

重い電子系化合物URu₂Si₂の強磁場下輸送係数測定

Transport measurements of a heavy fermion compound URu₂Si₂ under high magnetic field

京大・理 松田祐司, 宍戸寛明, 橋本顕一郎, 笠原裕一*, 芝内孝禎
東北大・金研 大泉元, 佐々木孝彦, 小林典男
原子力機構先端研 芳賀芳範, 松田達磨, 大貫惇睦

*現所属 東北大・金研

Y. Matsuda¹, H. Shishido¹, K. Hashimoto¹, Y. Kasahara¹, T. Shibauchi¹, H. Oizumi², T. Sasaki², N. Kobayashi²,
Y. Haga³, T. D. Matsuda³ and Y. Ōnuki³

¹ Department of Physics, Kyoto University

² Institute for Materials Research, Tohoku University

³ Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency

CeやUを含むf電子をもった化合物は、軌道の大きな軌道角運動量に起因する大きな磁気モーメントを持つ。ところが低温では近藤効果により伝導電子とf電子の混成が発達し、その磁気モーメントは遮蔽され伝導電子の有効質量が自由電子の1000倍にも達するような重い電子状態が実現する。重い電子状態は強相関電子系の典型例として盛んに研究されている。Uを含む化合物はU1個あたり5f電子を2乃至は3個持つ。5f電子の波動関数の広がりには4f電子よりも大きいがd電子よりも小さく、局所的な4f電子と遍歴的なd電子の中間的な性質が期待される。そのためCe化合物よりも更に複雑な電子状態が実現している。URu₂Si₂はThCr₂Si₂型の正方晶の結晶構造を持つ重い電子系化合物であり、T_h = 17.5 Kで2次相転移を示した後、T_c = 1.5 Kで超伝導に転移する。T_hでの相転移ではエントロピーに大きなとびを伴う[1]にもかかわらず、対応する磁気モーメントは観測されていない[2]。この実験結果は単純な反強磁性秩序では説明できず、その秩序状態は「隠れた秩序」と呼ばれている。隠れた秩序相は通常の反強磁性相などと同じく磁場に対し閉じた相図になっており、絶対零度では35 T以上の磁場で消失する。さらに高磁場で幾つかの相が存在することが報告されており、そのH-T相図は極めて複雑である[3]。20年以上にわたる精力的な研究にもかかわらず「隠れた秩序」の秩序変数は未だに明らかにされていない。

最近極めて純良なURu₂Si₂の単結晶が原子力機構先端研のグループにより作製された[4]。その残留抵抗比($\rho(T=300\text{ K})/\rho(T=0\text{ K})$)は670であり、これまでに用いられてきた試料よりも1桁以上純良である。われわれはこの超純良URu₂Si₂単結晶を用いて、T = 0.5 Kまでの低温、 $\mu_0 H = 27\text{ T}$ までの強磁場下で磁気抵抗、Hall効果の測定を行い、隠れた秩序相について新たな知見を得た。

まず始めに隠れた秩序相でのURu₂Si₂の特異な電子状態について解説したい。URu₂Si₂の結晶構造は体心正方晶であり、そのブリルアンゾーンには1分子のURu₂Si₂が含まれる。URu₂Si₂の総電子数は偶数であるため、そのFermi面は電子と正孔の体積が等しくならなければならない。図1に各磁場での電気抵抗とHall係数の温度依存性を示す[5]。Hall係数R_HはT_h以下で急激に増加して低温で一定値となり、隠れた秩序相で

のキャリア数の大幅な減少を示唆している。電気抵抗率ρは、ゼロ磁場においてはT_hでジャンプし温度下降に伴い急速に減少する。ところが、磁場を印加すると低温に向かって増大し金属的な温度依存性は示さなくなる。低温における磁気抵抗は磁場の2乗に比例して増加し続ける。このような磁場中における抵抗の振る舞いは典型的な半金属であるBiやグラファイトにおいて報告されているものに近い[6]。このことは隠れた秩序下のURu₂Si₂が(1)キャリア数が極めて少なく、(2)電子と正孔の数が等しい補償された金属であることを示している。R_Hが正の値をとることは正孔の移動度の大きさを反映しており、電子の有効質量が正孔の有効質量よりも著しく重いことを示している。

