

学 位 論 文 題 名

Elastic Response of the Heavy Electron System URu₂Si₂ Studied by High Sensitivity Ultrasonic Sound Velocity Measurements

(高感度超音波音速測定による重い電子系 URu₂Si₂ の弾性応答に関する研究)

学位論文内容の要旨

f 電子を持つ希土類化合物やアクチナイド化合物の中で、強い電子相関により、低温で大きな電子比熱係数を持つことで特徴づけられる物質群は「重い電子系」と呼ばれている。一般に、f 電子は比較的良く局在しているため、f 電子と格子との相互作用は小さい。そのため、結晶中において、f 電子の軌道自由度が低温まで残る場合がある。最近の重い電子系の研究において、この軌道自由度が関与している現象は、最も関心が持たれているものの一つである。その中のトピックとして、U イオンや Pr イオンなどの非クラマースイオンを含んだ系で発見されている興味深い低温異常がある。その異常物性の起源が、f 電子の軌道自由度と伝導電子との間の新しい機構の相互作用によって起こっている可能性が議論されている。また、f 電子系一般において、有限の軌道角運動量を持つ系は四重極モーメントを持つが、その四重極モーメントが格子上に配列する相転移（四重極転移と呼ばれる）が幾つかの物質で発見されている。これは、従来の電子格子相互作用が起源である構造相転移とは異なった機構による転移であると考えられており、現在盛んに研究が行われている。

この f 電子の軌道自由度に関する情報を得るための実験手段の中で、超音波音速測定は最も強力な測定手段の一つである。特に、良く局在した f 電子系においては、その f 電子の持つ四重極モーメントは超音波による一様な歪みと一次で結合するので、超音波音速測定により、f 電子の軌道自由度に関する直接的な情報を得ることができる。

本研究では、正方晶重い電子系化合物 URu₂Si₂ に注目した。この物質は、 $T_0 = 17.5$ K で比熱に明確な異常を伴った二次相転移をする。中性子散乱実験からは、 T_0 以下で微小磁気モーメント（ウラン原子当たり $\sim 0.03\mu_B$ ）による反強磁性秩序が起こっているとしているが、この微小磁気モーメントがこの相転移の秩序変数であるとする、転移に伴うエントロピー変化の大きさを説明することが困難である。そのため、この微小磁気モーメントが T_0 での相転移の真の秩序変数ではなく、何らかの隠れた秩序変数が T_0 での比熱の異常を引き起こしている可能性についての議論が数多くなされている。興味深いことに、最近の非磁性の秩序変数が提案されている理論（Santini らによる結晶場一重項基底状態での反強四重極転移、Barzykin らによる混合価数-U⁴⁺(5f²)転移、Amitsuka らによる結晶場非クラマース二重項基底状態での反強四重極転移）では、 T_0 での相転移において格子変形を含む可能性が議論されている。そこで、本研究では、URu₂Si₂ の 5f 電子の軌道自由度及び T_0 での相転移と格子との間の関係に注目し、この物質の弾性定数の温度磁場依存性の測定を行った。まず、0 磁場での弾性定数測

定を東北大・科研・後藤研究室で行い、横波 $(c_{11}-c_{12})/2$ モードがソフト化することを初めて発見した。この横波弾性異常をより詳しく調べるため、本研究室で超音波音速測定装置の製作を行い、この製作した装置を用いて、12T までの磁場中での弾性定数測定を行った。これらの実験結果を、両極限の近似 (5f 電子遍歴及び 5f 電子局在) のもとで解析を行った。特に、後者においては、この系で提案されている結晶場モデルについて詳しい検討を行った。本論文では、第 1 章で製作した音速測定装置について述べ、第 2 章で URu_2Si_2 の弾性定数測定の結果及び考察を述べている。以下にそれらを要約する。

高感度超音波音速測定装置の製作

本研究で製作した位相比較法に基づく超音波音速測定装置は、大別するとパルス法に属する装置である。この測定方法では、固体中での超音波パルスの伝搬時間に対応した位相の遅れに着目し、それと参照信号との間の位相差を常に一定にするように、発振器にフィードバックをかけて周波数 f を変化させる。この時、音速 v と発振周波数 f の間に、 $\Delta v/v = \Delta f/f$ の関係があるので、この周波数シフト Δf から音速の相対変化 $\Delta v/v$ を知ることができる。この測定方法の主要な利点は、上述の関係式から分かるように、測定に用いる周波数を高くするほど音速の相対変化を高感度に測定できることである。現在、 ~ 20 MHz の周波数領域において、 $\Delta v/v = 2 \times 10^{-6}$ より良い音速分解能を達成している。他の利点として、出力エコー信号の大きさの変動による影響を本質的に受けにくい測定方法であること、平均入力パワーを小さくできること、などがある。また、製作した装置において考えられる誤差の原因についての考察を行い、現在の装置の改善すべき点を述べた。

