強磁場中で重い電子を発見:近藤絶縁体の磁場中電 子状態を解明

附属国際超強磁場科学研究施設

松田 康弘、寺島 拓、小濱 芳允

【背景】多体電子相関は新奇物性発現の鍵であり、その 理解のため様々な物質を対象として研究が行われている。 「重い電子金属」は、そのような相関効果の典型である高 濃度近藤効果によって遍歴電子の有効質量が大きくなった 系であり、CeやYb、U系の希土類金属間化合物を中心に 長年にわたって研究が行われている。これらの物質では 4f、5f電子が磁性を担う。f軌道の局在性、強いスピン軌 道相互作用、結晶場効果に加えて、より遍歴的なs,p,d電 子との多体相関である近藤効果が、多彩な電子・磁気状態 を実現する。多極子秩序や量子臨界的挙動、エキゾチック な超伝導の発現が多くの研究者の興味を集め、現在も盛ん に研究が行われている。 このような多彩な電子・磁気状態の中に、低温で絶縁体 化がおこる、近藤絶縁体もしくは近藤半導体と呼ばれる重 い電子金属が存在する。ここでは、強い近藤効果がエネル ギーギャップ形成に関係していると考えられているが、詳 細なメカニズムは十分明らかになっていない。最近、近藤 絶縁体の表面金属状態がトポロジカル絶縁体との関連で注 目されている[1]。ここでは、バルクの状態にも非自明な 量子振動が発見され、3次元的な準粒子の存在が電気的絶 縁体相で示唆されるなど、近藤絶縁体の電子状態の理解に は再び大きな注目が集まっている[2]。

近藤絶縁体の電子状態を理解する上で外部磁場の効果を 調べることは極めて興味深い。その理由は、磁場が近藤効



図 1. (a)ゼロ磁場中での熱パルスとそれによる試料温度の変化を時間の関数でプロットした。ΔT は 1 つの熱パルスによる試料 の温度上昇。(b)約60 T での熱パルスとそれによる試料温度の変化を、磁場の波形と共に時間の関数でプロットした。ΔT は 1 つの熱パルスによる試料の温度上昇。磁場中では同程度のΔT を得るために 10倍程度の熱量が必要であることに注意する と、試料の比熱が磁場中で大きくなっていることがわかる。

.....

果を量子力学的に抑制できるためである。近藤束縛状態で は、遍歴電子集団と局在f電子がスピンシングレット状態 を形成するが、十分強い磁場下ではトリプレットなどの磁 気状態がより安定となり近藤効果が効かなくなると期待さ れる。実際、典型的な近藤絶縁体の1 つである YbB12 で は、約50Tの磁場で絶縁体状態が壊れて金属化が起こる など顕著な磁場効果が発見されている[3]。しかしながら、 この磁場誘起金属状態が果たして近藤効果が壊れた通常金 属なのか、または、近藤効果の残った重い電子金属なのか は、基本的な問いであるにもかかわらず、磁場誘起金属相 の発見から 30年にわたり不明であった。その理由は、50 T が定常磁石では達成不可能な磁場であったため、検証する ための実験が不可能であったためである。今回、最近可能 となったパルス強磁場中の比熱測定技術を用いることで、 YbB12の磁場誘起金属相が「重い電子金属」であることを 明らかにすることに成功した[4]。

【実験方法】実験はパルス幅 35 ms の非破壊型のパルス 磁石を用いた。時間幅 $\Delta t = 80 \ \mu s$ の熱パルス $\Delta P[mW]$ で生 じる試料の温度上昇 $\Delta T[K]$ を 400 μs 後に計測することで、 磁場中の試料の熱容量 ($\Delta P \times \Delta t$)/ ΔT を求めることができる。 図1には、ゼロ磁場と 60.1 - 60.4 T での測定結果を時間 の関数で示してある[4]。磁場のパルス頂上付近で実験す ることで、測定時の磁場の変化率を 1%以下程度にするこ とが可能である。磁場方向は単結晶の[001]方向に平行で ある。

このような高速の熱測定は最近まで不可能であったが、 ヒーターや温度計の薄膜化などの計測システムの開発に よって実現した[5]。ミリ秒領域のパルス強磁場中での 様々な熱測定が行われるようになったことは、最近のパル ス磁場中計測技術の大きな発展の1つである。



