

# CeIn<sub>3</sub> の有効質量の磁場とスピンの依存性 — 圧力下の dHvA 効果による研究

極低温科学センター 遠藤元気、木村憲彰、青木晴善 (aokih@mail.clts.tohoku.ac.jp)

## 1. はじめに

通常金属では磁場を加えても、アップスピンとダウンスピンの伝導電子の有効質量に相違はない。一方、強磁性金属では伝導電子帯はアップとダウンスピンバンドに分裂し、それぞれ異なったフェルミ面を持つと同時に伝道電子の有効質量もアップスピンとダウンスピンの電子で異なる。多くの場合はアップとダウンスピンバンドの有効質量の差はバンドの分裂の大きさに対応する。ところが、最近、強相関 f 電子系物質ではアップとダウンスピンの伝道電子のフェルミ面には差がほとんど無いにもかかわらず、有効質量には大きな違いがあることが明らかになってきた[1, 2]。また、強相関 f 電子系では CeB<sub>6</sub> のように有効質量は磁場の強さに大きく依存するものがあることが知られている[3]。強相関 f 電子系は、ほとんど局在した f 電子と伝道電子から構成され、その物性は局在 f 電子と伝道電子の相互作用を起源とする近藤効果と RKKY 相互作用の競合で理解されると考えられている。有効質量の磁場依存性やスピン依存性は磁場とこれらの相互作用との競合から生じるものであるが、その機構は明らかになっていない。本研究では CeIn<sub>3</sub> に圧力を加え、Kondo 効果と RKKY 相互作用の相対的な大きさを変化させ、有効質量のスピンと磁場依存性が圧力とともにどのように変化するかをド・ハースーフアン・アルフェン(dHvA)効果により調べた[4]。

CeIn<sub>3</sub> は AuCu<sub>3</sub> 構造をもち、10.1K で磁気モーメントが強磁的に配列した {111} 面が <111> 方向に反強磁的に配列する。圧力を加えていくと、10 - 15kbar で Kondo 効果の強さが RKKY 相互作用

の強さを上回るようになり[5]、さらに、26kbar で磁気的な量子臨界点に到達する。この近傍では超伝導が出現する[6]。したがって、CeIn<sub>3</sub> では 30kbar 程度の圧力を印加することにより、RKKY 相互作用の優勢な領域、Kondo 効果の優勢な領域、量子臨界点近傍の領域のそれぞれについて電子状態がどのように移り変わっていくかを調べる事が可能である。

## 2. 実験結果と考察

図1に常圧で磁場を[001]方向に加えた時の信号の様子とそのフーリエスペクトルを示す。これまでに観測されている d 振動以外に多数の新しい周波数が観測された。本研究ではデジタルフィルターにより d 振動を抽出し、その波形、振幅、振動の位相の磁場、温度変化を調べた。

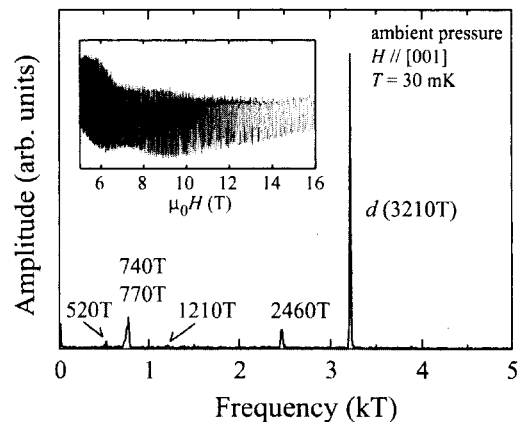


図1. CeIn<sub>3</sub> の dHvA 信号 (挿入図) とそのフーリエスペクトル。

図2の上部に常圧における3つの温度での d 振動の様子を示す。最低温の 30mK においては

信号振幅は磁場とともに単調に変化せず、極小値を持つことがわかる。温度の上昇とともに、極小値が目立たなくなり、磁場とともに単調に増加する。これらの変化の様子は、ふたつの異なる周波数から生じるビート現象では理解が困難で、アップスピンとダウンスピンの電子で有効質量が異なっており、さらに有効質量が磁場変化すると仮定するとその振る舞いの理解が可能である[1]。詳しい解析によると、有効質量には数倍程度の差があることが推定できる。図2の下部には通常の方法（観測された信号振幅の温度変化の解析）で求めた有効質量の磁場変化を示す。アップとダウンスピン間で有効質量に大きな差があるために、求められた有効質量はほぼ軽いほうの有効質量に対応する。多くの強相関  $f$  電子系では有効質量は磁場とともに減少するが、常圧では磁場の増加とともに増加していることがわかる。6T付近の極小値はビート構造により信号強度が低温で極小値をもつために生じる見かけ上の効果である。最近、パルス強磁場で dHvA が行われており、CeIn<sub>3</sub> においては有効質量が磁場とともに増大し、約 60T で量子臨界点に達することが報告されており、本測定結果はそれらの結果と対応する[7]。

