

学位論文題名

Effects of Hydrostatic Pressure and Uniaxial Stress
on Antiferromagnetic Moment
in the Heavy Electron Compound URu₂Si₂(重い電子系化合物 URu₂Si₂の反強磁性モーメントに対する
静水圧及び一軸応力効果)

学位論文内容の要旨

重い電子系化合物 URu₂Si₂ (ThCr₂Si₂ 型体心正方晶)は T₀=17.5 K において比熱などの巨視量に明瞭な異常を伴う相転移を示す物質である。過去の中性子弾性散乱実験では T₀ 以下で反強磁性配列の発達が観測されるが、そのモーメントは ~ 0.03 μ_B/U と非常に小さく T₀ における比熱の跳び (~ 300 mJ/K² mol) と対応していない。そこでこの相転移の機構として隠れた秩序変数の存在が議論されてきた。本研究では、この相転移と微弱反強磁性モーメントの対応を微視的に調べることを通じて秩序変数の情報を得るために URu₂Si₂ の静水圧下中性子散乱実験をおこなった。

我々は静水圧下中性子弾性散乱実験において系に 1 GPa 程度の加圧によって反強磁性 Bragg ピーク強度が常圧の 100 倍以上に増大することを発見した。一方、反強磁性の発生温度 T_m は加圧によってもわずかな増大を示すにすぎない。最近姫路工業大学のグループによっておこなわれた静水圧下 NMR では、圧力下では比較的大きなモーメントを持つ反強磁性相は空間的に不均一に存在し、加圧によって局所モーメントが増大するのではなく、反強磁性相の体積比が増大することを明らかにした。これらのことは、系には機構が未知の秩序が存在し反強磁性状態と競合状態にあることを示唆している。またこの結果を常圧まで拡張すると、これまで微弱反強磁性と考えられていたものは実は数十ナノメートル程度の大きさで本質的に存在する微少反強磁性領域に起因すると考えられる。

我々はさらに P_c=1.5 GPa において反強磁性 Bragg ピークや T_m が不連続に増大する一次相転移を発見した。P_c 以上の圧力では反強磁性モーメントは ~ 0.4 μ_B/U と見積られ、その温度変化は 3 次元イジングモデルの計算値とよく一致している。また、中性子非弾性散乱実験では P_c 以下で観測されていた磁気励起が P_c 以上で消失することを

発見した。我々はウラン 5f 電子の結晶場基底状態として非クラマース Γ_3 二重項を仮定し、未知の秩序としての反強四重極秩序と反強磁性状態との競合を考えることによって今回の実験結果が定性的に説明できることを提案した。

一方、我々はこれら二相の競合の機構を調べるために一軸応力下中性子散乱をおこなった。その結果、反強磁性相の発達には強い応力方向依存性があることを発見した。すなわち正方晶の c 面内の方向に応力を印加すると反強磁性相が発達するのに対し、c 軸方向に応力を印加すると反強磁性相の発達は観測されない。また、c 面内の応力の方向に関しては反強磁性相の発達には実験精度内において応力方向依存性は観測されなかった。一軸応力に対する反強磁性 Bragg ピークの増大の様子は静水圧の場合と類似しているが、その増大率は静水圧の場合の約 4 倍大きい。このことは反強磁性相の発達において静水圧よりも一軸応力の印加のほうが敏感であることを示唆している。これらの結果を URu_2Si_2 の弾性定数を用いて解析すると、一軸応力下のみならず静水圧下においても反強磁性相の発達が格子定数比 c/a の増大によって説明できることを明らかにした。このことは未知の秩序相と反強磁性状態の競合において c/a 比が重要な役割を果たしていることを示唆する。また、 c/a 比を意図的に変化させることにより不均一反強磁性の発達を制御できる可能性があると考えられる。

また我々は試料に応力を加えずに T_0 以下まで冷却し、低温で応力の強さを制御することによって磁気 Bragg ピークの応力変化を測定した。その結果、応力印加によって発達する反強磁性相にヒステリシスを持つことを明らかにした。このことは隠れた秩序相から反強磁性相への転移が 1 次相転移であることを示している。

本研究によって明らかになった静水圧・一軸応力下における反強磁性相の急激な発達は、未知の秩序変数の問題のみならず不均一反強磁性の性質を研究するうえでも興味深い。

学位論文審査の要旨

主 査 助 教 授 網 塚 浩
副 査 教 授 大 川 房 義
副 査 教 授 熊 谷 健 一
副 査 助 教 授 根 本 幸 児

学 位 論 文 題 名

Effects of Hydrostatic Pressure and Uniaxial Stress on Antiferromagnetic Moment in the Heavy Electron Compound URu₂Si₂

