

強相関電子系 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ におけるフェルミ液体の崩壊と非フェルミ液体の形成

極低温科学センター
極低温科学センター (現カシオ)
極低温科学センター (現カシオ)
極低温科学センター
極低温科学センター
極低温科学センター
東北学院大学

中村慎太郎 (nakamura@imr.tohoku.ac.jp)
山本悠史
遠藤元気
青木晴善
木村憲彰
野島 勉
國井 暁

1. はじめに

金属中の伝導電子は金属中に高密度に存在するにもかかわらず、自由電子モデルによってよく記述される。金属のフェルミ温度は1万度のオーダーであるので室温でも電子はフェルミ縮退しており、フェルミ液体として取り扱うことができる。フェルミ液体中の伝導電子同士の散乱はパウリの排他律とエネルギー保存則によって極端に抑制されてしまうため、金属中ではあたかも自由電子であるかのように振舞う。ただし、他の電子あるいは格子との相互作用により電子の有効質量は真空中の電子の質量とは異なっており、準粒子と呼ばれる。準粒子は一般には長い平均自由行程を持っているので、波数 k が準粒子の状態をあらわす量子数になる。非常に低い温度では準粒子のフォノンあるいはマグノンなどによる準粒子散乱は無視できるため準粒子の平均自由行程は準粒子-準粒子散乱によって支配され、電気抵抗の温度変化にはフェルミ液体の特徴である温度の2乗 (T^2) に比例した項が現れる。電気抵抗の T^2 項の比例定数 A は準粒子-準粒子散乱の散乱断面積に比例するため、電子相関の強さを表す指標となる。セリウム化合物などの磁性体中には磁性を担う局在 $4f$ 電子と伝導電子の混成に起因して準粒子-準粒子散乱の

散乱断面積が非常に大きくなる物質がある。フェルミ液体では係数 A は準粒子の有効質量の2乗に比例するので、これらは重い電子系 (ヘビーフェルミオン) と呼ばれる。

ここで取り上げる $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ は典型的な重い電子系として知られる CeB_6 の Ce イオンを 50% 非磁性の La イオンで置換した合金である。結晶構造は図 1 に示すように立方晶の CaB_6 型で B_6 の形作るネットワークの体心位置に磁性を担う Ce^{3+} もしくは非磁性の La^{3+} がひとつ入る。この物質の特徴は $4f$ 電子の結晶場基底状態 Γ_8 が結晶の高い対象性を反映した結晶場の中で4重縮退しており [1]、磁気双極子、電気四重極子、磁気八重極子などの多重極子モーメントを有する点である。通常重い電子系のモデルはスピン $1/2$ に対して考えられているが、このように高い縮重度を持つ磁性不純物の場合に電子系がどのような基底状態を取るのかは明らかではない。そこで極低温下での電気抵抗とド・ハース-ファン・アルフェン (dHvA) 効果により $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の電子の基底状態を研究することにした。

2. 実験方法

測定に用いた単結晶はフローティングゾーン法によって作成した。この方法は坩堝からの不純物の

たときに電気抵抗は図面上で直線に乗り、フェルミ液体の振る舞いを示す。この指数 D の磁場変化は $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の 4 回軸方向に磁場をかけると非フェルミ液体から長距離秩序の発生を伴ってフェルミ液体（ヘビーフェルミオン）への転移が起ることを示している。図 1 にこの結果を書き加えた。電気抵抗の T^2 の係数 A の磁場変化をプロットしたのが図 4 である。係数 A は磁場の減少とともに 1 T 近傍に向かって発散する。このことは準粒子-準粒子散乱の散乱断面積が有限磁場に向かって発散的に増大することを意味する。1.8 T での $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の A の値は $28.8 \mu\Omega\text{cmK}^{-2}$ であり、 CeB_6 の零磁場における値の約 35 倍である。準粒子描像が成り立つためにはある程度準粒子の平均自由行程が長くなければならぬから散乱断面積の極端な増大はフェルミ液体を不安定にすると思われる。この結果、 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ ではフェルミ液体が低磁場で崩壊し、非フェルミ液体が実現すると思われる。

