

修士論文 (1997年度)**USbの高分解能角度分解光電子分光**

東北大学大学院理学研究科物理学専攻 放射光・光電子物理研究室

芦原 新

目次

第一章 序論	624
§ 1-1 USbの物性	624
1-1-1 USbの諸物性	624
1-1-2 USbのdHvA効果	626
1-1-3 USbのバンド計算	626
§ 1-2 本研究の目的	627
第二章 実験	627
第三章 結果と考察	628
§ 3-1 反強磁性相 (25K) における実験結果と考察	628
3-1-1 反強磁性相USbの角度分解光電子スペクトルとバンド構造	628
3-1-2 USbとLaSbのバンド構造の比較	631
3-1-3 他の実験結果やバンド計算との比較	633
§ 3-2 常磁性相 (250K) における実験結果と考察	633
第四章 まとめ	635
参考文献	636
謝辞	637

要旨

複雑な磁気構造に代表される異常物性が報告されているUSbについて、その磁性に深く関わっていると考えられるフェルミ準位近傍の電子状態を調べるために高分解能角度分解光電子分光を行った。従来USbは、LaSbやCeSbのようにフェルミ準位付近でdバンドとSb5pバンドが少しだけ重なる半金属的なバンド構造を持つと考えられていたが、本実験から、Sb5pバンドが完全に満たされている金属的なバンド構造を持つことが明らかになった。また、フェルミ準位近傍にU5fレベルが存在し、 Γ 点付近にU6d電子によるものと考えられるエレクトロンポケットを示唆するバンドが存在することを見出した。反強磁性相 (25K) から常磁性相 (250K) への相転移前後で、これらのdf混成バンドの状態が大きく変化する事が観測された。これらの結果は、USbの磁性が従来考えられていたようなp-f混成効果によるものではなく、df混成に起因するものであることを示唆している。

 *この論文は、私の修士論文「USbの高分解能角度分解光電子分光」を、物性研究に掲載する原稿として書き直したものである。まとめ直す過程で、東北大学に提出した修士論文と記述に若干の違いが生じたことをあらかじめ断っておく。

第一章 序論

5f強相関電子系の物質は、ヘビーフェルミオンや異方的超伝導に代表される様々な興味深い物性を示し、特にそれらの示す複雑な磁性から盛んに研究が行われている。一方、5f電子の波動関数の広がりや4f電子系と3d電子系の中間的状況にあることから、多体効果を取り込んだ一体バンドモデル（遍歴モデル）や一不純物アンダーソンのような原子多体局在モデルを用いて、これらの物質の物性を記述する試みがいろいろと行われているが、未だ統一的な見解は得られていない[1]。

角度分解光電子分光法は、固体中のバンド分散を直接観測できる強力な実験手段であり、近年の高分解能化によって、その物性を支配しているフェルミ準位近傍の詳細なバンド構造をも決定できるようになった。角度分解光電子分光は従来のdHvA等の実験に比べて、以下の長所を持つ。1) 測定可能な温度範囲が広い。したがって、温度によって様々な（磁気、構造）相転移を示す物質の、電子構造やフェルミ面の変化を観測することができる。2) フェルミ面のみならずフェルミ準位以下の広いバンド構造を測定できるため、ブリルアンゾーン中での絶対位置及び、フェルミ面の性格（電子的、ホールの）を決定できる。3) 測定の際の励起光を変化させ、バンド強度の励起光依存性を調べることで、バンドを形成している原子軌道の性質（伝導電子or f電子）を知ることができる。

このような利点を持つ角度分解光電子分光法によるf電子系の物質の研究は、最近、純良な単結晶が作成されるようになり、可能になった。4f電子系の物質であるCeSbでは異方的p-f混成効果による磁気相転移を伴ったバンド構造の変化を初めて観測し[2]、その参照物質であるLaSbではバンド計算と定性的にかなり良い一致を示す結果が得られた[13]。

そこで本研究では、上述のCeSbの4f電子をより遍歴的な5f電子に置き換えたUSbにおいて、バンド構造がどのように変わるのか調べるために、高分解能角度分解光電子分光を行った。

§ 1-1 USbの物性

1-1-1 USbの諸物性

USbはNaCl型結晶構造を持つ反強磁性体（ネール温度 $T_N=214\text{K}$ ）である。USbの磁性については、非弾性中性子散乱の実験によって観測された[3]。スピン波の分散[4]、及び、この実験結果のモデル計算による解析[5]の結果、USbがtriple-k structureという複雑な磁

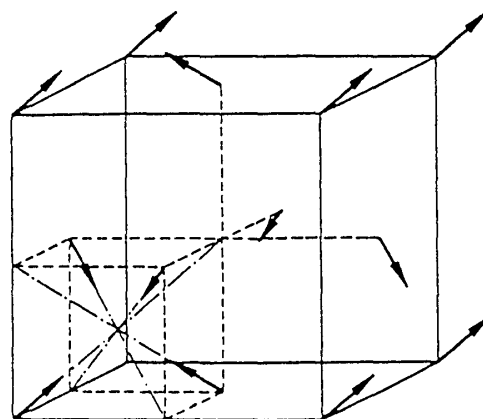


図1-1 : triple-k structure

	格子定数 (Å)	磁気秩序	転移温度 (T _c , T _N)	磁気 モーメント μ_0 (μ_B)	電子比熱係数 γ (mJ/K ² · mol)
UN	4.889	A.F.	50	0.8	26
UP	5.589	A.F.	129, 23	1.9, 1.7	32
UAs	5.767	A.F.	123, 63	2.2, 1.9	53
USb	6.197	A.F.	214	2.8	4
UBi	6.364	A.F.	285	3.0	-

表1-1: Uモノプニクタイトの物性

気構造を持つことが明らかになった。

また、比熱の測定から、USbの電子比熱係数 γ が $4.4 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ とヘビーフェルミオン系の物質のもの ($10^2 \sim 10^3 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$) に比べてかなり小さいことが報告されている[6][7]。この値を他のUモノプニクタイトの物質と比べる(表1-1)と、UAsからUSbにかけて一桁も減っている。このことは、UPやUP、UAsでは遍歴的であったU5f電子が、USbになると局在的になることを意味していると考えられる。

