

Title	Upd <sub>2</sub> Al <sub>3</sub> における重い電子状態の強磁場による消失
Author(s)	杉山, 清寛
Citation	大阪大学低温センターだより. 87 P.9-P.13
Issue Date	1994-07
Text Version	publisher
URL	<a href="http://hdl.handle.net/11094/6520">http://hdl.handle.net/11094/6520</a>
DOI	
rights	
Note	

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

# UPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub>における重い電子状態の強磁場による消失

理学部 杉山清寛\*(豊中5370)

## 1 はじめに

「おもしろい物質が見つかったな。」平成3年の秋に行われた北大の学会でUPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub><sup>1)</sup>の発表を聞いた時に最初に受けた印象である。この新しく発見された重い電子系物質は強磁場で重い電子状態が壊れる事が判っているURu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub><sup>2)</sup>にその物性がよく似ていた。ただ似ていただけではない。磁性のキーポイントとなる反強磁性を示す局在モーメントの大きさとその異方性が決定的に違っていた。これを測って比べたらおもしろいだろう。これが発表を聞いたときの素直な感想であった。そのおもしろい物質の良質な単結晶の作成に東北大学の小松原先生のグループが成功していた。

我々の分野では現在、非常に注目されている重い電子系であるが、何がおもしろいのだろうと思われる方もおられるかもしれない。重い電子系は電子比熱係数の $\gamma$ が普通の金属に比べて異常に大きい物質群で、超伝導を示すCeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>の発見で注目を浴びた物質群である。おもにCe、Yb、Uなどの金属間化合物でみられ、常温での金属的な電気抵抗が温度を下げて行くと近藤効果を示して増加し、さらに温度を下げると低温で急激に減少するという異常な振る舞いを示す。この低温での電気抵抗の急激な減少はf電子と伝導電子の間の相関によるf電子の「履歴化」によって起こると考えられている。流れ出したf電子が「重い」電子の原因と考えられる。この「重い」電子がf電子というお里の様子を引きずって超伝導になったりするのでおもしろくないはずがない。現在、磁性、超伝導の分野で中心的な興味の対象になっている。

我々の興味はその磁性にある。つまり、近藤効果の延長線上にある重い電子状態は磁気モーメントを持ったf電子と伝導電子の混成による新しい凝縮状態でf電子は磁気モーメントを失って重い電子として走り回っていると考えられる。この考えが正しいとすると強磁場中では磁気モーメントを持っている状態がゼーマンエネルギーを得するため、f電子の磁気モーメントが死んでいる重い電子状態よりはf電子のモーメントを持ったノーマルな状態の方がエネルギーを得する。つまり、重い電子状態は強磁場によって壊されて普通の金属になりf電子の磁気モーメントが復活すると考えられる。この点に注目して我々は重い電子系の強磁場中での磁化測定を行っており、最初に述べたようにURu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>において明確な3段のメタ磁性を発見し、これが磁場によって重い電子状態が壊された為であることを示した。その続編が今回のUPd<sub>2</sub>Al<sub>3</sub>である<sup>3)</sup>。

## 2 測定結果

まず、測定結果を見てもう前に中性子回折<sup>4)</sup>などの実験で得られている結晶構造と14Kのネール点以下で示される反強磁性の磁気構造を図1に示す。Uイオンを白い丸で示し、磁気モーメントは黒い矢印で示してある。結晶構造は六方晶であるが格子常数などを考えると磁性イオンであるUイオンは磁気モーメントが反強磁性を組んだc軸方向の直線鎖がc面内で三角格子を組んでいると考えるのが良いだ

\*大阪大学極限物質研究センター兼任

ろう。面内では磁気モーメントは強磁性的に並んでいる。この物質の大きな特徴は低温での反強磁性状態でf電子が示す磁気モーメントが重い電子系としては異常なくらい大きな $0.85 \mu_B$ を示す点である。この磁気モーメントはc面内を向いている。後で示す我々の実験や帯磁率の異方性<sup>5)</sup>などよりスピンはほぼXY型と考えられる。最初に示した $URu_2Si_2$ との大きな違いはこの二点である。 $URu_2Si_2$ はイジングスピン系で $0.03 \mu_B$ の磁気モーメントしか持たない。これらが重い電子系とどう係わりメタ磁性がどうなるかを調べるのが我々の目的である。

