

# Thermal expansion and magnetostriction measurements of heavy fermion CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> at ultralow temperatures and high magnetic fields

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2017-10-05 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2297/45391">http://hdl.handle.net/2297/45391</a>

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



博士論文

重い電子系化合物  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  
超低温高磁場における熱膨張・磁歪に関する研究

金沢大学大学院自然科学研究科  
数物科学専攻

学籍番号 1323102001

氏名: 井上 大貴

主任指導教員名 阿部 聡

提出年月 2016年4月

# 目次

1	Introduction	1
1.1	重い電子系の概論	1
1.1.1	Ce イオンの $f$ 電子状態	1
1.1.2	Anderson モデルと近藤格子モデル	2
1.1.3	RKKY 相互作用と近藤効果	3
1.1.4	重い電子系の形成	5
1.2	重い電子系物質の量子臨界現象	7
1.2.1	スピン密度波型量子相転移	8
1.2.2	局在モーメント型量子相転移	12
1.3	CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の物性	17
1.3.1	CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の基本物性	17
1.3.2	高圧下における物性	24
1.3.3	化学圧力効果	24
1.3.4	超低温領域での磁氣的性質	30
1.3.5	超低温における $c$ 軸方向の熱膨張・磁歪測定	30
1.4	研究目的	32
2	Experimental procedure	33
2.1	冷却装置	33
2.1.1	<sup>3</sup> He- <sup>4</sup> He 希釈冷凍機	33
2.2	温度測定	34
2.2.1	<sup>3</sup> He 融解圧温度計	35
2.2.2	MCT の校正と温度測定	36
2.2.3	炭素抵抗温度計	38
2.3	極低温高磁場測定装置	38
2.3.1	実験空間の熱伝導と温度差	40
2.3.2	渦電流によるヒートリーク	41
2.3.3	温度計の磁場依存性	43
2.4	熱膨張・磁歪	44
2.4.1	熱膨張係数	44
2.4.2	磁歪係数	44
2.4.3	キャパシタンス式膨張計	45
2.5	Cell effect	47

2.5.1	キャパシタンスブリッジ回路 . . . . .	51
2.6	熱膨張・磁歪係数の導出方法 . . . . .	53
2.7	試料 . . . . .	55
3	<b>Results &amp; Discussion</b>	56
3.1	熱膨張測定 . . . . .	56
3.1.1	熱膨張測定における Back Ground の温度依存性 . . . . .	56
3.1.2	熱膨張の温度依存性 . . . . .	58
3.2	磁歪測定 . . . . .	63
3.2.1	磁歪測定における Back Ground の磁場依存性 . . . . .	63
3.2.2	磁歪の磁場依存性 . . . . .	66
3.3	熱膨張・磁歪の非 Fermi 液体的振舞いについての考察 . . . . .	69
3.3.1	熱膨張係数の非 Fermi 液体的振舞いについての考察 . . . . .	69
3.3.2	磁歪係数の非 Fermi 液体的振舞いについての考察 . . . . .	77
3.3.3	磁歪係数のスケーリング則 . . . . .	78
4	<b>Conclusion</b>	80
5	<b>謝辞</b>	82
6	<b>Reference</b>	83

## 目次

1	Ce 原子の動径方向の波動関数 . . . . .	1
2	典型的重い電子系物質の帯磁率、Wilson 比、Kadowaki-Woods 比 . . . . .	6
3	重い電子系物質の量子相転移の概念図 . . . . .	7
4	スピン密度波型量子相転移の磁気相図の概念図 . . . . .	8
5	主な重い電子系物質の比熱と三次元反強磁性相関に対する SCR 理論との比較 . . . . .	10
6	CeNi <sub>2</sub> Ge <sub>2</sub> の電気抵抗、熱膨張係数、比熱の温度依存性 . . . . .	11
7	局在モーメント型量子相転移の磁気相図の概念図 . . . . .	12
8	CeCu <sub>6</sub> の超低温における帯磁率と熱膨張係数の温度依存性 . . . . .	13
9	CeCu <sub>6-x</sub> Ag <sub>x</sub> の比熱と相図 . . . . .	14
10	CeCu <sub>6-x</sub> Au <sub>x</sub> の磁気相関と動的帯磁率のスケーリング . . . . .	14
11	YbRh <sub>2</sub> (Si <sub>1-x</sub> Ge <sub>x</sub> ) <sub>2</sub> の電気抵抗の温度依存性を用いた <i>T-B</i> 相図、交流帯磁率、比熱 . . . . .	15
12	YbRh <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の磁歪、Hall 係数 . . . . .	16
13	CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の結晶構造と重い電子状態における Fermi 面 . . . . .	18
14	CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> のメタ磁性的転移における磁化と磁歪 . . . . .	19
15	CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の比熱係数 . . . . .	19
16	CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の熱膨張 . . . . .	21
17	CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の非弾性中性子散乱実験 . . . . .	22
18	CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の非弾性中性子散乱実験 . . . . .	23
19	圧力下 CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の帯磁率、電気抵抗、de Haas-van Alphen 効果 . . . . .	25
20	非弾性中性子散乱実験による $x > x_c$ での Ce <sub>1-x</sub> La <sub>x</sub> Ru <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の磁気モーメントの温度依存性と磁気相図 . . . . .	26
21	Ce <sub>1-x</sub> La <sub>x</sub> Ru <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の $x \leq x_c$ における $x = 0, 0.05, 0.075$ での比熱測定の SCR 理論による解析 . . . . .	26
22	Ce(Ru <sub>1-x</sub> Rh <sub>x</sub> ) <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の格子定数と磁気相図 . . . . .	27
23	Ce(Ru <sub>1-x</sub> Rh <sub>x</sub> ) <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の比熱、帯磁率、動的帯磁率の SCR 理論による解析 . . . . .	28
24	CeRu <sub>2</sub> (Si <sub>1-x</sub> Ge <sub>x</sub> ) <sub>2</sub> の格子定数と磁気相図 . . . . .	29
25	超低温領域における CeRu <sub>2</sub> Si <sub>2</sub> の <i>c</i> 軸方向の交流帯磁率と静磁化の温度依存性 . . . . .	31
26	<sup>3</sup> He- <sup>4</sup> He 混合液の相図 . . . . .	34
27	<sup>3</sup> He の <i>T-p</i> 相図 . . . . .	35
28	MCT の内部構造 . . . . .	36

