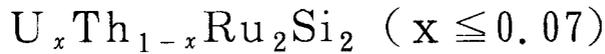


学位論文題名

Single Uranium-Site Properties of
the Dilute Heavy Electron System

(希釈重い電子系 $U_xTh_{1-x}Ru_2Si_2$ ($x \leq 0.07$) における
シングルウラニウムサイトの性質)

学位論文内容の要旨

序論

ここ十数年間にわたる精力的な物質探索により、主にCeやUを含む金属間化合物において、低温で通常金属の $10^2 \sim 10^3$ 倍もの大きな電子比熱係数を示す物質が次々と発見されてきた。これら一連の物質群は“重い電子系”と呼ばれ、今日では固体物理における一つの分野を形成するに至った。

Ceを含む重い電子系(Ce系)の物性は、Ce内殻の4f電子が各Ceサイトで独立に近藤効果を起こすという“近藤格子”描像で基本的には理解される。すなわち、4f電子は各Ceサイトで伝導電子と混成してそのスピン自由度を失い、結果的に系の電子比熱を増大させる。一方、4f電子間に働く磁気相互作用は、局在4fモーメントによる磁気秩序を引き起こそうとする。これらシングルサイトの近藤効果とサイト間の磁気相関の競合が、Ce系で出現する様々な低温物性に対して重要な役割を担うと考えられている。Ce系に対するこのような描像は、圧力効果や元素置換といった方法により混成強度や磁気相互作用の強さを制御した実験を通して確かめられている。特に、Ceを4f電子をもたないLaで希釈した実験は、系がLa置換に伴い近藤格子系から1不純物近藤系へと移り変わる様子を明らかにした。また、Ce系の場合、結晶中でCeイオンがほぼ3価で、 $(4f)^1$ という単純な電子配位をとることが、実験と理論との比較を容易にしている。一方、Uを含む重い電子系(U系)では、シングルUサイトの性質を実験的に調べた例がなく、Ce系との類推からその物性が議論されている場合が多い。実際、結晶中に

における U イオンの価数 ($U^{3+}:(5f)^3, U^{4+}:(5f)^2, U^{5+}:(5f)^1$ の場合があり得る)、5f 電子の結晶場状態、また、5f- 伝導電子間の混成といった基本的なシングルサイトの性質は、ほとんどの U 系においてはつきりしていない。

この論文では、そのような U 系の一つである URu_2Si_2 に着目し、その物性を理解するための第一段階として、U の Th 希釈極限領域に対する系統的研究を行なう。得られた磁気的特性から、U 価数および 5f 電子の結晶場基底状態を限定する。また、3d、4f 電子の希薄磁性合金ではみられなかったシングルサイト異常が、この 5f 希薄系に存在することを示す。さらに、この U 希薄極限で得られた結果をもとに、周期系の物性に対する議論を行なう。

実験結果と議論

$U_xTh_{1-x}Ru_2Si_2$ ($x=0, 0.01, 0.03, 0.05, 0.07$) の多結晶および単結晶試料に対し、電気抵抗 ($100\text{mK} \leq T \leq 300\text{K}$)、比熱 ($350\text{mK} \leq T \leq 40\text{K}$)、磁化 ($2\text{K} \leq T \leq 340\text{K}, H \leq 50\text{kOe}$)、磁化率 ($100\text{mK} \leq T \leq 340\text{K}$) の測定を行ない、以下の結果を得た。

1. 正方晶 c 軸に対する強い 1 軸磁気異方性

a 軸磁化率は、ほとんど温度変化せず小さな値をとるのに対し、c 軸磁化率は低温で降温とともに増大する。U1% の組成では少なくとも 100mK まで飽和の兆候を示さない。

2. 5f モーメントの縮み

一定磁場中における磁化の温度変化は Brillouin 関数で記述できず、低温、弱磁場における磁化は、孤立常磁性状態で期待される値よりかなり小さい。

3. 低温における非 Fermi 液体的振舞い

母金属 $ThRu_2Si_2$ の Th を U で置換していくと、約 10K 以下の低温領域において、降温に伴い、電気抵抗が通常の近藤効果とは逆に対数的に減少し、c 軸磁化率および 5f 電子比熱 (C/T) は絶対零度に向って対数発散的に振舞う。U1% まで薄めた系は、少なくとも 100mK まで Fermi 液体になる兆候を示さない。

