

論文内容の要旨

軌道縮退したf電子系における磁気秩序

(Magnetic orders in f-electron systems with orbital degeneracy)

広橋 究一

UGe₂ は常圧下において、キュリー温度 $T_C = 52\text{K}$, 飽和磁気モーメント $1.4\mu_B/\text{U}$ で特徴付けられる a 軸方向に非常に大きな異方性を持つ遍歴強磁性体である。数年前に高圧下において強磁性と共存する超伝導が発見され、この物質は一層注目されるようになった。強磁性転移温度は加圧により減少し、 $P_c \approx 1.60\text{GPa}$ あたりで強磁性相は消滅する。この強磁性相内部において異常な振る舞いの存在が報告されている。この異常は常圧下では 30K あたりに存在し、加圧によりこの特徴的な温度は減少し、 $P^* \approx 1.25\text{GPa}$ あたりで消滅する。この強磁性相内部の異常な振る舞いが特に顕著なのは強磁性モーメントとフェルミ面の変化である。強磁性モーメントに関しては低温低圧側の相が高温高圧側の相よりも 20% 程度大きな強磁性モーメントを持っている。またフェルミ面に関しては低温低圧相において存在している b 軸に沿ったシリンダー状のフェルミ面が高温高圧相で大きく変化することがドハース・ファンアルフェン効果の実験で報告されている。常磁性相から強磁性相への相転移の次数に関しては、高圧側で一次相転移、低圧側で二次相転移になっている。一方、強磁性相内部の異常については一次相転移なのか二次相転移もしくはクロスオーバーなのかは研究者により意見が異なっており、さらなる考察が必要な部分である。本論文では A.Huxley らの説に従い、高圧側は一次相転移とし低圧側ではクロスオーバーとして記述した。

強磁性と共存する超伝導はこの一次相転移が消滅する $P^* \approx 1.25\text{GPa}$ あたりを中心としておよそ 1.00GPa から 1.60GPa の領域で現れ、超伝導転移温度は P^* あたりで最高になる。超伝導の臨界磁場の実験を行った A.Huxley 達はこの強磁性相内部の一次相転移が超伝導の発現に重要な役割を果たしているのではないかと結論付けている。UGe₂ の超伝導の興味深い点は単に強磁性と共存しているということだけではない。超伝導相は強磁性相内部にのみ存在していることも大きな特徴である。また、高圧下では一次相転移によって常磁性から強磁性に転移すると言われており強磁性量子ゆらぎが大きくなっているとは考え難い。これらのことは強磁性内部に存在する一次相転移が超伝導発現に重要なのではないかという A.Huxley 達の推測を支持している。このように UGe₂ の強磁性内部に存在する

一次相転移は超伝導の新しい起源と成り得る可能性を示唆している。

本研究では UGe_2 の結晶構造、スピン軌道相互作用および $5f$ 軌道縮退が考慮してあるハバード型モデルの構築から始めた。まず、 $5f$ 電子には強いスピン軌道相互作用が働いていると考えられ、 $j = 5/2$ の部分空間における有効ハミルトニアンで十分であると仮定した。そして、ある格子点に存在する $5f$ 電子が近接した格子点に直接飛び移ることを仮定した直接 f - f ホッピング項を想定し、その中でも特に大きな値を持つと思われる σ -bond のみを取り出し、定式化した。結晶場に関しては、 UGe_2 の強磁性の大きな特徴である a 軸方向の強い磁気異方性のみを現象論的に取り入れた最もシンプルな結晶場を導入した。その対称性としては a 軸を中心とする連続的な回転対称性を持つものを考えた。言い換えると、 b 軸と c 軸の差異を完全に無視し、それらと a 軸との差異のみを取り出したものになっている。クーロン相互作用に関しては、特に大きな値を持っていると思われるオン・サイトに関する軌道内クーロン相互作用と軌道間クーロン相互作用、交換相互作用の 3 項を考慮した。 UGe_2 が示す強磁性 強磁性間の一次相転移という特異な磁性は理論的に取り扱われたことがなく興味深いものであるだけでなく、上で述べたようにこの一次相転移の機構を明らかにすることは超伝導の新しい起源の発見につながる可能性があり、調べる価値のある現象である。また、このモデルはスピン軌道相互作用や $5f$ 軌道縮退を含む遍歴 f 電子系の基本的なものでもある。スピン軌道相互作用は $5f$ 軌道縮退を介して磁気モーメントと結晶格子を強く結びつける性質があるので、シングルバンドモデルでは説明できない磁気相転移が出現する可能性もある。それらの意味でこのモデルが基底状態で示す磁気秩序を調べることは理論的にも興味深いと考えられる。具体的には平均場近似の範囲内で構築した有効ハミルトニアンが示す基底状態を調べた。