さらに、電気抵抗の実験結果[6][8]を図1-2に示す。USbの電気抵抗が、40K以上でLaSbや4f強相関電子系のCeSbに比べて大きい事がわかる。また、USbの電気抵抗は約140Kで極大値を持ち、ネール温度である214Kで電気抵抗の温度微分に不連続なとびがあることがわかる。このことは、磁気相転移前後で何らかの電子構造の変化が起きていることを示している。一方、横磁気抵抗の実験(図1-3)より、電気抵抗が磁場の2乗に比例し、その磁場方向依存性がないことから、反強磁性相USbのホール数と電子数が等しいことが報告されている[6]。

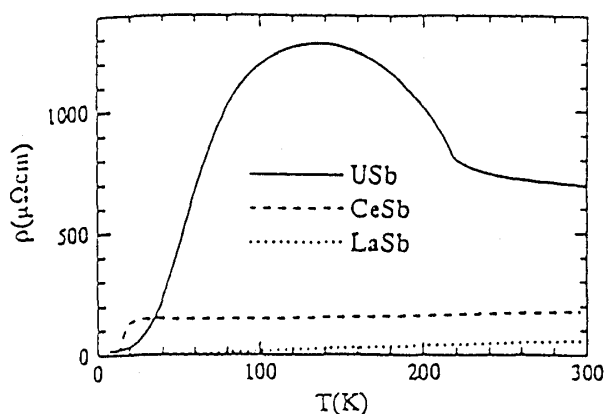


図1-2: USbの電気抵抗

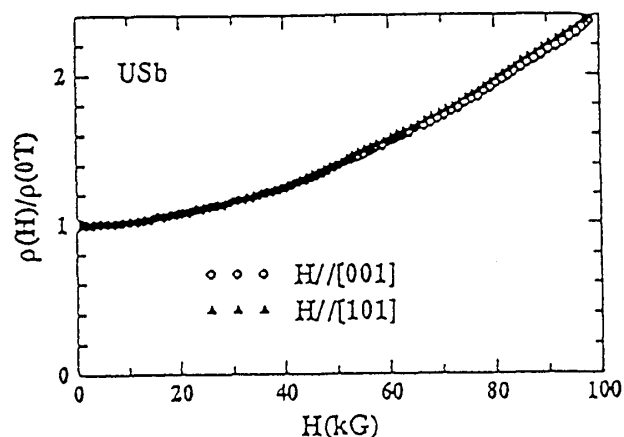


図1-3: USbの横磁気抵抗

1-1-2 USbのdHvA効果

USbのdHvA効果は、すでに、鈴木等のグループの結果[6][9][10]や石黒等[11]によって測定が行われている。その結果、3枚のフェルミ面（2枚の回転楕円体と1枚の球体）が観測された（図1-4）。また、この結果から得られたサイクロトロン質量は0.9から2.7と小さいので、フェルミ面の形成しているバンドへの、U5f電子の寄与は小さいと考えられる。

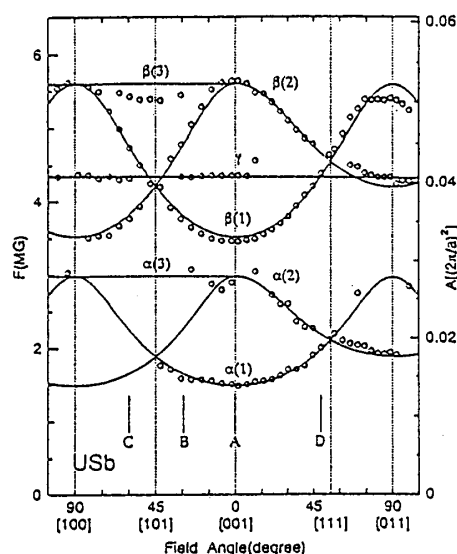


図1-4：USbのフェルミ面の極値断面積

1-1-3 USbのバンド計算

鈴木グループや石黒等の行ったdHvA効果の実験結果を説明するために、いくつかのバンド計算がUSbについて行われた。なお、ここで紹介する計算は断らない限り、すべて単純立方のブリルアン・ゾーン（図1-5）で表記されている。

長谷川等は、USbのU5f電子を局在しているとして取り扱った計算、つまり、AcSbのバンド計算を、RLAPW法を用いて行った[11]。ただし、この計算ではスピン偏極は無視されている。その結果が図1-6と図1-7で、図1-6は面心立方のブリルアン・ゾーンについて計算したもの、図1-7が磁気秩序によるバンドの折り畳みを考慮することによって図1-6から得られた結果である。図1-7をみると、 Γ 点にSb5pによるホール面が2枚、X点にU6dによる電子面が2枚の全部で4枚のフェルミ面があることがわかる。

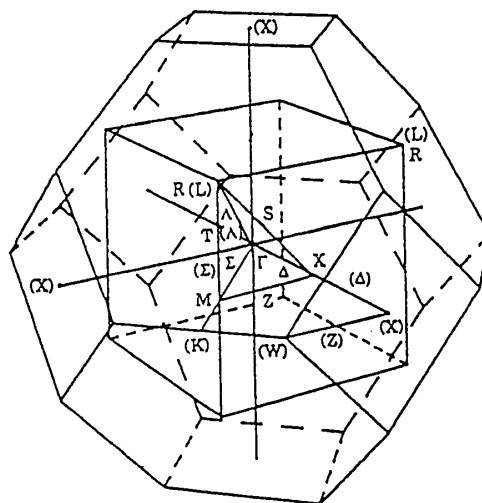


図1-5：fccと単純立方のブリルアンゾーン

一方、糟谷等によっても、USbのバンド計算が行われており、U5f電子を局在しているとして取り扱ったバンド計算が行われている[12]。これらの計算では、USbはU6dによるエレクトロンポケットとSb5pによるホールポケットが少しだけ重なる（LaSbやCeSbの）ようなキャリアの少ない半金属であるという点では一致するものの、両者でフェルミ面の形状や性格（ホールの、電子的）に食い違いがある。また、USbの磁性はCeモノプニクタイトで成功を修めているp-f混成効果[13]によるものであると考えられている。

§ 1-2 本研究の目的

これまで行われた実験結果やバンド計算による解析から、USbはU6dバンドとSb5pバンドが少しだけ重なるようなキャリアの少ない半金属であると考えられてきた。また、その磁性はCeSbのようなp-f混成効果[2][13]によるものであると考えられている。しかし、dHvA効果の実験ではフェルミ面の形状しか得られないため、バンド計算による解析が必要となる。当然のことながら、ここで一電子近似がよい近似となっていることが大前提となっている。しかし、U化合物においてはこの大前提自体が正しいかどうか、問題となっている。USbにおいては、上述の通り、バンド計算による解釈が確定せず混乱している状態にある。したがって、実験的にUSbのバンド構造（フェルミ面）を決定することが必要不可欠であると考えられる。