29	三端子キャパシタンスブリッジの回路図 . . . . .	37
30	実験装置の全体図 . . . . .	39
31	超伝導マグネットの磁場分布図 . . . . .	42
32	渦電流によるヒートリーク . . . . .	42
33	熱膨張・磁歪測定用サンプルセル . . . . .	45
34	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の $a$ 軸、 $c$ 軸、Stycast2850FT、Cu の線熱膨張 . . . . .	46
35	サンプルセルの伸縮に関する図 . . . . .	50
36	キャパシタンスブリッジの回路図 . . . . .	51
37	試料 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の写真 . . . . .	55
38	試料キャパシタンス、標準キャパシタンスの温度依存性 (1 K 以下) . . . . .	56
39	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の熱膨張 (1 K 以下) . . . . .	58
40	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の熱膨張 (100 mK 以下) . . . . .	59
41	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の熱膨張係数 (100 mK 以下) . . . . .	60
42	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の $a$ 軸の磁場中における熱膨張係数 . . . . .	61
43	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の $a$ 軸方向の臨界寄与 . . . . .	62
44	各温度における $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ サンプルセルの試料キャパシタンス、標準キャ パシタンスの変化率 . . . . .	63
45	磁歪係数と Back ground の関係 . . . . .	65
46	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の磁歪 $\Delta L(B)/L$ . . . . .	66
47	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の $a$ 軸方向の磁歪係数 ( $B < 9$ T) . . . . .	67
48	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の $a$ 軸方向の磁歪係数 (1 T まで) . . . . .	68
49	重い電子系化合物の典型的な $p$ - $T$ 相図 . . . . .	69
50	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の比熱の温度依存性 . . . . .	71
51	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の Grüneisen パラメータ $\Gamma_T$ の温度依存性 . . . . .	72
52	SDW 型量子相転移における QCP 近傍の $\alpha/T$ の温度依存性 . . . . .	74
53	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の $\alpha/T$ の振舞い . . . . .	75
54	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の予想される新しい $p$ - $T$ 相図 . . . . .	76
55	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の磁歪測定から求まる帯磁率の圧力微分係数 . . . . .	77
56	$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ の $a$ 軸の磁歪係数に対する $c$ 軸の静磁化のスケーリング . . . . .	79

# 1 Introduction

希土類やアクチノイドを含む金属間化合物には、電子の有効質量が自由電子の数百倍～数千倍に達するような物質群の存在が知られている。そのような物質群を総称して重い電子系と呼ぶ。重い電子系の本質は非常に局在性の強い  $f$  電子間に働くクーロン相互作用と  $f$  電子-伝導電子間の混成効果にある。2つの相互作用が低温で競合する結果、絶対零度で量子相転移と呼ばれる量子揺らぎに起因する相転移が観測される。このような系は混成の強さを温度以外の物理パラメータを変えることによって制御できるため、量子相転移に伴う磁気転移や超伝導転移に関して精力的な研究がされている。この章では重い電子系の概要と本研究の対象物質である  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  に関する研究について述べる。

## 1.1 重い電子系の概論

### 1.1.1 Ce イオンの $f$ 電子状態

希土類元素である  $^{58}\text{Ce}$  (電子状態:  $4f^1 5d^1 6s^2$ ) が自由イオンとして、原子核のつくる球対称ポテンシャルの中に  $f$  電子が存在しているような場合を考える。希土類元素の様な原子番号の大きな元素では、原子核近傍のクーロンポテンシャルが非常に大きいため、原子核近傍の電子速度は光速に近く、相対論的効果によって波動関数に収縮が生じる。Fig. 1 左図に Ce 原子のそれぞれの軌道における動径方向の波動関数を示す。希土類金属間化合物中における希土類イオンは通常 3 価であり、Ce においては  $5d$ 、 $6s$  軌道が Xe 閉殻を形成する  $5s$ 、 $5p$  軌道より十分外側にあり、 $5d$ 、 $6s$  電子が伝導電子帯を形成する。一方で、 $4f$  電子は軌道角運動量に比例した大きな遠心力ポテンシャルによって、 $5s$ 、 $5p$  閉

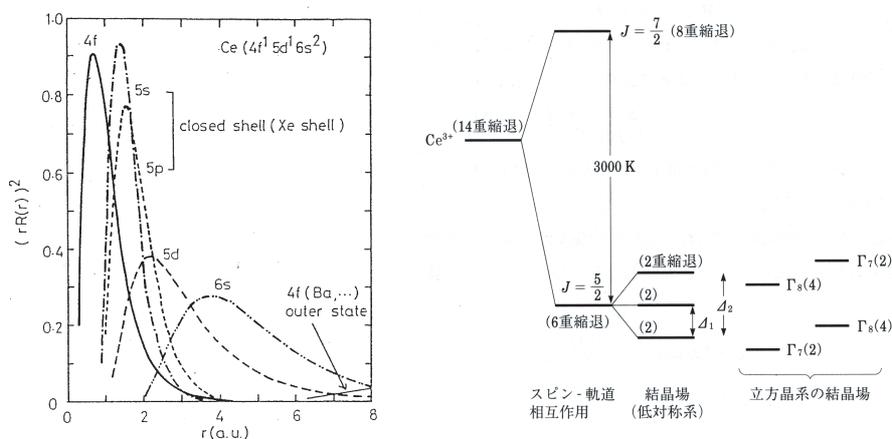


Fig.1 左図: Ce 原子の動径方向の波動関数 [1]。右図:  $\text{Ce}^{3+}$  イオン中の  $f$  電子のエネルギー準位 [2]。

殻よりも内側に鋭いピークを持つ波動関数をしており、原子核の周りに非常に良く局在している。

$\text{Ce}^{3+}$  イオンにおける  $f$  電子のエネルギー準位に関する図を Fig. 1 右図に占めす。 $f$  電子系では結晶場効果よりもスピン-軌道相互作用の方が強いのでまず Hunt 則が成り立ち、Ce の場合は  $f$  電子が一つ存在するから全軌道角運動量  $L = 3$ 、全スピン角運動量  $S = 1/2$  より、基底状態は  $(2L + 1)(2S + 1) = 14$  重に縮退している。最初に相対論的効果を起源にもつスピン-軌道相互作用によって、全角運動量  $J = L + S$  の大きさに応じて  $J = 7/2$  と  $J = 5/2$  へと分裂する。このエネルギー差は温度に換算すると 3000 K ほどに達するから、室温以下の温度領域では  $J = 5/2$  の場合のみを考えれば十分である。 $J = 5/2$  は 6 重に縮退しており、結晶場 (周りのイオンによる静電場) によってさらに分裂する。分裂の仕方は  $f$  電子の置かれた結晶場の対称性と  $f$  電子の数で決まる。 $\text{Ce}^{3+}$  のように  $f$  電子数が奇数であるイオンでは常に磁気双極子の自由度を持っているため、低対称な結晶場中でも必ず 2 重縮退が残る。これを Kramers の定理と呼び、磁場をかけない限り縮退は解けない。