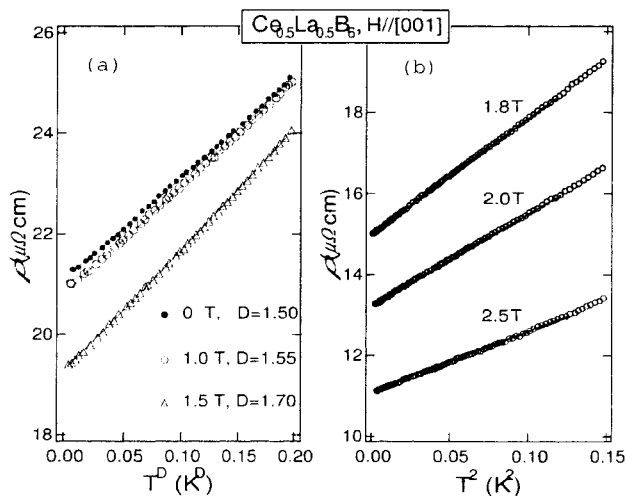


図 3. $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の電気抵抗の (a) 常磁性相 (I 相)、(b) 反強磁性相 (III 相) における温度依存性 [6]。磁場は [001] 方向にかけ、電流は [110] 方向に流している。

実際に $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ でフェルミ液体が実現しているかを dHvA 効果の測定でも確かめることにした。図 5 は $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ で観測された dHvA 振動の例である。温度は 30 mK で磁場は 4 回軸に

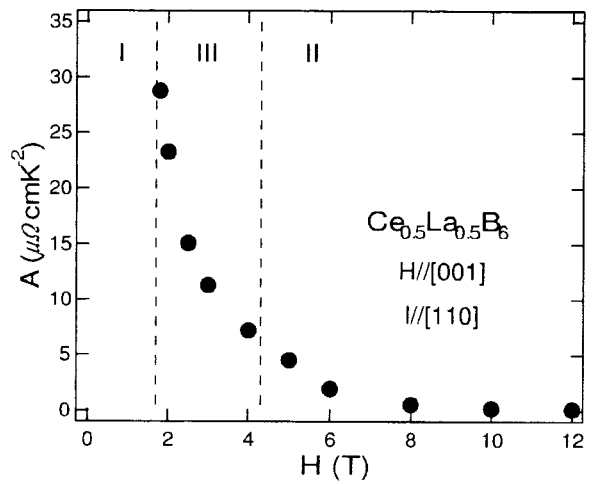


図 4. $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の電気抵抗の T^2 項の係数 A の磁場変化 [6]。磁場と電流はそれぞれ [001] 方向、[110] 方向に向いている。

かかっている。磁場の大きさ 13-16 T で dHvA 振動が観測された。準粒子の回転運動による自己干渉効果が量子振動として現れている。この磁場範囲で dHvA 効果から求められた準粒子の有効質量は電子の質量を m_0 として $6.7m_0$ であり、重い電子系が実現していることが明らかである。図 5 中のインセットにこの振動のフーリエスペクトルを示した。フーリエスペクトルのピーク位置より、この dHvA 振動が $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の主要フェルミ面である α_3 からのものであることがわかった。また α_3 の極値断面積に対応する dHvA 振動の周波数は CeB_6 と LaB_6 の中間的な大きさであることもわかった。このことは α_3 フェルミ面の極値断面積が平均的な Ce 濃度に対応したものであることを示す。言い換えれば、 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ 中の準粒子は結晶中の平均的な Ce イオン濃度を感じながら運動していると考えられる。これは高磁場中では準粒子の平均自由行程が Ce イオンの平均距離よりも十分長いことを意味すると思われる。