個々の組成に対する測定値は U 濃度でスケールされる。従って、作成された試料には目的の濃度で U が入っており、上記の特徴は母金属 $ThRu_2Si_2$ の Th サイトに置換された 1 個の U イオンの性質であると結論できる。

結果 1 は、局在 5f 電子の基底状態が、磁気的に縮退した Ising doublet であることを示している。正方対称結晶場に関する簡単な考察から、この条件を満たす最も自然な 5f 電子状態は、 Γ_5 doublet ($U^{4+}:(5f)^2, {}^3H_4$) であることが示される。結果 2 は、近

藤効果による5fモーメントの遮蔽を予想させるが、結果3の非Fermi液体的挙動は、従来の近藤理論では説明できない現象である。ここでは、 $S=1/2$, 2チャンネル近藤理論に基づく現象論的解析を行なう。従来のs-d模型($S=1/2$, 1チャンネル)では、低温で伝導電子による局在スピンの完全な遮蔽が起こり、系はFermi液体となる。一方、2チャンネルの場合、各チャンネルに伝導電子が1個ずつ集まるため過剰遮蔽が起こり、その結果、絶対零度で比熱、磁化率が対数発散することを理論は予想する。U_xTh_{1-x}Ru₂Si₂系に対する比熱、磁化、磁化率の実験結果をこの理論の厳密解に基づく数値計算と比較した結果、g因子(=3.4)、 T_K (=11.1K)をパラメータとして非常によい一致がみられた。一方、電気抵抗の対数的減少は、2チャンネル近藤理論の予想とは異なるが、現時点では理論も収束を得ていない段階である。

また、U希薄極限系で得られた結果は、周期系URu₂Si₂の性質に対し、少なくとも以下の2点において重要な示唆を与える。第一に、1軸磁気異方性が周期系と希釈系で同様であることから、周期系においても5f基底状態が Γ_5 doubletであることが示唆される。これまで、この物質に関しては結晶場基底状態がsingletであると考えられていたが、 Γ_5 基底状態の予想はその論拠に矛盾しないばかりか、むしろsinglet説より定量的により結果を与える。第二に、 Γ_5 が基底状態の場合、周期系は低温で四重極秩序を起こす可能性がある。 Γ_5 はc軸方向の磁気モーメントを持つが、同時にc面内の四重極自由度をもつdoubletであり、もし四重極秩序で縮退が解ければ、5f磁気モーメントは消失する。このことは、常磁性状態で大きな磁気モーメント($\sim 3\mu_B$)をもつにもかかわらず、低温秩序相ではモーメントが異常に小さい($\sim 0.03\mu_B$)というURu₂Si₂の性質と矛盾しない。一方、低温で希釈系にみられた非Fermi液体的性質が、周期系の性質に反映されているか否かは、今回の実験だけでは断定できず、希釈極限と周期系を繋ぐ今後の研究を待たなければならない。

結論

Uを含む重い電子系について、U希薄極限領域を系統的に調べた実験例はこれまで報告がなかった。少なくともURu₂Si₂においては、そのU希薄極限が、従来の1不純物近藤模型で記述されない低温異常を示すことがこの論文で明らかになった。現時点においてその全てを説明できる理論はないが、 $S=1/2$, 2チャンネル近藤理論が、観測された低温異常を最もよく説明する。また、周期系における5f基底状態が Γ_5 doubletであるという可能性が、この論文によって初めて指摘された。

学位論文審査の要旨

主査 教授 大川 房 義
副査 教授 伊 土 政 幸
副査 助教授 榊 原 俊 郎
副査 助教授 北 孝 文

学位論文題名

Single Uranium-Site Properties of the Dilute Heavy Electron System $U_xTh_{1-x}Ru_2Si_2$ ($x \leq 0.07$)

(希釈重い電子系 $U_xTh_{1-x}Ru_2Si_2$ ($x \leq 0.07$) における
シングルウラニウムサイトの性質)