### 1.1.2 Anderson モデルと近藤格子モデル

電子同士の相互作用をあらわに取り入れ、自由電子近似が出来る伝導電子中に局在的な電子をもつ不純物がある状況で、 $f$  電子間の Coulomb 斥力および伝導電子間との相互作用などを考慮したモデルに不純物 Anderson モデルがある。ここでは不純物 Anderson モデルが格子を組んで、磁性不純物が周期的に配列した拡張モデルとして周期的 Anderson モデルを考える。周期的 Anderson モデルではハミルトニアンは以下のように表される。

$$\mathcal{H} = \sum_{k,\sigma} \varepsilon_k c_{k\sigma}^\dagger c_{k\sigma} + \sum_{k,\sigma} E_f f_{k\sigma}^\dagger f_{k\sigma} + \sum_{k,\sigma} (V_{fk} f_{k\sigma}^\dagger c_{k\sigma} + V_{kf}^* c_{k\sigma}^\dagger f_{k\sigma}) + \frac{U}{N} \sum_{\substack{q \neq 0 \\ k,k'}} f_{k+q\uparrow}^\dagger f_{k'-q\downarrow}^\dagger f_{k'\downarrow} f_{k\uparrow} \quad (1.1)$$

ここで  $\varepsilon_k$ 、 $E_f$  は伝導電子 (以下  $c$  電子とする)、 $f$  電子のエネルギーであり、 $V_{fk}$  ( $= V_{kf}^*$ ) は  $c$  電子と  $f$  電子の混成における行列要素、 $U$  は  $f$  軌道内のクーロンポテンシャルである。また、 $c_{k\sigma}^\dagger$  ( $c_{k\sigma}$ ) および  $f_{k\sigma}^\dagger$  ( $f_{k\sigma}$ ) は各々、波数  $k$ 、スピン量子数  $\sigma$  を持つ  $c$  電子と  $f$  電子の生成 (消滅) 演算子である。第一項、第二項はそれぞれ  $c$  電子、 $f$  電子のハミルトニアン、第三項目は  $cf$  混成を表し、第四項目はクーロン相互作用を指している。ここで、クーロンポテンシャル  $U$  が混成を表す項  $V$  に比べて非常に大きな場合 ( $U \gg V$ ) を考える。 $f$  電子のエネルギーが Fermi エネルギー  $\varepsilon_F$  よりも十分に深いところにあつて ( $\varepsilon_F - E_f \gg \Delta$ )、同一軌道に 2 個目の  $f$  電子を入れるために必要なエネルギーが Fermi エネルギーよりも十分大きいとき ( $E_f + U - \varepsilon_F \gg \Delta$ )、 $f$  軌道の電子はほとんど 1 個に限られ局在スピンが形成される。

上記の場合は  $f$  軌道に電子が一つだけ存在し、かつ局在していると考えることが出来

る。そこで、(1.1) 式の  $cf$  混成に関わる第三項を摂動として取り扱う。1.1.1 で述べたように **Kramers** の定理から局在  $f$  電子にはスピン自由度が残っているから、 $c$  電子との混成でスピンの向きを変える過程を二次摂動まで考慮するとハミルトニアンは以下の式で表される。

$$\mathcal{H}_{\text{KL}} = \sum_{\mathbf{k}, \sigma} \varepsilon_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} + J_{cf} \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{s}_i \quad (1.2)$$

添字  $i$  は磁性原子が占める格子点を示し、 $\mathbf{S}_i$  はサイト  $i$  における  $f$  電子のスピン、 $\mathbf{s}_i$  は伝導電子のスピン密度、 $J_{cf}$  は  $c$  電子と  $f$  電子の交換相互作用である。第二項は局在  $f$  電子スピンと  $c$  電子スピンの相互作用により  $U \gg V$  の条件下で起こる低エネルギー励起に関する有効ハミルトニアンであり、これに伝導電子のエネルギーに関する項を付け足した (1.2) 式を近藤格子モデルと呼ぶ。また上記のように低エネルギー現象であるから  $\mathbf{k}$ 、 $\mathbf{k}' \simeq \mathbf{k}_F$  とおき、混成の行列要素  $V_{f\mathbf{k}} (= V_{\mathbf{k}f}^*)$  を平均値  $|V|^2$  で置き換えると  $J_{cf}$  は以下の式で与えられる。

$$J_{cf} = 2|V_{\mathbf{k}_F f}|^2 \left( \frac{1}{E_f + U - \varepsilon_F} + \frac{1}{\varepsilon_F - E_f} \right) \quad (1.3)$$

$\varepsilon_F - E_f \gg \Delta$ 、 $E_f + U - \varepsilon_F \gg \Delta$  である場合、 $J_{cf} > 0$  であり  $cf$  交換相互作用は反強磁性的であることが分かる。

### 1.1.3 RKKY 相互作用と近藤効果

(1.1.2) で示した近藤格子モデルは二つの効果を与える。一つ目は  $c$  電子による  $f$  電子のスピン遮蔽効果である。この効果は近藤効果と呼び、スピンが見かけ上消失するため磁気秩序を持たない。 $c$  電子と  $f$  電子は一重項基底状態を作り、これに対応するエネルギーが近藤温度  $T_K$  である。一重項束縛状態は周期性を持ち、 $c$  電子と  $f$  電子により混成バンドが形成されることで、重い電子状態が現れる。二つ目は隣接する二つの  $f$  電子スピン間に働く、 $c$  電子を媒介とした間接的な結合である。これは、**RKKY** 相互作用と呼び、磁気秩序を形成する働きがある。 $f$  電子のスピンを感じた  $c$  電子のスピン分極密度が  $\pi/k_F$  程度の周期で振動しており、他の  $f$  電子による分極密度と異なると、 $c$  電子を媒介にして  $f$  電子間に間接的に相互作用が働き、エネルギー利得のある方に分極密度がそろって長距離相互作用である。それぞれの効果に対して相互作用の強さを表す特性温度  $T_K$ 、 $T_{\text{RKKY}}$  が以下の関係で成立する。

$$k_B T_K = W \exp\left(-\frac{1}{J_{cf} D(\varepsilon_F)}\right) \quad (1.4)$$

$$k_B T_{\text{RKKY}} = A J_{cf}^2 D(\varepsilon_F) \quad (1.5)$$

$D(\varepsilon_F)$  は Fermi 準位の状態密度、 $A$  はバンド構造に依存する定数、 $W$  は  $c$  電子のバンド幅である。近藤効果と **RKKY** 相互作用はどちらも  $cf$  交換相互作用  $J_{cf}$  によって生じている

