

論文内容の要旨

〔 題 名 〕

Various 4f-Electronic States in Ce₃Sn₇ and CeIrSi₃(Ce₃Sn₇とCeIrSi₃における多様な4f電子状態)

学位申請者 奥田悠介 印

Ce化合物の4f電子は、磁気秩序を始めとして四極子秩序、重い電子系、メタ磁性転移、非フェルミ液体的な振る舞いや異方的超伝導などのさまざまな物理的現象を示す。これらの現象には、RKKY相互作用と近藤効果との競合に強く関係している。RKKY相互作用は特性温度 T_{RKKY} で特徴付けられ、局在している4f電子の磁気モーメントに対して伝導電子を媒介とした長距離的な磁気秩序を引き起こす。他方で、近藤効果は特性温度 T_K で特徴付けられ、伝導電子のスピン偏極によって局在している4f電子の磁気モーメントを消失させる。多くのCe化合物では、RKKY相互作用が近藤効果に打ち勝つために反強磁性秩序を示す。他方で、近藤物質と呼ばれているCeSn₃やCeNiでは磁気秩序はまったく示さず、相対的に大きい電子比熱係数 γ を持つ。例えばCeSn₃では、 $\gamma = 53 \text{ mJ/K}^2 \cdot \text{mol}$ 。CeCu₆やCeRu₂Si₂などの非磁性の化合物では、かなり大きい電子比熱係数の値を示す。これらの化合物の特徴的な性質は重い電子系と呼ばれており、電子比熱係数 γ は $\gamma \approx 10^4/T_K$ (mJ/K²·mol)と表わされる。実際にCeCu₆では、電子比熱係数 γ は $\gamma = 1600 \text{ mJ/K}^2 \cdot \text{mol}$ で近藤温度 T_K は5 Kである。

最近、磁気秩序を持つCe化合物の新しい側面が発見されてきた。反強磁性体のCe化合物に圧力 P を加えるとネール温度 T_N は減少していき、やがて $P = P_c$ の所でネール温度は消失し量子臨界点(QCP)と呼ばれる状態に到達する。この状態では超伝導状態や非フェルミ液体的な振る舞いが見られる。反強磁性状態から加圧下での非磁性の状態へのクロスオーバーはCe化合物が持つ面白い物理的性質である。Ce化合物の4f電子は高温側の領域では局在している。温度が下がるにつれてRKKY相互作用と近藤効果との競合により4f電子の状態は変化する。この変化は結晶構造、簡単に言えば隣接している2つのCe原子間の距離に依存している。圧力は2つのCe原子間の距離と関係しており、4f電子と伝導電子の混成が増強される。

この博士論文では次の2つのCe化合物について研究した結果を報告する。1つは反強磁性体のCe₃Sn₇で、もう1つは反強磁性体のCeTX₃ (T: 遷移金属, X: Si, Ge)を取り上げ、特にCeIrSi₃を中心としている。純度の高い単結晶試料はテトラアーク炉を用いた回転法により育成を行った。

Ce₃Sn₇は斜方晶の結晶構造をしており、2(a)サイトの2つのCe原子は磁気モーメントを持ち局在しているが、4(i)サイトの1つのCe原子は遍歴している。Ce₃Sn₇では2つの異なる4f電子状態が見られる。磁化率や強磁場磁化のような磁気的な性質には主に局在している4f電子が関与している。他方で、遍歴している4f電子はフェルミ面の体積に寄与していることが本実験から明らかになった。

CeTX₃は反転対称性を持たない正方晶の結晶構造をしている。LaCoGe₃やLaIrSi₃では、反転対称性を持たない結晶構造に基づいたスピン・軌道相互作用によるフェルミ面の分裂が観られる。これは本研究のdHvA効果測定の実験やエネルギーバンド計算の結果から明らかにされた。同様なフェルミ面の分裂はCeIrSi₃にも存在していると思われる。CeIrSi₃の反強磁性状態は圧力をパラメーターとして変化させることができる。2.5 GPaでの臨界圧周辺の領域ではネール温度はゼロになり、電気抵抗率の温度依存性は非フェルミ液体で見られる温度 T の1次で変化するような振る舞いを示し、これが18 Kから超伝導が発現する1.6 Kまでの幅広い温度領域で観られる。0 Kでの上部臨界磁場 $H_{c2}(0)$ の値はかなり大きく、また大きな異方性が存在している。2.65 GPaにおいて $H \parallel [110]$ では $H_{c2}(0) = 95 \text{ kOe}$ で、 $H \parallel [001]$ では $H_{c2}(0) \approx 300 \text{ kOe}$ である。これらの実験結果は新たな超伝導の可能性を示している。以上のCe₃Sn₇やCeIrSi₃で、さまざまな4f電子の状態を実験的に知ることができた。