URu_2Si_2 の弾性定数測定と解析

高精度の弾性定数測定から、 URu_2Si_2 の $T_0 = 17.5$ K での相転移に伴い、一様な格子変形は起こっていないことを再確認した。それゆえ、この相転移の秩序変数が格子と結合しているのであれば、その格子変形は $Q \neq 0$ の構造でなければならない。

今回初めて URu_2Si_2 の横波 $(c_{11}-c_{12})/2$ モードの温度磁場依存性の測定を行い、このモードでソフト化を観測した。このことから、この系は低温で正方晶点群 D_{4h} の既約表現 Γ_3 の構造不安定性を持つことが明らかになった。このような横波モード (体積変化のないモード) のソフト化は、ウラン化合物の中ではほとんど例のない興味深い実験事実である。観測された磁場変化は、この横波弾性異常が電子起源であることを示唆している。この弾性異常は、定性的に、非磁性の秩序変数が提案されているすべてのモデルと矛盾しない結果である。また、この横波弾性異常の発見から、以前に報告のあった縦波 c_{11} モードの異常が、体積効果のみでは説明できないことを明らかにした。

変形ポテンシャルによる解析 (5f 電子が遍歴していると仮定) からは、 Γ_3 の歪みに対してのみ縮退がとれるような異方的な重い電子バンドの存在が示唆される。今後、さらなるバンド計算及び dHvA 効果の実験が必要であろう。一方、提案されている結晶場モデルの歪み感受率による解析 (5f 電子が良く局在していると仮定) からは、提案されている結晶場モデルの中で、一重項基底の反強四重極転移の結晶場モデルが最も良く実験結果を説明できることが明らかになった。この歪み感受率による解析において、5f 電子と伝導電子との間の相互作用も考慮するならば、非クラマース二重項基底状態の可能性も十分考えられる。今後、希釈系 ((Th,U)Ru₂Si₂ など) の弾性定数測定が必要不可欠である。

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

Elastic Response of the Heavy Electron System URu_2Si_2 Studied by High Sensitivity Ultrasonic Sound Velocity Measurements

(高感度超音波音速測定による重い電子系 URu_2Si_2 の弾性応答に関する研究)

重い電子系分野における最重要課題の一つにウラン化合物 URu_2Si_2 の低温秩序相の解明があげられる。この物質は、電子比熱に明瞭な異常を伴う 2 次相転移を低温で示す。中性子実験により、5f 電子磁気モーメントの反強磁性配列が転移とともに発達する様子が確認されたことから、当初は磁気相転移と考えられた。しかし、観測された磁気モーメントの大きさが異常に小さく、巨視的物理量の変化と既存の理論では整合しないことから、他の秩序機構の可能性が活発に議論されている。この相転移に関する研究の歴史はすでに十余年に及ぶが、現時点においても秩序変数さえ特定できていない状況にある。

本論文は、このような現況にある URu_2Si_2 の相転移現象について、超音波位相比較法による精密音速測定により、5f 電子の軌道自由度の役割および構造不安定性の有無を調べることを目的としたものである。著者は先ず東北大学との共同研究により、この物質の単結晶について零磁場における音速測定を行った。その結果、一つの横モードの弾性定数が降温とともに不完全ではあるが顕著なソフト化異常を示すことを初めて明らかにした。このことから、この物質には少なくとも結晶 4 回対称性に対する構造不安定性があること、また同時に、相転移が一樣な格子変形を伴うものではないことを示した。一般に重い電子系の多くは、重い準粒子の量子凝縮に伴い、低温で縦モードの弾性定数に顕著なソフト化を示す。本論文で示された横モードのソフト化は極めて珍しい現象であり、この系の電子状態を考える上で今後注目される重要な実験事実といえる。

つぎに著者は、この弾性異常をさらに詳しく調べるために、音速の磁場効果を測定した。そのために、低温強磁場中で稼動する音速測定装置を本学において自ら製作した。完成した装置のもつ実験精度は、位相比較法による装置としては世界でトップレベルのものといえる。様々なモードの丹念な実験の結果、顕著な磁場効果が確認され、弾性異常が電子によるものであることをつきとめた。

この実験結果に基づき、著者は二つの議論を行った。第一に、この相転移に対して提案されている全ての局在結晶場模型に対する定量的検討を行い、その適否を示した。いくつかの模型における基本仮定が本論文の実験結果と本質的に適合しないことを示したことは、停滞していた議論に一つの進展をもたらす成果である。第二に著者は、遍歴電子の立場から定量解析を行い、この系のバンド構造にヤーン・テラー縮退が存在する可能性を新たに提言した。この提案は、他の実験手段および理論計算によって今後検討されるべきものであるが、この系の相転移に対する新たな見方として注目される。

一般にウラン化合物の 5f 電子状態は、局在・遍歴の 2 面性や非クラマース性が絡み、基本理解が難しい。URu₂Si₂ の示す物性はその典型例といえる。本論文は URu₂Si₂ の相転移機構の解答を直ちに与えるものではないが、今後の理論的研究の進展の上で無視できない新たな実験事実と基本的解析を提供するものであり、十分に評価できると考えられる。

よって著者は、北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格があるものと認めます。