にも関わらず、全く異なった基底状態を導く。上二式からわかるように  $T_K$  の方が  $T_{RKKY}$  よりも  $|J_{cf}|$  に対して変化が大きいから、あるところで  $T_K$  と  $T_{RKKY}$  の大小関係が入れかわる。 $T_K < T_{RKKY}$  のときは RKKY 相互作用が強く磁気秩序状態が現れ、 $|J_{cf}|$  の大きさが  $T_K < T_{RKKY}$  を越えると近藤効果が優勢になり、無秩序状態になる。

#### 1.1.4 重い電子系の形成

近藤温度以下における物理量の温度変化は Fermi 液体論によって理解される。また Fermi 液体状態は  $T_K$  とは異なるもう一つの特性温度  $T_{\text{coh}}$  (コヒーレンスな重い準粒子の形成に対応するエネルギースケール) 以下で形成され、 $c$  電子と  $f$  電子の両方を含んだ Fermi 面 (「大きな Fermi 面」と呼ばれる) を持つ。実際に実験においても多くのランタノイド (特に Ce) 化合物において準粒子質量の大きい Fermi 液体状態が観測されている。

Fermi 液体論は自由電子モデル (Fermi 気体) の 1 粒子状態に対し、相互作用による電子のエネルギーの増加分を摂動として取り込むことで、比熱  $C$ 、電気抵抗率  $\rho$ 、帯磁率  $\chi$  に対し次の式を与える。

$$C = \frac{2(\pi k_B)^2}{3} \frac{m^*}{m_e} D(\varepsilon_F) T = \gamma T \quad (1.6a)$$

$$\rho = \rho_0 + AT^2 \quad (1.6b)$$

$$\chi = 2\mu_B^2 \frac{m^*}{m_e} \frac{D(\varepsilon_F)}{1 + F_0^a} \quad (1.6c)$$

$m_e$  は自由電子の静止質量、 $D(\varepsilon_F) \propto m_e$  は単位体積当たりの自由電子の状態密度、 $\gamma$  は電子比熱係数、また  $F_0^a$  は Landau パラメーターである。式 (1.6) 中の  $m^*$  が  $f$  電子と  $c$  電子間の電子相関を取り込んだ準粒子質量である。自由電子の電子比熱係数は  $\gamma_e \sim 1 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$  となるのに対して、Fig. 2(b)、(c) で示すように、重い電子系を形成する物質では  $\gamma = 10 \sim 1000\gamma_e$  となっている。この大きな  $\gamma$  は  $cf$  混成バンドの状態密度が増大していることを示しており、バンド幅が自由電子の状態に比べて非常に狭いことを意味する。

Wilson による数値的繰り込み群の結果から、強相関電子系では Pauli 常磁性帯磁率と  $\gamma$  の比 (Wilson 比) は以下の式に従う [3]。

$$R_W = \frac{3\pi^2 k_B^2 \chi}{\mu_B^2 \gamma} = 2 \quad (1.7)$$

また電気抵抗の  $T^2$  係数である  $A$  は  $m^{*2}$  に比例するので  $A$  と  $\gamma^2$  の比 (Kadowaki-Woods 比:  $R_{KW} \equiv A/\gamma^2$ ) は物質に依存しない定数となる [4,5]。しかし、近年の様々な重い電子系物質の発見と研究からすべての物質において必ずしも単一の比例係数で表せないことがわかっており、現在は  $f$  電子状態の縮退度  $N$  を考慮した Kadowaki-Woods 比で説明されている。