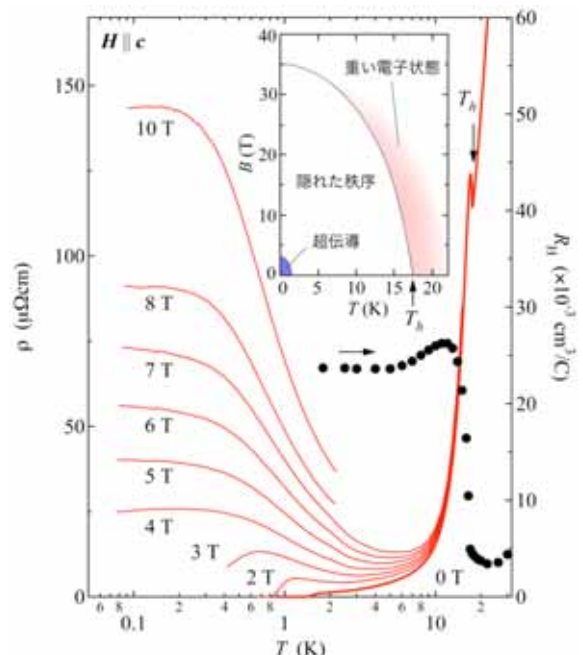


図1 電気抵抗率ρとHall係数R_Hの温度依存性。磁場はc軸に平行に印加した。挿入図にH-T相図を示す。

次にH//cにおける各温度での電気抵抗率の磁場依存性を図2に示す。最低温であるT = 0.52 Kでは電気抵抗率は20 T付近からプラトー的な構造を持ち、23 T付近から再び急激な上昇を始める。27 Tにおいても飽和せず磁場と共に上昇を続け、ゼロ磁場の2000倍にも

達する巨大な磁気抵抗を示す。プラトー的な構造は昇温と共になまされ、1.27 K ではもはや確認できない。プラトー構造の起源については後に議論する。プラトーが現れる 20 T 付近より高磁場では磁気抵抗に明瞭な Shubnikov-de Haas (SdH)振動が見られた。電気抵抗率の磁場に対する 2 階微分を取ることによって取り出した SdH 振動とその FFT を図 3 に示す。

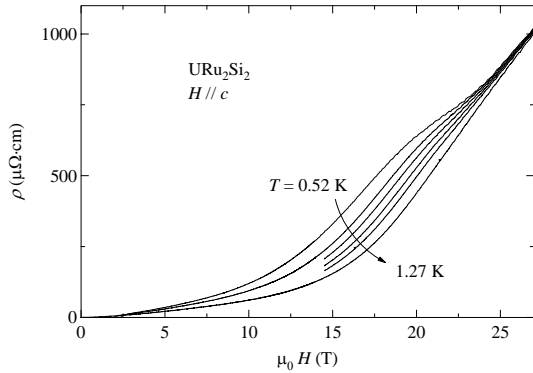


図 2 $H // c$ における $T = 0.52, 0.85, 0.90, 1.01, 1.11, 1.27$ K での ρ の磁場依存性。

ここで SdH 振動の振動数 F は磁場に垂直な方向の Fermi 面の極値断面積に比例する。すなわち磁場の印加方向を $H // c$ から $H // a$ へと変化させ、SdH 振動数の角度依存性から大まかな Fermi 面の形状を知ることが出来る。また、振幅の温度依存性からサイクロトロン有効質量 m^* を知ることが出来る。我々は c 軸方向で 3 つのブランチ α, β, δ を観測した。 δ ブランチは $F = 1300$ T, $m^* = 2.7 m_0$ (m_0 は電子の静止質量) であり、過去の de Haas - van Alphen (dHvA) 効果の実験では観測されていない[7]。

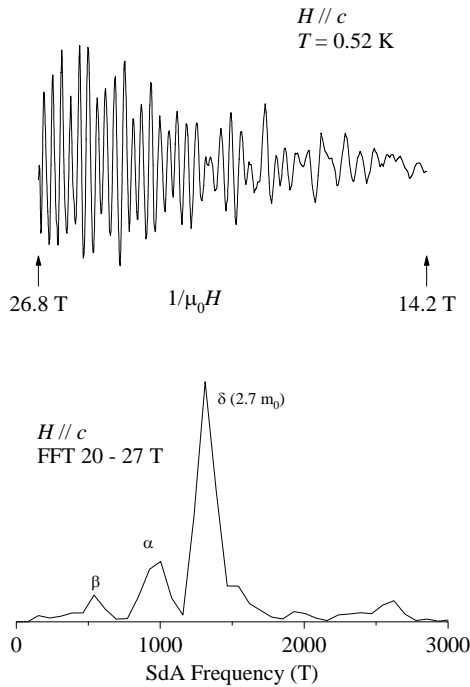


図 3 SdH 振動とその FFT.

