

重い電子系 CeRu_2Si_2 及びその近縁物質における量子相転移

Quantum phase transitions in heavy fermion CeRu_2Si_2 and its related compounds

田畑吉計

京都大学大学院工学研究科材料工学専攻

Yoshikazu Tabata

Graduate School of Engineering, Kyoto University

CeRu_2Si_2 is a canonical heavy fermion compound exhibiting no long-range magnetic order nor superconductivity. However, CeRu_2Si_2 has dynamic antiferromagnetic correlations with three different magnetic wave vectors, $\mathbf{k}_1=(0.3,0,0)$, $\mathbf{k}_2=(0.3,0.3,0)$ and $\mathbf{k}_3=(0,0,0.35)$, and reveals nonmagnetic-magnetic quantum phase transitions by substitution of the constituent elements. In this report, recent neutron scattering investigations of quantum phase transitions in heavy fermion CeRu_2Si_2 and its related compounds are presented.

1. はじめに

気体-液体相転移や、磁性体における強磁性-常磁性相転移などに代表される相転移現象は、ある温度・磁場・圧力で物質の性質が一変してしまう興味深い現象であり、物性物理の中心的テーマとして多くの研究者を魅了し続けている。その中で、近年（と言っても、この20年程）目覚ましく発展を遂げたテーマとして「量子相転移」がある[1]。通常の「古典的な」相転移では、温度を上昇させたときに増大する熱ゆらぎによって、低温の秩序状態から高温の無秩序状態へと変化する。これは、自由エネルギーのエントロピー（と温度の積）の項に由来するものである。一方、量子相転移はその名の示す通り、絶対零度で不確定性原理に基づく「量子ゆらぎ」によって秩序状態から“量子”無秩序状態へと転移する。この場合、コントロールパラメータは温度ではなく、圧力や磁場などであり、量子相転移の起こる点を「量子臨界点(QCP)」と呼ぶ、図.1(a)に、量子相転移の概念的な相図を示す。興味深いのは、QCPを沸き出し口にして、相図上の広い範囲に渡って広がる「量子臨界領域」と呼ばれる領域であり、ここでは量子ゆらぎと熱ゆらぎが拮抗する結果、量子相転移特有の“異常な”現象（銅酸化物高温超伝導体の異常金属相や重い電子系の非フェルミ液体など）が現れる。

量子相転移の理論研究は意外と古く、1970年代まで遡る。初期の頃から研究されていたのは、遍歴電子磁性体におけるフェルミ液体-磁気秩序量子相転移[2]と、イジング磁性体における横磁場誘起量子相転移[3]である。後者は、最も簡単な量子相転移のモデルとして数多くの理論研究がなされている興味深いテーマであるが、紙面の都合上、本稿ではこれ以上触れない。前者は、本稿のメインテーマであり、電子の運動エネルギーと電子間相互作用の競合によって起こる量子相転移である。この両者が拮抗する系は「強相関電子系」と呼ばれ、銅酸化物高温超伝導体や、希土類・アクチナイド金属間化合物における重い電子系、などがその代表例として知られている。電子の運動エネルギーと電子間相互作用のバランスは元素置換や圧力によってコントロール出来、量子相転移の実験研究は、近年の（高圧下実験などの）実験技術の発展とともに、急速に進んできた[4]。

重い電子系の磁気量子相転移の概念図を図.1(b)に示す、重い電子系の量子相転移は、磁性を担うバ

バンド幅の狭い（ほとんど磁性原子に局在した）f電子とバンド幅の広い伝導(s,p,d)電子との混成の強さ V_{cf} が圧力などによってコントロールされる事によって起こる。 V_{cf} が強ければf電子は伝導電子と混成して結晶中を遍歴する準粒子となり、基底状態はフェルミ液体となる。 V_{cf} が弱ければf電子は磁性原子に局在し、f電子の持つ局在モーメントが秩序化して基底状態は磁気秩序となる。 各々の極限では、

