

LaSb, CeSbの de Haas - van Alphen 効果

東北大理, 東大物性研^A

北沢英明, 世良正文, 小黑勇^A, 志田博,

鈴木孝, 柳瀬章, 糟谷忠雄

§ 1. 序論

NaCl構造をもつCe³⁺ニクタイト, CeX (X=N, P, As, Sb, Bi)のうちCeSb, CeBiは、非常に異常な物性を示すことで、理論家及び実験家に大きな興味を与えてきた。それらは、常磁性領域での結晶場分裂は非常に小さいが (Birgeneau et al., 1973)、秩序状態では、[001]方向に非常に強い磁気異方性をもち (Bartholin et al., 1974, 1975)、複雑な磁気相図を示す (Rossat-Mignod et al., 1977; Fisher et al., 1978)。最近、我々の理論グループは、これらの異常なふるまいを説明するp-f mixing model (Takahashi et al., 1982) を提唱している。特に、秩序状態では、強いp-f mixingにより、valence bandが大きくshiftし、hole数が増加し、open orbit ができると言っている。

一方、4f電子を持たないLa³⁺ニクタイトの電子構造は、長谷川のバンド計算 (Hasegawa, 1980) による理論的研究が行なわれている。しかし、希土類³⁺ニクタイト, カルコゲナイドを通じてみても、それに対応するフェルミ面の実験的研究は皆無であった。

従って我々は、以下の2点が重要だと考え、今回はLaSb, CeSbの de Haas-van Alphen (以下dHvAと記す) 効果を測定したので報告する (Suzuki et al., 1981)。

- i) 異常磁性を示すCeSb, CeBiのreference系としてのLaSb, LaBiのフェルミ面を実験的に明らかにする。
- ii) 異常磁性を示すCeSb, CeBiのフェルミ面を実験的に明らかにすることにより、p-f mixing modelの実験的検証をする。

§ 2. 実験方法

dHvA効果による振動磁化の周期から、フェルミ面の磁場に垂直な極値断面面積が求まる。従って、磁場の角度依存性より、フェルミ面の形を実験的に求

めることができる。

磁場変調法により、磁場を150 kOeまで上げ、温度は1.3 Kまで下げて測定した。

§ 3. LaSbのdHvA効果

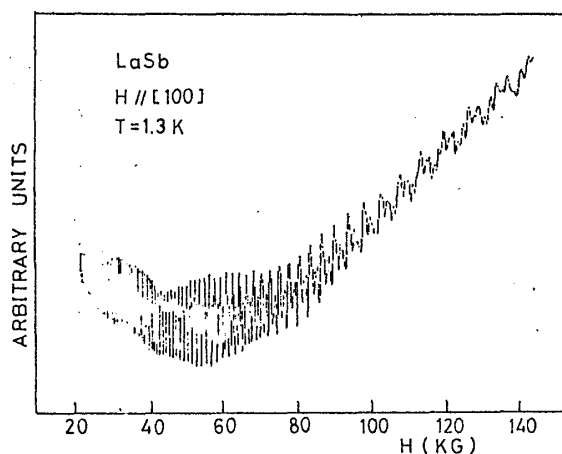


Fig. 1. The first harmonics signal of dHvA oscillation for magnetic field along [100] axis at 1.3K for LaSb.

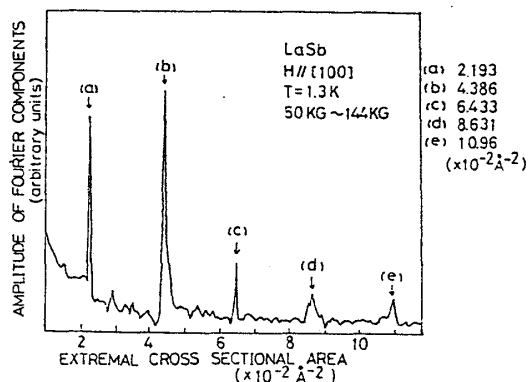


Fig. 2. The Fourier transform of data in Fig. 1.