本研究の目的は、バンド分散を直接観測できる非常に強力な実験手段である角度分解光電子分光法を用いて、USbの磁性に深く関わっていると考えられるフェルミ準位近傍の電子構造を実験的に決定することにある。また同時に、USbの磁気構造の解明のために、その磁気相転移前後において、高分解能の測定を行った。

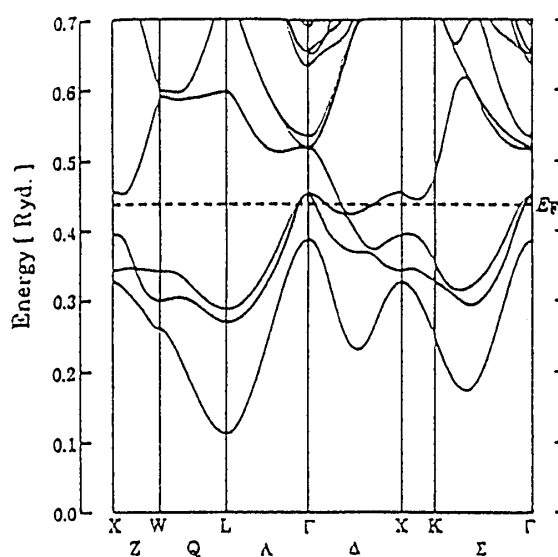


図1-6：AcSbのバンド計算（fccのブリルアンゾーン）

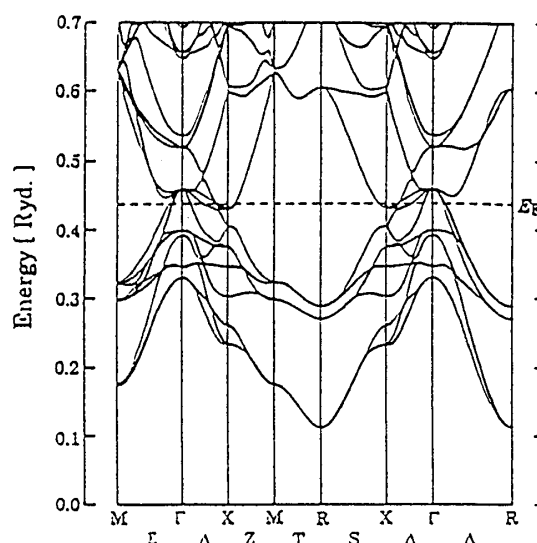


図1-7：AcSbのバンド計算（単純立方のブリルアンゾーン）

第二章 実験

実験は東北大学において建設された極低温・高分解能角度分解光電子分光装置を用いて行った。本装置の概略図を図1-2に示す。高分解能化のために、直径30cmの大きなアナライザーを用い、地磁気の影響を防ぐために二重の μ メタルで覆っている。これによって最高分解能15meVを達成している。また、外部からスリットを取り付けることにより角度分解測定が可能である。試料は、He循環型のクライオスタットによって8Kまで冷却可能である。

本実験は、角度分解測定であるために劈開表面について数十本のスペクトルを取らなければならないことと、試料であるUSbの劣化がかなり早いことを考慮して、エネルギー分解能を50meV、角度分解能は1°に設定した。また、試料温度は反強磁性相25Kと常磁性相250Kにセットした。実験を通して試料温度は同じ温度に保ち続け、その誤差は1K以下である。光電子分光に必要な清浄表面は 3.0×10^{-11} Torrの超高真空中で高品質なUSb単結晶を(001)面で劈開することによって得た。測定方向は、USbが単純なNaCl型の結晶構造を持ち、(001)面で劈開できることから、fccのブリルアンゾーンの Γ -X方向について行った。励起光は、価電子帯がSb5pバンドで形成されていることから、Sb5p電子に対する光

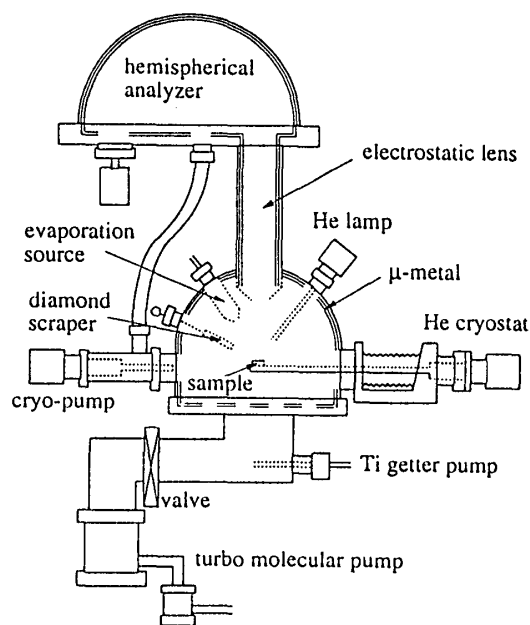


図2-1：極低温・高分解能光電子分光装置の概略図

励起断面積の大きいHeI励起光を用い、U5f状態について詳細な情報を得るときには、U5f電子に対する光励起断面積の大きいHeII励起光を用いた。フェルミ準位（EF）は、試料基板に蒸着した金のフェルミエッジから見積もった。フェルミレベルの位置の誤差は、5meV以下と見積もられる。試料の劣化はバックグラウンドの増加として表れることを利用して、劈開直後のNormal emission（ $\theta=0^\circ$ ）のスペクトルを基準にとり、一時間ごとにこの試料の表面の劣化をチェックし、劣化が始まる前までに、すべての角度分解光電子スペクトルを取り終えた。さらに、いくつかの試料について同条件で測定をすることにより、再現性があることを確認している。なお、同じ図に掲載してある角度分解スペクトルは、すべて同じ劈開面についてとったものである。

測定に用いた試料は鈴木孝教授からいただいた。測定に用いたUSb単結晶の格子定数等の値は、dHvA信号が観測されている試料[6]と同じ値であることから、その品質が保証されている。