Fig. 2(b)、(c) に主な物質の Wilson 比、Kadowaki-Woods 比を示す。

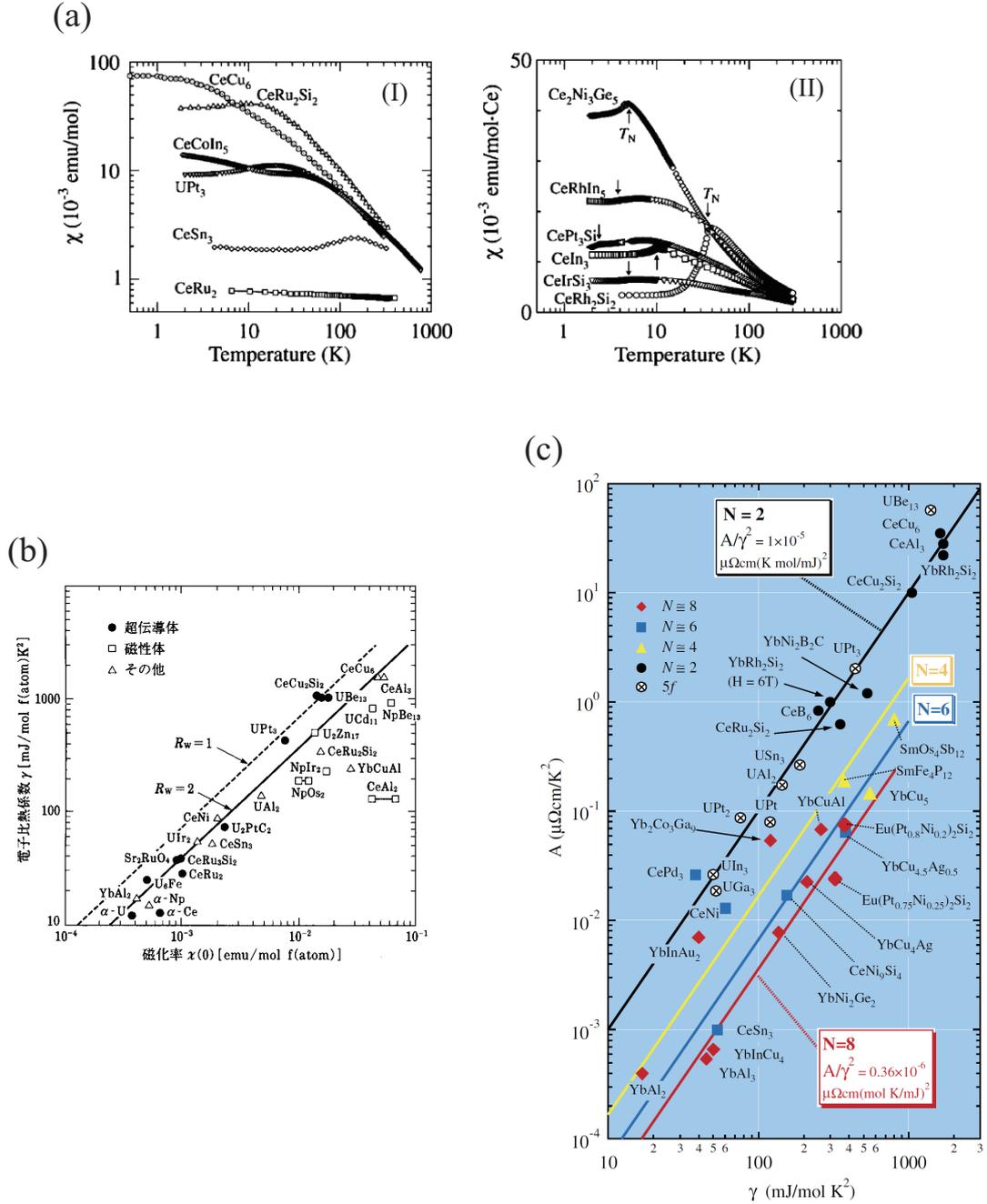


Fig.2 (a) 典型的重い電子系物質の帯磁率の温度依存性 [6]。 (I) は常磁性、 (II) は反強磁性物質の変化。 (b) 主な重い電子系物質の Wilson 比 [2]。 (c) 主な重い電子系物質と単純金属の Kadowaki-Woods 比 [7]。 図中の  $N$  は全角運動量から各物質を分類している。

## 1.2 重い電子系物質の量子臨界現象

近藤効果と RKKY 相互作用が拮抗した結果、絶対零度で物理パラメータが変化すると生じる相転移を量子相転移 (Quantum Phase Transition: QPT) と呼び、磁気秩序の二次相転移が絶対零度で消失する点は量子臨界点 (Quantum Critical Point : QCP) と呼ばれ、非 Fermi 液体的振る舞いや異方的超伝導などの興味深い現象が観測される。古典的な相転移の転移点近傍では秩序変数の熱揺らぎが臨界現象を支配しているのに対し、量子相転移は温度以外のパラメータを変化させたとき、絶対零度において起こる秩序-無秩序相転移である。従って、 $T = 0 \text{ K}$  であるから熱揺らぎはなく、臨界現象は Heisenberg の不確定性原理に起因する量子揺らぎのみが支配的である。

$f$  電子系の Kramers 二重項が持つスピン自由度の解放には (1) RKKY 相互作用による磁気相転移、(2) 近藤効果による重い Fermi 液体状態の形成の 2 通りあり、どちらの方法で自由度の解放を行うかは近藤効果と RKKY 相互作用の優劣で決定される。この優劣のバランスは元素置換、圧力および磁場などで制御可能である。この 2 つの相互作用の競合による磁気相図は Doniach によって提案されており、Fig. 3 にその模式図を示す。

丁度量子臨界点に制御された系では、Quantum Critical と呼ばれる広い温度範囲で臨界現象を示すことが知られているため、量子臨界点近傍の量子揺らぎが支配的な領域における物性の観測が期待できる。また重い電子系における量子臨界状態は、式 (1.6) の Fermi 液体状態とは異なる温度依存性を示すため、非 Fermi 液体状態と呼ばれる。

重い電子系の量子相転移の機構はスピン密度波型と局在モーメント型の 2 種類が提唱されている。

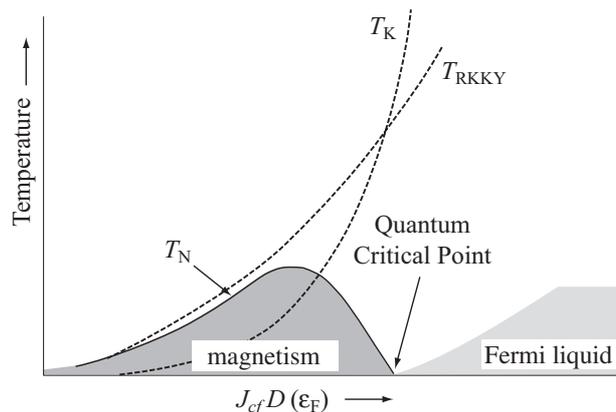


Fig.3 重い電子系物質の量子相転移の概念図 [?].

### 1.2.1 スピン密度波型量子相転移

スピン密度波 (Spin Density Wave : SDW) 型と呼ばれる量子相転移の概念図を Fig. 4 で示す。この場合の反強磁性秩序状態は、Fermi 面の状態が重要でありネスティングによって、RKKY 相互作用による反強磁性ベクトル  $\mathbf{Q}$  が結晶内でネスティングベクトルとして正弦波的に安定化される SDW(Spin Density Wave) 状態である。SDW 型における量子相転移は反強磁性秩序の秩序変数の長波長揺らぎに起因するものであり、揺らぎは Gauss 関数的なスペクトルを示す。重い電子系における SDW 型の量子臨界点近傍における非 Fermi 液体的振舞いは、守谷らの Self Consistent Renormalization (SCR) 理論を用いて理解される [8]\*<sup>1</sup>。磁性が発現、またはそれに近い状況では基底状態近傍の低エネルギー領域において磁気的な集団励起が存在し、スピンの揺らぎとして現れる。SCR 理論は、Hartree-Fock 近似した熱平衡状態に対するスピン揺らぎの補正を考える立場である。Hartree-Fock 近似の熱平衡状態における自由エネルギーを  $F_{\text{HF}}$ 、熱的に励起されたスピン揺らぎによる補正項  $\Delta F$  を加えて自由エネルギー  $F$  は以下の様に表記される。

$$F(M, T) = F_{\text{HF}}(M, T) + \Delta F(M, T) \quad (1.8)$$

$\Delta F$  はスピン揺らぎの相関関数を用いて表される。熱力学的関係式から一様帯磁率は以下のように表現される。

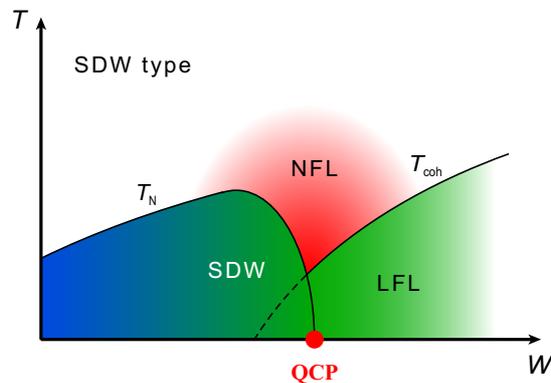


Fig.4 スピン密度波型量子相転移の磁気相図の概念図。  $W$  は  $cf$  混成の強さ、 $T_N$  は反強磁性転移温度、 $T_N$  は Fermi 液体的描像が成立するコヒーレント温度である。図中の緑色の領域 (LFL) は Fermi 液体状態を示し  $f$  電子はほとんど遍歴しているが、SDW 磁気秩序相でも QCP 近傍では  $cf$  混成が残っている。2つの領域に挟まれた赤色の領域は非 Fermi 液体的領域である。