Fig. 1, Fig. 2 はそれぞれ、磁場を[100]方向に平行にかけた時のdHvA効果によるシグナル及び、そのフーリエ変換である。Fig. 2の5つの顕著なピークのうち(b)~(e)と名付けられた4つのピークは、ピーク(a)と高調波の関係に見える。しかし、(b)のピークは(a)のピークより大きく、またFig. 3で磁場を(001)面内で回転した時、ピーク(a), (b)の角度依存性が異なっている。従ってピーク(b)はピーク(a)とは独立のもので、偶然にも[100]方向でピーク(a)のsecond harmonicsと重なっていたのである。

Fig. 3 は、(001)面内で磁場方向を変えて測定し、極値断面積の角度依存性をプロットしたものである。[100]方向での独立なピーク(a), (b)だけを追

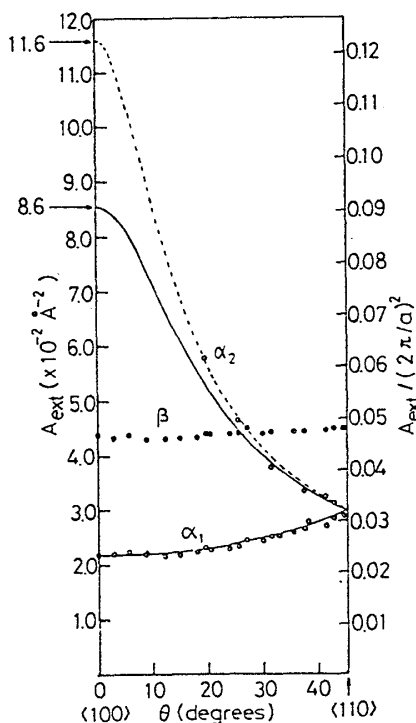


Fig. 3. Extremal cross-sectional area of the Fermi surface for LaSb as a function of the field direction on the $[001]$ plane. The experimental results are shown by circle.

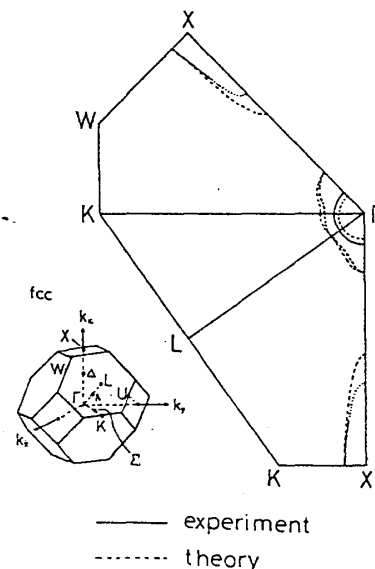


Fig. 4. The Fermi surfaces of LaSb. Experimental results shown by the solid lines and results of band calculation are shown by dashed line.

いかけ、それぞれが α -branch, β -branchに対応している。まず、 β -branchは1本のbranchから成り、角度変化がほとんどないことから、 Γ 点にあり、ほぼ球形に近いフェルミ面からの寄与である。次に、 α_1, α_2 -branchは、 $[110]$ 軸で1つに縮退し、角の角度では2つに分かれている。これは Γ 点以外にあるフェルミ面からの寄与である。バンド計算によると、 Γ 点には3つのhole面が、3つのX点にはelectron面が存在するとしている。従って、我々は α_1, α_2 -branchはX点のelectron面からの、 β -branchは Γ 点のhole面からの寄与であると判断した。X点のelectron面が、 Δ 軸方向に回転軸をもつ回転楕円体であると近似し、 α_1, α_2 -branchにbest fitした実線で示してある。波線はバンド計算から求められる角度変化を示す。バンド計算によるフェルミ面は回転楕円体からずこしずれて Δ 軸上近傍でずるどく伸びているが、 α_2 -branchの $[100]$ 軸付近のデータが得られなかったために、この伸びは評価できないが、この点

を除けば、バンド計算と実験は非常に良く一致している。

以上の結果を模式的に表わしたのが Fig. 4 である。実線は実験から、波線はスピン軌道相互作用を入れないバンド計算から求めたフェルミ断面を表わす。強いスピン軌道相互作用のため、主に Sb の p 状態からなっている Γ 点の valence band のうち quartet $J=3/2$ state は、doublet $J=1/2$ state よりも、約 0.5 eV だけ高くなっている。従って、最も小さな hole 面が Fermi energy より下に shift して消え、残った小さい方の hole (light hole) 面を観測したと期待できる。

Conduction electron 数は実験から回転楕円体を仮定して、0.016/La, バンド計算から得られる Δ 軸上の伸びを加えて 0.02/La となり、球モデルを適用した時の valence hole 数は実験の β -branch が non-degenerate として 0.0038/Sb となる。一方、磁気抵抗の実験 (Sera et al, 1982) から、LaSb は conduction electron 数と valence hole 数が等しい semi metal であることがわかっている。従って、さらに体積で数倍大きな hole (heavy hole) 面の存在が予想されるが、我々の実験にはみられなかった。最近、スピン軌道相互作用を考慮したバンド計算が行われたが (Hasegawa, 1982), それとの対応で見ると、小さな hole 面の実験、理論の一致は良いことがわかった。