第三章

§ 3-1 反強磁性相（25K）における実験結果と考察

3-1-1 反強磁性相USbの角度分解光電子スペクトル

図3-1に反強磁性相USbの25Kにおける価電子帯の高分解能角度分解光電子スペクトルを

示す。角度分解光電子スペクトルの横に記してある ($\theta =$) は、試料表面に対して垂直方向 ($\theta = 0^\circ$, Normal Emission) からの角度を示す。スペクトルが角度を変化させることによって系統的な変化を示していることから、本測定が角度分解測定になっていることがわかる。角度 (θ) は結合エネルギーの関数として、波数ベクトル k に変換することができるので[14]、これらの角度分解光電子スペクトルの変化はUSbの Γ - Δ -X (X -W-X) 方向のバンド構造を直接反映していると考えられる。 $\theta = 0^\circ$ のスペクトルが図3-2のブリルアンゾーンの Γ 点と $X(z)$ 点に、 $\theta = 29^\circ$ が $X(x)$ 点と $X(y)$ 点に対応する。図3-1のスペクトルを見ると、まず、フェルミ準位近傍にほとんど分散を示さない2つの鋭いピークがあることがわかる。この2つのピークは、HeI励起光 (21.22eV) に比べてU5fに対する光励起断面積の大きいHeII励起光 (40.8eV) において、その強度が大きくなることから (図3-3)、U5fによる状態である事がわかる。一方、この2ピークとは対称的に、結合エネルギー1eVの構造は、大きく分散を示していることがわかる。これらの分散は、LaSbとCeSbのフェルミ準位直下の分散[2]と非常によく類似している。さらに、 Γ 点付近の分散に注目すると、結合エネルギー0.8eV付近に他のスペクトル ($\theta \sim 7^\circ$ 以上) には見られないような構造が存在していることがわかる。

図3-1の分散を詳しく見るために、バンドマッピングを行った。バンドマッピングは、図3-1の角度分解光電子スペクトルに (1) ピーク位置が変わらないことを確認しながらスムージングをかけ、(2) その2階微分をとり、(3) その強度の平方根をグレースケールで結合エネルギーと波数の関係で表示す

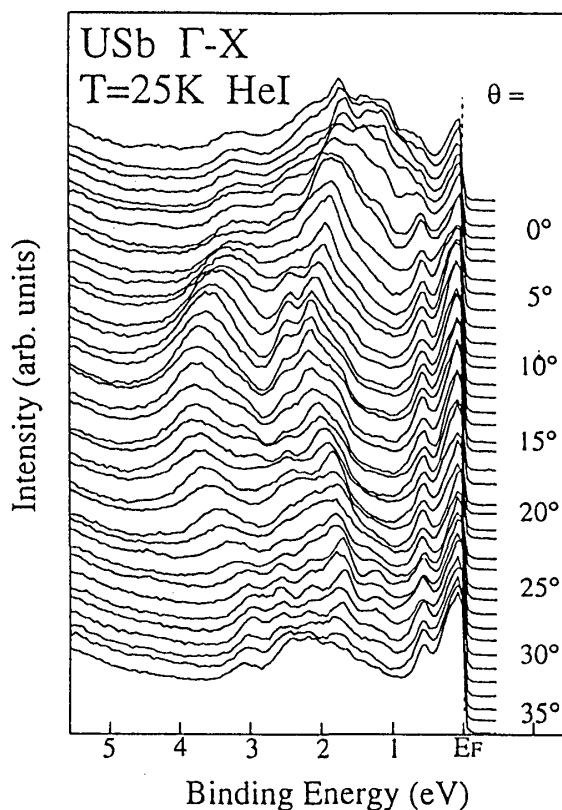


図3-1：反強磁性相 (25K) の高分解能角度分解光電子スペクトル

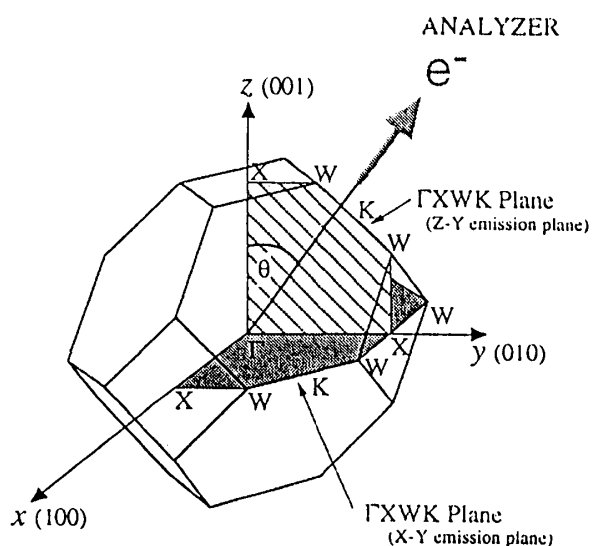


図3-2：USbのfccのブリルアンゾーン

る方法で行った。その結果得られた反強磁性相USbの「バンド構造」を図3-4に示す。図の濃い部分がエネルギーバンドに対応している。実線と点線は見やすくするために引いたもので、点線は真ん中の線（W点）に関して対称であることからX-W-Xというhigh symmetry lineからの寄与、一方、実線は Γ - Δ -Xというhigh symmetry lineからの寄与であると考えられる。また、これらのバンド分散が、 Γ (X)点及び、X(X)点について対称であることは、本実験の測定方向が正確であることと、得られた角度分解スペクトルがBulkの情報を反映していることを示している。

図3-4を見てみると、まず初めに、フェルミ準位近傍にほとんど分散を示さないU5f電子によるバンドが2本あることがはっきりとわかる。また、結合エネルギー1eV以上に大きく分散を示すバンドがあることがわかる。一方、 Γ 点付近のフェルミ準位近傍には、エレクトロンポケットを示唆するバンドが存在していることがわかる。このバンドとU5fピークのフェルミ準位近傍の振る舞いを詳しく調べるために、フェルミ準位近傍について精密な測定を行った。

図3-5に、フェルミ準位近傍の高分解能角度分解測定の結果（ Γ 点付近）を示す。 Γ 点付近に底を持つようなエレクトロンポケットを示唆する構造（図中の矢印）が存在することがはっきりとわかる。しかしながら、このエレクトロンポケットを示唆するバンドが、どのようにフェルミ準位を切っているのかは、この実験結果から必ずしも明確ではない。一方、U5fピークについて良く見ると、結合エネルギー0.6eV付近のfバンドはほとんど分散を示していないのに対し、フェルミ準位に近い方のfピークが Γ 点付近で幅が狭くなって

