

氏名	才賀 裕太
博士の専攻分野の名称	博士 (理学)
学位記号番号	博理工甲第 662 号
学位授与年月日	平成 20 年 3 月 24 日
学位授与の条件	学位規則第 4 条第 1 項該当
学位論文題目	重い電子系物質 $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ (T=Co,Rh,Ir) における圧力誘起磁気秩序の研究
論文審査委員	委員長 准教授 小坂 昌史 委員 教授 片野 進 委員 教授 佐宗 哲郎 委員 准教授 谷口 弘三 委員 准教授 上床 美也 (東京大学物性研究所)

論文の内容の要旨

重い電子や価数揺動といった系は比較的フェルミ面近傍に位置する局所的な f 電子と遍歴的な伝導電子の混成効果によって作り出されている。代表的な物質群として f 電子を 1 つ持つ Ce 化合物において多くの研究が成され、興味深い物性が見出されてきた。特に Ce 化合物における磁気秩序相の消失点 (量子臨界点) の近傍では超伝導や非フェルミ液体的な振る舞いが観測され、現在でも精力的に研究が成されている。Ce と f 電子・ホール対称性を持つ Yb 化合物においても非磁性相から磁気秩序相への状態変化する量子臨界点近傍の低温領域では Ce と同様な魅力的な物性を示すことが期待されている。しかし、これまで報告されている Yb 化合物において圧力などの外部パラメーターによって非磁性相から磁気秩序相を誘起させるために必要な臨界圧力は非常に大きく、電気抵抗や一部の光学測定でしか、その電子状態を観測できなかった。そのため Yb 化合物における圧力誘起磁気秩序相やそれに伴った量子臨界点近傍の物性の詳細は未だによく理解されていない。

Yb が 3_+ の価数状態を取る立方晶 $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ (T=Fe, Co, Ru, Rh, Os, Ir) はそれらすべて物質において $\gamma > 400 \text{ mJ/molK}^2$ 以上の大きな電子比熱係数が観測され、50mK 程度の極低温領域まで磁気秩序などの相転移を示さない。大きな電子比熱係数を持つことは f 電子と伝導電子の相関が強く、量子臨界点近傍に存在することを示唆する。その $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ の中でも特に $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ はこれまでに類を見ないほどの高い電子比熱係数と低い近藤温度を持つことから、最も量子臨界点近傍に位置していると考えられる。このような観点から同族の遷移金属を持つ $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ 、 $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ 、 $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ の 3 つ化合物を圧力誘起磁気秩序相の研究対象物質として選定した。これら 3 つの同族遷移金属を持つ Yb 化合物に対して極低温、高圧、高磁場下における電気抵抗、比熱、帯磁率の振る舞いを測定し、圧力誘起相やその量子臨界点近傍における超伝導相の探索を行うと共にこの系における重い電子の振る舞いを系統的に明らかにすることを目的とする。

研究対象物質の単結晶試料を得るために Zn フラックスを用いていくつかの異なる条件下において結晶育成法を試みた。そうして得られた単結晶試料を粉末 X 線回折と EDX を用いて結晶構造解析と組成比分析によって評価した。また常圧下での電気抵抗や比熱、帯磁率を測定し、過去に報告されている物性との比較を行うことによって育成された単結晶が目的の物質であることを確認した。

まず初めに最も重い電子を形成する $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ について圧力下測定を行った。圧力下電気抵抗、比熱測定からこれまでに前例がないほど低い 1GPa という臨界圧力以上の極低温において相転移を示唆する結果が得られた。観測された電気抵抗と比熱の異常は圧力と共に上昇することから、Yb の磁気秩序転移である可能性が高いと考えられる。常圧で観測されているフェルミ液体的な振る舞いは臨界圧力近傍では観測されない。これは臨界圧力付近の圧力下において f 電子と伝導電子の相関がより増加し、磁気揺らぎの効果が顕著になっているためと考えられる。同様の振る舞いがいくつかの重い電子系を形成する Ce 化合物でも観測されており、1GPa 付近に量子臨界点が存在することを示唆する。しかし、量子臨界点近傍に現れる超伝導転移は観測できなかった。 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の圧力下における電気抵抗・比熱測定から非磁性の重い電子状態から、磁気秩序相へと移り変わる振る舞いを圧力—温度相図にまとめた。1.8K までの圧力下帯磁率測定からも 1GPa 付近で圧力効果にはっきりとした違いが現れた。1GPa 以下の圧力領域では帯磁率に対する圧力効果は低温の磁化を上昇させる一方で、1GPa を超えるとその磁化の値は圧力とともに減少する。量子臨界点を境に圧力効果が一変する振る舞いは何らかの電子構造の変化を反映していると推測される。

また $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の圧力下の振る舞いと比較するためにより大きな格子定数を持つ $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ と $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ の圧力下における電気抵抗測定を行った。 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ を含めた $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ と $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ はそれぞれの近藤温度に対応する温度で電気抵抗に極大を示す。その特性温度を T_{max} とすると、その T_{max} は 3 ~ 4GPa までの圧力印加で減少を示す。減少する T_{max} の振る舞いは $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ における T_{max} の圧力依存性と同様であるが、5GPa 以上の圧力領域になると圧力と共に上昇に転じる。 YbCu_2Si_2 や YbNi_2Ge_2 といった圧力誘起の磁気秩序相を示す他の Yb 化合物でも、同様の T_{max} の上昇が圧力誘起磁気秩序相の出現する臨界圧力以上の領域で観測されている。今回測定した最低温度 2K までの圧力下電気抵抗測定では直接、磁気秩序転移の異常は観測できなかったが、 $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ と $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ でも T_{max} の上昇する 3 ~ 4GPa 以下の圧力領域に磁気秩序相があるのではないかと推測される。

