

学位論文題名

# Magnetic Clustering and Non-Fermi-Liquid Behavior Accompanying Suppression of Long-Range Ferromagnetic Order in $\text{CePt}_{1-x}\text{Rh}_x$

( $\text{CePt}_{1-x}\text{Rh}_x$  における強磁性長距離秩序の抑制に伴う

磁気クラスター形成と非フェルミ液体異常)

## 学位論文内容の要旨

### 研究背景

金属中の電子は低温においてフェルミ統計の強い支配をうけ、多くの場合、物理量が相互作用のないフェルミ気体と同様の温度依存性を示すことが知られている。この状態はフェルミ液体とよばれ、ラッティンジャーの定理によれば、フェルミ気体から相転移することなく連続的に電子間の相互作用を導入できる限り、相互作用の強さに関わらず実現する。

しかし、1991年に  $\text{Y}_{1-x}\text{U}_x\text{Pd}_3$  において相転移のない常磁性金属であるにもかかわらず、低温でフェルミ液体論の予想に従わない「非フェルミ液体異常」が観測され、それ以来、多くの系で同様の非フェルミ液体異常の報告がなされている。その起源をめぐって現在まで精力的な研究が行われ、多重チャンネル近藤モデルを含む様々なモデルが提案されているが、統一的な理解には至っていない。非フェルミ液体異常を示す多くの系は磁気秩序が消失する磁気的量子臨界点の近傍にあることが知られている。このことから、量子相転移に伴う量子ゆらぎが非フェルミ液体異常の起源の有力な候補の一つと考えられている。量子相転移とは絶対零度において、温度以外のパラメータを変化させることによって起きる相転移として定義され、量子相転移点近傍では量子ゆらぎが系の性質を支配するために、熱ゆらぎが重要となる古典的な相転移とは本質的に異なる物性が期待される。

f 電子系化合物は、比較的低温( $\sim 10$  K)で反強磁性秩序を示す物質が多い。そのため、反強磁性-非磁性の量子相転移に関する実験の報告は多くある。一方、強磁性-非磁性の量子相転移に関する研究は非常に少なく、現在まで  $\text{CePt}$  の圧力実験や置換系  $\text{URh}_{1-x}\text{Ru}_x\text{Ge}$  等の数例の報告しかない現状にある。強磁性量子臨界点ではその特徴として以下に述べる性質を持ち、反強磁性の量子臨界点とは異なるダイナミクスが期待され興味深い。(1)  $q = 0$  の相転移であるために、秩序変数が保存量である。(2) 動的臨界係数  $z_d$  が 3 であり、反強磁性体( $z_d = 2$ )とは異なる。(3) 量子臨界点近傍の非フェルミ液体異常を記述する代表的な理論である SCR 理論で予想される非フェルミ液体異常の温度依存性が反強磁性の場合とは異なる。

しかし、強磁性量子相転移の特徴を議論する以前に D. Belitz による拡張されたランダウの自由エネルギーを用いた議論によると、乱れのないクリーンな系においては、強磁性体特有の非解析項の影響により量子臨界点近傍では強磁性転移は必ず一次転移になり、強磁性量子臨界点は存在しないことが指摘されている。実際、臨界点近傍で強磁性転移が一次転移になる振る舞いは遍歴強磁性体  $\text{ZrZn}_2$ ,  $\text{UGe}_2$  等で観測されている。一方、系に乱れを導入することによって、一次転移の発現を抑制し連続的に転移点を絶対零度に近づけることが可能であることも理論的に指摘されている。以上のことから、強磁性を抑制した場合に、量子相転移が存在しうのだろうか、また、強磁性消失に伴い、どのような金属状態が現れるかを実験的に調べることは、重要な問題である。

本研究ではこの目的のために Ce 系化合物では稀な強磁性体の一つである  $\text{CePt}$  ( $T_C = 6$  K)と同

一の結晶構造で磁気秩序のない CeRh に着目し、混晶系  $\text{CePt}_{1-x}\text{Rh}_x$  における強磁性の消失過程に関する研究を行った。