前半の研究では、常磁性状態を持つ格子並進対称性を仮定し、さらに系全体として a 軸モーメントを持つような、実験結果と矛盾しない範囲である程度一般的な磁気秩序を仮定することによって自己無撞着に解くべき平均場の数を減らし、反復法によって解を収束させた。結果的に、 c 軸 SDW や a 軸 SDW/CDW などを含む多様な磁気秩序が出現することが明らかになった。これらの磁気秩序相を特徴付けるために、この研究では各相の対称性や磁気構造を調べた。D.R.Penn によって研究された s 波シングルバンド・ハバードモデルによる研究と同様に、ハーフ・フィリング近傍では常磁性相と強磁性相の間には反強磁性的な磁気秩序が現れるが、ホール・ドーピングによってそれは消滅し、常磁性相と隣り合う強磁性相が現れた。シングルバンド・ハバードモデルと異なる点は一次相転移によって隣り合う 2 種類の一様強磁性が現れることであり、それが $5f$ 軌道縮退を考慮した遍歴強磁性特有の性質であることを説明した。

この研究で出現した 2 つの強磁性は同じ対称性によって特徴付けられ、必ず一次相転移もしくはクロスオーバーによって隣り合うことを明らかにした。また、この研究で見出した強磁性 強磁性間の一次相転移の特徴は実験とよく一致している。つまり、低圧相に対応する強磁性相では高圧相に対応する強磁性相よりも大きな磁気モーメントを持ち、

低圧相に対応する強磁性相において存在する2次元的なフェルミ面がこの一次相転移点において3次元的なフェルミ面に大きく変化する。そして、このフェルミ面の大きな変化は5f軌道縮退を含むモデルを取り扱い、空間的な異方性が大きく異なる $j_z = \pm 1/2$ および $j_z = \pm 3/2$ の状態を考慮しているために起きる現象であり、特に低圧低温相において出現する2次元的なシリンダー状のフェルミ面は $j_z = \pm 1/2$ の状態にいるf電子により構成されるものとして説明できることを明らかにした。こうした事実から、本研究で構築した有効ハミルトニアンは UGe_2 の強磁性相内部の一次相転移の特徴のある断面を捉えたものになっていると考えられ、実験における強磁性 強磁性間の相転移の出現に対して、軌道縮退をあらわに取り入れたモデルを考えることの必要性和有効性を示している。ただし、この研究には問題がある。乱雑位相近似によって求めた応答関数を使い、インコメンシュレイトなSDWなども含めたすべての磁気秩序に関係する不安定性を調べると、ここで求めた2種類のa軸強磁性は真の基底状態ではなく、準安定状態であることが分かった。

後半の研究では、フリーエネルギーの計算や超伝導に関する定量的研究に発展させるために、実験で観測されているような一様a軸強磁性が一般的な波数ベクトルで特徴付けられるすべての秩序状態の中で基底状態となるような有効ハミルトニアンの改良を検討した。特に前半部分では、常磁性帯磁率の振る舞いや原子極限での磁気モーメントの形成を調べることにより、a軸方向が容易軸となるような結晶場パラメーターを考察した。その結果、低密度領域においてインコメンシュレイトなSDWも含むすべての秩序状態の中で基底状態となっているa軸強磁性を出現させることができるパラメーター領域を見出した。さらに、このa軸強磁性相内には強磁性モーメントの増加を伴う振る舞いが存在することを示し、それが単一バンドが作る強磁性から複数バンドが作る強磁性へのクロスオーバーの一部であることが明らかになった。言い換えれば、結晶場分裂とクーロン相互作用の競合で起こる軌道縮退を含む遍歴強磁性相特有の現象であると言える。

ただし、超伝導の定量的研究へ発展させることに対してはまだ問題が残されている。つまり、実験で観測されているa軸強磁性はこのような低密度領域において出現する強磁性とは性格が異なるのである。つまり、第一原理計算においてウランサイトあたりのf電子数は $n_f = 2.63$ や $n_f = 2.81$ と報告されており、低密度とは言えず、常磁性状態において大きなフェルミ面の存在が指摘されている。筆者はフェルミ面に対して、より直接的な影響を及ぼすホッピング項に含まれる5つのパラメーターの設定の改良を試みたが、今のところ、低密度領域を除いて強磁性がSDWに対して安定に存在する領域は見つかっていない。実際の UGe_2 では、ゲルマニウムの4p軌道とウランの5f軌道の共有結合による混成のため、ウランの5f電子は一度ゲルマニウムを介して他のウランに飛び移ることを想定した間接f-fホッピング項による効果も存在するであろう。実際の物質中では直接f-fホッピング項よりも間接f-fホッピング項が重要な役割を果たしているように思える。このようにゲルマニウムの4p軌道を介したホッピング項の存在が強磁性の出現に対して必須な可能性もあり、今後に残された課題である。