

学位論文題名

Experimental Method of the Static Magnetization Measurement
below 100mK and its Application to Strongly Correlated
f-Electron Systems(100mK 以下の静的磁化測定技術と強相関 *f* 電子系への適用)

学位論文内容の要旨

I. 100mK以下の静的磁化測定技術

1. ファラデー法極低温DC磁化測定装置

希土類元素やアクチナイド元素を含む化合物の物質群は強相関電子系と呼ばれる。この系は固体物理の一分野を形成し、現在盛んに研究が行われている。強相関電子系は低温でメタ磁性転移、超伝導転移や磁気転移などの魅力的な現象を示すものが多い。それらの基底状態の挙動を探るためには1 K以下の極低温での実験が必要とされている。ところが磁氣的性質を調べる最も基礎的とも言える磁化測定は、技術的困難のため極低温で殆ど行われていない。

磁化測定は誘導法とファラデー法の二種類の測定法に分類できる。通常、超伝導マグネットを用いた測定法としては、誘導法が一般的である。この方法は磁場変調、あるいは定磁場中で試料を運動させることにより生ずる、磁束の変化を検出コイルで取り出すものである。試料を運動させるものとしては引き抜き法や試料振動法が代表的であり、扱い易さから広く用いられている。フランスやドイツのグループは小型の希釈冷凍機を用いた誘導法で0.5 K以下の磁化測定を行っている。しかし誘導法は測定の際に発熱を伴うため最低温度に限界がある。

一方ファラデー法は、不均一磁場中に置かれた磁性体の受ける力を測ることにより磁化を求める。この方法は原理的に発熱の心配が無く、極低温での測定法には適している。しかし一般的なファラデー法測定装置(例えば、磁気天秤や振り子)を低温装置に組み込むのは大きさに難しい。そのため、ファラデー法は極低温で使われていない。ところがBrooksらはキャパシタンスを利用した小型磁力計でファラデー法磁化測定が行えることを示した。この方法を用いれば極低温でのファラデー法による磁化測定が可能である。Brooksらの装置の問題点は測定精度と再現性にあった。そこで、本研究ではそれらの問題を改善し、極低温磁化測定装置の実用化を行った。

装置の特徴は、独自に超小型キャパシタンス式磁力計を開発したことと、超伝導マグネットにファラデー法専用のものを導入したことである。これによって、Brooksらの装置の問題点は改善された。この磁力計と超伝導マグネットを³He-⁴He希釈冷凍機と組み合わせ、極低温DC磁化測定装置の開発に成功した。この装置の性能は最低温度40mK、最大磁場9T、感度 10^{-4} emuである。現在、100mK以下でDC磁化測定を行っているのはわれわれの研究室だけである。本研究ではこの装置を用いて、次の四種類の強相関電子系化合物の研究を行った。

II. 強相関 f 電子系への適用

2. CeRu_2Si_2 の一次メタ磁性転移の欠如

重い電子系化合物 CeRu_2Si_2 は低温での磁化過程において磁場 8 T 付近で磁化が急激に増大する、いわゆるメタ磁性を示す。この現象は重い電子状態を理解する上で重要で、一次相転移であるのか否か興味を持たれている。しかしこれまでに多くの実験が行われているにもかかわらず、このメタ磁性が相転移であるのか否か未だはっきりしていない。その理由には、この系が格子の歪みや不純物に非常に敏感であることが上げられる。本研究では純度の異なる二つの単結晶試料を用いて精密な DC 磁化測定を行った。

最低温度 90 mK の磁化過程において、メタ磁性は連続的で、ヒステリシスは観測されなかった。この結果は試料の純度や固定法に依らず本質的なものであることを確かめた。さらにメタ磁性の温度依存性を調べた結果、この現象は絶対零度まで 1 次相転移にならないことを明らかにした。

3. 価数揺動化合物 Sm_3Te_4 のスピングラス転移

Sm_3X_4 ($\text{X}=\text{S}, \text{Se}, \text{Te}$) は Sm^{3+} ($J=5/2$) イオンと Sm^{2+} ($J=0$) イオンを結晶中に 2 対 1 の割合で持っている。電気抵抗は熱活性型の半導体的振る舞いを示し、キャリア濃度はほとんど零である。この系の特徴は 2 K 以下の低温で比熱 (C) にブロードなピークと、より低温で非常に大きな C/T (T は温度) の値を持つことである。Ahlheim らは Sm_3Te_4 の多結晶試料の比熱解析から、低温で近藤効果と磁気相互作用が競合していることを示し、重い電子状態の可能性を示唆した。それまで重い電子状態形成には伝導電子が不可欠であると考えられていたので、この結果は非常に驚くべきものであった。そこで本研究では、単結晶試料を用いた磁化測定からこのことについて調べた。その結果は、この系のキャリア零の重い電子状態の可能性を否定し、低温比熱の異常が特異なスピングラス転移によるものであることを明らかにした。

