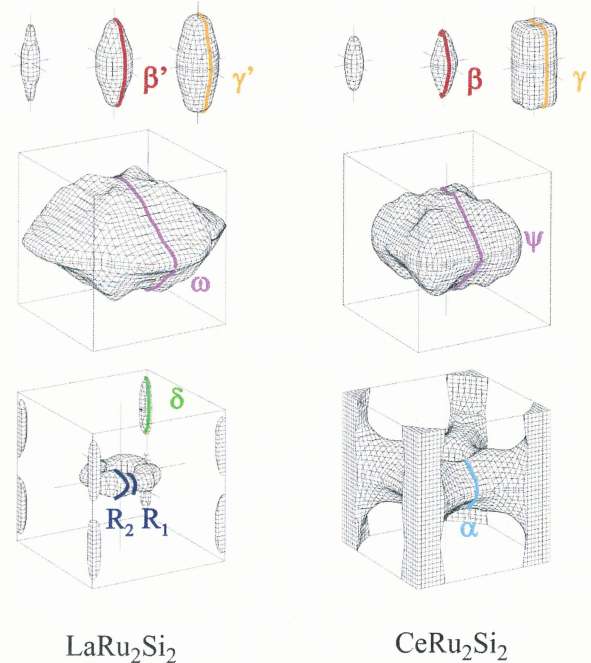


図 2. (a)  $CeRu_2Si_2$ , (b)  $LaRu_2Si_2$  のバンド計算により求められたフェルミ面。上図：楕円体ホール面、中図：主要ホール面、下図：電子面。[4]

しかし、 $Ce_xLa_{1-x}Ru_2Si_2$  はこのような実験が可能で稀な系であることがわかった。

図 3(a) は  $Ce_{0.02}La_{0.98}Ru_2Si_2$  試料の抵抗率の温度変化を示す。低温では  $-\log T$  で抵抗が上昇した後、最低温では一定値となり、典型的な希薄磁性金属の近藤効果の振る舞いを示す。このような振る舞いからこの系では  $T_K$  が  $1.3\text{ K}$  程度と推定される。図 3(b) は  $Ce_{0.02}La_{0.98}Ru_2Si_2$  の磁化の磁場変化を示す。この系は非常に強い磁気異方性を持っており、磁場を磁化容易軸 [001] に加えた場合では、磁化は急激に上昇し、 $3\text{ T}$  ではほぼ飽和する。この方向ではこの程度の大きさ磁場により、低温で近藤効果がほとんど抑制されてしまっていることを示している。一方、磁化容易軸に垂直に磁場を加えた場合では、磁化はわずかにしか変化しない。この方向の磁場は近藤効果にほとんど影響しないと仮定することができる。本研究では磁場は (001) 面内に加え測定を行った。なお、磁場を容易軸に加えた場合では、すべての濃度で  $f$  電子は高磁場領域で局所的な振る舞いをする。[5]

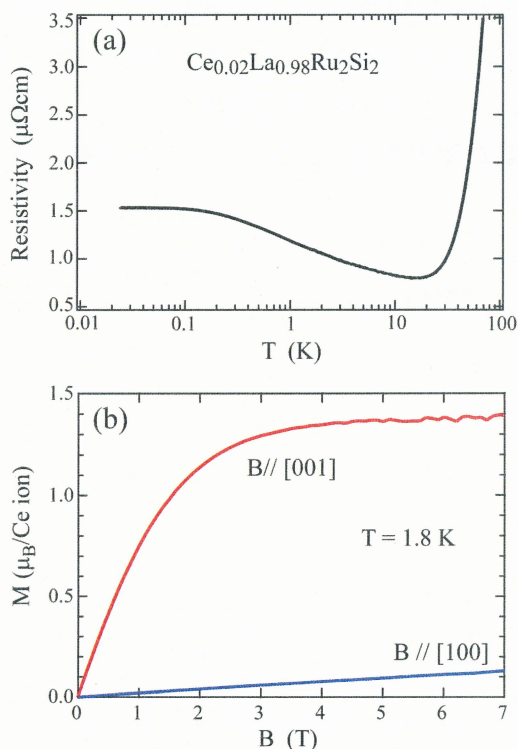


図 3.  $\text{Ce}_{0.02}\text{La}_{0.98}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  試料の(a)抵抗率の温度変化、(b) 磁化の磁場変化とその方位依存性。

