

学 位 論 文 題 名

Incommensurate-Commensurate Magnetic Phase Transitions of the Ising-5f System UPd₂Si₂
- Completion of the H - T Phase Diagram and Mean-Field Analyses -(イジング 5 f 系 UPd₂Si₂ における不整合
- 整合磁気相転移 - H - T 相図作成と平均場解析 -)

学位論文内容の要旨

中性子弾性散乱実験の確立によってこの半世紀の間に磁性体をとる様々なマイクロ構造 (磁気構造) が明らかとなった。その最も興味深い例の一つに、磁気構造周期が格子周期より長く、かつ非有理数倍である「不整合」構造がある。遍歴電子系におけるその典型例は、スピン密度が空間的に変調する「スピン密度波」として知られる。その起源はフェルミ面のネスティングによるもので、SDW の伝播ベクトルはフェルミ波数と関係する。一方、局在電子系においては、磁気モーメントが伝播ベクトル Q の方向に沿ってらせん状に回転して配列する「らせん構造」が多く物質で見つかっている。この構造は、各磁気モーメントが互いに適当に傾いて、磁気モーメント間に働く複数の磁気相互作用を安定化することによって生ずる。

これらの典型例に対し、極めて希な例として、一軸磁気異方性をもつ磁性体が示す不整合磁気構造がある。これまでの報告では、いずれも高温で「不整合正弦波構造」が実現し、そのほとんどが低温で整合構造に転移する。磁気モーメントが一軸方向の自由度しかもたないために、どのような整合構造も全ての競合する相互作用を満足できない状況 (フラストレーション) が、これらの磁性体の本質として予想されるが、詳しい実験および理論的解析はなされていない。

本研究では、5 f 電子系化合物 UPd₂Si₂が、強い一軸磁気異方性を示し、高温で「不整合正弦波縦波構造」、低温で単純な「整合」反強磁性相に逐次転移することを実験的に明らかにした。また、広い磁場 (H)-温度 (T) 領域における詳しい実験から、閉じた H - T 相図を作成し、不整合および整合相の磁場中における変化の様子を明らかにした。さらに、長周期構造を示す系に対する代表的なモデル、「Axial Next-Nearest-Neighbor Ising (ANNNI) model」に基づく定量的解析を行い、このモデルの適用性について議論した。

UPd₂Si₂は、体心正方晶 ThCr₂Si₂型の結晶構造をとる。1977年に発見されて以来、いくつかのグループによってその多結晶試料に対する物性が調べられてきたが、再現性のある結果は得られていなかった。本研究では、単結晶試料を作製し、初めて再現性のある実験データを得ることに成功した。磁化、比熱、電気抵抗、強磁場磁化 (定常磁場: 東北大学金属材料研究所、pulse 磁場: 大阪大学超強磁場実験施設と東京大学物性研究所) および中性子弾性散乱 (日本原子力研究所) の測定を行った結果、以下のことが明らかとなった。(1) H - T 相図には、135K(T_{Nh})以下に三つの秩序相が存在する。 T_{Nh} 以下、108K(T_{N1})以上で不整合正弦縦波 ($Q_1 \sim 0.73c^*$)、 T_{N1} 以下で Type-I AF ($Q_2 = 1c^*$)、磁場中で整合縦波 ($Q_3 = 2/3c^*$) が実現している。常磁性相から不整合相への転移は、弱磁場下で二次転移であるが、強磁場下では一次転移