図 2. (a) C = γ T + β T³を用いて実験結果から得られた YbB₁₂の電子比熱係数 γ の磁場依存性。挿入図は、同様にして得られた β の磁場依存性。(b)比熱測定とは独立に測定した YbB₁₂磁気熱量効果の結果。点線は[001]方向に磁場をかけたときの相転移磁場を示す。

【実験結果】様々な磁場、初期温度において試料の比熱 Cを測定し、C= γ T+ β T³の関係から電子比熱係数 γ を算出 し、磁場の関数としてプロットしたのが図 2(a)である[4]。 インセットには β の磁場依存性も示した。電子比熱係数 γ が 47 T の磁場誘起金属転移を境にして急激に大きくなり、 60 T では 67 mJ/(mol K²)に達していることがわかる。そ れに比べると β の磁場依存性は小さい。

図 2(b)は熱パルスを与えずに、パルス磁場中での試料の 温度を測った結果を示している。断熱条件下においては、 金属化による電子系のエントロピーの増大を他の自由度に よって補償して系のエントロピー変化をゼロにするため、 相転移において試料の温度が下がる必要がある。実際、 2 K での磁場誘起相でのエントロピーが、ゼロ磁場での T*[K]でのエントロピーと等しいとおくと、γの磁場依存性 から、T*= 7.7 K と算出される。これは、図 2(b)で初期温 度 7 K の測定で、相転移時に 2.2 K まで温度が下がること と定量的に良い一致を示す。

得られた 67 mJ/(mol K²)は通常金属にくらべて数十倍大 きく、 γ が準粒子の有効質量に比例することから、YbB₁₂ の磁場誘起金属相が重い電子金属であることが直接的に証 明された。さらに、エントロピー γ T_Kが、4f 電子の基底状 態F₈の縮退数 4 から Rln4(R は気体定数)と等しいとおく と、近藤温度 T_Kは 172 K となる。磁場中ではゼロ磁場で の励起状態のF_{6.7}とF₈が混成するため、基底状態の縮退数 は最大 8 まで大きくなり、このとき T_Kは 252 K と算出で きる。YbB₁₂の磁場誘起金属相はT_K ~ 200 Kの比較的高い 近藤温度をもつと言えるが、この値はYbB₁₂の低温絶縁体 状態での T_K と同程度であり、また、YbAgCu4 や YbAlB4 などの強い価数揺動を示す重い電子金属とも同じくらいで あることは興味深い。

【まとめと展望】近藤絶縁体YbB12の磁場誘起金属相が 重い電子金属であることを 60 T のパルス磁場中比熱測定 によって明らかにした。この強磁場金属相は200 K程度の 近藤温度をもち、強い価数揺動領域にある。近藤効果が強 い状態でもエネルギーギャップが消失することから、磁場 誘起相転移は、c-f 混成ギャップがゼーマン効果によって 閉じる電子状態の変化に起因すると考えるのが妥当のよう に思われる。また、紙面の都合上割愛したが、ほとんどの 重い電子金属で2程度を示すウィルソン比が、磁場誘起金 属相で 50 程度と極めて異常な値を示すことが分かってい る。この特異な状態と、絶縁体相で観測されている量子振 動の起源である準粒子との関連が興味深いが、その解明は 今後の課題といえる。さらに、別の実験から、YbB₁₂の近 藤効果はより強磁場の100T程度で抑制され、重い電子か ら通常の電子へと変化することが磁化過程から示唆されて いる[6]。今後、100Tを超える磁場領域での熱的測定技術 開発において明らかになると期待できる。

【謝辞】本研究は、伊賀文俊(茨城大、教授)、池田暁彦 (物性研、助教)、近藤晃弘(元物性研、助教)、金道浩一 (物性研、教授)各氏との共同研究であり、この場を借りま して、感謝致します。特に伊賀氏からは純良の単結晶を提 供して頂き、信頼性の高い実験が可能になりました。

- [1] M. Dezero et al., Phys. Rev. Lett. 104, 106408 (2010).
- [2] Z. Xiang et al., Science 362, 65 (2018).
- [3] K. Sugiyama, et al., J. Phys. Soc. Jpn. 57, 3946 (1988).
- [4] T. T. Terashima *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 257206 (2018).
- [5] Y. Kohama, et al., Meas. Sci. Technol. 24, 115005 (2013).
- [6] T. T. Terashima *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **86**, 054710 (2017).