17 T 以下での dHvA 効果測定において、 $m^* = 13 m_0$ と δ

ブランチの約 5 倍ほど重い α ブランチが観測されているにもかかわらず δ ブランチが観測されなかったことから、おそらく δ ブランチは 20 T 以上の高磁場で初めて現れてくる軌道であると考えられる。

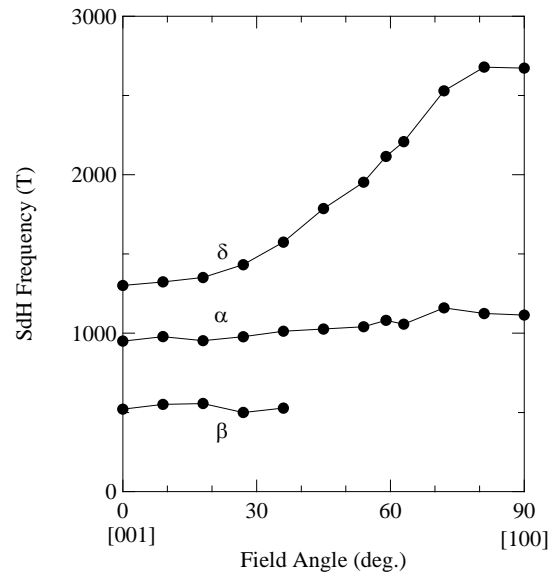


図 4 SdH 振動数の角度依存性。FFT は 20 T から 27 T の範囲で行った。

SdH 振動数の角度依存性を図 4 に示す。 α ブランチはほとんど角度依存性がなく、球状フェルミ面であることがわかる。この結果は過去の dHvA 効果の結果[7]と良く一致している。これに対して δ ブランチは典型的な回転楕円型の角度依存性を示しており、 c 軸方向に長い回転楕円体状の Fermi 面をしていることがわかる。その体積は α の約 3 倍である。

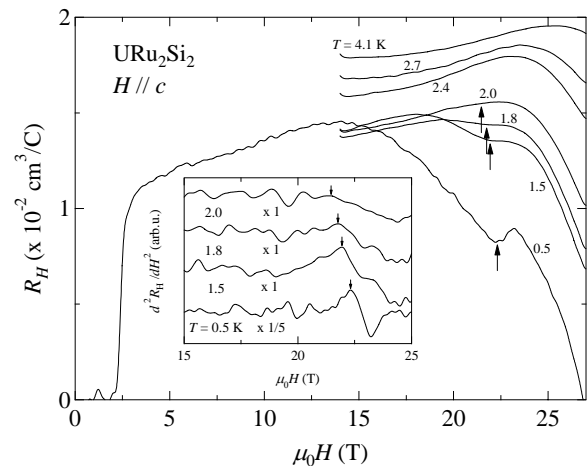


図 5 $H // c$ における $T = 0.5, 1.5, 1.8, 2.0, 2.4, 2.7, 4.1$ K での R_H の磁場依存性。挿入図に R_H の 2 階微分を示す。矢印は R_H の変曲点から決定した転移点を示す。

図 5 は Hall 係数の各温度における磁場依存性である。ここで磁場は c 軸方向に印加している。最低温である $T = 0.5$ K の Hall 係数は上部臨界磁場 $H_{c2}(0.5 \text{ K}) \sim 2.5$ T 以下の磁場で超伝導相に入り急激に 0 になる。高磁場側

では 15T 付近以上で緩やかな減少をはじめ、22 T に明確な折れ曲りが現れる。この折れ曲りは何らかの相転移に対応するものと思われる。挿入図に示すように各温度で R_H の 2 階微分を取ることによってその変曲点を定義し、転移点とした。矢印は転移点を示す。転移点は昇温と共に低磁場側にシフトしている。同時に折れ曲りはなまされて不明瞭になっていき、2.4 K 以上についてはもはや定義できない。図 6 に今回の実験から得られた H - T 相図を示す。隠れた秩序相の内部での相転移の報告は過去になく、今回初めて観測に成功した。