## 実験手法

試料はテトラアーク炉を用いたアーク溶解法で作成した多結晶試料  $\text{CePt}_{1-x}\text{Rh}_x$  ( $x = 0, 0.2, 0.5, 0.6, 0.65, 0.7, 0.75, 0.8, 0.83, 0.9, 1$ ) を使用した。作成した試料は X 線粉末回折および Electron Probe X-ray Microanalysis (EPMA) で評価を行い、マイクロメートルのスケールで Pt と Rh が均一になっていることを確認した。

物性測定は Superconducting Quantum Interference Device (SQUID) を用いた dc 磁化測定 ( $2\text{ K} < T < 300\text{ K}$ )、緩和法による比熱測定 ( $0.3\text{ K} < T < 40\text{ K}$ )、Hartshorn Bridge 回路を用いた ac 帯磁率測定 ( $0.3\text{ K} < T < 10\text{ K}$ ,  $2.6\text{ Hz} < \omega/2\pi < 1113\text{ Hz}$ )、zero-field cool (ZFC), field cool (FC) 下の dc 磁化測定 ( $2\text{ K} < T < 10\text{ K}$ )、キャパタンスファラデー法を用いた極低温下 ( $100\text{ mK}$ ) までの dc 磁化測定を行った。

## 実験結果および議論

Rh 置換に伴い強磁性転移に伴う比熱および  $\chi_{ac}$  のピークが連続的に低温にシフトし、Rh 濃度  $x_c = 0.75$  近傍で磁気秩序が消失する振る舞いが観測された。ただし、 $x_c$  近傍では磁気転移に伴う比熱のピークは非常にブロードであり、置換に伴うランダムネスの存在を示唆する結果となった。また Rh 置換に伴い、ワイス温度が急激に負に増大すること、および転移点で見積もられる磁気エントロピーが局在電子で期待される  $R \ln 2$  から大きく減少する振る舞いを観測した。この結果は Rh 置換に伴って f 電子と伝導電子間の混成が強くなっていると理解することができる。また、 $x_c$  近傍および  $x_c$  以降の組成 ( $0.75 < x < 0.9$ ) において、低温領域で比熱及び、磁化率の非フェルミ液体的な発散を観測した。観測された非フェルミ液体異常は、磁化は温度のべき則  $\chi = \chi_0 + AT^{-\alpha}$ 、比熱は  $C/T = \gamma - B \ln(T/T_0)$  でよくフィットすることができた。これらの観測された非フェルミ液体異常は強磁性の量子ゆらぎに起因するものと考えられるが、その温度依存性および  $x_c$  以降の幅広い濃度領域で異常が観測される振る舞いは SCR 理論では説明できない。

我々はこの振る舞いの原因として、Pt-Rh 置換によって生じる disorder がこの系の臨界現象に大きな影響を及ぼしている可能性を考えた。そして、その影響を調べるために  $x_c$  近傍の磁気秩序相を  $\chi_{ac}$  の周波数応答や FC, ZFC の測定を用いて詳細に調べた。その結果、 $x = 0.5, 0.6$  の組成において、磁気転移に伴う  $\chi_{ac}$  のピークの位置および強度が強く測定周波数に依存することを観測した。通常の強磁性体では、このような低い周波数領域でピーク位置が変化することは考えにくい。観測されたピーク位置の周波数依存性はスピングラス系やクラスターガラス系のダイナミクスを記述するのによく用いられる現象論的な Vogel-Fulcher 則  $\omega = \omega_0 \exp(-E_a/k_B(T - T_0))$  でよくフィットすることができ、その周波数依存性を詳細に解析した結果、この組成の磁気秩序相は強磁性クラスターがガラス状態に凍結したクラスターガラス相として理解できることがわかった。また、非常に  $x_c$  に近い  $x = 0.7$  の組成でも、同様に  $\chi_{ac}$  のピーク位置の強い周波数依存性が観測されたが、 $x = 0.5, 0.6$  と同様に Vogel-Fulcher 則で fit した結果、Vogel-Fulcher 温度がほぼ 0 になることを確認した。これは、 $x_c$  近傍では磁気クラスター間の相関はすでに消失してクラスターはほぼ孤立状態であり、この組成はクラスターガラスよりも超常磁性体として記述されることを示唆している。また、 $x > 0.5$  の組成で ZFC, FC の測定を行った結果、磁気点移転近傍で明確な分岐を観測し ZFC, FC ともに他のクラスターガラス系のものと振る舞いが酷似していることを確認した。