4. まとめと課題

CeB_6 は典型的な重い電子系としていられていたが、 CeB_6 の電気抵抗の T^2 項の係数 A はそれほど大きくなく、重い電子系としては比較的電子相関

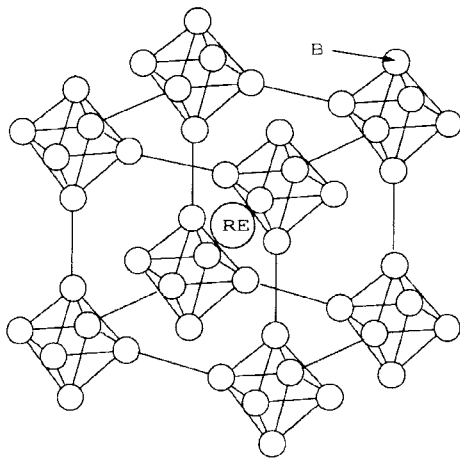


図1. $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の結晶構造。小さい球がホウ素、大きい球が希土類イオン。

混入を防ぐことができるので高品質の単結晶を育成できる。試料の冷却は極低温科学センター極低温物理学部のオックスフォード社製トップローディング型希釈冷凍機を使った。電気抵抗の測定は通常の dc 4 端子法によった。試料を $8 \times 0.7 \times 0.2 \text{ mm}^3$ に成型した後、50%の希釈した硝酸に漬け表面をエッチした。極低温下の測定では接触抵抗が大きいとジュール熱により自己発熱を起こすため、接触抵抗を極力小さくすることが重要になる。そこで電極として金をスパッタリングにより試料表面に付けた。電極に金メッキしたりん青銅のリード線を圧着し、接触抵抗を小さくした。また試料を銅板に GE7031 ワニスで接着し、試料からの発熱を ^3He - ^4He 混合液に広い表面積を通じて逃がすようにした。DHvA 効果の測定は一般的なモジュレーション法によった。DHvA 効果の測定に用いた試料は $1.4 \times 1.4 \times 6 \text{ mm}^3$ の直方体の単結晶である。この単結晶をピックアップコイルの中に入れ、 ^3He - ^4He 混合液に試料を浸した状態で測定した。磁場の印加方向はピックアップコイルに取り付けられた回転機構によって変えることができる。

3. 実験結果と考察

$\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ の磁気相転移に関する研究は多い [2]。後の説明の都合上、最初に超音波測定と比熱

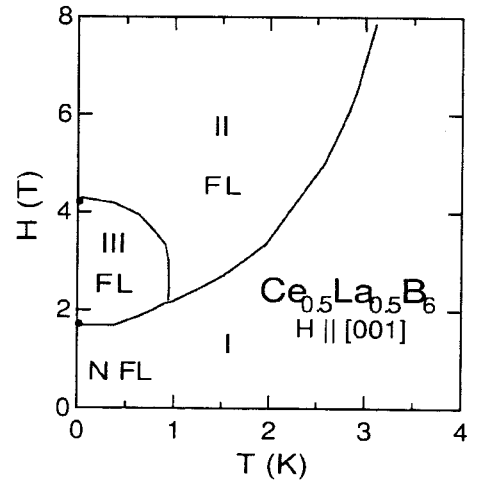


図2. $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の温度 - 磁場相図。I相は常磁性相、II相は反強磁的電気四重極相、III相は反強磁性相。FLはフェルミ液体、NFLは非フェルミ液体を表す。

測定から求められた $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の温度 - 磁場相図を図2に示す [3, 4]。ここでI相は常磁性相であり、II相は反強磁的電気四重極相である。II相では異なる量子数を持つ電気四重極子が交互に配列した秩序相とされている。III相は反強磁性相である。低磁場では秩序相は低温まで長距離秩序が出現しない。磁場を $\mathbf{H} \parallel [001]$ に印加すると中間的な磁場領域で反強磁性相 III 相が誘起される。さらに磁場を強くすると III 相は消滅して II 相が出現する。II相は秩序変数が電気的なモーメントであるため、磁場に対して強く、30 TでI相へと転移する [5]。