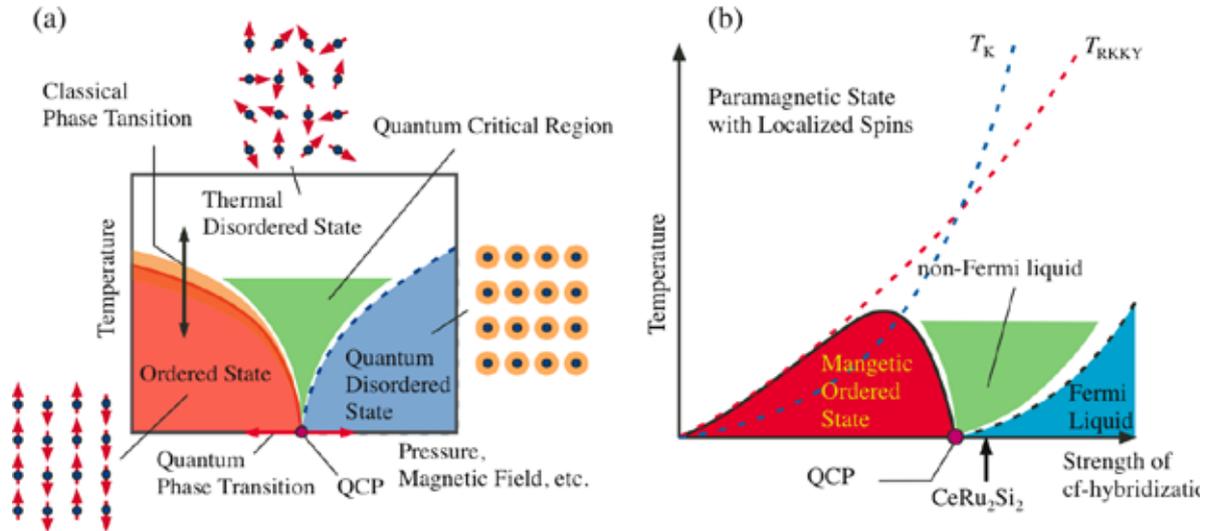


図.1 (a) 量子相転移の概念図. (b) 重い電子系の量子相転移の概念図. T_K , T_{RKKY} はそれぞれ近藤温度, RKKY 相互作用のエネルギースケール.

f電子は遍歴、局在の状態にあるが、QCP 近傍ではどのような状態をとるのか、については良く分かっていない。実験研究の進んだ初期の頃（1990年代）では、重い電子系の量子相転移は1970年代に発展した遍歴電子の量子相転移の理論で良く記述される、と考えられ、比熱やNMRの縦緩和時間 $1/T_1$ などの温度依存性をこの理論で説明しようとする試みが盛んになされた[5]。しかし、1990年代後半から、中性子非弾性散乱によって得られる磁気励起スペクトル $S(\mathbf{Q}, E)$ が見せる E/T スケーリングなど、旧来の遍歴電子量子相転移の理論では説明出来ない実験結果が得られるようになり、それを契機として新たな理論的アプローチがなされ、f電子が局在した状態（強相関極限）から出発する強相関理論（locally critical QCPの理論）が発展してきた。強相関理論では、QCPの磁気秩序側では（本質的に）f電子は磁性原子に局在し、磁気秩序が壊れると共に遍歴的になる、と解釈される。これに対し、従来の遍歴電子量子相転移の理論は、f電子が遍歴したフェルミ液体状態（弱相関極限）から出発するもので、弱相関理論（SDW QCPの理論）と呼ばれ、（少なくともQCP近傍では）QCPの両サイドでf電子は遍歴的である。

磁気励起スペクトル $S(\mathbf{Q}, E)$ の E/T スケーリングは数多くの重い電子系で見いだされているが、その多くは粉末試料ないし多結晶試料を使用しており、実験上のアーチファクトである可能性も否定できない。単結晶を使った実験としては、ドイツの Schröder 等によってなされた $CeCu_{6-x}Au_x$ 系のものが有名である[6]。 $CeCu_{6-x}Au_x$ は典型的な常磁性の重い電子系 $CeCu_6$ に Au をドーブして QCP にコントロールしている。我々は、もう一つの典型的な常磁性重い電子系 $CeRu_2Si_2$ に Rh ドーブをすることで QCP にコントロールし、その量子臨界現象を研究した。驚くべき事に、その臨界現象は $CeCu_{6-x}Au_x$ とは異なり、 E/T スケーリングを示さず、SDW QCP 理論の予測と一致する。以下では、最近の我々の $CeRu_2Si_2$ 及びその近縁物質の QCP の研究結果について紹介する[7,8]。