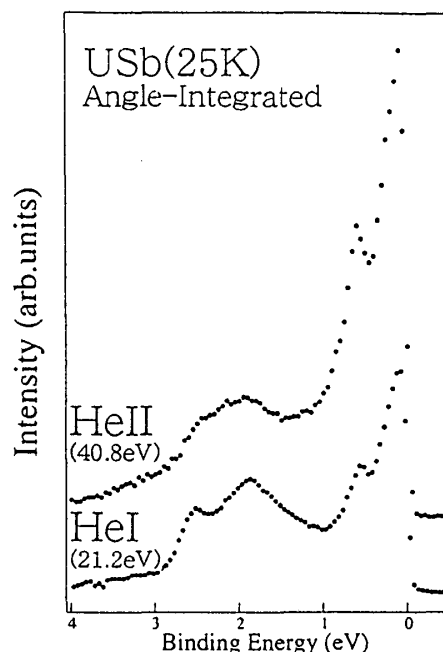


図3-3：USbの高分解能光電子スペクトル（角度積分型）（HeIとHeIIの比較）

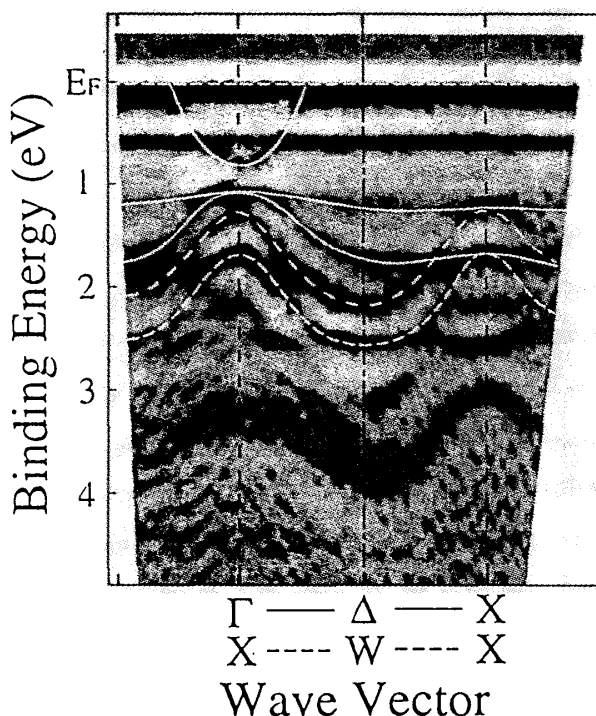


図3-4：反強磁性相におけるUSbのバンド構造

いることがわかる。また、エレクトロンポケットを示唆するバンドがフェルミ準位に近く回り ($\theta \sim \pm 5^\circ$ 以上) で、このフェルミ準位に近いU5fピークの幅が広がっていることがわかる。次に、このフェルミ準位に近いU5fピークがフェルミ準位を切っているかどうかという問題は重要であると考えられる。そこで、このU5fピークについてフェルミ準位極近傍の角度分解測定を行ったのが、図3-6である。

図3-6のスペクトルを見ると、角度を大きくするにつれて、U5fピークが高結合エネルギー側にシフトし、 $\theta = 0^\circ$ (Γ 点) と $\theta = 29^\circ$ (X点) の間で最大値をとり、そしてX点になるにつれて、低結合エネルギー側にシフトする様子が観測された。また、すべてのスペクトルについて、U5fピークの立ち上がりの中点は、フェルミ準位より高結合エネルギー側に存在していることがわかる。したがって、少なくとも Γ -X 方向では、これらのU5fピークは、(本実験の分解能の範囲において) フェルミ準位を切っていないように見える。このことは、フェルミ準位上の状態密度に対するU5f電子の寄与が少ないことを意味している。

3-1-2 USbとLaSbのバンド構造の比較

USbのバンド構造を詳しく議論するために、その非磁性参照物質であるLaSbのバンド構造との比較を行った。LaSbはLaが+3価の半金属であり、f電子を持っていないことから、USbのよい非磁性参照物質である。図3-7にその比較図を示す。右図の実線と点線は長谷川等によるバンド計算で実線が Γ - Δ -Xというhigh symmetry lineからの寄与であり、点線がX-W-Xというhigh symmetry lineからの寄与である。実験結果とバンド計算の比較から、LaSbは、 Γ 点にSb5p $_{3/2}$ バンドによるホールポケットを持ち、X点にLa5d $_{t2g}$ バンドによるエレクトロンポケットが持つ典型的な半金属であることがわかる。

