

論文内容の要旨

フラストレーションを持つ近藤反強磁性体 CePdAl の高圧下における量子臨界現象

羽根慎吾

ハミルトニアンのあるパラメータを変化させたとき、基底状態において起きる相転移を一般に量子相転移という。この量子相転移では、系のもつ量子性も臨界点で重要な役割を果たしているのが量子相転移と呼ばれている。量子相転移の例としては、磁性体における磁気秩序と無秩序の間の転移、金属における正常相と超伝導相の間の転移などがある。この量子相転移の近傍では磁氣的に不安定で量子揺らぎのため様々な臨界異常現象が出現すると考えられている。一般的に、磁気秩序のない金属はフェルミ液体的な振る舞いをすると考えられており、重い電子系においても低温での物性は有効質量の大きい Fermi 液体として記述される。一方、繰り込み群の手法や SCR 理論によればこの量子臨界領域では、種々の物理量が特異な温度依存性を持ち、非 Fermi 液体の性質を示すと予想されている。これを実験的に観測するのが本研究の第一の目的である。そこで、重い電子系を中心に量子相転移を起こしそうな物質を探し、CePdAl を研究対象にした。重い電子系の物質では、圧力又はケミカルプレッシャーで cf 相互作用 J_{cf} を増加させて、近藤効果と RKKY 相互作用の比を変えることによって、量子相転移を実現し臨界現象を観測することが可能である。しかし、これらの観測には実験的な困難が存在する。ケミカルプレッシャーを用いて実現しようとすると系が汚れてしまい、加えたその不純物や格子の変形などの効果によって、物理の本質が見えない恐れがある。高圧下において量子臨界点近傍の測定を行おうとすると、高圧、低温を組み合わせた多重極限下で測定を行わなければならない非常に困難である。加圧することによって量子臨界点を得た研究例が極端に少ないのも実験の困難さのためである。

このような測定を可能にするため、多重極限下での磁化測定装置および電気抵抗測定装置の開発、研究を行い、20T、1.3GPa、0.5K という環境で精密な磁化測定と電気抵抗測定が可能な装置を開発した。このような測定装置のおかげで、ケミカルプレッシャーと比べて系を汚す効果を考慮する必要がない、圧力間で抵抗の大きさを比較することができる、とい

う非常に強力な手段を用いて研究を進めることができた。本研究では CePdAl の Pd サイトを Ni で置換してケミカルプレッシャーを与えた試料を用意し、CePdAl の加圧状態と比較して、ケミカルプレッシャーの妥当性も考えた。このような測定を通して、量子相転移を実現し、そこで現れるであろう臨界異常を観察して臨界指数を求めるのが主な目的である。

本研究で用いる CePdAl は主に2つの側面がある。

一つ目は反強磁性を示す重い電子系としての側面である。上記のように加圧によって近藤効果を強め反強磁性から常磁性の量子相転移の実現が期待できる。二つ目は Ising 的な磁性原子である Ce が図 1 のようにカゴメ格子的な配列をしているという、幾何学的なフラストレーションがある物質としての側面である。磁気モーメントを担う原子が

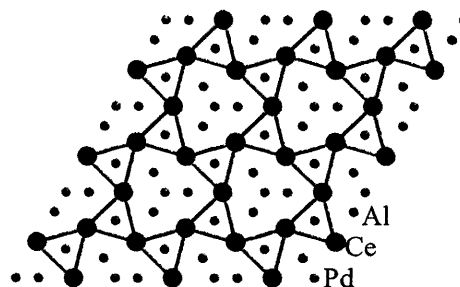


図 1 Ce の c 面内の結晶構造

三角格子やカゴメ格子などの配置を取り、その三角形の格子の頂点におかれる磁性原子間に反強磁性相互作用があると、その相互作用をすべて満たすような磁気モーメントの配置は存在しない。これが磁気モーメント間のフラストレーションである。この物質においても 2次元性があれば c 面内のフラストレーションの影響がしていると予想される。この、低次元性やフラストレーションの効果は特に磁化過程や帯磁率などに現れる。