図2に測定結果を示す。(a)はac面内で磁場をまわした結果であり、(b)はc面内の異方性をみている。 $\theta$ はa軸からc軸方向への角度、 $\phi$ はc面内の角度である。我々の予想通り非常にシャープな1段のメタ磁性を磁場をa軸方向にかけたとき( $\theta = 0^\circ$ 、 $\phi = 0^\circ$ )  $H_c = 18T$ の磁場で発見した。その強磁場側の磁化はなんと $1.5 \mu_B$ にも達している。これは局在モーメントの $0.85 \mu_B$ を約2倍も越えている。我々は今までにU化合物の強磁場磁化を数多く測ってきているが、面白い事にそれらの磁化の多くが強磁場下で $1.5 \mu_B$ の磁化を示してf電子のモーメントが飽和している。これらの事を考えあわせると、このメタ磁性は重い電子状態が壊れてf電子本来の磁気モーメントがでてきたことを示しているように見える。直感的にはこれでいい様に思われるが、果たしてそうだろうか。またそのメカニズムはどうなっているのだろうか。

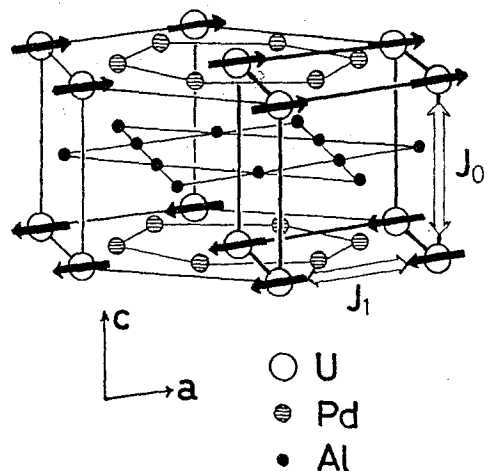


図1  $UPd_2Al_3$ の結晶構造と反強磁性の磁気構

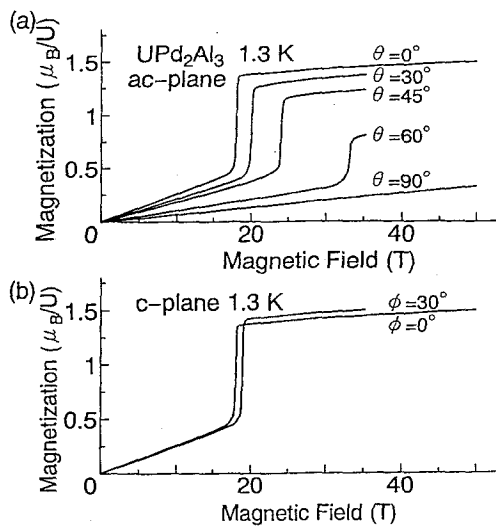


図2 1.3Kでの磁化過程。

まず、相転移の特徴を調べるために我々は温度変化の実験を行ってみた。このメタ磁性は転移磁場はほとんど変化しないのであるがその形は $T_N$ を境として急激にぼやけてくる。そして帯磁率にピークがある30K以上では見えなくなる。これは $URu_2Si_2$ <sup>2)</sup>と同じである。次に図2にも示した様に角度変化の実験を行った。転移磁場の角度変化は、図3に示すようにc軸方向へは磁場の面内への投影分のみが磁気モーメントにかかるXY型の角度変化 $1/\cos\theta$ によく一致している。c軸方向では50Tまでメタ磁性は示さなかった。磁気モーメントの変化もc軸方向へ向かうと急激に減少しており、その角度依存性もスピンの系がXY型であることを示している。c面内にはわずか1Tではあるが小さな角度変化があり、面内に6回対称のわずかな異方性があることが解る。これらの事より、この物質はほぼXY型のスピン構造を持っており、その面内方向に磁場をかけたときにメタ磁性を起こす事が分かる。またその異方性は強磁場まで変化していない。