4. $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ の磁気相図

CeB_6 は結晶場基底状態に Γ_8 をとる。この Γ_8 基底状態の四重縮退に起因した反強四重極 (AFQ) 転移と反強磁性転移を 3.3 K と 2.4 K で示す。この AFQ 転移温度は磁場の増大とともに強く増強される。この現象のメカニズムが問題となっており、理論と実験の両方から盛んに研究されている。本研究では問題解決の一つとして Ce を 4 f 電子を持たない La で置換した $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ の磁気相図を調べた。実験は $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ ($x=1, 0.75, 0.7, 0.5$) の 4 種類の Ce 濃度の単結晶試料について低温磁化測定を行った。その結果、 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{B}_6$ の磁気相図から注目すべき三つの特徴が得られた。(1) $0.75 \geq x \geq 0.5$ の磁気相図の低磁場領域でおそらく磁気モーメントだけがオーダーした新しい反強磁性相の出現。(2) AFQ 転移温度の磁場による増強の割合が La 希釈によってあまり変化しないこと。(3) $x=0.7$ での比較的弱い磁場での AFQ 秩序の復活である。これらの特徴は、Shiina らによって提案されている磁場誘起八重極モーメント間の相互作用の増強による AFQ 転移温度の上昇の理論を強く支持することを示した。

5. Γ_3 基底状態をもつ PrPb_3 の反強四重極転移

PrPb_3 の結晶場基底状態は四重極モーメントだけの自由度をもつ Γ_3 二重項である。この Γ_3 二重項に起因した AFQ 転移を 0.4 K で示す。この AFQ 相の磁気的性質については詳しいことが殆ど解っていない。最近 Aoki らによる PrPb_3 単結晶試料の交流磁化率測定によって、0.6 K 以下で磁場 7 T 付近にメタ磁性転移が観測された。そこで本研究では、このメタ磁性転移の振る舞いと磁気相図について詳しく調べた。その結果、40 mK の磁化過程において 8 T 以下で三つのメタ磁性転移を観測した。また AFQ 転移温度は磁場によって増強されることがわかった。得られた磁気相図から、メタ磁性転移は AFQ 相内で起き、AFQ 秩序と関連していることを明らかにした。この AFQ 転移温度の磁場による増強の機構として、この系の強い反強磁性相互作用による磁場誘起反強磁性構造の安定化によるものが考えられることを示唆した。

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 教 授 熊 谷 健 一
副 査 講 師 網 塚 浩

学 位 論 文 題 名

Experimental Method of the Static Magnetization Measurement below 100mK and its Application to Strongly Correlated f-Electron Systems

(100mK 以下の静的磁化測定技術と強相関 f 電子系への適用)

強相関伝導電子系は固体物理学の重要な研究課題である。このうち重い電子系化合物と呼ばれる一連の物質は電子比熱係数が通常金属の千倍にも達する非常に大きな状態密度をフェルミ準位近傍に有する。このような重い電子状態は殆ど局在した f 電子間の強いクーロン反発力に起因するものと考えられており、しかもその基底状態が新奇な超伝導や磁性を示すことから大変興味を持たれている。これらの物質ではその特性エネルギーが数ケルビンと低いために基底状態を研究するには 100mK 以下の極低温と数 T の強磁場との組み合わせが有効である。磁気的な物性の研究には磁化の測定が基本であるが、この温度・磁場領域での磁化測定技術はこれまでわが国では遅れていた。これは従来の磁化測定手段では試料部の発熱の影響が免れず、極低温下での適用が困難なためである。本論文ではこれまで強磁場での磁化測定にはあまり用いられていなかったファラデー法に注目し、小型のキャパシタンス式荷重計を用いることで試料部の発熱なく高感度に磁化の測定が可能なシステムを開発した。これを ^3He - ^4He 希釈冷凍器と組み合わせることにより、最低温 40mK、最高磁場 9T までの高分解能磁化測定装置を開発・完成させ、数々の重い電子系物質の研究を行った。その内容はメタ磁性、少数キャリア系物質、四極子転移系等多岐に及び、いずれも各々の問題解決の上で重要な手がかりとなる以下のような新たな知見をもたらしている。以下に主な成果をまとめる。(1) 重い電子系メタ磁性の典型物質である CeRu_2Si_2 の低温磁化過程の詳細な測定から、メタ磁性が熱力学的な相転移ではないことを明らかにした。この現象については別な実験 (de Haas-van Alphen 効果) からメタ磁性とともに f 電子が局在化すると主張がなされているが、本論文の結果はメタ磁性転移に際しても f 電子についてのフェルミ面総和則が破れていないことを意味しており、高磁場の大きく磁化した状態でも f 電子は遍歴的であることを示唆している。(2) Sm_3Te_4 は絶縁体にもかかわらず低温で温度に比例する大きな比熱を示すことから、キャリアを持たない近藤格子系ではないかと考えられていた。本論文では詳しい磁化測定の結果、この物質において極低温下でスピングラス相が出現していることを明らかにした。即ちこの物質の大きな低温比熱は重い電子の形成ではなくスピングラス秩序によるものであることを示した。(3) 軌道自由度をもつ f 電子系の相転移は一般に四極子転移と言われ最近非常に興味を持たれている。本論文では反強四極子転移を示す典型物質 CeB_6 の La 希釈系、および新物質の PrPb_3 において四極子転移温度が磁場とともに上昇する特徴ある磁気相

図を見だし、これが磁場によって誘起された反強多重極モーメント間の相互作用で良く説明できることを示した。申請者のこれらの研究成果は重い電子系の物理の発展に大きく貢献するものとして高く評価できる。

結論として、本論文は重い電子系の基底状態についての新しく重要な実験事実を報告したものとして高く評価できる。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。