図 4 は磁場を [100] 方向に加えたときの  $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  の周波数、有効質量の Ce 濃度依存性を示す。下図の挿入図は  $\omega$ 、 $\delta$  振動の有効質量の濃度変化を示している。図 5 は Ce 希薄濃度領域での周波数変化の拡大図となっており、周波数の  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  からの相対的变化を示している。dHvA 周波数はフェルミ面の極値断面積に比例する。Ce 濃度とともに、大きなホール面から生じる  $\omega$  振動の周波数は減少し（フェルミ面は縮み）、電子面から生じる  $\delta$  振動の周波数は増加している（フェルミ面は大きくなっている）ことがわかる。その他の振動の周波数についてはほとんど変化がない。なお、電子面から生じる  $R$  振動にはあまり大きな変化がないが、対応する  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $\alpha$  振動の周波数とはあまり大きな違いがないためと思われる。有効質量の変化をみると、周波数変化の大きさに対応して、有効質量の増大が起こっていることが分かる。 $R$  振動についても、小さなホール面から生じる振動に比べて、有効質量が大きく増加していることが分かる。これらの結果は、先に述べた  $f$  電子が希薄濃度領域で Ce の置

換とともに遍歴的になっている場合に予想される結果と矛盾がない。

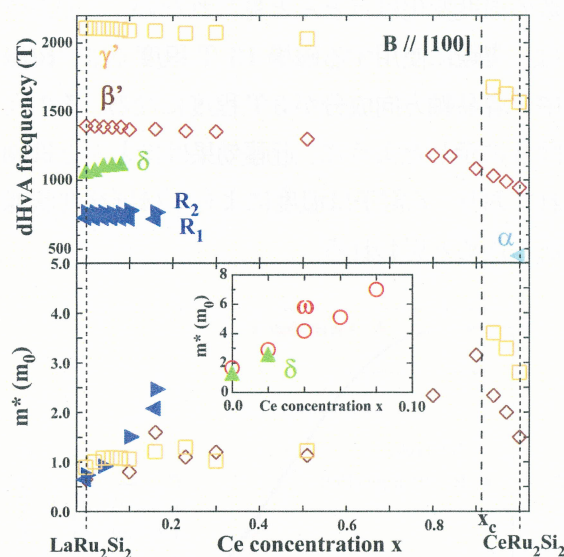


図 4.  $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  の dHvA 振動周波数(上) および有効質量の Ce 濃度変化(下)。左図下の挿入図は低濃度領域における  $\omega$ 、 $\delta$  振動の有効質量の濃度変化。

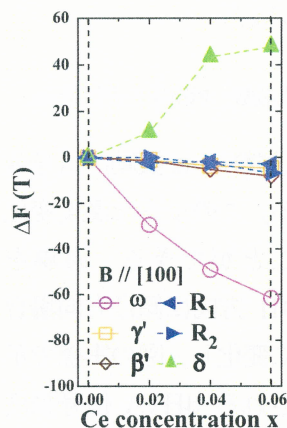


図 5. 低濃度領域における周波数のからの相対変化。

図 6 は  $\text{Ce}_{0.02}\text{La}_{0.98}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  試料の  $\omega$  振動の周波数の温度変化を示している。抵抗率の温度変化と比較するために、最低温を基準としそこから周波数変化  $\Delta F$  を増加の方向を下向きに取って示してある。磁場を [100] 方向に加えた場合、および [100] 方向から 10 度 [001] 方向に傾け方向に加えた場合を示してある。[100] 方向に加えた場合では周波数は抵抗率の温度変化と定性的に良く似た変化をする。また、高温から低温に向かって周波数は減少、すなわちフェルミ面が縮小していることがわかる。高温から最低温までの周波数減少の大きさは、 $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  から  $\text{Ce}_{0.02}\text{La}_{0.98}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  までの周波数減少の大きさにほぼ等しい。すなわち、