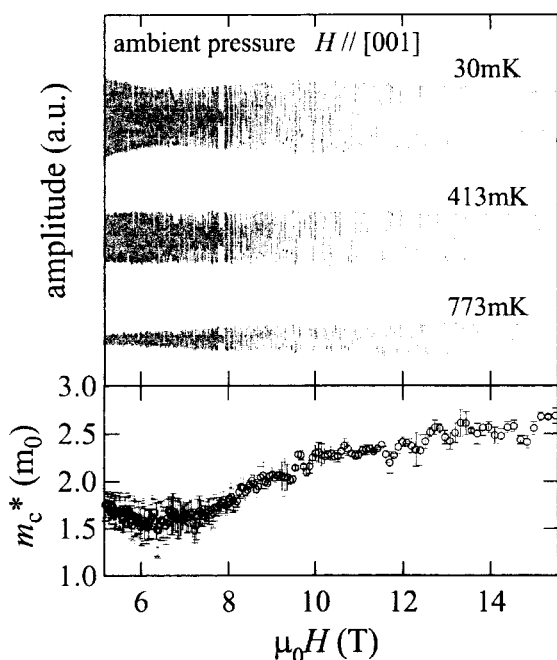


図2. 波形の温度変化 (上) と有効質量の磁場変化 (下)。

次に圧力を加えた場合にもどのように電子状態が変化するかを述べる。図3の最上部の図は  $d$  振動の周波数の圧力変化を示している。常圧での周波数からの相対的变化  $([F(P) - F(0)] / F(0))$  で周波数変化を示している。 $d$  振動の周波数は4つの圧力  $P_1, P_2, P_3, P_4$  で特徴的な変化をしていることがわかる。周波数は圧力とともに増加し、 $P_1$  を越えるとその増加の割合は増大する。この圧力は Kondo 効果が RKKY 相互作用より優勢となる圧力近傍に対応する。また、 $P_2$  を境として周波数に急激な変化が起こる。この圧力は NQR の測定による  $T_N$  が急激に減少する圧力と対応する[8]。さらに  $P_3$  を越えると周波数に急激な変化が起こり、同時に新しい周波数  $X_1, X_2$  が観測されるようになる。この  $P_3$  は報告されている臨界圧力 (約 26kbar) にほぼ対応する。 $P_3$  を境としてフェルミ面に大きな変化が起こっていることを示している。さらに圧力を増加させると、 $P_4$  を境として  $X_1$  のみに大きな変化が起こる。 $P_4$  での  $X_1$  のみに起こる変化