§ 4. CeSb の dHvA 効果

Fig. 5 は、磁場を [100] 方向に 64.1 KG から 145 KG までかけた時の dHvA 効果によるシグナルをフーリエ変換したものである。(a) ~ (g) の 7 本の顕著なピークのうち、(c) は (a) の second harmonics, また、(d) は (b) の second harmonics の関係であるため、(a), (b) 及び大きな断面積をもつ (e), (f), (g) が [100] 方向の極値断面積に対応する。

Fig. 5 The Fourier transform of the first harmonics of dHvA oscillation for magnetic field along [100] axis at 1.3 K on CeSb.

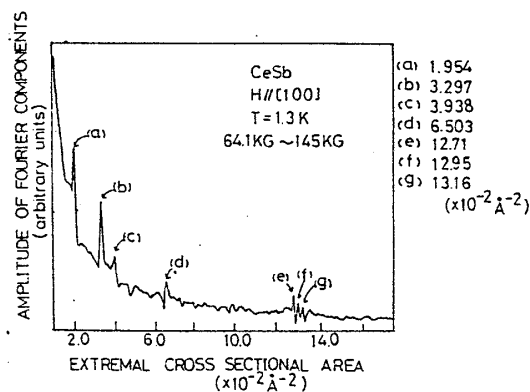


Fig. 6 は (001) 面内での極値断面積の角度依存性を示す。角度変化の際、高周波成分、言い換えると大きな極値断面積成分が非常に小さいため、今回は [100] 方向の (e), (f), (g) 成分を省略して、(a), (b) 2つのピークだけを追いかけた。ピーク (a) は α -branch に、ピーク (b) は β -branch に対応する。 α -branch に比べ、 β -branch は非常にフーリエ成分が小さいためバラつきが多く、弱干の誤差はやむを得ない。しかし、[100] 方向で一つに縮退し、他の角度では β_1, β_2 という 2つの branch に split しており、LaSb との比較より、我々は X 点の electron 面であると考ええる。 β -branch に引いた実線は、X 点の electron

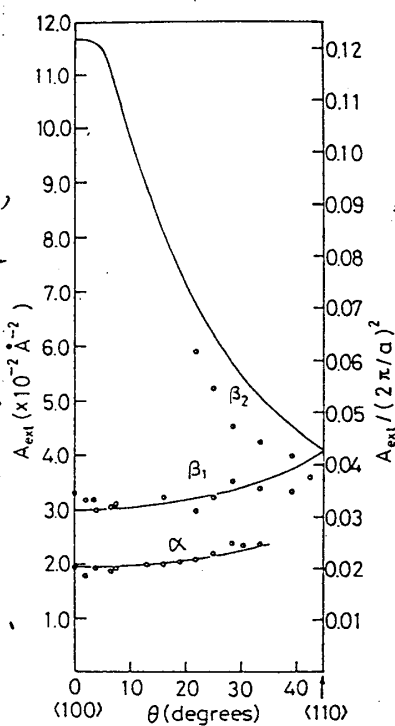


Fig. 6. The extremal cross-sectional area of the Fermi surfaces as a function of the field direction on the (001) plane for CeSb.

面に対して LaSb の electron 面と同じ曲率をもった回転楕円体として近似した時の fitting curve を表わしているが、あまり良い一致は得られない。

この原因として [100] 近傍で強い α -branch との干渉効果が考えられる。この β -branch に関しては、今後さらに注意深い測定が必要である。

一方、シグナル強度の一番強い α -branch には、LaSb に観測されなかった大きな特徴が見られる。それは、 α -branch が [100] 方向から [110] 方向へ約 33° 傾いたところで突然消えてしまった点である。これは明らかに neck のフェルミ面によるものである。しかもこの neck は LaSb では存在せず、CeSb で初めて生じたものである。そこで [100] 方向を軸とした有限の長さの円筒で近似して、 α -branch に fitting させたのが実線である。すなわち、 α -branch によるフェルミ面は [100] 軸と平行な軸をもつ円筒形で、約 33° 傾いたところで急に広がった neck となっている。

問題は LaSb では観測されない neck がなぜ CeSb で観測されたかにある。

一方、我々の理論グループが提唱した p - f mixing model では hole 面が Δ 軸上で neck をつくと指摘している。

従って、我々は α -branch の neck が p - f mixing によって生じた hole 面の neck だと判断した。

以上を schematic にまとめたのが Fig. 7 である。

波線は $M_J = 5/2$ の基底状態で $[001]$ 方向を量子化軸としたときの p - f mixing により shift した valence hole 断面を表わす。点線は無擾動状態の hole 断面を表わす。 α -branch による neck は切れた実線で表わされ、理論の neck とかなり良く合っている。この