論文の審査結果の要旨

本論文は重い電子系物質である希土類イットルビウム金属間化合物 $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ ($\text{T}=\text{Co}, \text{Rh}, \text{Ir}$) において、基礎物性測定と圧力効果測定を詳細に行ったものである。なかでも $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ は、これまでに報告されている物質の中でも群を抜いた重い電子状態が実現していることを示し、圧力誘起の磁気秩序相の可能性を示したものである。

重い電子や価数揺動を示す系において、観測される興味深い物性は比較的フェルミ面近傍に位置する局在的な f 電子と、遍歴的な伝導電子の混成効果によって作り出されている。強相関電子系の分野ではこれまで、f 軌道に電子を 1 つ持つ Ce (セリウム) 化合物において多くの研究が成され、磁気秩序相の量子臨界点である磁気秩序消失点近傍では、超伝導現象や非フェルミ液体的な振る舞いを示す物質が数多く報告されてきた。Ce と電子・ホール対称性を持つ Yb 化合物においても、非磁性相から磁性秩序相への状態変化が期待される量子臨界点近傍の低温領域では、Ce 化合物と同様な興味深い物性を示すことが期待されている。しかしながら、これまで報告されている Yb 化合物においては、圧力などの外部パラメーターにより非磁性相から磁気秩序相を誘起するために要する臨界圧力は非常に大きく、電気抵抗や一部の光学測定でしか、その電子状態を観測できていないのが現状である。そのために Yb 化合物における圧力誘起磁気秩序相や、量子臨界点近傍の物性の詳細はまだよく理解されていない。

Yb が 3_+ の価数状態にある立方晶 $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ ($\text{T}=\text{Fe}, \text{Co}, \text{Ru}, \text{Rh}, \text{Os}, \text{Ir}$) は、これらすべての化合物が 400mJ/molK^2 以上の電子比熱係数を持ち、重い電子状態が形成されていることを示している。また、全ての物質で極低温領域まで、磁気秩序などの相転移を示さないことが共通した特徴である。大きな電子比熱係数を持つことは f 電子と伝導電子の相関が強く、量子臨界点近傍に位置することを示唆している。これらの $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ の中でも $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ は特に高い電子比熱係数と最も低い近藤温度を持つことから、最も量子臨界点に近い物質と考えられる。このような観点から同族の遷移金属を持つ $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ 、 $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ 、 $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ の 3 つを圧力誘起磁気秩序相の研究対象物質として選定し、極低温、高圧、強磁場下における電気抵抗、比熱、帯磁率の振る舞いを測定した。

研究対象物質の単結晶試料は Zn フラックスを用いて、いくつかの異なる条件下で結晶育成を行った。得られた単結晶試料は粉末 X 線回折と電子線プローブマイクロアナライザを用いて結晶構造解析と組成分析を行い、注意深く評価している。

初めに、最も重い電子状態を形成する $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ に関して圧力下電気抵抗、比熱測定を行った。その結果、臨界圧力としてこれまで例がないほど低い 1GPa において、極低温で相転移を示唆する結果が得られた。観測された電気抵抗の異常は圧力と共に上昇することから、Yb の磁気モーメントの秩序化である可能性が高いと考えられる。また、常圧で電気抵抗測定より観測されている、フェルミ液体的な振る舞いは臨界圧力近傍では観測されなかった。これは臨界圧力に近づいていくにしたがい、f 電子と伝導電子の相関がより増加し、磁気揺らぎの効果が顕著になっているためと予想される。0.07K という極低温までの困難な圧力下実験を成功させ、0.2K 近傍において新しい圧力誘起の磁気秩序と考えられる、相転移を発見した成果は高く評価された。論文では、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ の非磁性の重い電子状態から磁気秩序状態へと移り変わる振る舞いを圧力—温度相図にまとめている。

圧力下磁化測定では 1.8K 以上の 1GPa までの帯磁率を測定した。圧力効果は低温における磁化を上昇させる一方で、1GPa を超えるとその磁化の値は圧力とともに減少することが明らかになった。よって、電気抵抗、磁化測定の結果から示唆される臨界圧力を境に圧力効果が一変する振る舞いは f 電子の磁気的な変化を反映していると推測される。

さらに、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ より結晶格子が大きな $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ と $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ に対する圧力下の電気抵抗測定を行った。 $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ と $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ はそれぞれの近藤温度に対応した近藤散乱によって電気抵抗に極大を示す。その温度を T_{max} とすると、その T_{max} は 3-4GPa まで減少を示す。圧力によって減少する T_{max} の振る舞いは、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ における T_{max} の圧力依存性と同様であるが、5GPa 以上の圧力領域になると圧力と共に上昇することが明らかになった。圧力誘起磁気秩序相がこれまでに観測されている YbCu_2Si_2 や YbNi_2Ge_2 においても、同様な T_{max} の上昇が臨界圧力以上の領域で観測されていることから、 $\text{YbRh}_2\text{Zn}_{20}$ と $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ に関しては十分低い温度において磁気秩序化する可能性が高いと結論づけられる。

本論文の主要部分である、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ における圧力誘起磁気秩序相を発見した成果は、査読制度のある国際学術雑誌に申請者が第一著者である論文 1 編として掲載が決定している。また、本論文に関する研究として査読制度のある国際学術雑誌に 1 編、査読精度のある会議録に 1 編、申請者が第一著者の論文が掲載されている。さらに共著者として 5 編の論文に重要な役割を果たしている。また、低温物理学国際会議、磁性国際会議で発表を行っており、日本物理学会においも複数回の口頭発表を行っている。よって、本論文は十分に学位論文に値すると判断され、学位論文審査委員会は全員一致で合格と判定した。