\*<sup>1</sup> SCR 理論は QCP 近傍のみならず、広い温度範囲で物理量を定性的、定量的に評価できる理論である。

$$\frac{1}{\chi_0} = \frac{\partial^2 F_{\text{HF}}}{\partial M^2} + \frac{\partial^2 \Delta F}{\partial M^2} = \frac{1}{\chi_0^{\text{HF}}} + \Delta \frac{1}{\chi} \quad (1.9)$$

式 (1.9) から、 $\Delta F$  を考慮すると一様帯磁率に  $\Delta(1/\chi)$  の項が現れ、この揺らぎによる補正項  $\Delta(1/\chi)$  は相関関数を通してそのまま  $\Delta F$  にも影響する。従って補正項  $\Delta F$  を求める際に用いた帯磁率と、この  $\Delta F$  を用いた式 (1.9) から求められる値と一致しなければならない。このように自己矛盾のないように  $\Delta F$ 、 $\Delta(1/\chi)$  を自己無撞着に決定して帯磁率が求められる。

SCR 理論で記述される反強磁性転移における動的帯磁率  $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ 、逆帯磁率  $y$  と磁気比熱  $C_m$  の温度依存性は以下のように表される [8, 9]。

$$\frac{1}{\chi(\mathbf{Q} + \mathbf{q}, \omega)} = \frac{1}{\chi(\mathbf{Q}, 0)} + Aq^2 - \frac{i\omega}{\Gamma_L \chi_L} = 2T_A \left( y + x^2 - \frac{i\omega}{2\pi T_0} \right) \quad (1.10a)$$

$$y = \frac{1}{2T_A \chi(\mathbf{Q}, 0)}$$

$$T_A = \frac{Aq_B^2}{2}, \quad T_0 = \frac{T_A \Gamma_L \chi_L 0}{\pi}$$

$$y - y_0 = \frac{3}{2} y_1 \int_0^1 dx x^2 \left[ \ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] \quad (1.10b)$$

$$C_m = 9N_0 \int_0^{x_c} dx x^2 \left( \left[ u^2 - 2u \frac{dy}{dt} + \left( \frac{dy}{dt} \right)^2 \right] \left[ -\frac{1}{u} - \frac{1}{2u^2} + \psi'(u) \right] - t \frac{d^2 y}{dt^2} \left[ \ln u - \frac{1}{2u} - \psi(u) \right] \right) \quad (1.10c)$$

$$u = \frac{y + x^2}{t}, \quad t = \frac{T}{T_0}, \quad x = \frac{q}{q_B}$$

$T_0$ 、 $T_A$  は周波数  $\omega$ 、波数  $\mathbf{q}$  空間におけるスピン揺らぎエネルギーに相当する特性温度である。その定義から  $T_0$  は局所帯磁率  $\chi_L(\omega)$  の局所揺らぎエネルギー  $\Gamma_L$  と、 $\chi_L \equiv \chi_L(\omega = 0)$  に関係し、 $T_A$  は RKKY 相互作用の交換積分  $J_Q$  で表される交換エネルギーの分散  $J_Q - J_{Q+\mathbf{q}} = Aq^2$  に関連する。(無次元) 逆帯磁率  $y$  は、 $y = 0$  が磁気転移点を意味する。 $y_0$  は絶対零度における値 ( $y_0 \equiv y(T=0 \text{ K})$ ) を表し、量子臨界点からのずれを意味する磁気不安定性に対する近接的な尺度である。 $y_1$  は分散の強度を反映し、 $y_1 = 4J_Q/\pi^2 \Delta J_Q$  ( $\Delta J_Q = J_Q - J_{Q+q_B}$ ) である。 $\psi(u)$  はディガンマ関数である。 $q_B$  は Brillouin ゾーン境界を球体近似したときの有効半径である。SCR 理論は  $y_0$ 、 $y_1$ 、 $T_A$ 、 $T_0$  の各種パラメータは実験から決定できるため、定量的な解析ができる利点がある。

表 1 に SDW 型の非 Fermi 液体状態における種々の物理量の臨界指数を示し、Fig. 5 に主な重い電子系物質の比熱の温度依存性と SCR 理論との比較を示す。SDW 型の描像

は  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  や  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  などの多くの物性の記述に一定の成功を収めてきた。例として QCP に位置する  $\text{CeNi}_2\text{Ge}_2$  の物性と SDW 型における臨界指数との比較について述べる。

	強磁性		反強磁性		Fermi Liquid
	$d = 2$	$d = 3$	$d = 2$	$d = 3$	
$C/T$	$T^{-1/3}$	$-\log T$	$-\log T$	$-T^{1/2}$	constant
$\rho$	$T^{4/3}$	$T^{5/3}$	$T$	$T^{3/2}$	$T^2$
$\chi(\mathbf{Q})^{-1}$	$-T \log T \rightarrow \text{CW}$	$T^{4/3} \rightarrow \text{CW}$	$-\frac{\ln \ln T }{\ln T} \rightarrow \text{CW}$	$T^{3/2} \rightarrow \text{CW}$	constant
$\alpha$	$-\log T$	$T^{1/3}$	$\log \log \frac{1}{T}$	$T^{1/2}$	$T$
$\Gamma$	$-\frac{\log T}{T^{2/3}}$	$-\frac{1}{T^{2/3} \log T}$	$-\frac{\log \log \frac{1}{T}}{T \log T}$	$-\frac{1}{T}$	constant

表 1 SDW 型非 Fermi 液体状態における種々の物理量の温度依存性 [8, 10, 11]。  $d$  は系の次元、  $\alpha$  は熱膨張係数、  $\Gamma$  は Grüneisen パラメータ  $\Gamma \propto \alpha/C$  である。  $\chi(\mathbf{Q})^{-1}$  は QCP に近い低温の振舞いから高温では Curie-Weiss 則を示す。 比較のために右端の列に Fermi 液体状態での温度依存性を示す。