一般に相互作用をする遍歴フェルミ粒子系は低温で秩序変数をもつ状態に相転移する。超伝導状態、スピン密度波状態等がその典型である。しかし、相転移点以上の高温では何の秩序変数を持たない正常状態にある。ほとんどの場合、正常状態はランダウのフェルミ液体論の枠内にある。一方最近、ランダウ理論の枠外にある正常状態が関心を集めている。これらはランダウ理論の枠外にある正常フェルミ液体との意味で、「非フェルミ液体」と呼ばれることが多い。例えば、1次元系では朝永-Luttinger液体と呼ばれる非フェルミ液体状態が一般的である。分数量子ホール効果を可能にするのも非フェルミ液体状態である。また、高温超伝導を示す銅酸化物系の正常状態が非フェルミ液体状態である可能性が議論されている。この論文の最も評価すべき点は、それらとはまた別の型の、局所強相関電子系における非フェルミ液体的振る舞いがウランの希釈合金系で見られることを実験的に明らかにした点にある。

申請者は、まず良質な $U_xTh_{1-x}Ru_2Si_2$ の試料を作成した。作成した試料は、ウランU濃度が希釈な領域の $x=0.01, 0.03, 0.05, 0.07$ の試料である。またUを全く含まない $x=0$ の試料も作成した。申請者は、100mKまでの低温領域を含む温度領域で、作成試料の比熱、帯磁率、電気抵抗、磁場印加下での磁化を測定した。

UイオンとThイオンの違いはThイオンには5f電子がなく、Uイオンは5f電子を持つ点にある。Uの5f電子による物理量への寄与のみを引き出すために、 $x=0$ の試料の測定値を5f電子以外からの寄与と解釈して、 $x \neq 0$ の試料の測定値から差し引く。5f電子の寄与による物理量のU濃度依存性は濃度 x の小さい領域で、測定した温度範囲では、ほぼ x に比例する。濃度 x が大きい領域で、かつ低温領域では、比例関係からの小さなズレが見られる。申請者は、局所電子相関効果を見るため、U濃度 x に比例する物理量のみを、すなわち単独のUイオンのもつ5f電子が示す物理量、単一サイト物理量を議論の対象とする。

単一サイト物理量は低温で異常を示す。温度低下とともに、比熱と帯磁率は温度の関数として対数的に増加し、電気抵抗は対数的に減少する。この温度依存性は、局所強相関電子系で従来から知られている近藤効果の正常フェルミ液体の振る舞いとは、明らかに異なる。

この非フェルミ液体的異常を説明できそうな理論は、現状では2チャンネル近藤効果の理論しかない。この点に鑑み、申請者は、帯磁率と磁化が強い一軸性磁気異方性を示すことから5f基底多重項を $(5f)^2$ の二重項 Γ_5 であると提案し、2チャンネル近藤効果理論で扱っている有効ハミルトニアンが近似的に導ける事を示した。異常のうち、比熱と帯磁率については、既存の2チャンネル近藤効果の理論で解析して満足すべき結果を得た。しかし、電気抵抗については既存の複数の理論の間で不一致が見られ、十分な解析は出来ない。申請者が見いだした対数的温度依存性が、2チャンネル近藤効果として理解できるどうか、更に理論的検討が必要である。しかし、この理論的検討を要求するのは実験の論文の範囲を越える。この論文で示された結果は、興味ある実験結果である事に間違いはなく、理論家に対する問題提起の実験である。蛇足ながら、5f基底多重項が Γ_5 としての、U合金系で最近話題の微小磁気モーメントを持つ反強磁性状態に対する機構の提案も興味ある。

申請者が見いだした比熱と対磁率との温度依存性の異常は、この系の低エネルギー励起が発散するほど多数存在する異常な系であることを示す。例えば2チャンネル近藤効果理論の厳密解は絶対零度での残留エントロピーが残り、熱力学の第三法則に矛盾するほど低エネルギー励起が存在する。このような系は無限小の小さな摂動に対しても不安定である。申請者がここで見いだした異常は小さな摂動が効いてくる低温領域では変更を受けると期待される。更に低温領域を実験的に調べ、非フェルミ液体的振

る舞いがどれほど絶対零度近くまで続くのかどうか興味のある点である。逆に小さな摂動が効いてこないほど高温だが、まだ充分低温ならば、この様な異常があっても差し支えないと考えられる。

結論として、非フェルミ液体が問題になっている潮流のなかで申請者が示した5 f 電子系の非フェルミ液体的振る舞いは学会に大きなインパクトを与えると期待でき、学術的に評価できる。また、この論文を纏めるにあたり示された申請者の能力、試料作成において、物理量の測定において、理論的検討においての各分野で示された申請者の能力も評価できる。以上の点で、審査員全員はこの学位申請論文は十分に学位授与に値すると判断した。