Ce 濃度変化および温度変化の実験は相互に矛盾がない。一方、磁場を 10 度傾けた場合には、周波数の温度変化はほとんど見られない。この方位では、実験に使用する磁場 16 T 程度では、磁場の磁化容易軸方向成分が 3 T 程度になる。そのため図 3 に示したように、近藤効果はほとんど抑制されており、 $f$  電子は温度によらずほぼ局在状態にあるためと思われる。

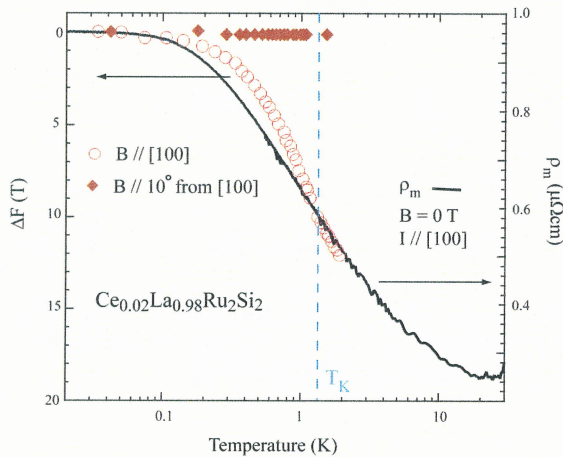


図 6.  $\text{Ce}_{0.02}\text{La}_{0.98}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  試料の周波数、抵抗率の温度変化。

図 7 は  $\text{Ce}_{0.02}\text{La}_{0.98}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  試料の  $\omega$  振動の信号強度の温度変化を示している。このような温度変化から有効質量を求めることができる。磁場を [100] 方向から 10 度 [001] 方向に傾け方向場合では、温度変化は滑らかに変化し、図の実線で示すように通常金属で適用される dHVA 信号強度の温度変化の表式で良く表すことができる。一方、[100] 方向に加えた場合では、より複雑な変化を示す。温度とともに伝導電子の散乱が抵抗率の温度変化と同じように変化し、また、有効質量も温度とともに増加しているとすると、この変化をほぼ定量的に説明することができる。周波数と強度の観測結果は、低温に向かって  $f$  電子が次第に遍歴し、それに伴って有効質量が増大している描像と矛盾がない。

### 3. まとめ

希薄合金において、低温では  $f$  電子は遍歴し、重い伝導電子が生まれていることが実験的に明らかとなった。また、 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  では  $T_K$  が Ce

濃度とともに増加することを考えると、この結果はこの系では Ce 濃度によらず  $f$  電子は遍歴していること、すなわち、量子臨界点において  $f$  電子の性質が変化することはないことを示唆している。

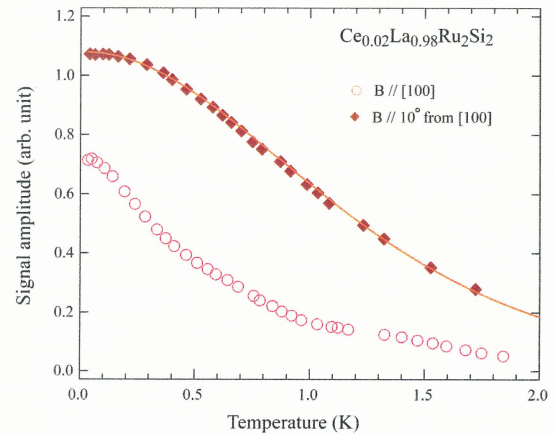


図 7.  $\text{Ce}_{0.02}\text{La}_{0.98}\text{Ru}_2\text{Si}_2$  試料の信号強度の温度変化。

### 謝辞

本研究は物質材料研究機構 寺嶋太一氏、宇治進也氏との共同研究である。低温生成のためにご助力をいただいた極低温科学センターの菊地将史氏、森山弘章氏、吹上菜穂氏に謝意を表したい。

### 参考文献

- [1] Q. Si, et al., Nature **413** (2001) 804.
- [2] Y. Matsumoto et al., J. Phys. Soc. Jpn. **79** (2010) 083706.
- [3] Y. Matsumoto et al., J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012) 054703.
- [4] H. Yamagami and A. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. **62** (1993) 952.
- [5] Y. Matsumoto et al., J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 053703.