

# ■ウラン・セリウム化合物の顔 フェルミ面

ウラン電子系研究グループ ■大 貫 惇 睦■

Faces of Uranium and Cerium Compounds - Fermi Surfaces -

Yoshichika ŌNUKI

Research Group for Uranium-based Electron Systems

We present typical Fermi surfaces in uranium and cerium compounds, which were obtained by the de Haas-van Alphen experiments and the energy band calculations. The first is a heavy fermion  $UPt_3$ , well known as an odd-parity superconductor. The second is a semimetal of UC, the third is an antiferromagnet  $UPtGa_5$  with cylindrical Fermi surfaces, the fourth is a heavy fermion superconductor  $CeCoIn_5$  of which the position of nodes in the superconducting energy gap was determined, indicating a  $d_{x^2-y^2}$  type, and the last is a ferromagnet  $CeAgSb_2$  with a hollow cylindrical Fermi surface.

## 1. はじめに

金属の電気的性質は伝導電子が担っている。伝導電子の質量を $m^*$ 、運動量を $\hbar k$ 、その最大のエネルギーをフェルミエネルギー $E_F$ と呼ぶが、自由電子の場合は

$$E_F = \frac{\hbar^2}{2m^*} (k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) \quad (1)$$

と表現される。これを3次元の $k$ 空間で描くと球となる。これを球状フェルミ面と呼び、アルカリ金属がその典型例である。1価金属のCu、Ag、Auもこれにやや近い。式(1)は、実空間の伝導電子が $x$ 、 $y$ 、 $z$ 方向に自由に動けることを意味している。ところが、 $z$ 方向の電気伝導が悪く、 $x-y$ 面内で自由に動ける伝導電子は

$$E_F = \frac{\hbar^2}{2m^*} (k_x^2 + k_y^2) \quad (2)$$

となり、3次元的に描くと円筒状のフェルミ面が対応することになるだろう。更に次元が落ちて $z$ 方向のみ伝導電子は動けて、 $x$ 、 $y$ 方向には動けないとするなら

$$E_F = \frac{\hbar^2}{2m^*} k_x^2 \quad (3)$$

となり、2枚の平行平板のフェルミ面となる。これらが単純な場合の伝導電子の顔、フェルミ面である。

## 2. フェルミ面の典型例

フェルミ面を実験的に決定する手段の1つがドハース・ファンアルフェン (dHvA) 効果である<sup>1)</sup>。この実験には低温・強磁場・良質な単結晶を必要とする。図1は奇パリティの超伝導として有名な六方晶 $UPt_3$ のdHvA振動とそのフーリエスペクトルである<sup>2)</sup>。 $\omega$ 、 $\tau$ 、 $\sigma$ 、 $\rho$ などのdHvA振動数 $F = (hc/2\pi e) S_F$ はフェルミ面の極値断面積 $S_F$ に比例し、試料を回転していろいろな方向で極値断面積を知れば、そのフェルミ面の形状が実験的に明らかになる。例えば、dHvA振動数が角度依存性せず一定なら、球状フェルミ面に対応する。

図2はdHvA振動数の角度依存性(実験は○)であり、太い実線は5f電子を遍歴電子としたバンド理論

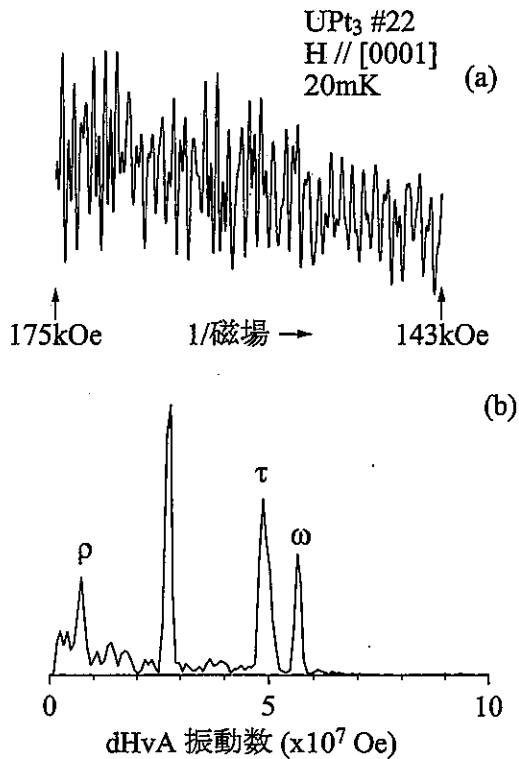


図1 (a) 六方晶UPt<sub>3</sub>のドハース・ファンアルフェン (dHvA) 振動と  
(b) そのフーリエスペクトル、dHvA 振動数はフェルミ面の極値断面積に比例する。