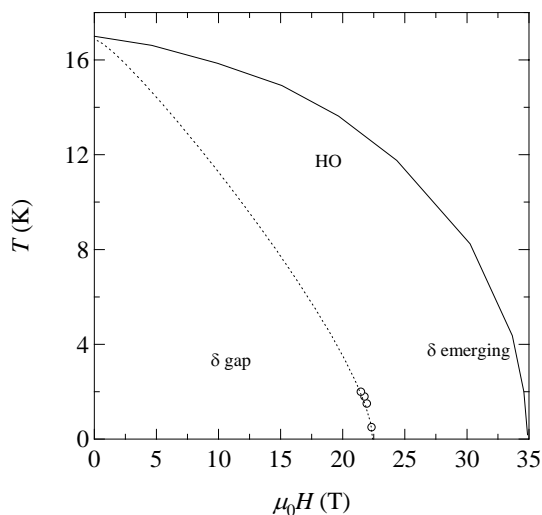


図 6 H - T 相図。は Hall 効果測定で観測した転移点を、実線は隠れた秩序相の相線を示す。点線は補助線。

以降では隠れた秩序相内部の相転移の起源について議論したい。 δ ブランチは比較的軽いサイクロトロン質量しか持たないにもかかわらず、20 T 以上の高磁場相でしか観測されない。このことは、 δ ブランチに対応する回転楕円体状の Fermi 面は相転移磁場 22 T 以上で現れてくることを強く示唆しているものと思われる。実際には転移磁場より少し低い 20 T 付近から SdH 振動が現れているがこれはマグネティックブレイクスルーによるものと思われる。回転楕円体状の Fermi 面が現れれば、キャリア数が増えるため電気抵抗率は転移磁場で急激に減少するはずである。ところが 20 T 付近からブレイクスルーによってキャリア数が徐々に増大するため転移が引き伸ばされた結果、プラトー的な振る舞いになったものと思われる。つまり電気抵抗率がプラトー的な振る舞いから磁場の 2 乗的な振る舞いに変化する点が相転移点に対応する。一方で α ブランチは転移の前後でほとんど変化していない。このことは何を意味するのだろうか？ここで URu_2Si_2 はバンド毎に異なった超伝導ギャップ関数を持ったマルチギャップ超伝導体であると指摘されていること[6]は注目に値する。このことは URu_2Si_2 ではバンド間の相関が極めて弱いことを意味する。一般にこのようなマルチギャップの振る舞いは不純物によるバンド間散乱に弱く、今回実験に用いた様な極めて純良な試料でなければ観測されない。これが今までの純良性に劣る試料で隠れた秩序相内の相転移が発見され

なかった理由であると思われる。以上のような理由から我々は隠れた秩序はバンド毎に異なったギャップをもつマルチバンドの秩序変数であると結論した。

今回我々は「隠れた秩序」を持つ重い電子系化合物 URu_2Si_2 の超純良単結晶を用いて低温・強磁場下での電気抵抗率、Hall 効果測定を行った。20 T 以上の高磁場において SdH 振動を観測し、比較的大きく、有効質量の軽い回転楕円体状の Fermi 面を発見した。このバンドでは、全てのバンドで隠れた秩序が壊れる 35 T よりもずっと低い 22 T 付近で隠れた秩序が消失しているものと思われる。我々は今回の実験結果から隠れた秩序はマルチバンドの秩序変数であることを提案する。また、 URu_2Si_2 は補償金属であることから α , δ を補償する Fermi 面が存在するはずであるが、実験的に観測されていない。その原因はおそらく、これらの Fermi 面が α , δ よりずっと大きなサイクロトロン質量を持っているためだと考えられる。これらの Fermi 面を実験的に決定するには更に低温・強磁場での測定が必要である。

以上の実験結果は日本物理学会第 63 回年次大会にて口頭発表された[8]。

参考文献

- [1] T. T. M. Palstra *et al.*, Phys. Rev. Lett. **55**, 2727 (1985).
- [2] S. Takagi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 033708 (2007).
- [3] Y. S. Oh *et al.*, Phys. Rev. Lett. **98**, 016401 (2007).
- [4] Y. Haga, H. Sakai, and S. Kanbe, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 051012 (2007).
- [5] X. Du *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94**, 166601 (2005).
- [6] Y. Kasahara *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 116402 (2007).
- [7] H. Ohkuni *et al.*, Philo. Mag. B **79**, 1045 (1999).
- [8] 橋本顕一郎 他 日本物理学会第 63 回次大会 26aWR-6.