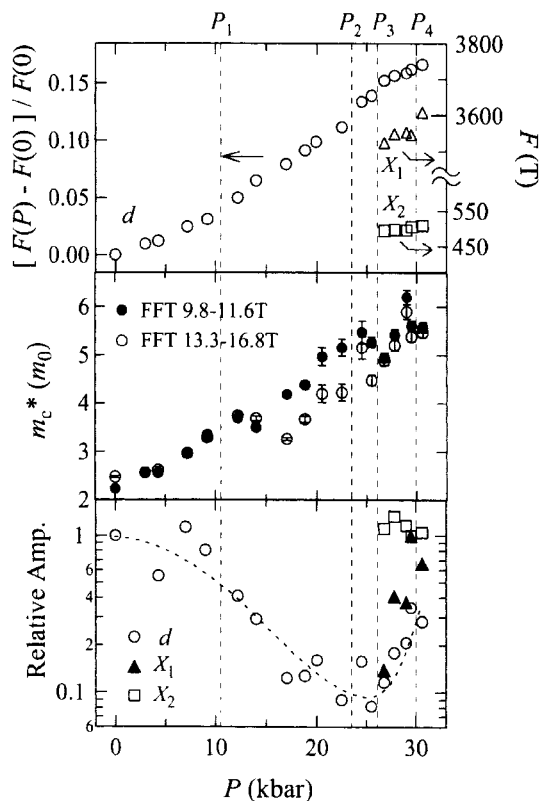


図3. 上図: dHvA 周波数の圧力変化。中図:  $d$  振動の有効質量の圧力変化。下図: dHvA 振動の振幅の圧力変化。

はさらにこの圧力で磁性状態に何らかの変化が起こることを示唆している

図 3 の中央の図は有効質量の圧力依存性を表す。黒丸は低磁場 (9.8–11.6T) で求めた有効質量、白丸は高磁場 (13.3–16.8T) で求めた有効質量を表す。常圧では磁場とともに有効質量は増大するが、 $P_1$  を越えると有効質量は磁場とともに減少するようになり、減少の割合は圧力とともに増加する。有効質量の磁場変化の方向がこの圧力を境にして反対になることは、RKKY 相互作用と Kondo 効果の大小関係が逆転することと対応すると考えられる。 $P_3$  近傍から、減少の割合は小さくなり、 $P_1$  を越えるとほぼ磁場に依存しなくなる。また、有効質量の値は圧力とともに増大し、有効質量が最も大きくなると期待される臨界圧力近傍  $P_3$  ではなく、 $P_1$  近傍で最大値を取る。これは、有効質量の磁場による減少が  $P_3$  以下で大きいのに対して、 $P_1$  以上では有効質量の磁場による減少が小さく、dHvA 効果を観測する強磁場ではゼロ磁場での有効質量の大小関係が逆転するためである。

図 3 の下部は信号の強度の圧力変化をあらわす。 $d$  振動の強度は常圧での値に規格化してある。 $X_1$  および  $X_2$  の強度は 29.6kbar の値で規格化してある。 $d$  振動の強度は圧力とともに減少し、臨界圧力  $P_3$  近傍で最小値を取ったあと、増加する。通常、信号強度は有効質量が大きいほど小さい。信号強度の最小値が有効質量が最大値となる  $P_1$  近傍ではなく、臨界圧力近傍であることは、有効質量に寄与する何らかの揺らぎが、信号強度の減衰にも寄与していることを示している。 $X_2$  の強度はほとんど変化しないが、 $X_1$  の強度は圧力とともに急激に増大する。周波数の変化と同様に  $X_1$  が関係するフェルミ面でのみに影響する変化が起こっていることを示唆している。

有効質量のスピン依存性を調べるために波形と位相の圧力変化を調べた。図 4 の (a)、(b)、(c) にそれぞれ常圧、16.9kbar、30.6kbar の波形を示す。これらの圧力は有効質量が磁場とともに (a) 増加 (b) 減少 および (c) ほ

とんど変化しない圧力領域に対応する。図 (a)、(b) では信号強度が顕著な極小値を示すのに対して、(c) ではほぼ単調に変化する。周期の小さいビート構造は  $X_1$  振動との干渉効果によるものである。