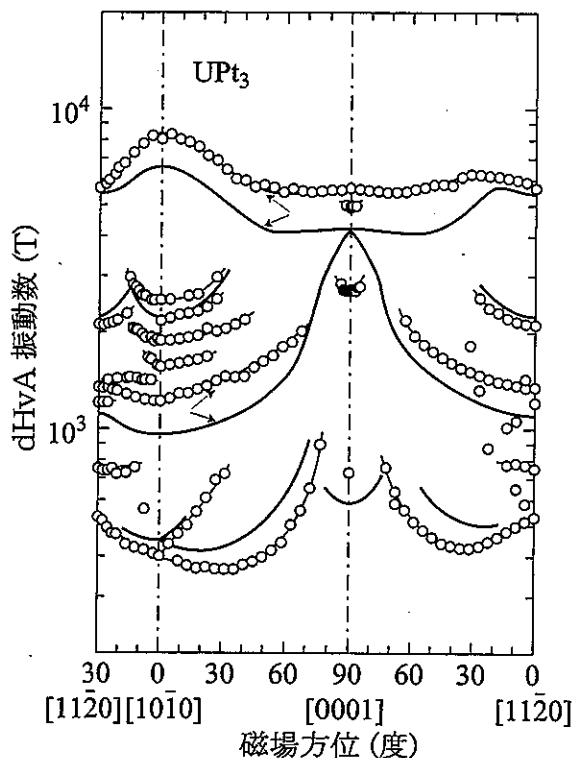


図2 UPt<sub>3</sub>のdHvA振動数の角度依存性。実験データは丸で、バンド理論計算は太い実線である。

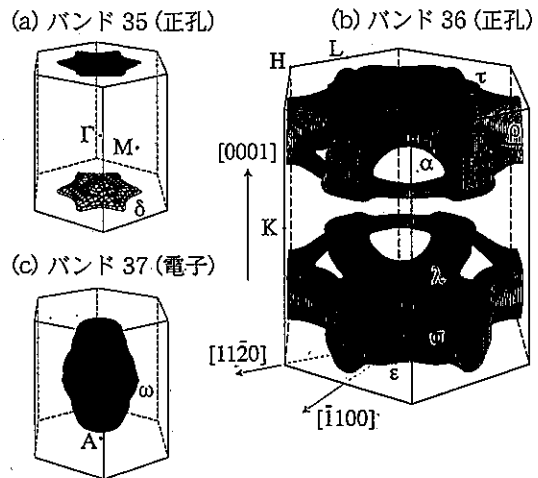


図3 播磨尚朝氏によって計算されたUPt<sub>3</sub>のフェルミ面。全てのフェルミ面は主に5f電子による。

の結果を示す。実験値の方が理論値より大きい、一致度は極めて良い。そのフェルミ面の形状を図3に示す。 $\omega$ と呼ぶバンド37の電子フェルミ面は $100m_0$  ( $m_0$ : 電子の静止質量) の重い電子である。伝導電子の質量は磁場を加えて伝導電子を実空間でサイクロトロン運動させて、dHvA振動の振幅の温度依存性から決定するのでサイクロトロン質量と呼ばれる。サイクロトロン質量には伝導電子が自由電子ではなく相互作用し、その多体効果が繰り込まれて大きくなる。サイクロトロン質量が大きくなるとdHvA振動の振幅が指数関数で減少する。それを補うために良質な単結晶を必要とする。この実験結果を得るのに7年の歳月がかかった。

電子のフェルミ面の体積あるいはキャリア数と正孔のフェルミ面の体積 (キャリア数) が等しく、そのフェルミ面の体積が小さいときを半金属と呼ぶ。その典型例が図4のパウリ常磁性体UCであり、電子は主にUの5f電子でできているが、正孔はCの2pの寄与が大きい。それに対応して電子は $4 \sim 15m_0$ と正孔の $1m_0$ に比べて重い<sup>3)</sup>。

細長い結晶構造あるいは磁気構造が2次元フェルミ面を形成することを最近筆者らはUX<sub>2</sub> (X: Bi, Sb, As, P)、CePtX (X: P, As)、CeTIn<sub>5</sub> (T: Co, Rh, Ir) あるいはUTGa<sub>5</sub>で見いだした。UBi<sub>2</sub>は正方晶の結晶構造で、反強磁性の磁気構造は $\uparrow\downarrow$ であり、結晶構造と同じである。ところが、USb<sub>2</sub>では $\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow$ となって磁気構造は2倍長くなる。するとそのブリルアンゾーンは逆に半分のブリルアンゾーンとなり、正方晶のc軸 ([001]) 方向に狭いブリルアンゾーンのため球状のフェルミ面はバンドの折り畳みの原理から2種類のシリンダー状フェルミ面に変貌することになる。これと全く同じことが反強磁性体UPtGa<sub>5</sub>でも最近見だし