2. CeRu₂Si₂ 系における SDW QCP

CeRu₂Si₂ は極低温まで磁気秩序や超伝導転移を示さない、常磁性重い電子系の代表的な物質であり、低温では典型的なフェルミ液体挙動を示す[9]。一方、中性子散乱実験から、60K 以下では動的な反強磁性短距離相関が現れることが知られており[10,11]、CeRu₂Si₂ は QCP 近くに位置することが分かる。実際、CeRu₂Si₂ の Ce サイトを La で、あるいは Si サイトを Ge、Ru サイトを Rh で置換すると、わずか数%で反強磁性秩序が現れる。図.2(a)に CeRu₂Si₂ の中性子非弾性散乱実験によって得られた (揺動散逸定理で磁気励起スペクトル $S(\mathbf{Q}, E)$ と密接に繋がっている) 動的帯磁率 $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, E)$ のマップを、図.2(b) に Rh 置換系 Ce(Ru_{1-x}Rh_x)₂Si₂(CRRSx) の xT 相図を示す。CeRu₂Si₂ は磁気波数ベクトルの異なる 3 つの反強磁性相関を持ち (各々、 $\mathbf{k}_1=(0.3, 0, 0)$ 、 $\mathbf{k}_2=(0.3, 0.3, 0)$ 、 $\mathbf{k}_3=(0, 0, 0.35)$)、Rh 置換では約 3% の置換で \mathbf{k}_3 の磁気相関が発達した磁気秩序が現れる。 $x > 0.03$ で現れる磁気秩序は sin 波的な磁気変調を持ち、Cr と同様に遍歴電子反強磁性(SDW)的である[12]。

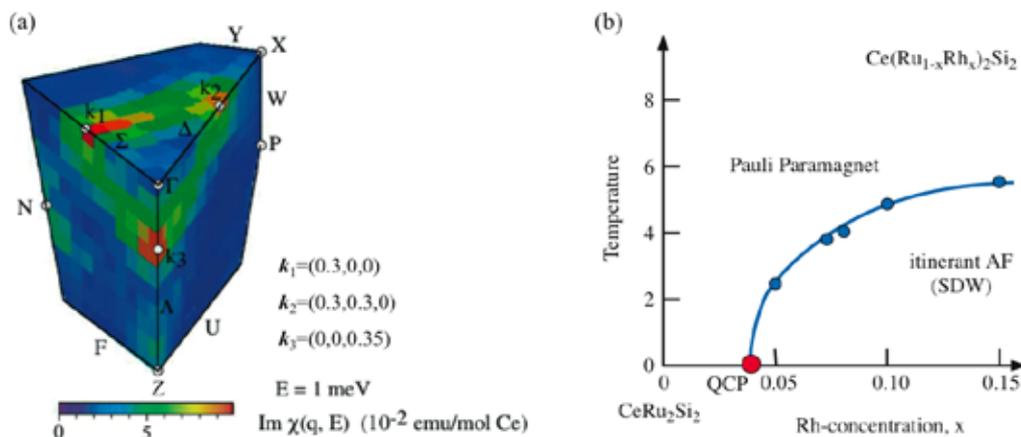


図.2 (a) CeRu₂Si₂ の $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, E)$ のマップ[7]。 $\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2, \mathbf{k}_3$ の位置で $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, E)$ が強くなっている。
(b) CRRS 系の xT 相図[8]。 $x = 0.03$ 付近に臨界濃度(QCP)がある。