USbとLaSbのバンド構造を比較すると、まず初めにUSbの結合エネルギー1eV以上のバ

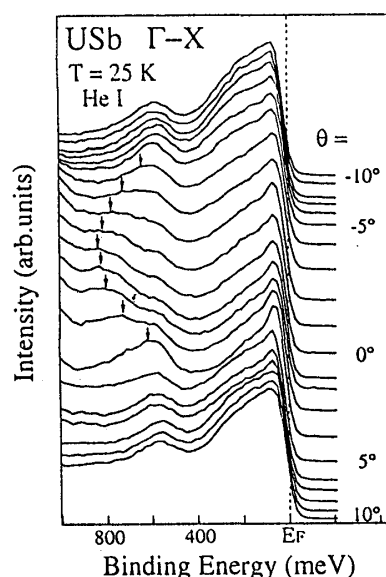


図3-5：フェルミ準位近傍の高分解能角度分解光電子スペクトル

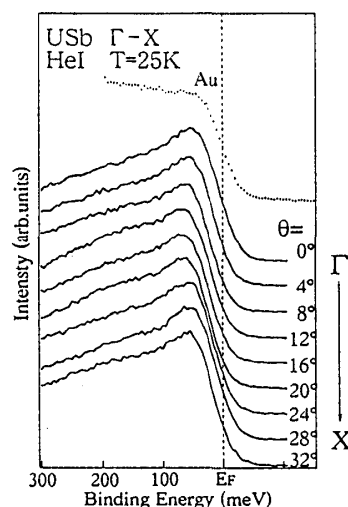


図3-6：フェルミ準位近傍のU5fピークについての高分解能角度分解光電子スペクトル

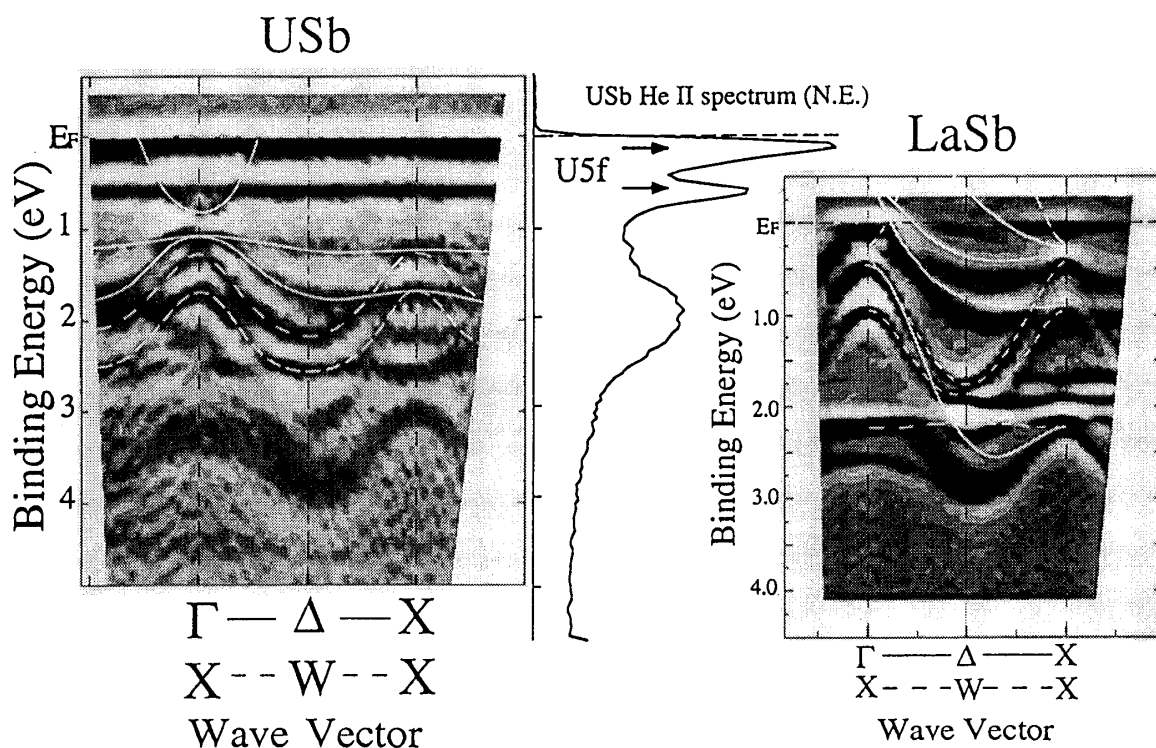


図3-7：USbとLaSbのバンド構造の比較

ンド構造がLaSbの価電子帯の構造と非常に類似していることがわかる。このことから、このバンド分散がSb5pによるものであることがわかる。また、このSb5pバンドが完全に占有されている。このことは、USbのU5fレベルがSb5pバンドの上に位置することによって、フェルミ準位がLaSbに比べて約1eV上昇していることを示している。さらに、USbのX点にはLaSbで明確に観測されているd電子によるエレクトロンポケットは観測されず、 Γ 点付近にU6d電子によるものと考えられるエレクトロンポケットを示唆するバンドが存在している。このバンドがフェルミ準位を切っているかどうかは、本実験から必ずしも明確ではないが、フェルミ準位近傍に注目すると、U6dバンドがフェルミ準位に接近している点から内側でU5fピークの幅が狭くなっていることがわかる。すなわち、1つの可能性として、U5f電子とU6d電子が Γ 点付近で混成バンドを形成しているものと考えられる。

以上の比較から、USbは、Sb5pバンドが完全に満たされており、その上にU5fバンドが存在するようなバンド構造をとるということが明らかになった。また、 Γ 点付近にU6d電子によるものと考えられるエレクトロンポケットを示唆するバンドが存在するということである。このバンドがフェルミ準位を切っているかどうかということについては、本実験から必ずしも明確ではないが、フェルミ準位に近いU5fピークの幅が Γ 点付近で幅が狭くなっていることから、U6d電子とU5f電子が混成することにより、この付近で混成バンドを形成しているものと考えられる。つまり、USbのバンド構造がこれまで考えられていたバンド構造（図1-6）ではないこと、また、そのフェルミ面がd-f混成バンドによって形成

されていることが明らかになった。これらのことを考慮して、以前行われた実験結果やバンド計算との比較を行った。

3-1-3 他の実験結果やバンド計算との比較

本実験から、Sb5pバンドが完全に満たされていることが見出され、USbは、フェルミ面がU6d電子、あるいはU6d電子とU5f電子の混成バンドで形成される金属的なバンド構造であることが明らかになった。しかしながら、以前行われた横磁気抵抗の実験から、ホール数と電子数が等しいということが報告されており、また、dHvA効果の実験では、半径（長半径、短半径も含む）の小さい（USbのfccのブリルアンゾーンの長さの1/10以下）フェルミ面が観測されている。けれども、本実験においてはフェルミ準位近傍におけるU5f状態の強度が強いために、dHvAで観測されているような小さなポケット（ホールand/orエレクトロン）は観測されていない。一方、本実験結果からは、USbは Γ 点に大きな電子構造を持つ金属的なバンド構造であると考えられる。これらの矛盾を明らかにするために、より高分解能の測定を行っていく必要がある。

ところで一方、USbのフェルミ準位近傍をみると、フェルミ準位に近いU5fピークが、 Γ 点付近において幅が狭くなり、U6dによるエレクトロンポケットを示唆するバンドがフェルミ準位に近づく辺りで再びブロードになっていく様子がわかる。そこで、上に述べた矛盾を説明するものとして、以下に述べる可能性がある。反強磁性相USbにおいては、triple-k 秩序下の1単位格子あたり、USb分子が4分子入ることになり、価電子数が36個となる。つまり、この状況では、ホール数と電子数というキャリア数が補償された半金属となる可能性が高い。また、磁気ブリルアン・ゾーン下でのd-f混成においては、キャリア数が少なくなる可能性が十分にある。つまり、USbは、磁気相転移前後で金属-半金属転移を起こしていると考えられる。したがって、1つの可能性として、 Γ 点付近のフェルミ準位近傍でU6d電子とU5f電子が混成バンドを形成して、キャリアの少ない半金属的なフェルミ面を形成していることが考えられる。

一方、本実験から、フェルミ準位に近いU5fピークは、本実験の分解能の範囲ではフェルミ準位を切っていないように見える。このことは、以前行われた比熱の測定（ $\gamma \sim 4.4 \text{ mJ/mol} \cdot \text{K}^2$ ）や、dHvA効果の実験から観測された小さいフェルミ面のサイクロトロン質量も（0.9~2.7）矛盾しない。つまり、USbのフェルミ面はU6d電子のキャラクターの強いd-f混成バンドによって形成されていると考えられる。

§ 3-2 常磁性相（250K）における実験結果と考察

反強磁性相USbにおける実験結果より、USbのフェルミ面は、U6dとU5fの混成バンドによって形成されていると考えられることから、その磁性にd-f混成が重要な役割を果たし