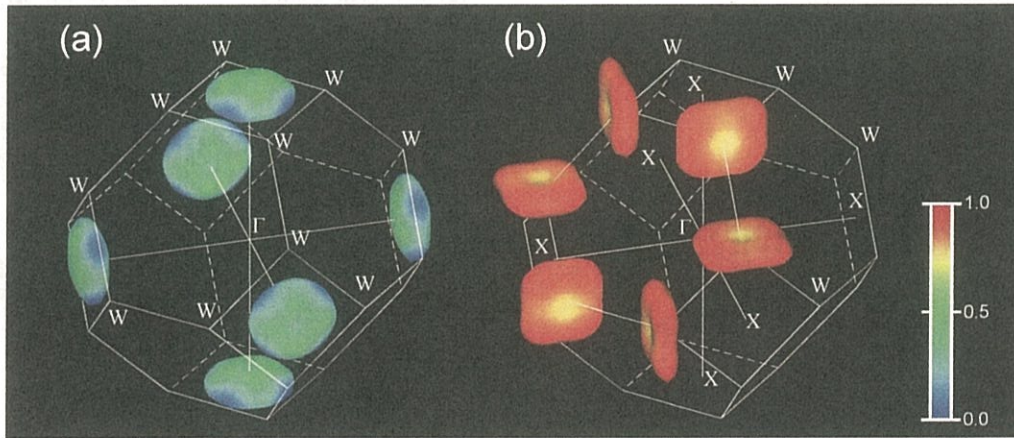


図4 眞榮平孝裕氏によって計算された半金属UCの(a)正孔と(b)電子のフェルミ面。色が赤いほどフェルミ面が5f電子からの構成されていることを示している。

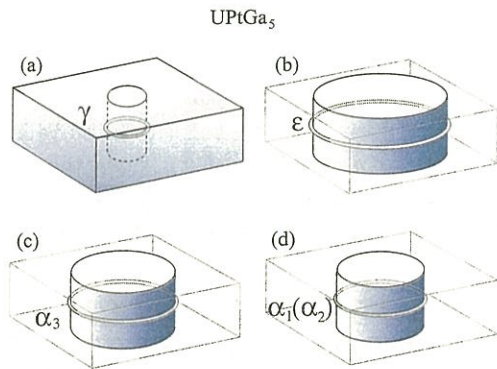


図5 dHvAの実験から決定された反強磁性体UPtGa<sub>5</sub>の4種類のシリンダー状フェルミ面。

れた<sup>4)</sup>。図5は正方晶の[001]方向に平らな磁気ブリルアンゾーンのため、そのフェルミ面が4種類のシリンダー状フェルミ面であることを示している。このフェルミ面はdHvA振動数の角度依存性から実験的に決定したフェルミ面である。反強磁性の磁気モーメントの方向([001]方向)と大きさ $0.24 \mu_B/U$ を考慮した山上浩志氏のバンド計算の結果は筆者らの実験結果と非常に一致することが最近分かった。したがって、5f電子はウラン原子位置に磁気モーメントを持つと同時に、結晶中を遍歴していると結論される。

UPtGa<sub>5</sub>と同じ結晶構造のCeCoIn<sub>5</sub>も準2次元シリンダー状フェルミ面であり、超伝導のギャップのノードの位置が東京大学物性研究所の松田グループとの協力の下で磁場中熱伝導度の角度依存性から明らかにされた<sup>5,6)</sup>。この物質も100m<sub>0</sub>の重い電子系であり、ノードの位置が決定されたのは重い電子系超伝導体では初めてのことである。図6は単純化して示したCeCoIn<sub>5</sub>のシリンダー状フェルミ面の超伝導ギャップのノードの位置を示している。

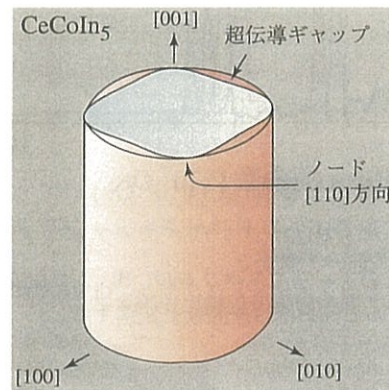


図6 模式的に描いた重い電子系超伝導体CeCoIn<sub>5</sub>のシリンダー状フェルミ面。超伝導エネルギーギャップにはノードがあり、その位置が拡大して示されている。