になる。また、それ以外の相境界は、すべて一次転移であることがわかった。(2) 不整合相では、 Q が連続的な温度変化をし、*pure sinusoidal*であることがわかった。また、磁化率 $\chi(T)$ が、反強磁性相であるにも関わらず、強磁性的な発散傾向を示すという、これまでの磁性体には見られない現象を示すことがわかった。(3) 常磁性相では、磁化率が Curie-Weiss 則に従い、電気抵抗が通常の金属とは異なり $-\log T$ に比例することから近藤効果が起こっていることが示唆される。(4) 低温秩序相において、 $U5f$ 電子による電気抵抗が T^2 に比例し、その比例係数と $U5f$ 電子比熱係数の値が通常金属の値よりも数十倍大きく、Kadowaki-Woods の関係を満たす。つまり、低温で Fermi-liquid 的な振舞いを示すことがわかった。以上の実験結果から次のような $5f$ 電子状態が示唆される。 $U5f$ 電子は、常磁性相の振舞いから、高温では局在的に振舞うが、伝導電子との混成効果も存在することが予想される。また、高温での磁気秩序は強い磁気相関の存在を示唆し、その磁気構造から、 c 面内には強い強磁性相関が、 c 面間には弱い反強磁性相関が存在していると考えられる。また、不整合相が出現していることから、 c 面間の反強磁性相互作用は複数存在し、それらが競合してフラストレーションが起こっているものと考えられる。更に、磁化の大きな一軸異方性と比熱から見積もられた $5f$ 電子のエントロピーは、 $5f$ 電子が強い結晶場の影響を受け室温ではせいぜい三つの自由度しか存在しないことを示唆する。このうち二つの自由度によって磁気秩序が起こっていると考えられる。この場合、結晶場基底状態としては、doublet または singlet のどちらの可能性も残されている。これらの単純な局在磁性描像に対し、低温で Fermi-liquid 的な振舞いが見られることは、この系での $5f$ 電子状態が多くの f 電子系同様、遍歴性を合わせもつことを意味する。

これらの実験事実に対し、本研究では、局在 $5f$ 電子の立場に立ち、ANNNI モデルに基づく解析を行った。モデルの適用にあたって、 $U5f$ モーメント間の相互作用は、 c 面内では最近接相互作用として J_0 、 c 面間には最近接と第二近接相互作用としてそれぞれ J_1 と J_2 を仮定した。それらは、高温秩序相への転移温度(T_{Nh})、その伝播ベクトル($Q(T_{Nh})$)と絶対零度における Type-I AF 相から磁場中で出現する $Q_3=2/3c^*$ 相への転移磁場(H_{m1})から決定した。これら三つの相互作用をもつハミルトニアンに対し、スピン構造が N 枚毎に繰り返すとして平均場方程式を導き、数値計算によって磁場(H)と温度(T)の関数として解いた。得られた解の自由エネルギーを計算しそれが最小となる構造から安定なスピン構造が決定された。 N を最大 100 までとした平均場解析の結果、少ないパラメータ(J_0, J_1, J_2)にも関わらず UPd_2Si_2 の複雑な $H-T$ 相図、磁化、エントロピーの振舞いを半定量的に説明出来ることがわかった。更に、不整合相における磁化の増大の起源を解明するためにフーリエ変換によってスピンの q 依存性を求めた。この結果、磁場中で安定な構造である $Q=2/3c^*$ に近い波数の成分が磁場によって成長することがわかり、磁化の増大がこの波数成分の高調波に起因することが示唆された。以上の実験と理論の良い一致に対して、不整合相の Q の温度依存性と pure sine 構造は、この単純なモデルの枠内では説明されない。そこで、一つの拡張として基底状態が singlet、つまり induced-moment type の場合に対する解析を試みた。磁気モーメント間の相互作用は、doublet の場合に ANNNI モデルで仮定した値を採用した。その結果、結晶場分裂の大きさが、室温以下の場合 doublet の場合と同様の結果が得られた。よって、singlet 模型においても、これらの不整合相の性質は説明されないことが示された。

以上、本研究では、 UPd_2Si_2 単結晶の磁気・輸送・熱特性を実験的に明らかにし、1MOe までの超強磁場磁化測定によって $H-T$ 相図を初めて完成させた。その結果、 UPd_2Si_2 が、一軸磁気異方性を示し不整合構造が実現する極めて希な磁性体であることを明らかにした。特に、不整合構造におけるこの系固有の特徴として磁気構造が完全な正弦波を示し、反強磁性相にも関わらず磁化が異常な増大傾向を示すことを発見した。更に、第二近接相互作用までを取り入れたイジングスピンハミルトニアンを基にした ANNNI モデルの適用によって、 $H-T$ 相図、不整合相における磁化の増大が半定量的に説明されることを示した。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 榊 原 俊 郎
副 査 教 授 大 川 房 義
副 査 助 教 授 根 本 幸 児
副 査 講 師 網 塚 浩

学位論文題名

Incommensurate-Commensurate Magnetic Phase Transitions of the Ising-5f System UPd_2Si_2
- Completion of the $H-T$ Phase Diagram and Mean-Field Analyses -

(イジング 5 f 系 UPd_2Si_2 における不整合
- 整合磁気相転移 - $H-T$ 相図作成と平均場解析 -)