ていることが期待される。もし、USbの磁気相転移がd-f混成効果によるものならば、磁気相転移前後でバンド構造の変化[2]が期待される。そこで、USbの磁性にどのようなメカニズムが働いているのかを調べるために、常磁性相である250Kで高分解能角度分解光電子分光を行い、反強磁性相との比較を行った。

図3-8に、常磁性相USbの高分解能角度分解光電子スペクトルを示す。まず、全体の分散は反強磁性相（図3-1）のものとはほぼ同じであることがわかる。しかし、反強磁性相に比べると、U5fピークがかなりブロードになっていることがわかる。一般に、温度上昇に伴い光電子スペクトルはブロードになるが、このブロードニングは単純な温度ブロードニングよりも遥かに大きく、何らかの相転移に伴ったU5f状態の変化があることを示唆している。また、反強磁性相で見られた特徴的な Γ 点付近のエレクトロニクポケットを示唆するバンドが、常磁性相では観測されていない。そこで、Normal emission ($\theta=0^\circ$)の角度分解光電子スペクトルを相転移前後で比較したのが図3-9である。25Kで Γ 点にあったエレクトロニクポケットを示唆するバンドの底に相当するピーク（結合エネルギー0.8eV付近）が常磁性相ではなくなっており、U5fによる2ピークが観測されていることがわかる。一方、結合エネルギー1eV以上のSb5pバンドについてはほとんど変化がないことがわかる。これらの相転移に伴った変化を詳しく見るために、図3-4と同様の方法を用いてバンドマッピングを行った結果が、図3-10である。全体的なバンド構造には変化が見られないものの、反強磁性相において明確に観測されている Γ 点付近のエレクトロニクポケットを示唆するバ

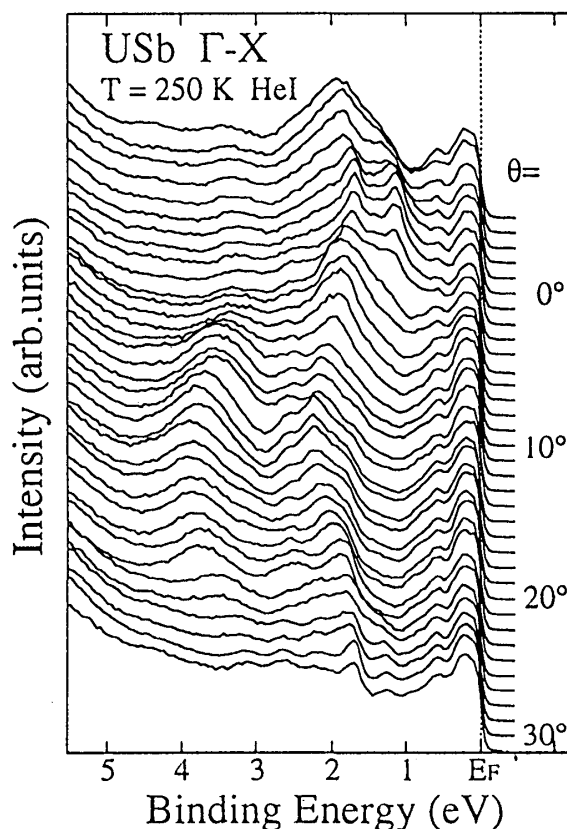


図3-8：常磁性相（250K）の高分解能角度分解光電子スペクトル

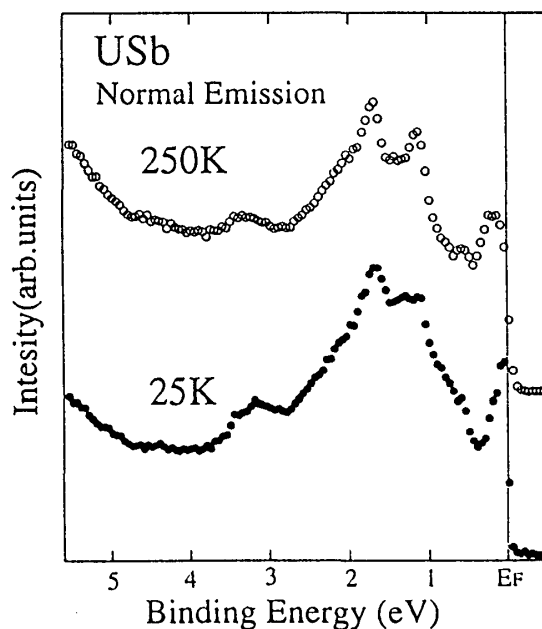


図3-9：25Kと250KのNormal Emission ($\theta=0^\circ$)の高分解能角度分解光電子スペクトル

ンドは存在しない事がわかる。また、常磁性相においては、 Γ 点とX点の midpoint からX点にかけて約0.8eVに反強磁性相では見られなかった構造があることが分かる。

USbの反強磁性相と常磁性相のバンド構造の比較から、磁気相転移前後でフェルミ準位近傍の電子構造に何らかの変化が起こっているということが明らかになった。一方、相転移前後でSb5pバンドはほとんど変化を示さないことも明らかになった。これらのことは、USbの磁性がp-f混成効果[2][13]によるものではなく、d-f混成に起因したものであることを示唆している。

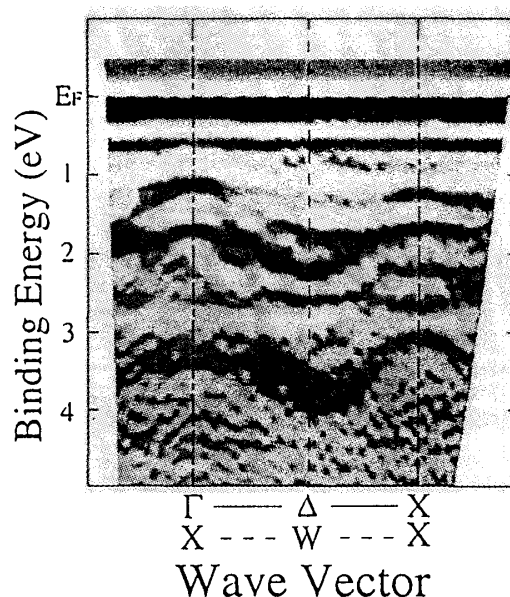


図3-10：常磁性相におけるバンド構造

第四章 まとめ

USbの磁性に深く関わっていると考えられる電子構造を調べるために、反強磁性相と常磁性相において高分解能角度分解光電子分光を行い、アクチナイド化合物において、実験的にバンド構造を求めることに初めて成功した。本実験とLaSbの実験結果や他の実験、バンド計算との比較から明らかになったことを以下に示す。