強磁性状態で超伝導になるUGe<sub>2</sub>もb軸に長い結晶構造のためb軸方向に凹凸の激しいシリンダー状フェルミ面である。この半年悩まされた強磁性体CeAgSb<sub>2</sub>は図7に示すように単純なシリンダーと四角い空洞のシリンダーフェルミ面であることが分かった<sup>7)</sup>。セリウム化合物では4f電子は遍歴せずセリウム位置に局在して主として磁気モーメントを担っている。磁性体での5fと4f電子の電子状態は異なっている。磁化曲線は方向に強く依存して極めて不思議であったが、最近荒木新吾、目時直人両氏がそのメカニズムを解き明かした。

### 3. 終わりに

これまで筆者らは約20種類以上のウラン化合物とセリウム化合物のフェルミ面の性質を明らかにした。その中から特徴ある典型例としてUPt<sub>3</sub>、UC、UPtGa<sub>5</sub>、

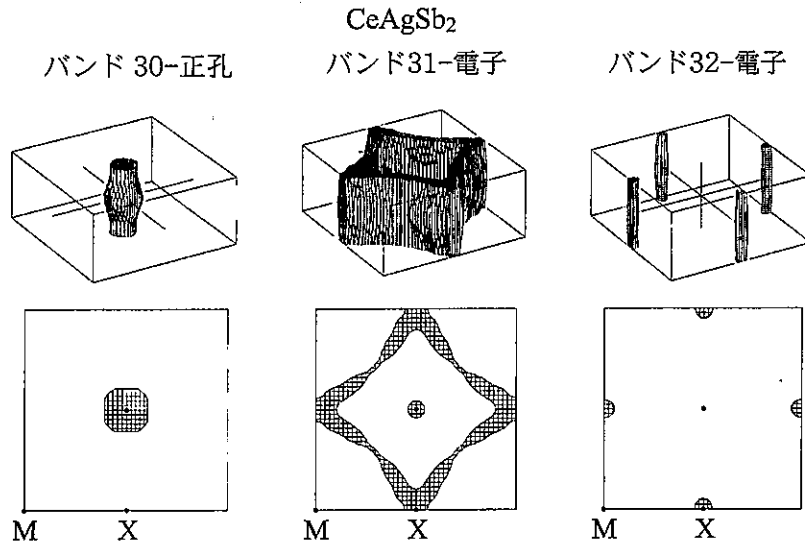


図7 強磁性体CeAgSb<sub>2</sub>の単純なシリンダーと四角い空洞のシリンダー状フェルミ面。

CeCoIn<sub>5</sub>、CeAgSb<sub>2</sub>を示した。フェルミ面が3次元よりも2次元系の方が超伝導転移温度は大きくなることが、理論的に解析されている。そういうこともあって筆者らは正方晶、六方晶でc軸方向に長い結晶構造を持つ物質を探索している。では、最後に準1次元のf電子系は存在するののかという問いが生じる。ありそうでだということ最近分かった。良質な単結晶を育成して現在研究中である。

バンド理論の結果は、播磨尚朝、山上浩志、眞榮平孝裕各氏の協力を得ました。深く感謝致します。

#### 参考文献

- 1) 大貫惇睦、撰待力生、固体物理特集号「相関電子系の物質設計」36 (2001) 119.
- 2) N. Kimura, T. Tani, H. Aoki, T. Komatsubara, S. Uji, D. Aoki, Y. Inada, Y. Ōnuki, Y. Haga, E. Yamamoto and H. Harima, Physica B 281&282 (2000) 710.
- 3) E. Yamamoto, Y. Haga, Y. Inada, M. Murakawa, Y. nuki, T. Maehira and A. Hasegawa, J. Phys. Soc. Jpn. 68 (1999) 3953.
- 4) S. Ikeda, Y. Tokiwa, Y. Haga, E. Yamamoto, T. Okubo, M. Yamada, N. Nakamura, K. Sugiyama, K. Kindo, Y. Inada, H. Yamagami and Y. Ōnuki, submitted to J. Phys. Soc. Jpn.
- 5) R. Settai, H. Shishido, S. Ikeda, Y. Murakawa, M. Nakashima, D. Aoki, Y. Haga, H. Harima and Y. Ōnuki, J. P hys.: Condens. Matter 13 (2001) L627.
- 6) K. Izawa, H. Yamaguchi, Y. Matsuda, H. Shishido, R. Settai and Y. Ōnuki, P hys. Rev. Lett. 87 (2001) 057002.
- 7) Y. Inada, A. Thamizhavel, H. Yamagami, T. Kakeuchi, Y. Sawai, S. Ikeda, H. Shishido, T. Okubo, M. Yamada, K. Sugiyama, N. Nakamura, T. Ymamoto, K. Kindo, T. Ebihara, A. Galatanu, E. Yamamoto, R. Settai and Y. Ōnuki, printed in Philo. Mag. B.