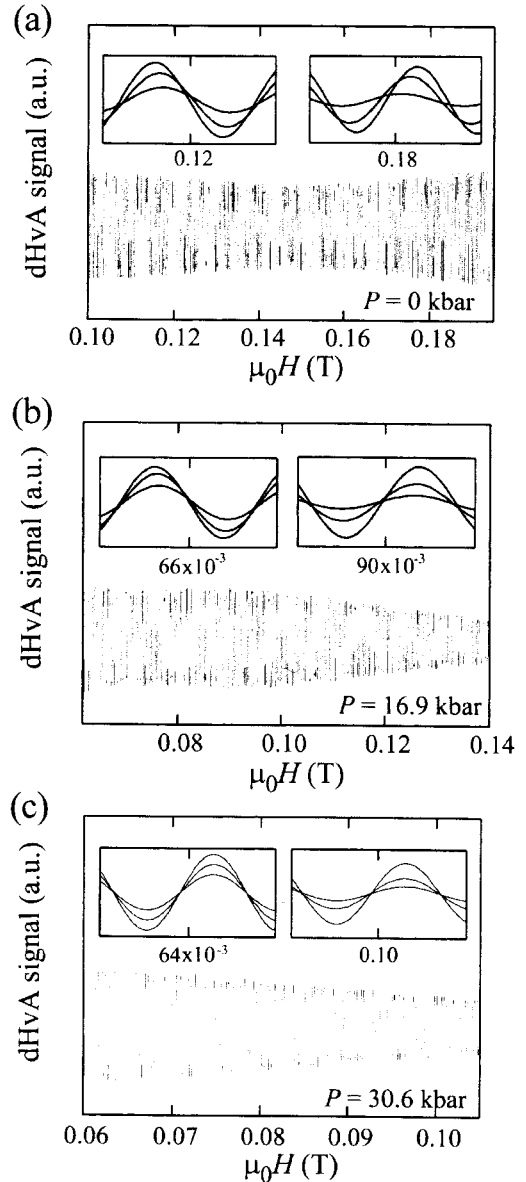


図 4. (a) 常圧、(b) 16.9kbar、(c) 30.6kbar における dHvA 振動波形。挿入図：3つの異なった温度での振動の位相の変化。

(a)、(b) の挿入図には極小値を取る位置の両側の磁場で、3つの異なった温度での波形を示している。温度の上昇とともに振幅が小さくなり、それとともに振動の位相が (a)、(b) ともに極小値を取る磁場に向かって移動していることがわかる。通常金属で用いられる

Lifshitz - Kosevich による dHvA 振動の式を本研究のように有効質量が磁場およびスピンの依存する場合にも現象論的に拡張すると、以下のようにならわすことができる。

$$M(H, T) = A_{\uparrow}(H, T) \sin \left[ \frac{2\pi F_{\uparrow}}{H} + \xi_{\uparrow}(H) + \xi_0 \right] + A_{\downarrow}(H, T) \sin \left[ \frac{2\pi F_{\downarrow}}{H} + \xi_{\downarrow}(H) + \xi_0 \right]$$

ここで  $F_{\sigma}$  ( $\sigma = \uparrow$  or  $\downarrow$ ) は周波数を表わす。また、 $\xi_{\sigma} = \mp \pi g m_{\sigma}^*(H) / (2m_0)$  であり、 $g$  は  $g$  ファクター、 $m_{\sigma}^*(H)$  はスピンと磁場に依存する有効質量である。 $\xi_0$  は磁場とスピンの依存しない位相である。また、本研究の範囲内では周波数は実験誤差の範囲内でスピンと磁場に依存しないことがわかっているため、一定としてある。本稿では詳しく述べないが、上記の式を仮定すると、位相の変化はアップスピンとダウンスピンの有効質量の平均値が磁場とともに増加するか、減少するか、およびアップスピンとダウンスピンの有効質量のどちらが大きいかの4つの組み合わせで温度上昇とともに位相が極小値の磁場の方向に向かうのか、あるいは遠ざかる方向に変化するのかが一意的に決まる。

(a) と (b) では有効質量の磁場に対する変化の方向は反対であるのに、位相はともに極小となる磁場に向かって温度上昇とともに変化する。上記の関係からアップスピンとダウンスピンの大きさの関係は両方の圧力で反対であることが推定できる。すなわち、有効質量の増減の方向が逆転するとともに、アップスピンとダウンスピンの有効質量の大小関係が逆転することを示している。このことは  $P_1$  近傍を境として優勢な相互作用が交代することと対応していると考えられる。

一方、(c) においてはいずれの磁場においても位相は温度変化しない。上記の式からアップスピンとダウンスピンの有効質量が等しい場合、このように位相が変化しないことがわかる。す

なわち、 $P_3$  より十分高い圧力では、有効質量に磁場依存性がなくなるとともに、スピンの依存性もなくなることを示している。

強相関  $f$  電子系では熱的な測定により求めた有効質量がしばしば dHvA 効果で測定される有効質量よりしばしば大きいことがある。このことは観測できない重い有効質量をもつ別なフェルミ面が存在する可能性を示唆している。どのようなフェルミ面が存在するかを明らかにすることは、 $f$  電子の遍歴、局在にも関わる重要な事項である。本研究は強相関  $f$  電子系では、アップとダウンスピンでフェルミ面の大きさはほとんど等しいにも関わらず、有効質量が大きく異なる状況が広汎に存在することを強く示唆している。

## 謝辞

本研究は物質材料研究機構の寺嶋太一博士、宇治進也博士、松本武彦博士、静岡大学の海老原孝雄博士との共同研究である。

## 参考文献

- [1] M. Takashita *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 515.
- [2] N. Harrison *et al.*, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 870.
- [3] W. Joss *et al.*, Phys. Rev. Lett. **59** (1987) 1609.
- [4] M. Endo *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 247003.
- [5] G. Knebel *et al.*, Phys. Rev. B **65** (2001) 024425.
- [6] N. D. Mathur *et al.*, Nature **394** (1998) 39.
- [7] T. Ebihara *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 246401.
- [8] S. Kawasaki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 1647.