- (1) フェルミ準位近傍にほとんど分散を示さないU5fによるバンドが2本存在し、相転移前後で単純な温度のブロードニングでは説明できない変化をする。
- (2) Sb5pバンドはUSbの結合エネルギー1eV以上に存在し、完全に占有されており、相転移前後でほとんど変化がない。
- (3) 反強磁性相においては、フェルミ準位近傍の Γ 点 (fcc) 付近にU6d電子によるエレクトロンポケットを示唆するバンドが存在しているが、常磁性相においては存在しないように見える。
- (4) 反強磁性相から常磁性相に磁気相転移を起こすと、フェルミ準位から結合エネルギー1eV付近までのd-f混成バンドに大きな変化が起こっている。

従来USbのバンド構造はLaSbやCeSbのようなバンド構造であると考えられていたが、本実験から、Sb5pバンドが完全に占有されていることが明らかになり、U6dバンドとSb5pバンドが少しだけ重なるようなバンド構造ではないことがわかった。また、本実験結果は、USbの磁性がCeモノプニクタイトで成功を修めているようなp-f混成効果によるものでなく、d-f混成に起因するものであることを示唆している。

本研究では、角度分解光電子分光法の「フェルミ準位近傍から価電子帯までバンド構造

を観測でき、その温度変化まで測定できる」という利点を用いて、USbのバンド構造を実験的に決定し、相転移に伴った電子状態の変化を観測することに初めて成功した。その結果、USbは従来考えられていたような半金属ではなく、金属的なバンド構造を持ち、そのフェルミ面はd-f混成バンドによるものであることが明らかになった。今後、5f強相関電子系の複雑な物性の解明において、このような利点を持つ高分解能角度分解光電子分光法が非常に重要な役割を果たすことが期待される。

参照論文

- [1] 糟谷忠雄他 日本物理学会誌、42、722 (1987) 特集「重い電子系」。
- [2] H. Kumigashira, H.-D. Kim, A. Ashihara, A. Chainani, T. Yokoya, T. Takahashi, A. Uesawa, and T. Suzuki : Phys. Rev. B. 56, 13654 (1997). ; 組頭広志 物性研究、68-6、794 (1997) 修士論文 (1996年度) 「高分解能光電子分光によるセリウム化合物の電子状態」。 ; 組頭広志、修士論文、「高分解能光電子分光によるセリウム化合物の電子状態」、東北大学、(1997)。
- [3] J. Rossat-Mignod, P. Burlet, S. Quezel, and O. Vogt : Physica 102B 237 (1980).
- [4] G. H. Lander, and W. G. Stirling : Phys. Rev. B 21, 436 (1980).
- [5] Jens Jensen and Per Bak : Phys. Rev. B 23, 6180 (1981)
- [6] 堀田英輔、修士論文「USbのdHvA効果」、東北大学、(1994)。
- [7] H. Rudigier, H. R. Ott, and O. Vogt : Phys. Rev. B. 32, 4584 (1985).
- [8] J. Schones, B. Frick and O. Vogt : Phys. Rev. B 30, 6548 (1984).
- [9] A. Ochiai, E. Hotta, Y. Haga, T. Suzuki, Y. Suzuki, T. Shikama, K. Suzuki : Physica B 206&207 789-791 (1995).
- [10] E. Hotta, A. Ochiai, Y. Suzuki, T. Shikama, K. Suzuki, Y. Haga, T. Suzuki : J. Alloys comp. 219 252 (1995).
- [11] A. Ishiguro, H. Aoki, O. Sugii, M. Suzuki, A. Sawada, N. Sato, T. Komatubara, A. Ochiai, T. Suzuki, K. Suzuki, M. Higuchi and A. Hasegawa : J. Phys. Soc. Jpn. 66 2764 (1997).
- [12] T. Kasuya : J. Phys. Soc. Jpn 64 2294 (1995) ; T. Kasuya : J. Phys. Soc. Jpn 65 3394 (1996).
- [13] For example, T. Kasuya : Physica B 215 88 (1995) ; T. Kasuya, Y. Haga, Y.-S. Kwon, and T. Suzuki, ibid. 186-188 9 (1993) and references there in.
- [14] F. J. Himpsel : Adv. Phys. 32, 1 (1983).

謝辞

高橋隆助教授、組頭広志氏には、研究を行うにあたっての心構えから論文の書き方に至るまで懇切丁寧にご教授いただき、その熱心なご指導の下で修士論文を書き上げるまでに至ったことを深く感謝いたします。

光電子分光法、及び装置についてご指導していただいた佐藤繁教授、鈴木章二助教授、田中章順助手に深く感謝いたします。

金亨度博士、横谷尚陸博士、アシシ・チャイナニ博士、梁時薫氏及び赤木修氏には実験方法やデータの解釈等で多大なご指導をいただき、また光電子分光法のみならず固体物理の基礎からご教示いただき深く感謝します。

藤沢英樹君、伊藤孝寛君、佐藤宇史君、内藤寧典君、中井俊一君、ディヌ・イオネル君には、常日頃、実験に協力していただいたばかりでなく、いろいろな面で助けていただいたことに深く感謝します。

本研究の試料であるUSbの単結晶を惜しげもなくご提供いただいたばかりでなく、それらの物性についてもご指導いただいた鈴木孝教授、落合明博士に深く感謝いたします。また、堀田英輔氏、青木英和氏ならびに磁気物理学研究室の皆様には、試料の取り扱いからその物性の測定までいろいろとご協力いただき、非常に感謝しています。

USbのバンド計算をしていただいたばかりでなく、その初歩からご指導いただいた山上浩志助手、また、この実験結果について有益な議論をしていただいた長谷川彰教授、倉本義男教授、酒井治助教授、金田保則助手に深く感謝いたします。また、USbのdHvA効果の実験結果について議論していただいたばかりでなく、その基礎からご指導いただいた石黒晶子博士に深く感謝いたします。

藤森伸一博士、常松弘志氏、佐藤健氏、高橋和敏氏ならびに放射光・光電子物理研究室の皆様にはいろいろとご協力いただいて感謝しております。特に、同期の幡野正之君、山本卓志君との友好は、研究生活に潤いを与えてくれた。

最後に、このような機会を与えていただき、精神的にも経済的にも支えていただいた両親に深く感謝します。