

## 学 位 論 文 題 名

Theory of the metamagnetic crossover in  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ (CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>のメタ磁性の理論)

## 学 位 論 文 内 容 の 要 旨

Ceなどの希土類元素やUなどのアクチノイド元素を含む化合物の中には電子比熱係数が単純な金属に比べて100から1000倍も大きな値を示すものがある。この電子比熱係数の増大は局在性の強い4f電子、5f電子間に働くクーロン斥力に起因する。フェルミ液体論によれば、電子比熱係数に対する電子間相互作用の効果は相転移がない限り準粒子の有効質量として繰り込まれるので、これらの物質は重い電子系化合物と呼ばれている。重い電子系化合物は様々な基底状態を示す。例えば  $\text{CeCu}_6$ ,  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は正常フェルミ液体、 $\text{U}_2\text{Zn}_{17}$  は反強磁性秩序状態である。さらに、 $\text{CeCu}_2\text{Si}_2$  や  $\text{UBe}_{13}$  など、強相関電子系であるにもかかわらず超伝導状態を示す物質もある。重い電子系は多くの興味を集め、実験的にも理論的にも盛んに研究がなされてきた。重い電子系に対する代表的な有効モデルとして例えば周期アンダーソンモデルがあるが、多体問題であるために、その理論的取り扱いが難しく様々な手法による研究が行われている。特に各サイトの局所量子スピン揺動をいかに取り入れるかが強相関電子系において重要であるが、これらは近藤効果に他ならず、安易な近似では十分に考慮されない。一方で重い電子系の基底状態は局所量子スピン揺動とサイト間磁氣的交換相互作用との競合という観点から議論するのが標準的であり、サイト間効果を微視的見地から調べることは重要で興味深い課題である。

$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は典型的な重い電子系化合物の一つである。電子比熱係数は  $360 \text{ mJ/mol}\cdot\text{K}^2$  であり、低温で磁気秩序転移や超伝導転移は見つかっていない。この物質の特徴は、c軸方向に磁場をかけたとき  $H_M \simeq 7.7 \text{ T}$  で磁化が急激に増大することであり、低温ほど顕著になる。この現象はメタ磁性転移と呼ばれてきたが、絶対零度の極限でも相転移ではなく連続変化であると考えられている。実験結果の解析から、この現象には本質的に一つのエネルギースケールのみが関与していることが示唆されており、磁化過程における一つのパラメーターによるスケーリング則も確認されている。これは圧力下で磁化を測定して得られた磁化曲線が、各圧力ごとに横軸(磁場)のスケールを変えると全て一つの曲線に一致するというものである。このスケーリング則は微視的理論の構築において大きな手掛かりとなり、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  のメタ磁性は重い電子系におけるサイト間効果の研究において好対象であるといえる。転移磁場  $H_M$  が扱いやすい磁場領域であることから、実験的研究も精力的になされており、磁化過程の急激な変化に関連して、他の電子的性質や格子系の性質にも異常が見られることが分かっている。例えば、体積磁歪も  $H_M$  で急激に増大し、 $10^{-3}$  程度の大きな値に達することが報告されている。通常磁性体では磁歪は  $10^{-6} \sim 10^{-4}$  である。局所量子スピン揺動のエネルギースケールとして定義される近藤温度  $T_K$  が系の体積に敏感であることから、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  のメタ磁性において格子の膨張の効果は重要であると思われる。一方、

電子比熱の磁場に対する変化を見ると、十分低温では  $H_M$  で鋭いピークを示すが、温度を上げていくとダブルピーク構造が現れることが報告されている。電子比熱の温度変化においても緩やかなピーク構造が見られ、ピークの位置は磁場とともに変化する。これらの結果は、準粒子状態密度に特徴的なピーク構造が存在することを示唆している。

