

# 論文の内容の要旨

## 重い電子系におけるメタ磁性の熱力学的手法による研究

### (Thermodynamic Study on the Metamagnetism in Heavy Fermions)

氏名 望月 健生

CeやUなどの希土類、アクチノイド化合物中において磁性を担う  $f$  電子は、原子核に局在する傾向が強く、主に伝導電子を介した相互作用によって物性が支配されている。その基底状態は、局在磁気モーメントの秩序をもたらす RKKY 相互作用と、局在磁気モーメントを遮蔽する近藤効果が競合することにより、様々な状態をとりうる。後者の近藤効果が強い物質では、伝導電子と混成することにより  $f$  電子がわずかに遍歴性を獲得し、しばしば通常の金属における電子質量の 100-1000 倍にもなる“重い電子”が見い出される。また、特に  $f$  電子の遍歴性が高いと考えられている物質では、磁化率の温度依存性に極大が観測され、低温で磁化率が抑制される。これらの物質には多くの場合、磁場中で磁気秩序のない状態から非線形な磁化の増大（メタ磁性）が観測され、磁化率が回復する振る舞いが見られる。したがって磁化率の極大現象によるメタ磁性は重い電子状態の形成に密接にかかわっている可能性があり、非常に重要なテーマである。そのため、これまで多くの手法によるメタ磁性の研究が行われてきたが、その起源については明らかになっていないことが多い。このような重い電子系におけるメタ磁性の理解をさらに深めるためには、以下の2つのアプローチが必要である。

- 既知のメタ磁性体に対するさらなる研究
- 新規メタ磁性体の探索

本論文では、1つ目のアプローチとして磁場中で3段のメタ磁性転移を示す CePdAl を、2つ目のアプローチとして、重い電子系メタ磁性体に共通する磁化率の極大を示す UNi<sub>2</sub>Al<sub>3</sub> を研究対象として熱力学的手法（磁化、比熱）による研究を行った。

CePdAl は磁性を担う Ce イオンが、歪んだカゴメ格子をなす。その幾何学的フラストレーションにより、常磁性キュリー温度  $\theta_p$  がおよそ -34 K にもかかわらず、 $T_N = 2.7$  K まで反強磁性秩序を示さない。また、反強磁性相においても、無秩序な 1/3 の Ce サイトが存在する。NMR の実験から、このサイトの磁気モーメントは近藤効果によって遮蔽され、部分的な重い電子状態を実現しているという興味深い提案がされている。また電気抵抗率と ac 磁化率の測定からは、いくつかのメタ磁性転移を伴って現れる磁場誘起相が存在することが明らかにされている。このような部分的な重い電子状態を示す物質の発見例は少なく、その

磁場効果など明らかになっていないことが多い。本研究では、CePdAlの磁場誘起相における基底状態や磁気異方性、および複雑な相図と部分的な重い電子状態の関係を明らかにするため、単結晶試料に対してパルス磁場を用いた磁化測定と磁場中比熱測定を行った。容易軸 ( $c$  軸) 方向の磁化は 40 T 以上の磁場領域で  $\sim 1.6 \mu_B/\text{Ce}$  に飽和し、一段目のメタ磁性転移磁場  $B_{m1}$  付近での磁化値は、飽和磁化のおよそ  $1/3$  であることが明らかになった。さらに、磁化の角度依存性の測定から磁場誘起相は Ising 型の磁気異方性を有することが分かった。また、メタ磁性転移付近の磁場中で詳細に比熱測定を行い、より直接的な手法による温度磁場相図を決定した。低磁場の部分的な反強磁性相内にはクロスオーバーが存在し、その温度付近で  $\sim 0.3 R \ln 2$  のエントロピーが解放されることが明らかになった。これは、反強磁性相内で無秩序な  $1/3$  の Ce サイトにおけるエントロピー  $1/3 R \ln 2$  を重い電子状態を形成することで解放していると解釈でき、NMR 実験からの提案を支持する。この部分的な重い電子状態は磁場により壊れ、飽和磁化の  $1/3$  の磁化を  $B_{m1}$  で生じさせる。またエントロピーは、磁場誘起相の直上の温度領域において大きな値を持つことが明らかになった。この大きなエントロピーは、磁場により反強磁性秩序、および部分的な重い電子状態の形成の両方を抑制したことにより生じていると解釈できる。磁場中における大きなエントロピーを解放するために低温領域にさらなる重い電子状態を有する特異な磁場誘起相が発現することが明らかになった。本研究により CePdAl は、ほとんど理想的な Ising 系であることや、磁場中の定量的なエントロピーが明らかになったので、理論計算などにより高磁場相のさらなる理解が深まると期待できる。

一方、 $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  はメタ磁性体に特徴的な磁化率の極大を示す。しかしながら、その極大温度は 100 K 付近と高温であるため、メタ磁性を誘起するには非常に強磁場が必要であると予想される。そのため同時期に発見され、直ちにメタ磁性の存在が明らかになった  $\text{UPd}_2\text{Al}_3$  に対して、発見から 20 年以上経っているにもかかわらず、メタ磁性の存在は明らかにされていなかった。本研究では、 $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  におけるメタ磁性と磁化率の極大現象の関係を明らかにするため、国内における非破壊パルスマグネットを用いて測定可能な最大磁場 75 T まで単結晶  $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  の容易軸  $[11\bar{2}0]$  方向に対する磁化測定を行った。磁化は、 $B = 70$  T 以上の磁場領域において磁場に対して非線形な増大を示すことが明らかになった。この結果は、 $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  のメタ磁性の存在を強く示唆する。しかしながら、75 T においてもまだメタ磁性の途中であり、メタ磁性の全景は捉えられていない。さらに 60 T までの磁化を様々な温度で測定することにより、磁化率の極大温度の磁場変化を高磁場領域まで調べた。その結果、極大をとる温度が磁場により低温に抑制され、メタ磁性が発現することが分かった。メタ磁性を示す磁場  $B_m$  と磁化率の極大温度  $T_{\chi\text{max}}$  の比は  $B_m/T_{\chi\text{max}} \sim 0.71$  は、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の値 0.78 に非常に近い。また  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  と同様に、メタ磁性はヒステリシスのないクロスオーバーであり、常磁性状態から生じるなど類似点が多い。 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  はメタ磁性によって Fermi 面が変化し、 $4f$  電子の遍歴性が変化している考えられている。 $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  のメタ磁性も同様に  $5f$  電子の遍歴性の変化による Fermi 面の変化が起きている可能性がある。したがって、 $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  の高磁場相についてさらなる研究が必要であるが、発現する磁場領域が非常に大きいため現状では難しく、転移磁場を小さくするアプローチが必要である。そこで  $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  と同じ結晶構造を持ち、低温で  $B \sim 18$  T でメタ磁性を示す  $\text{UPd}_2\text{Al}_3$  に着目し、置換物質  $\text{U}(\text{Pd}_{1-x}\text{Ni}_x)_2\text{Al}_3$  の磁化率、比熱の評価を行った。その結果、 $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  の Ni を Pd に置換することで磁化率の極大温度が低温に抑制されることが明らかになった。これにより、非常に高磁場で起こる  $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  のメタ磁性が低磁場に抑制されることが期待でき、置換物質のメタ磁性を調べることで、 $\text{UNi}_2\text{Al}_3$  の高磁場相の理解が深まると期待できる。