図3は $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の電気抵抗の温度変化である [6]。0-1.5 T は常磁性相のデータである。図3 (a)の横軸は T^D に縦軸は電気抵抗に線形にとっている。温度範囲はおおむね 60-300 mK である。横軸を T^D にとっているのでフェルミ液体であれば指数 $D = 2.0$ のとき電気抵抗は図上で直線になる。しかしながら実際のデータが直線に乗る指数は0、1.0、1.5 Tのときそれぞれ $D = 1.50$ 、 1.55 、 1.70 である。これは非フェルミ液体が実現していることを示唆している。一方で図3 (b)のIII相における電気抵抗の温度変化を見ると指数 $D = 2.0$ にとつ

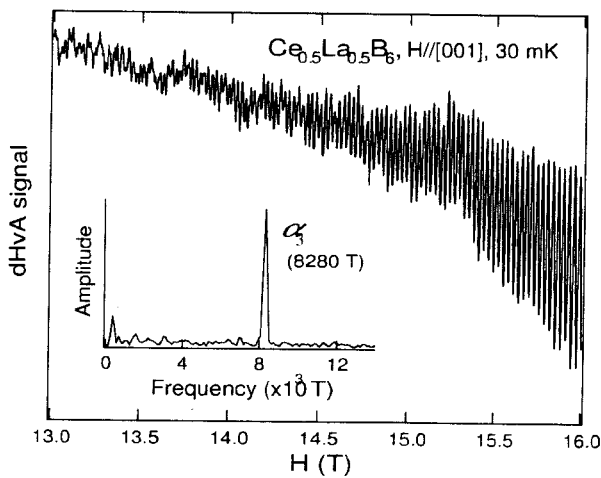


図5. $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の dHvA 振動 [6]。磁場は [001] 軸方向にかけられている。 α_3 ブランチに対応する振動が見えている。インセットは dHvA 信号のフーリエスペクトル。

の弱い系であるとされ、 CeB_6 の物性を考える上の前提にされてきた。しかしながら非磁性の La による希釈で電子相関の非常に強い状態があらわれることが明らかになった。 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ では低磁場領域に向かって準粒子-準粒子散乱の散乱断面積が非常に大きくなる。この結果、 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ における低磁場でのフェルミ液体の崩壊と非フェルミ液体の出現が起こると考えられるが、このことと $4f$ 電子の結晶場基底状態 Γ_8 の縮重度が大きいことが関連するかはまだ明らかでない。今後の理論的研究が待たれるところである。 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ は外部磁場をコントロールパラメータとして比較的軽いヘビーフェルミオン、非常に重いヘビーフェルミオン、非フェルミ液体間の状態変化を起こす珍しい物質である。 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の非フェルミ液体は秩序-無秩序相転移近傍の量子臨界現象による非フェルミ液体とは異なり、コントロールパラメータの変化に対して安定である。実際、磁場によって相転移を起こして非フェルミ液体が出現するというはこの非フェルミ液体が熱力学的に安定であることを意味する。安定した非フェルミ液体としては一般的には絶縁相や超伝導相が考えられるが、 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ はどちらにもならなかつ

た。 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ の安定した非フェルミ液体形成の機構、そして Γ_8 基底状態との関連についても説明が望まれる。

謝辞

$\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ の磁気相図の研究に関して新潟大学自然科学研究科の後藤輝孝教授、根本祐一助教授との共同研究が重要であった。また、物質材料機構の鈴木 修博士、産総研の赤津光洋博士にも共同研究をしていただいた。日本学術振興会からは科学研究費補助金を受けた。ここに感謝いたします。

参考文献

- [1] E. Zirngiebl *et al.*, *Phys. Rev. B* **30** (1984) 4052.
- [2] For example, J. M. Effantin *et al.*, *J. Magn. Magn. Matter.* **47&48** (1985) 145.
- [3] S. Nakamura *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn. (suppl.)* **71** (2002) 112, references there in.
- [4] S. Nakamura *et al.*, *Phys. Rev. B* **61** (2000) 15203.
- [5] M. Akatsu *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **93** (2004) 156409.
- [6] S. Nakamura *et al.*, *Phys. Rev. B* **68** (2003) 100402(R).