本研究の目的は、サイト間の磁氣的交換相互作用を微視的に計算して、メタ磁性転移のメカニズムを明らかにすることである。メタ磁性を説明するために、状態密度における擬ギャップ構造と、電子格子相互作用の二つの要素を本質的であると考えて取り入れる。状態密度の擬ギャップ構造は周期アンダーソンモデルにおいて伝導電子と  $4f$  電子の混成の結果として期待されるものである。一方、電子格子相互作用は近藤温度  $T_K$  の体積依存性を考慮することで良く取り入れられる。 $T_K$  は格子の膨張とともに減少するので、近藤効果が抑えられ、磁化が出現しやすくなると考えられる。ハミルトニアンは簡単化のためハバードモデルを用いる。系がフェルミ液体状態である限り、周期アンダーソンモデルとハバードモデルには定量的な違いしかなく、状態密度の擬ギャップ構造は現象論的に取り入れることができる。理論的枠組みとしては、シングルサイト近似を出発点にとる。これは、電子のセルフエネルギーをシングルサイト項とマルチサイト項に分け、マルチサイト項を無視する近似であり、空間次元無限大の極限では厳密になることが示される。従って、シングルサイト近似から出発し、サイト間効果を取り込んでいく枠組みは  $1/d$  をスモールパラメーターとする展開理論に他ならない。 $d$  は空間の次元数である。同様に分極関数をシングルサイト項とマルチサイト項に分けることで、「各サイトの局所的なスピン揺動（近藤効果）が磁氣的交換相互作用で結合している」という、重い電子系に対する物理描像に忠実な帯磁率の理論表式を導くことができる。セルフエネルギーや分極関数などのシングルサイト項を計算することは一不純物問題のアンダーソンモデルを解くことに帰着される。この理論枠組みの最大の利点は、アンダーソンモデルへの写像により局所量子スピン揺動を正しく取り込むことができることである。一方、帯磁率の表式から定義された磁氣的交換相互作用は  $1/d$  の最低次の範囲で考慮する。これはスピンチャンネル内電子正孔対励起の仮想交換を媒介とした交換相互作用である。励起エネルギーについて高エネルギー部分と低エネルギー部分（準粒子バンド内）に分けることができる。低エネルギー部分からの寄与による交換相互作用を  $J_Q$  と書くと、重要な点は  $J_Q$  が系の磁化と体積に強く依存しているということである。状態密度の擬ギャップ構造を与えて  $J_Q$  の静的一様成分を数値計算した結果、磁化が小さいときは反強磁性的（負）であるが、メタ磁性領域では強磁性的（正）に変化していることが分かった。このことは交換相互作用をハミルトニアンの段階でパラメーターとして取り入れる枠組みでは得られない新しい知見である。与えられた外部磁場、および圧力の下での系の磁化と体積は、まず自由エネルギーを計算し、この自由エネルギーに対する極小条件から決定される。数値計算により、実験データとコンシステントな結果が得られた。また、メタ磁性の主たる機構は  $J_Q$  の符号変化であり、体積効果（ $T_K$  の減少）がメタ磁性をさらに増強しているという結論に達した。一方、 $J_Q$  は近藤温度と同じ体積依存性を示し、この性質のため、磁化過程におけるスケールング則がほぼ満足された。また、状態密度の擬ギャップ構造により、電子比熱の磁場依存性、温度依存性も実験結果と定性的に一致した。最後に、 $\Gamma$  点付近の動的性質について調べた結果、 $H_M$  を含む狭い磁場領域、かつ  $0.2$  meV 以下のエネルギー領域で強磁性スピン揺動の発達が確かめられた。これは中性子散乱実験の結果とコンシステントである。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 大 川 房 義  
副 査 教 授 熊 谷 健 一  
副 査 教 授 榊 原 俊 郎  
副 査 助 教 授 北 孝 文

学 位 論 文 題 名

## Theory of the metamagnetic crossover in $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$

( $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ のメタ磁性の理論)

$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は磁場を印加したとき約 7 テスラーで磁化が急激に増加する現象、いわゆるメタ磁性的振る舞いを示す。このメタ磁性の機構の解明は長年の懸案であった。これまで、磁歪による体積の増加に伴い磁化をクエンチする効果、近藤効果、が弱くなり磁化の出現が容易になる機構と強磁性的交換相互作用の効果が、働いているとの理論提案がある。しかし、この理論では強磁性的交換相互作用が現象論的に扱われていて、このメタ磁性を特徴付ける単一パラメーター縮尺則、すなわちメタ磁性の振る舞いが唯一のパラメーター近藤温度で縮尺されるという実験事実、が説明できなかった。

近年、強相関電子系を扱う理論として無限次元からの展開理論、空間次元数を  $d$  として、 $1/d$  展開理論が開発された。この学位申請論文では、近藤温度の磁歪効果に加え、 $1/d$  の最低次効果である 2 つの効果、近藤効果による磁気モーメント出現の抑制効果とワイスの磁氣的分子場効果、を考慮して  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の諸物性を理論的に考察した。ほとんど分散のない  $f$  電子と強い分散を持つ伝導電子が強く混成し、混成電子ができる。混成電子の状態密度は二こぶラクダの背の様な構造、いわゆる擬ギャップ構造、を持つ。この混成電子は、強い電子相関効果により繰り込まれ準粒子質量が重くなった、いわゆる、重い電子が形成される。重い電子の有効バンド巾は、近藤効果の強さを示す近藤温度に比例する。この学位申請論文の最も重要な結果は、重い電子の対励起のスピッチャネルの仮想交換から生じる磁氣的交換相互作用が  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  のメタ磁性において最重要の役割を演じることを示したことである。この磁氣的交換相互作用は従来知られている交換相互作用にはない特徴を持つ。すなわち、この交換相互作用の強さは重い電子の有効バンド巾、すなわち近藤温度に比例する。単一パラメーター縮尺則は自然に説明されている。また、この交換相互作用は弱磁場下では反強磁性的であるが、メタ磁性を示す約 7 テスラーの磁場下では強い強磁性になることを示した。この交換相互作用の符号変化は、重い電子バンドの状態密度の擬ギャップ構造に由来する。磁場の印加に伴う交換相互作用の符号変化は観測されているスピン揺らぎの磁場変化も自然に説明している。他にも、磁歪、比熱、中性子散乱強度（動的帯磁率）等の磁場依存性も考察し、ほぼ実験結果を再現する理論結果を得ている。

長年の懸案である  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  のメタ磁性を説明している可能性が極めて高い論文として、この学位申請論文は高く評価できる。審査員一同は博士（理学）の資格が十分にあると判定した。