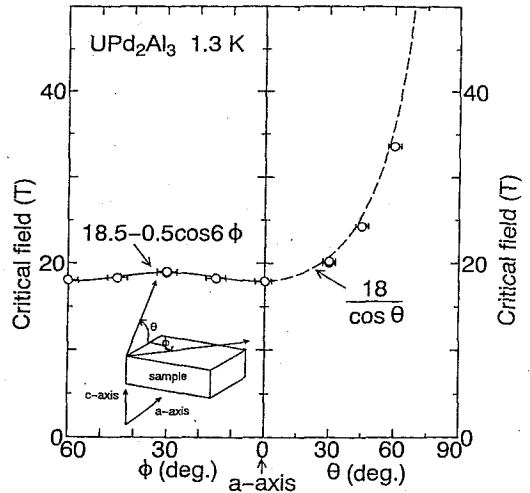


図3 転移磁場の角度変化。点線は計算曲線。

### 3 重い電子状態の強磁場による消失

XY型のスピンというのはc面内の異方性がない。このようなスピン系の普通の反強磁性状態にc面内に磁場をかけた場合どうなるだろうか。この答は簡単である。今、温度効果は考えない。c面内に異方性がないため、反強磁性相関を大きく損せず磁気モーメントが発生するスピン構造は反強磁性の磁気モーメントがそれぞれ磁場に垂直方向から磁場方向へ磁場の増加と共にゆっくり傾いてゆくキャント構造である。異方性がc面内にあると、当然、磁場がない場合は異方性を得する方向に磁気モーメントは向いている。磁場をかけてゆくと、容易軸方向に磁気モーメントが向いた反強磁性状態は磁気モーメントが現れず、ゼーマンエネルギーを得しない。そのため、異方性エネルギーを損してもゼーマンエネルギーの得になるキャント構造にある磁場で転移する。これがスピフロップである。c面内の異方性が強くキャント構造で得するゼーマンエネルギーで異方性の損するぶんをまかなえない場合、キャント構造にならずにそのまま反強磁性状態から強磁性状態へ異方性を損しないように転移する。これがいわゆる反強磁性でのメタ磁性である。

我々の $UPd_2Al_3$ はどうであろうか。角度変化の実験より大きな面内の異方性は存在しない事が判っている。つまり、 $0.85 \mu_B$ の磁気モーメントによる通常の反強磁性の磁化過程と考えると、磁化の飛びは起こったとしてもかなりの低磁場でのスピフロップしか有り得ない。ところが実際の測定では18Tと高い磁場で非常にシャープなメタ磁性が観測されている。この点がこの物質のメタ磁性の大きな謎である。そしてこの謎を解く鍵が重い電子状態の強磁場による消失でありであり、我々の解析の糸口になる。

最初から述べている事とこの謎を考え合わせると次のようなモデルが考えられる。まず、メタ磁性の起こる磁場より低い磁場での磁化過程を考える。この領域では直線の磁化が現れている。この傾きは $T_N$ での帯磁率にほぼ一致する事などから、 $0.85 \mu_B$ の磁気モーメントによる前出のキャント構造による磁化と考えてよさそうである。もし、このままメタ磁性が起らなかった場合、磁化は37Tの磁場で $0.85 \mu_B$ の磁化で飽和することになる。図4にLow Spin State (LFS) としてこの磁化(下半分)と分子場で計算したエネルギー(上半分)を破線で示してある。ところが実験では18Tの磁場でメタ磁性が起っている。つまり、反強磁性状態から何らかの別の相へ転移したと考えられる。強磁場側の相は磁気モーメントが $1.5 \mu_B$ ある状態であり、磁気モーメントは飽和している。従って磁気的にはこの磁場より低い磁場で反強磁性状態の磁化が飽和しているか、あるいは強磁性的な相互作用を持った状態と考える事が出来る。その様な状態がLFSに対してメタ磁性の起こる磁場 $H_c$ でエネルギー的に低くなってメタ磁性が起こると考える。この状態をHigh Field State (HFS) と呼ぶ。図4には一点鎖線で現している。LFSは反強磁性状態(AF)が低磁場で安定である必要があるがHFSは強磁性(F)であってもかまわない。反強磁性の場合、図で示しているように飽和磁場 $H'_s$ が $H_c$ より小さい事が条件となる。HFSを示す記号はLFSと区別するためすべて' を付けている。

図4では実はLFSに $-7$  K程度の $U_{HF}$ というエネルギーの下駄をはかしている。 $U_{HF}$ を負で大きくする事によってLFSのエネルギーを下げている。ゼロ磁場では系は重い電子系状態にある事から、重フェルミオン状態を作る事によって得するエネルギーと考える事が出来る。いま、興味の焦点は次の2つである。重い電子系を作るエネルギー $U_{HF}$ ははたしてこのメタ磁性を説明するのに必要か?そしてUイオン間の交換相互作用はLFSとHFSでどう変わるか?この2点を上のモデルに従って分子場近似を用いて調べる。ここでは紹介という事で詳細な計算はのぞくがこの2つの問題は独立ではない。計算については文献<sup>3)</sup>を参照して頂きたい。交換相互作用は $H'_s$ が $H_c$ より小さいという条件よりHFSのUイオン間の交換相互作用 $J'$ がLFSの交換相互作用 $J$ に比べて $J'/J \leq 0.275$ を満たせば良い事が解る。ところが $U_{HF}$ は $J'$ の大きさに伴って変化する。図4で示すとメタ磁性が $H_c$ で起こるという事は $U_{AF}$ と $U'_F$ が一番エネルギーの低いレベルとして $H_c$ で交われば良い。従って、仮に $J'$ が強磁性的にどんどん大きくなると $U'_F$ が下がると $U_{AF}$ を下げるように $U_{HF}$ が大きくなるわけである。しかし $J'$ の一番端の条件 $J'=0.275J$ においても $U_{HF}$ は0にはならない。つまり $U_{HF}$ は負で有限に存在し、それが $H_c$ でLFS→HFS転移で消失する事がこのメタ磁性を説明するために必要なのである。正確にいうとここでの $U_{HF}$ はLFSとHFSのエネルギー差であり、 $H_c$ での重い電子エネルギーの変化分という事になるが、磁気モーメントの大きさ等を考えると $H_c$ で重い電子状態が消失すると結論づける事が出来る。