CePdAl は比熱測定の結果によると反強磁性相での電子比熱係数が 270mJ/molK と非常に大きい。また、 λ 型の比熱の異常が反強磁性転移温度 $T_N=2.7\text{K}$ で現れる重い電子系として知られている。抵抗は 20K 近辺で $-\ln T$ 依存性があり、 30K 付近で極小値を取る事から近藤効果の存在すると考えられている。また、結晶構造や帯磁率に強い異方性を持ち、c 軸が容易軸である。 1.5K での磁化過程は、容易軸である c 軸に平行な磁場による反強磁性から磁場誘起強磁性状態へのメタ磁性的な転移が観測されている。磁化は磁化困難方向である c 面に平行に磁場をかけてもほとんど誘起されず、この系が Ising 的であることを示す。中性子散乱測定の結果によれば磁気構造は 2.7K 以下で逆空間ベクトル $k=[1/2,0,0.35]$ であらわされる。c 面内の磁気構造は、c 面に対して上を向いているものと下を向いているものが鎖状に 1列に並び、その間の Ce 原子は磁気秩序状態になっていない。

本研究では

- (1) パルス磁場を用いた $B<45\text{T}$ 、 $T>0.5\text{K}$ の領域での誘導法による磁化測定
- (2) 多重極限下、 $B<20\text{T}$ 、 $T>0.5\text{K}$ 、 $P<1.3\text{GPa}$ の領域での引き抜き法による磁化測定
- (3) 多重極限下、 $B<9\text{T}$ 、 $T>0.5\text{K}$ 、 $P<1.1\text{GPa}$ の領域での直流四端子法による抵抗率測定
- (4) 低温高压下、 $T>0.4\text{K}$ 、 $P<1.4\text{GPa}$ の領域での交流法による比熱測定

を行った。試料は富山大学理学部石川義和教授より提供していただいた。単結晶の CePdAl およびその置換系 $\text{CePd}_{0.9}\text{Ni}_{0.1}\text{Al}$ を使用した。これらは同研究室の炉で Czochralski 法により作成された。

図2に示す0.5Kにおける磁化過程に3段のメタ磁性転移を発見し、磁気抵抗率にも同じ磁場で異常が現れていることがわかった。磁場をかけると反強磁性転移温度以下でフラストレーションを解消するように、磁場中で安定ないくつかの磁気構造に変化しながら最終的には強磁性的な配列に転移してゆくと考えられる。この様な多段の転移は物質に存在するフラストレーションを反映した結果だと言える。また、0.5Kまでの帯磁率において、反強磁性転移に対応する折れ曲がりよりも上の温度で、ブロードなピークを作る。このピークを示す温度と転移温度の関係を求め、これと2、3次元格子Isingモデルの理論計算の結果と比較した。その結果、この物質が2次元性であることがわかった。この2次元性はc面内のフラストレーションを反映したものである事がわかる。同様に反強磁性転移温度より上に現れる比熱のすそもフラストレーションを反映したものであると考えられる。常圧で観測されたこれらの特徴的な振る舞いは高圧下において徐々に弱くなって、低次元性が抑制されているように見える。しかし、この抑制は急には進まず、臨界圧力付近でも2次元的な振る舞いが観測できる。

電気抵抗率に現れる極小・極大や、低温での比熱係数 γ 、5Kでのエントロピーを用いて近藤温度の見積もりを行った。見積もり方によって近藤温度に違いが出るものの、常圧での近藤温度を約3K、1.2GPaでは大きくなって約15K程度であると見積もった。

CePdAlの反強磁性転移温度は加圧によって減少することが、帯磁率、電気抵抗率、比熱の測定からわかった。また、圧力-温度相図、圧力-磁場相図を決定した。図3に示す相図より約0.95GPaで反強磁性-常磁性の量子相転移を起こしていることがわかった。量子相転移近傍の圧力において帯磁率、電気抵抗(図4)、比熱に非Fermi液体の振る舞いを観測し、この温度依存性を求めて臨界指数を表1のように決定した。比熱と抵抗率の結果は、SCR理論で予想される2次元の反強磁性と、3次元の反強磁性の両方に一致する。この結果とSCR理論からは臨界現象が2次元か3次元かを区別がつかない。他の理論でも次元性を区別できなさそうである。一方、帯磁率の振る舞いは1.6と見積もられ、これは少なくとも1より大きく、3次元のSCR理論では理解するの