我々は、CeRu₂Si₂ 及び QCP に極めて近い Ce(Ru_{0.97}Rh_{0.03})₂Si₂ (CRRS0.03) の大型単結晶を使って中性子非弾性散乱実験を行い、 $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, E)$ を精密に測定し、磁気励起スペクトルのスケールを調べた[7]。CRRS 系の $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, E)$ ($\mathbf{Q} = \mathbf{k}_3 + \mathbf{q}$) はローレンツ関数 $\chi(\mathbf{k}_3)\Gamma(\mathbf{k}_3)E/[E^2 + \Gamma(\mathbf{k}_3 + \mathbf{q})^2]$ で良くフィット出来、 $\mathbf{q} = 0$ ($\mathbf{Q} = \mathbf{k}_3$) での動的な反強磁性相関のエネルギースケール $\Gamma(\mathbf{k}_3)$ の温度変化を得ることが出来た。その結果を図.3(a)に示すが、 $\Gamma(\mathbf{k}_3)$ は $c_1 + c_2 T^{3/2}$ で良く表される。これは、QCP において $S(\mathbf{Q}, E)$ が (E/T スケールリングではなく) $E/T^{3/2}$ スケールリングを示すことを意味しており、CRRS 系の QCP が CeCu_{6-x}Au_x 系の QCP とは異なり、(locally critical QCP ではなく) SDW QCP であることを明確に示す結果である。なお、 c_1 は QCP からどれだけ離れているかを示すパラメータであり、CeRu₂Si₂ に比べ CRRS0.03 では 1/5 程度に小さくなっており、Rh 置換で確かに QCP に近づいていることを示している。

CRRS 系と CeCu_{6-x}Au_x 系とで異なる QCP が現れる理由は何であろうか？ その答えを出す上で重要な情報となるのは、動的な反強磁性相関の、“空間的な形状”である。図.3(b)に CRRS0.03 の $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, E)$ の \mathbf{Q} スキャンプロファイルを示す。この図から明らかな様に、CRRS 系では温度降下とともに $[0, 0, 1]$ 方向、 $[1, 0, 0]$ 方向とも $\text{Im}\chi(\mathbf{Q}, E)$ の \mathbf{Q} スキャンプロファイルは幅狭く、すなわち相関長が長くなっており、等法的な 3 次元的な相関の発達が起こっている。一方、CeCu_{6-x}Au_x 系では $[1, 0, 0]$ 方向に幅広い磁気スペ

クトルが観測されており，その反強磁性相関は擬 2 次元的である[6]．即ち，磁気相関の次元性が系の QCP を決めている（2 次元なら *locally critical* QCP，3 次元なら SDW QCP）可能性がある．これについては，遍歴電子量子相転移の上部臨界次元（ $(d+z)_c = 4$ ， d :空間次元， z :動的臨界指数）の問題と絡んで，理論的にも同様の指摘がなされている[13]．ごく最近，3 次元的な磁気スペクトルをもつ遍歴電子磁性体 $(V_{1-x}Ti_x)_2O_3$ で，CRRS 系同様の $E/T^{3/2}$ スケーリングが観測されており[14]，上記予測を支持している．