結晶中の微視的自由度の秩序構造は必ずしも結晶の対称性と一致しない。秩序構造の単位が結晶学的単位胞より大きい場合、それは超格子構造とよばれる。さらに、超格子単位胞が結晶学的単位胞の有理数比をもてば整合、無理数比をもつ場合は不整合とよばれる。本学位論文は、結晶中の磁気モーメントが示す不整合磁気相転移現象を対象とする。

磁性体の不整合秩序構造には、(1) 遍歴電子によるスピン密度波、(2) 容易面異方性をもつ磁気モーメントによるらせん構造、および、(3) 1 軸異方性をもつ磁気モーメントによる正弦波構造、の3種類の存在が知られている。(1) および(2)の秩序機構についてはその本質がほぼ解明されているのに対し、(3)に対する理解は依然不十分な状況にある。その第1の理由として、1 軸異方性に伴うフラストレーションの効果を正しく考慮し有限温度の物性を取扱うことが、最も単純な仮定に基づく現象論においてさえも確立していないことが挙げられる。第2に、実験例が少なく、しかも報告されている系には各系固有の複雑さがあり、理論に対する本質的検討を難しくしているという点が挙げられる。この論文の最も評価できる点は、(3)に属する磁性体の原型と成り得る物質を見出したことにある。

申請者はまず、 UPd_2Si_2 単結晶を複数作成しその基礎物性を調べた。室温以下零磁場における比熱と電気抵抗、80kOe以下の磁場領域における磁気抵抗、および、最大100MOeの超強磁場領域に及ぶ磁化の丹念な測定から、この物質が低温磁場中において三つの秩序相をもつことを明かにし、詳しい磁気相図を作成した。申請者はまた、同型の非磁性参照物質、 $ThPd_2Si_2$ 単結晶の物性を調べ、 UPd_2Si_2 の相転移がUイオンの5f電子によるものであることを明かにした。研究開始当初、この物質については多結晶試料に関する報告が2例あったのみで、しかも両者には食い違いがみられた。申請者の得た結果はそれらのいずれとも異なるものである。申請者は実験結果の再現性および試料依存性を調べ、この物質に本質的な性質を初めて明かにし、その一部を公表した。

次に申請者は中性子散乱実験を行ない、各秩序相の秩序構造を微視的に調べた。その結果、Uイオンの5f磁気モーメントは強い1軸異方性を有し、零磁場において降温に従い常磁性から不整合正弦波へ、さらに低温でタイプI型整合反強磁性構造へと転移することを明かにした。上述の相図公表が関心を呼び、中性子散乱実験による磁気構造決定は海外グループとの競合となった。しかし、本論文は、この物質に関して最も詳しく豊富な情報を提供するものとして、その優位性にゆるぎはない。

申請者は更に、観測された異常磁性に対し局在電子模型の立場に基づく基礎的な理論解析を行なった。強磁性的に結合した1軸性スピンからなる面の間に働く相互作用が、最近接面間および第2近接面間ともに反強磁性的であり、競合している状況を仮定した。このモデルに対して平均場近似を行ない、20スピン面まで考慮した自己無撞着方程式を数値的に解いた。極めて単純な仮定と少ないパラメータ設定にも拘らず、このモデルは観測された磁気相図および各秩序相における物理量の振舞いを半定量的によく再現することが示

された。しかし、同時に、不整合伝播ベクトルの連続温度変化、および、磁化に高調波成分が存在しないという実験事実が説明されないことも明かとなった。この現象論解析が UPd_2Si_2 の物性の本質の1面を捉えていることは間違いない。しかし、その微視的意味づけ、および、実験結果との不一致点が計算における近似によるものか、或はモデル自身の単純さによるものかは、今後の理論的検討課題である。しかし、これらの検討を要求するのは実験の論文の範囲を越える。むしろ本論文は、不整合1軸性磁性体の極めて単純な例を見出したことにより単純化されたモデルとの比較が可能となり、その本質的課題を浮き彫りにすることに成功した実験例として捉えるべきである。

結論として、フラストレーションを有する系の磁気秩序機構という磁性研究における基礎課題の一つに対して、さらに、近年発展しつつある5f電子の物性研究において、申請者の論文は新しく有益な情報を提供するものであり、学術的に評価できる。また、この論文をまとめるにあたり示された、申請者の専門知識、実験遂行能力、理論的検討能力、および、技術発表能力も評価できる。よって審査員一同は申請者が博士(理学)の学位を受けるに十分な資格があるものと認めた。