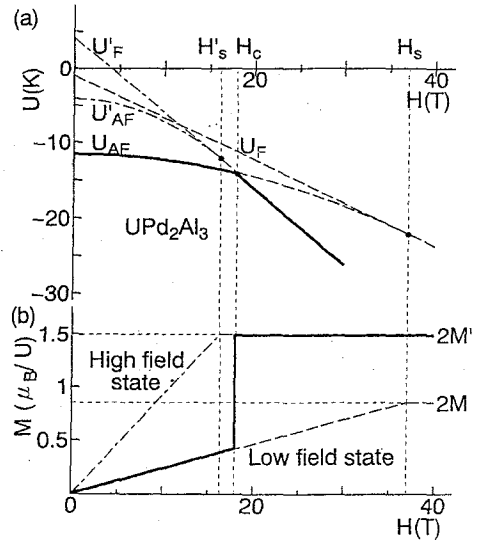


図4 モデルによる自由エネルギーの磁場変化(a)と磁化過程(b)。

このメタ磁性を説明するためには重い電子状態の消失と交換相互作用の変化という2点が必要な事を述べた。ではなぜ交換相互作用が変化するのだろうか。これは重い電子系の成り立ちがc-f混成による事に由来すると考えられる。つまり、重い電子状態がH<sub>c</sub>で消失するためc-f混成が解けf電子のモーメントが復活するのだが、当然、伝導電子をふくめたf電子の環境にも大きな影響がある。このためRKKY相互作用に代表されるU-U間の相互作用はH<sub>c</sub>の前後で大きく変わる事になると定性的に説明できる。URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>では重い電子状態の消失のみが発見され、交換相互作用の変化は見つけられなかったが、低磁場での磁気モーメントが0.03μ<sub>B</sub>と小さく、かつ、イジング系で反強磁性状態で磁化が現れなかったためこのような情報は得られなかった。しかし、メカニズム的には同様な事が起こっていると考える事が出来る。

この様に重い電子状態は強磁場によって消失する事が局在磁気モーメントの大きさにはよらずに起こっている事が解った。我々が示した強磁場によって重フェルミオン状態が壊れる事は最近、CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>等の反強磁性秩序の見られない系でも比熱の測定<sup>6)</sup>、ドハースファンアルフェン効果の測定等<sup>7)</sup>により、メタ磁性の起こる物質では見られる事が明らかになりつつあり、メタ磁性を示す重い電子系の一般的な振舞いであると考えられるようになってきている。

- 1) C.Geibel, C.Schank, S.Thies, H.Kitazawa, C.D.Bredl, A.Böhm, M.Rau, A.Grauel, R.Caspary, R.Helfrich, U.Ahlheim, G.Weber and F.Steglich: Z.Phys. **B84** (1991) 1.
- 2) K.Sugiyama, H.Fuke, K.Kindo, K.Shimohata, A.A.Menovsky, J.A.Mydosh and M.Date: J. Phys. Soc. Jpn. **59** (1990) 3331.
- 3) K.Oda, T.Kumada, K.Sugiyama, N.Sato, T.Komatsubara and M.Date: J. Phys. Soc. Jpn. **63** (1994) to be published.
- 4) A.Krimmel, P.Fischer, B.Roessli, H.Maletla, C.Geibel, C.Schank, A.Grauel, A.Loidl and F.Steglich: Z.Phys. **B86** (1992) 161.
- 5) N.Sato, T.Sakon, N.Takeda, T.Komatsubara, C.Geibel and F.Steglich: J. Phys. Soc. Jpn. **61** (1992) 32.
- 6) H.P.van der Meulen, A.de Visser, J.J.M.Franse, T.T.J.M.Berendschot, J.A.A.J.Perenboom, H.van Kempen, A.Lacerda, P.Lejay and J.Flouquet: Phys. Rev. **B44** (1991) 814.
- 7) H.Aoki, S.Uji, A.K.Albessard and Y.Onuki: Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 2110.