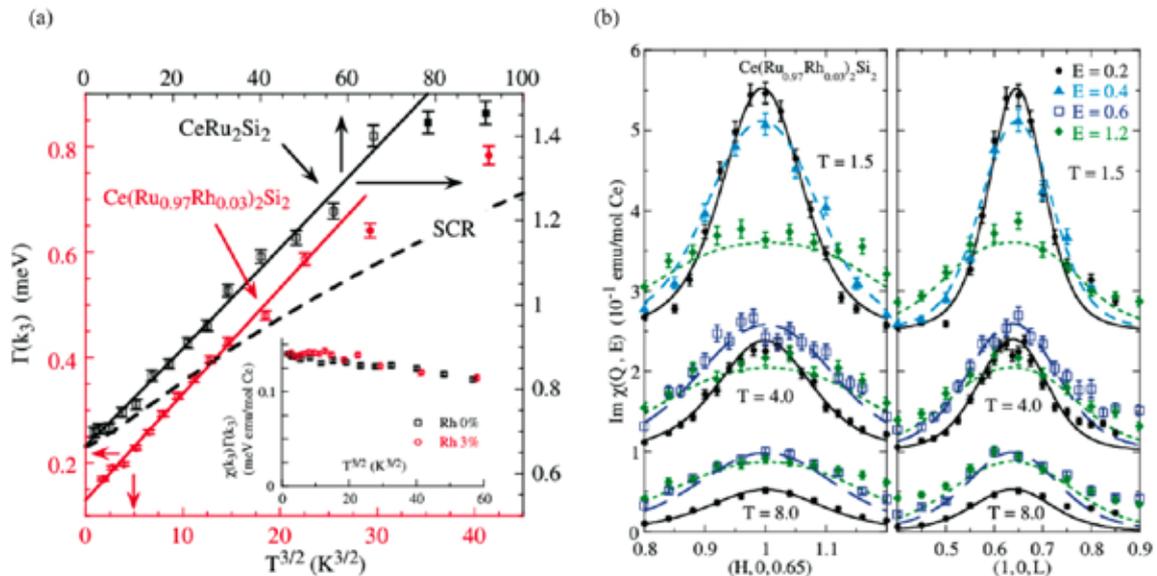


図.3 (a) CRRS 系の動的反強磁性相関のエネルギースケール $\Gamma(\mathbf{k}_3)$ の温度変化[7]．横軸は $T^{3/2}$ になっており， $CeRu_2Si_2$ ，CRRS0.03 共に低温で $c_1+c_2T^{3/2}$ の温度依存性を持っている（ $E/T^{3/2}$ スケーリングに従っている）ことが良く分かる．(b) $Im\chi(\mathbf{Q}, E)$ の \mathbf{Q} スキャン[7]．左は(1,0,0)方向，右は(0,0,1)方向．どちらの方向でも温度降下とともに幅が狭くなっている．

3. $CeRu_2Si_2$ 系における f 電子の遍歴-局在転移

前節で述べた様に， $CeRu_2Si_2$ 系の QCP は SDW QCP であり，磁気秩序領域でも f 電子は遍歴的，と考えられる．では，さらに cf 混成の強さ V_{cf} を弱めたとき，f 電子はどのように局在化していくのであろうか？それを見るべく，基底状態が磁気秩序(SDW)となっている濃度の試料 CRRS0.10 に，Si サイトを Ge で置換する事で負の化学圧力効果を加え， V_{cf} を弱める研究を行った[8]．

図.4(a)に CRRS0.10 に Ge 置換した $Ce(Ru_{0.9}Rh_{0.1})_2(Si_{1-y}Ge_y)_2$ 系(CRRSG0.10/y 系)の中性子弾性散乱実験の結果を示す．Ge20%の試料(CRRSG0.10/0.20)では，Ge 置換をしていない試料(CRRS0.10)と同様に， $\mathbf{k}_3 = (0,0,k_3)$ という磁気波数ベクトルを持つ反強磁性相(\mathbf{k}_3 相)が低温で現れてくるが，CRRSG0.10/0.30 では，磁気波数ベクトルは $\mathbf{k}_1 = (k_1,0,0)$ に変わる(\mathbf{k}_1 相)．つまり，Ge 置換によって磁気構造の異なる反強磁性相に相転移している．ちなみに，Ge 高濃度領域で見られる \mathbf{k}_1 相は Rh 置換していない $CeRu_2Si_2$ に Ge 置換あるいは La 置換したときに現れる反強磁性相と同じ磁気構造である．興味深いのは，上記の二つの中間の濃度にあたる CRRSG0.10/0.26 で， \mathbf{k}_1 と \mathbf{k}_3 の両方の磁気散乱が観測される点である．図.4(a)の CRRSG0.10/0.26 の中性子弾性散乱強度の温度変化を詳しく見ていくと，まず $T_{N1} = 6.9$ K で \mathbf{k}_1 散乱が現れ，次に $T_{N3} = 6.6$ K で \mathbf{k}_3 散乱が現れ，2.8 K で \mathbf{k}_1 散乱が消えるまで両磁気散乱は共存して

いる。2.8 K 以下では k_3 散乱のみが存在し、基底状態は Ge 低濃度とおなじ k_3 相である。

次に、図4(b)の CRRSG0.10/y 系の電気抵抗の Ge 濃度変化を見てみる。Ge 低濃度領域($y < 0.26$)では、反強磁性転移点 T_N で急激に増大する異常を示している。これは、反強磁性転移に伴い Fermi エネルギーのところにエネルギーギャップが発生し、Fermi 面の一部が消失する、SDW 転移に特徴的な振舞である。一方、Ge 高濃度領域($y > 0.26$)では、逆に（局在スピン系の磁気転移によく見られる） T_N で電気抵抗が下方に折れ曲がるカスプ型の異常が現れる。これは、 k_3 相から k_1 相への相転移が、f 電子の遍歴-局在の変化に対応していることを示唆している。この遍歴-局在の変化は、 k_3 相と k_1 相の磁気変