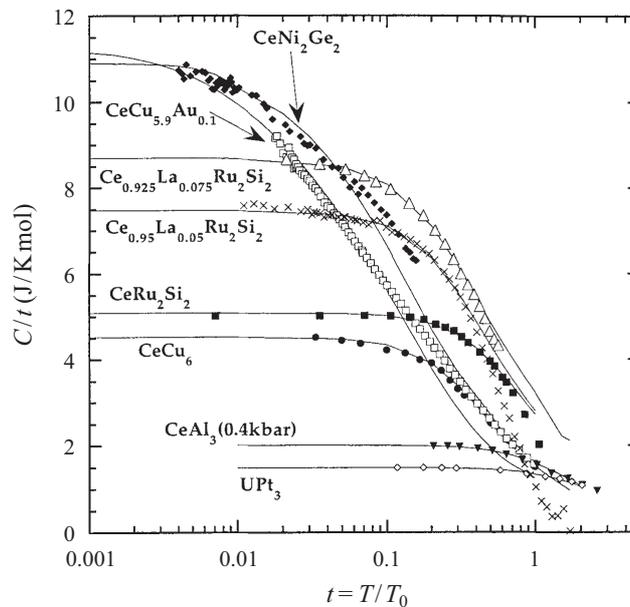


Fig.5 主な重い電子系物質の比熱と三次元反強磁性相関に関する SCR 理論との比較 [9]。横軸は  $T_0$  によって規格化された温度  $t$  の対数スケールである。

■**CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub>** CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> は、CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> などと同じ、空間群 *I4/mmm* に属する結晶構造を持ち、ほぼ QCP 上に位置するため低温で非 Fermi 液体的振舞いを示す。Ce(Ni<sub>1-x</sub>Rh<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> ( $T_N \sim 2$  K)、Ce(Pd<sub>1-x</sub>Ni<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> ( $T_N \sim 5$  K) の元素置換系において反強磁性秩序を示す [12]。Fig. 6 に主な物理量の温度依存性を示す。絶対零度での残留電気抵抗を  $\rho_0$  と定義すると、電気抵抗の温度変化  $\Delta\rho = \rho - \rho_0$  の臨界指数  $\varepsilon$  は 4 K 以下では 1.2 から 1.5 の間の値をとり、 $\rho_0$  に依存する [13]。比熱係数と熱膨張係数より算出された Grüneisen パラメータは測定値から Fermi 液体成分を差し引いた臨界成分を示している。図 (c) 中の実線は  $C_{cr}$  が  $T^{3/2}$ 、 $\Gamma_{cr}$  が  $T^{-1}$  スケールでフィッティングを行った結果であり、得られた臨界指数は表 1 の三次元反強磁性相関の場合の臨界指数と一致する。熱膨張係数は  $\sqrt{T}$  依存性を示し、これも比熱係数と同じく三次元反強磁性相関の場合の臨界指数と一致する [14]。従って CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> は、非常に良く SDW 型の描像と一致する物質である。

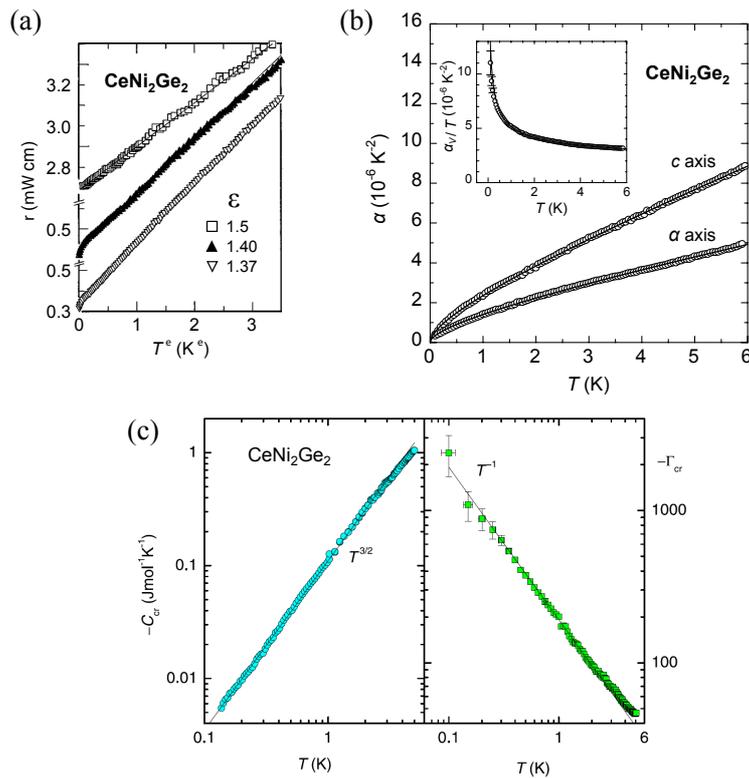


Fig.6 CeNi<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の各種物理量の測定結果 (a) 電気抵抗の温度依存性 [13]。図中  $\varepsilon$  は異なる 3 つの臨界指数を示す。(b) *c* 軸方向の線熱膨張係数の温度依存性 [14]。実線は  $\alpha = a\sqrt{T} + bT$  によるフィッティング。Inset 図は  $\alpha_V/T$  ( $\alpha_V$ : 体積熱膨張係数) の温度依存性。(c) 電子比熱係数  $C/T$  と Grüneisen パラメータの温度依存性 [15]。各データは測定データから Fermi 液体成分 (表 1 を参照) を差し引いて算出された臨界成分。実線は図中の臨界指数でフィッティングしたもの。

### 1.2.2 局在モーメント型量子相転移

局在モーメント型量子相転移は反強磁性秩序と  $T_{\text{coh}}$  が量子臨界点で同時に消失する場合に生じる。この場合、反強磁性秩序状態では局在  $f$  電子スピンの遮蔽が不完全で、コヒーレントな準粒子が崩壊しているため、局在スピンの秩序変数になっていると考えられている。局在モーメント型の場合の非 Fermi 液体状態は、「大きな Fermi 面」から  $f$  電子が殆ど寄与していない「小さな Fermi 面」への Fermi 面のトポロジカル転移が磁気転移と同時に起こっており、空間的に広がっている反強磁性秩序の秩序パラメーターに加えて局所的な揺らぎの両方が重要になる [16]。一般的には殆どの量子相転移には SDW 型の描像が有効であると考えられており、 $T_N$  と  $T_{\text{coh}}$  がほぼ同時に消失するという特殊な状況を生み出すようなシナリオは現在、2 つ存在する。1 つは二次元的臨界揺らぎに起因するという説 [16, 17]、もう一つは、主要な転移は Fermi 面のトポロジカル転移の方であり、磁気秩序への相転移は不安定なスピン液体が起こす二次的なものであるとする説 [18, 19] である。先述したように局在モーメント型に分類される物質で特に注目を集めているのが、 $\text{CeCu}_{6-x}\text{M}_x$  ( $M = \text{Au}, \text{Ag}, \text{Pd}, \text{Pt}$ ) と  $\text{YbRh}(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$  である。以下にその物性を紹介する。