(重い電子系化合物 URu₂Si₂の反強磁性モーメントに対する
静水圧及び一軸応力効果)

希土類元素の Ce やアクチノイド元素の U を含む金属間化合物のうち、低温で興味ある異常金属状態を示す一連の物質群は、「重い電子系」とよばれ、過去約 20 年にわたって実験・理論の両面より精力的に研究されてきた。重い電子系の特徴は、概ね 10K 以下の低温領域において電子比熱係数が通常金属の 100 – 1000 倍もの異常に大きな値を持つことで、これは、帯磁率・電気抵抗等の異常と併せて、大きな有効質量を持った遍歴電子が低温で出現するためと考えられている。この重い電子状態において、異方的超伝導や高次多極子秩序等、種々の新奇物性が発見され、強い電子相関を伴う遍歴電子系の電子状態の解明に多くの関心が寄せられている。

URu₂Si₂ (ThCr₂Si₂ 型体心正方晶) は $T_0 = 17.5$ K において秩序変数が未知の相転移を示す重い電子系として注目される物質である。過去の中性子弾性散乱実験では T_0 以下において反強磁性配列の発達を観測されている。しかし、その秩序モーメントは通常の磁性体の 100 分の 1 程度と異常に小さく、 T_0 における比熱の跳びなどの大きなマクロ異常と単純には対応しない。このことから弱い反強磁性が相転移の本質なのか、あるいはまだ検知されていない「隠れた秩序変数」が存在するのかが、この物質の発見以来 17 年にわたる論争となっている。著者は、この相転移の機構に関する情報を得るために、静水圧および一軸応力下で URu₂Si₂ に対する中性子散乱実験を初めて行い、相転移と微弱反強磁性モーメントとの対応を微視的に調べた。

著者は先ず、静水圧力下において詳細な中性子弾性散乱実験を行った。その結果、系に 1 GPa 程度の静水圧 P を加えると反強磁性磁気散乱強度が急激に増大することを発見した。空間的に均一な秩序を仮定して求めた反強磁性モーメントの大きさ μ_0 は、1.4 K において約

0.017 μ_B/U ($P = 0$) から約 0.25 μ_B/U ($P = 1.0$ GPa) に増大する。この発見の後、姫路工業大学・小原孝夫教授のグループとの共同研究として静水圧下 NMR 実験が行われ、比較的大きなモーメントを持つ不均一反強磁性相が加圧とともに発生することが明らかとなった。両実験結果の対応から、中性子散乱で観測された磁気散乱強度の加圧による増大は、秩序モーメントの大きさの変化ではなく結晶中の反強磁性体積比の増大に起因していることが明らかとなった。著者はこれらの実験事実に基づき、この系の相転移において反強磁性は本質的ではなく、反強磁性と競合する未知の秩序変数が存在することを明らかにした。著者はまた $P_c = 1.5$ GPa において反強磁性磁気散乱強度が不連続に変化し、この圧力より高圧側では磁気励起が消失することも発見した。

著者は次に、一軸応力 (σ) 下で中性子弾性散乱実験を行い、結晶対称性と反強磁性誘起の関係を調べた。その結果、一軸応力印加による反強磁性相の発達に強い応力方向依存性があることを観測した。そして詳細な実験データに基づき、これら二相の競合においては正方晶格子定数比 c/a が重要なパラメータとなっていることを提案した。すなわち、静水圧及び一軸応力という異なる条件下で得られた反強磁性体積率の変化が、弾性定数から予想される格子歪み c/a をパラメータとしてよくスケールされることを明らかにした。著者はまた、試料に応力を加えずに T_c 以下まで冷却し、低温で応力の強さを制御する測定を行った。その結果、応力印加によって発達する反強磁性磁気散乱強度に顕著なヒステリシスを観測し、隠れた秩序相から反強磁性相への転移が一次相転移であることを明らかにした。

この論文の最も評価出来る点は、重い電子系分野で長年の論争であった URu_2Si_2 の微弱反強磁性の問題に関し、停滞していた議論に新しい展開をもたらしたことである。反強磁性は相転移の本質ではなく、隠れた秩序が存在することがこの論文の研究により確実なものとなった。しかし、真の秩序変数が何かは依然として分かっておらず将来の課題として残される。第二に評価出来る点として、広い温度-圧力領域において顕著な磁性相分離状態が出現する系を見つけたことが挙げられる。高温超伝導体を含む強相関電子系分野で最近注目されている「量子臨界点近傍における不均一磁性」の問題を研究する上で重要な知見を提供する可能性が考えられ、今後、この系に対する研究の更なる進展に期待がもたれる。結論として、この論文は学術的に高く評価できる。また、この論文を纏めるにあたり示された申請者の能力も評価できる。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る。