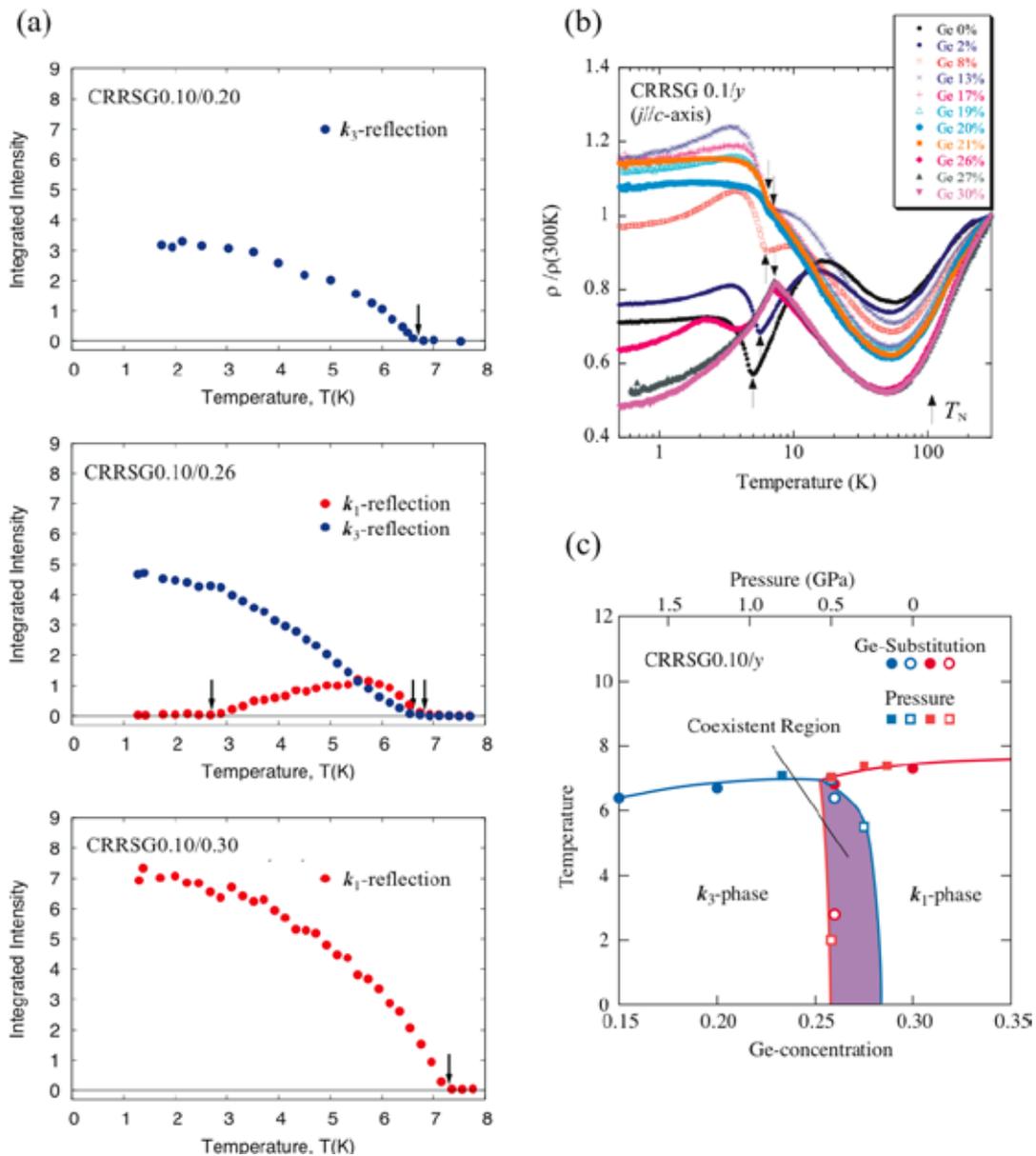


図4 (a) CRRSG0.10/y $y = 0.20, 0.26, 0.30$ の中性子弾性散乱強度の温度変化。赤丸は k_1 散乱、青丸は k_3 散乱の強度を表している。(b) CRRSG0.10/y の温度変化。 T_N での異常の形状が $y < 0.26$ と $y > 0.26$ で違っている。(c) CRRSG0.10/y の yT 相図。 CRRSG0.10/0.30 に対する静水圧下実験の結果も合わせて表示している。下横軸が Ge 濃度、上横軸が静水圧。

調の違いにも現れており、中性子弾性散乱実験による 3 次高調波測定から、 k_3 相では sin 波動的、 k_1 相では矩形波動的になっている。また、CRRSG0.10/0.26 では、降温とともにまずカस्प型の異常が現れ、低温でギャップ型の異常が観測されており、中性子弾性散乱実験で観測された k_1 相から k_3 相への再転移が電気抵抗にも現れていることが分かる。

図 4(c)に、CRRSG0.10/y 系の yT 相図を示す。相図には、CRRSG0.10/0.30 に対して静水圧をかけ、 V_{cf} を強めていった実験の結果も載せてある。Ge 置換の結果と静水圧下実験の結果は、圧力と Ge 濃度の間に線型な関係が成り立つと仮定をする事で、定量的に良く一致する。静水圧下でも、 k_3 相と k_1 相の境界で両磁気散乱の共存は見つかっている。これは、Ge 置換による一連の磁気状態の変化が、主として単純な体積効果に起因している事を示している。 k_3 相と k_1 相の境界で k_1 と k_3 の磁気散乱が共存している理由については、(i) k_1 相と k_3 相との間の一次転移に起因する 2 相共存、(ii) k_1 と k_3 の両方の磁気変調の重ね合わせで表される double- k 構造を持つ第 3 の磁気相の出現、の 2 つが考えられる。現在のところ、どちらが正しい描像なのか、結論は得られていない。 k_3 相と k_1 相における f 電子状態 (遍歴 or 局在) をよりはっきりと確かめる実験等とともに、今後の課題である。

参考文献

- [1] S. Sachdev, “Quantum Phase Transitions” (Cambridge University Press)
- [2] J. A. Hertz, Phys. Rev. B 14, 1165 (1976).