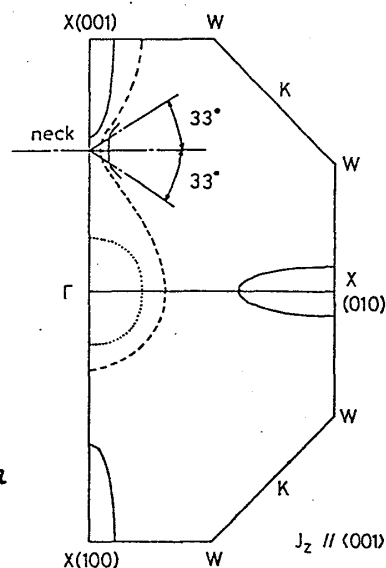


Fig. 7 The Fermi surfaces of CeSb.

neck は p - f mixing model を支持する大きな証拠である。さらに測定条件を改良して、 Γ 点付近の大きな hole 面を観測する必要があると考えられる。また、 X 点を中心とした回転楕円体 model を β -branch に適用した時の conduction electron 面を実線で示してある。conduction electron 数は実験から上述の回転楕円体及びスピン縮退を仮定して $0.024/\text{Ce}$ 、理論では約 $0.09/\text{Ce}$ が予想される。一方、hole 効果の測定 (Sera et al., 1982) では $0.067/\text{Ce}$ であるとしている。さらに、磁気抵抗の実験 (Sera et al., 1982) より、hole と electron の数が等しいことがわかっている。従って、我々が得た β -branch の electron 数はあまりにも小さいと言わざるを得ない。従って、より大きな electron 面が未観測のままであることになる。この点について、 d - f coulomb exchange interaction により、conduction band が up spin, down spin に split し、down spin band が今回観測されたと考える。とにかくにも、 β -branch に関しては、今後より精密な測定が必要である。

§ 5. 結論

i) LaSb の Fermi 面のうち、light hole 及び、conduction electron 面が観測され、バンド計算との良い一致をみた。さらに、heavy hole 面の存在が予測できる。

ii) CeSb の Fermi 面のうち、valence hole による neck が観測され、p-f mixing model の実験的サポートとなる。

iii) 今回省略した高周波成分の測定が今後の課題である。この点に関して、現在、以下の計画を着々と進めている。(a) ~ (c)

(a) 温度を 0.5 K まで下げ、dHVA 効果の signal の振幅を大きくして、S/N 比を大きくする。(b) signal の振幅を決定するもう一つの要因であるベッセル関数 $J_2(2\pi \times F_i h / H_0)$ を操作する。つまり、 J_2 が振動関数であることを利用して変調磁場の振幅 h と静磁場 H_0 の自乗の比を一定に保ち、任意の周波数成分 F_i だけを enhance する。(c) (a) と関連するが、computer に制御させ、さらに今までデータを一点ずつプロットしてきたのをやめ、直接 computer に測定装置を直結させ、人の手が介在しないようにする。

§ 6. References

- Birgeneau, R. J., Bucher, E., Maita, J. P., Passel, L., Turberfield, K. C., *Phys. Rev. B* **8** 5345 (1973)
- Bartholin, H., Florence, D., Tchong-Si, W. and Vogt, O., *Phys. Stat. Sol. (a)* **24** (1974) 631-636 and (a) **29** (1975) 275-279
- Rossat-Mignod, J., Burlet, P., Villain, J., Bartholin, H., Tchong-Si, W., Florence, D., and Vogt, O., *Phys. Rev.*, **B16** (1977) 440
- Fischer, P., Lebeck, B., Meiter, G., Rainford, B. D. and Vogt, O. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, **11** (1978) 345-364 and **11** (1978) 1173-1186
- Hasegawa, A. *J. Phys. C: Solid State Phys.* **13** (1980) 6145-6156
- Suzuki, T., Kitazawa, H., Sera, M., Oguro, I., Shida, H., Yanase, A. and Kasuya, T., *Proc. Int. Conference of Electronic and structural effect in f electron system Wroclow Poland 1981*
- Takahashi, H., Takegahara, K., Yanase, A. and Kasuya, T., 本研究会発表 (1982)
- Sera, M., Suzuki, T. and Kasuya, T., 本研究会発表 (1982)
- Hasegawa, A., 本研究会発表 (1982)