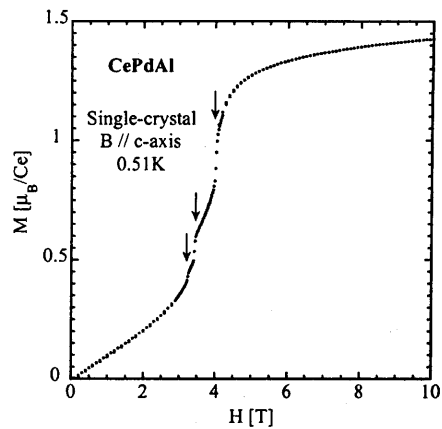


図2 0.5Kでの磁化過程。矢印は3段階の転移磁場を示す。

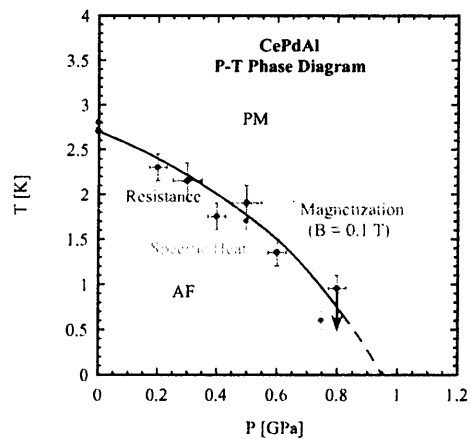


図3 帯磁率、抵抗率、比熱から求めたCePdAlの圧力-温度相図。

が困難である。また、他の理論や物質で見られる臨界指数も1より大きい指数を支持しているものは見当たらない。なぜ、臨界指数がこんなに大きいのか問題である。この原因の可能性のひとつとして低次元性が考えられる。常圧では低次元性による短距離相関の影響で磁化の値がゆっくりと減少して T_N より上にブロードなピークを作った。臨界圧力付近でも同じような短距離相関が残っていて磁化の値をゆっくりと抑制させていると考えられる。この事によって大きな臨界指数が得られたと考えられる。また、通常物質では臨界点から離れてゆくと臨界指数は増加してゆくが、CePdAl においては臨界指数が減少してゆく。この原因としても低次元性が一つの原因として考えられる。それは、加圧してゆくと低次元性が徐々に解消され、磁化を抑制する短距離相関が減少して、他のいくつかの理論や物質でも支持している1より小さな臨界指数に近づいてゆくと考えられる。臨界異常が観測されている状況に磁場を印加すると、臨界揺らぎが抑制されて Fermi 液体の振る舞いを示すことから、ゼロ磁場で観測された非 Fermi 液体の振る舞いが臨界異常であることがわかった。

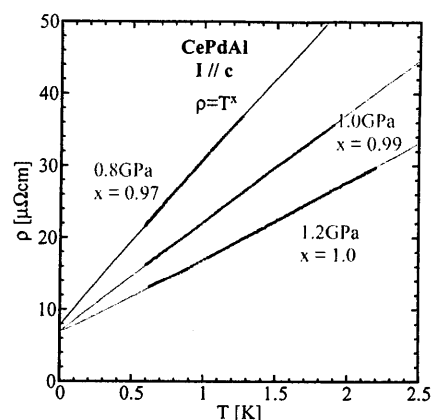


図4 CePdAl の抵抗率の臨界点近傍の振る舞い。 $\rho \propto T^x$ でフィッティングされることを示す

		$\chi(T)$	$\rho(T)$	$C(T)/T$
Fermi 液体	関数	$a(+bT^2)$	$a+bT^2$	a
CePdAl	関数型	$a+bT^\alpha, \alpha=1.6 \pm 0.2$	$a+bT^\beta, \beta=0.99 \pm 0.02$	$a+b \ln T$
	臨界指数	1.6 ± 0.2	0.99 ± 0.02	0
	磁場中(9T)	T^2	T^2	
反強磁性 d=2	臨界指数		1	0
	関数		T	$-\ln T$
反強磁性 d=3, Z=3	臨界指数	1/3	1	0
	関数	$-T^{1/3}$	T	$-\ln T$

表1 量子臨界点近傍における Fermi 液体と CePdAl 振る舞いと SCR 理論予測

一方、CePdAl の置換系である CePd_{0.9}Ni_{0.1}Al の磁化測定を高压化で行い、圧力効果と置換効果の比較を行った。その結果 Ni10%の置換効果は約 0.8GPa と見積もられた。圧力効果や臨界指数、帯磁率と磁化過程の振る舞いは良く似ており、置換効果による結晶の汚れは観測されなかった。同時に CePdAl において置換系で量子臨界点での臨界指数を求めることは妥当であると結論した。また、静水圧 1.2GPa+置換効果 0.8GPa で予想される 2.0GPa の圧力でも依然として、非 Fermi 液体の振る舞いが 0.6K まで観測されている。

以上のように本研究ではフラストレーションを持つ近藤反強磁性体 CePdAl の高压下における量子臨界現象を帯磁率、比熱、電気抵抗率測定において観測し、臨界指数を決定した。