- [3] M. Suzuki, Prog. Teor. Phys. 56, 1454 (1976).
- [4] H. v. Löhneysen et al., Rev. Mod. Phys. 79, 1015 (2007).
- [5] S. Kambe et al., J. Phys. Soc. Jpn. 65, 3294 (1996).
- [6] A. Schröder et al., Nature (London) 407, 351 (2000).
- [7] H. Kadowaki, Y. Tabata et al., Phys. Rev. Lett. 96, 016401 (2006).
- [8] Y. Tabata et al., Proceedings of the international symposium on Topological aspects of critical systems and networks (World Scientific), 166 (2007). C. Kanadani et al., J. Magn. Magn. Mater. 310, 357 (2007).
- [9] P. Haen et al., J. Low Temp. Phys. 67, 391 (1987).
- [10] L. P. Regnault et al., Phys. Rev. B 38, 4481 (1988).
- [11] H. Kadowaki et al., Phys. Rev. Lett. 92, 097204 (2004).
- [12] S. Kawarazaki et al., J. Phys. Soc. Jpn. 66, 2473 (1997).
- [13] Q. Si et al., Nature (London) 413, 804 (2001).
- [14] H. Kadowaki et al., Phys. Rev. Lett. 101, 096406 (2008).

著者略歴



田畑 吉計 (Yoshikazu Tabata)

京都大学大学院工学研究科材料工学専攻 准教授

2001年 大阪大学大学院理学研究科物理学専攻博士後期課程修了 理学博士

2001年 理化学研究所播磨研究所 放射光利用連携研究員

2001年 大阪大学大学院理学研究科宇宙地球科学専攻 助手

2007年 京都大学大学院工学研究科材料工学専攻 助教

2008年 京都大学大学院工学研究科材料工学専攻 現職