## 結論

以上の結果から、 $\text{CePt}_{1-x}\text{Rh}_x$  においては置換による乱れが重要な役割を果たし、磁気秩序の消失する濃度  $x_c = 0.75$  近傍の磁性状態は単純な強磁性ではなく、強磁性クラスターがガラス状態に凍結したクラスターガラス相として記述されることがわかった。また、 $x_c$  に近くなるに従って、磁気クラスターは希薄になりクラスター間の相関もなくなり、超常磁性体的に振る舞うことが明らかになった。このことは、磁気秩序が消失する  $x_c$  近傍では磁気転移はもはや 2 次転移ではなく、さらに  $x_c$  のごく近傍の組成 ( $x = 0.7$ ) においては有限温度における熱力学的な相転移の存在すら不明瞭であるということを示唆している。これらのことから  $\text{CePt}_{1-x}\text{Rh}_x$  においては強い乱れのために、強磁性転移が 2 次転移のまま  $T_0 \rightarrow 0$  となり強磁性量子臨界点に至るといった従来の描像

とは大きく異なっているということがわかった。これらの振る舞いが強磁性量子臨界点近傍に乱れを導入した場合の普遍的な振る舞いであるのかは不明であるが、他の系も含む包括的な研究によって検証を進めていく必要があると考えられる。また、今回  $x_c$  近傍において、超常磁体的な性質が観測されたが、このことから置換によって誘起される反強磁性の量子臨界点近傍でも同様の反強磁性的な磁気クラスターによる超常磁性的振る舞いが起こる可能性が考えられる。よって、これらの系の臨界点近傍の磁性状態を詳細に調べ直すことも興味深い問題である。また観測された非フェルミ液体異常は、孤立した強磁性クラスターの量子ゆらぎによるものであることが強く示唆されるが。現状では、これを記述できる理論モデルはなく、将来の検討課題である。

# 学位論文審査の要旨

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

学 位 論 文 題 名

## Magnetic Clustering and Non-Fermi-Liquid Behavior Accompanying Suppression of Long-Range Ferromagnetic Order in $\text{CePt}_{1-x}\text{Rh}_x$

( $\text{CePt}_{1-x}\text{Rh}_x$  における強磁性長距離秩序の抑制に伴う

磁気クラスター形成と非フェルミ液体異常)

希土類やアクチナイド元素を含む金属化合物において、圧力や磁場の印加、あるいは元素置換といった非熱的な外部パラメータによって磁気秩序を発生あるいは消失させた際、極低温領域の物理量が、従来知られるランダウのフェルミ液体論に従わない特異な温度異存性（非フェルミ液体異常）を示す例が近年、多数報告され、問題となっている。理論的には絶対零度での相転移（量子相転移）に伴う量子ゆらぎの効果が本質的と考えられ、これを取り入れた様々なモデルが提案されているが、現実の様々な系との対応は未だ十分とはいえず、包括的な理解には至っていない。申請者は、この問題において最も基本的であると思われる強磁性－常磁性間の量子相転移に関する研究が、実験的には数例しかなされていないことに着目し、 $\text{Ce}(\text{Pt,Rh})$ 系における強磁性秩序の消失過程を静磁化、交流磁化、比熱測定を用いて詳細に調べた。その結果、Pt の Rh 置換に伴い、系の基底状態が、強磁性長距離秩序相から強磁性クラスターのグラス秩序相を経て、超常磁性状態へと変化することを確認し、この系では2次相転移として特徴付けられる量子臨界点が存在しないことを明らかにした。さらに、超常磁性が発現している広い Rh 濃度領域において、低温磁化率が温度の異常なべき則に従い、また比熱が対数発散的に振る舞う非フェルミ液体異常を示すことを見出した。本研究は、乱れのある系においては量子相転移の様相が均一な系とは本質的に異なる場合があることを実験的に初めて明確に示すとともに、その状況下で現れる非フェルミ液体異常の特徴を明らかにした点で学術的に高い価値があると思われる。これを要するに、著者はf電子系における量子臨界点近傍の電子状態に関して新たな知見を得たものであり、物性物理学における強相関電子系の学術分野に対して貢献するところ大なるものがある。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あるものと認める。