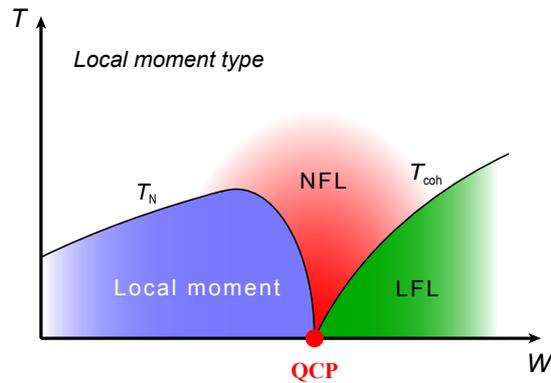


Fig.7 局在モーメント型量子相転移の磁気相図の概念図 [16]。  $W$  は  $cf$  混成の強さ、 $T_N$  は反強磁性転移温度、 $T_{\text{coh}}$  はコヒーレント温度であるである。

■  $\text{CeCu}_{6-x}\text{M}_x$  非置換系の  $\text{CeCu}_6$  は低温では単斜晶構造を持ち、Fig. 8 に示されるように  $T_N = 2 \text{ mK}$  において小さな磁気モーメント ( $10^{-2} \mu_B/\text{Ce}$  程度) による反強磁性転移を起こす [20]。  $T_N$  より高温では、  $C/T$  は温度低下に従い緩やかに上昇し、  $T = 5 \text{ mK}$  では  $1700 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$  に達する [21]。この Fermi 液体とはやや異なる振る舞いは磁気転移の前兆であると考えられる (但し電気抵抗では  $40 \text{ mK} < T < 200 \text{ mK}$  で  $T^2$  依存性が観測されている [22])。

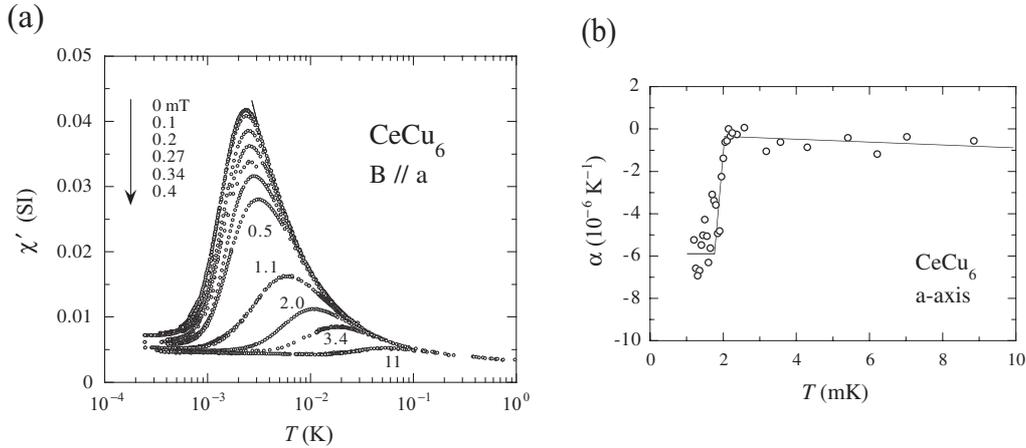


Fig.8  $\text{CeCu}_6$  の超低温における (a) 交流帯磁率および (b) 熱膨張係数の温度依存性 [20]。

$\text{CeCu}_6$  の Cu をよりイオン半径の大きい Au、Ag、Pd、Pt に置換することで、格子間隔が広がり (負の化学圧力効果と呼ばれる) *cf* 混成を弱めることができ、臨界濃度  $x_c$  (Au : = 0.1 [21]、Ag : = 0.2 [23,24]、Pd : = 0.05、Pt : = 0.1 [25]) において反強磁性相が現れる。量子臨界点に制御された系では帯磁率 [26]、比熱、電気抵抗 [27] など非 Fermi 液体的振る舞いを示す。さらに、非 Fermi 液体状態は印加磁場を大きくすることで Fermi 状態へクロスオーバーすることも示された。例として Fig. 9 に  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ag}_x$  の比熱と相図を示す。

この系の代表的物質である  $\text{CeCu}_{5.8}\text{Au}_{0.2}$  で特異なのは、Fig. 10(a) に示すように、結晶中の *ac* 面内に二次元臨界揺らぎが存在することである [29]。また、Fig. 10(b) に示すように、動的帯磁率  $\chi''$  が

$$\chi''(E, T) = T^{-\alpha} g(E/k_B T) \quad (1.11)$$

に従い、  $E/T$  ( $E$  は中性子の散乱過程におけるエネルギー変化) でスケールされ、臨界指数が SDW 型のそれとは異なる  $\alpha = 0.74$  である [26,30]。  $\chi''$  が  $E/T$  でスケールされることは二次元臨界揺らぎに対する拡張された動的平均場理論でしか導かれておらず、更にその理論における臨界指数は  $\alpha = 0.72$  であり、非常に実験値と近い [31]。特にこれら 3 つの特徴が、  $\text{CeCu}_{6-x}\text{M}_x$  が局在モーメント型量子相転移に分類されていることの由縁である。

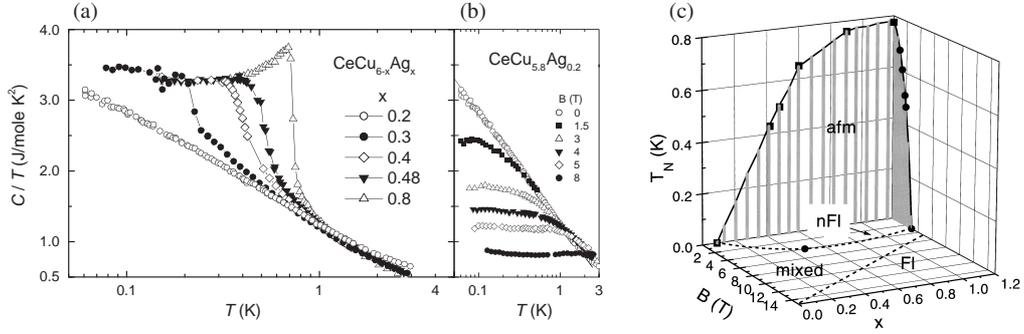


Fig.9 (a)  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ag}_x$  の電子比熱係数  $C/T$  の温度依存性 [28]。 (b)  $\text{CeCu}_{5.8}\text{Ag}_{0.2}$  の磁場中における電子比熱係数  $C/T$  の温度依存性 [28]。 (c)  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Ag}_x$  の相図 [24]。 図中の  $x$  は Ag のドーピング量である。

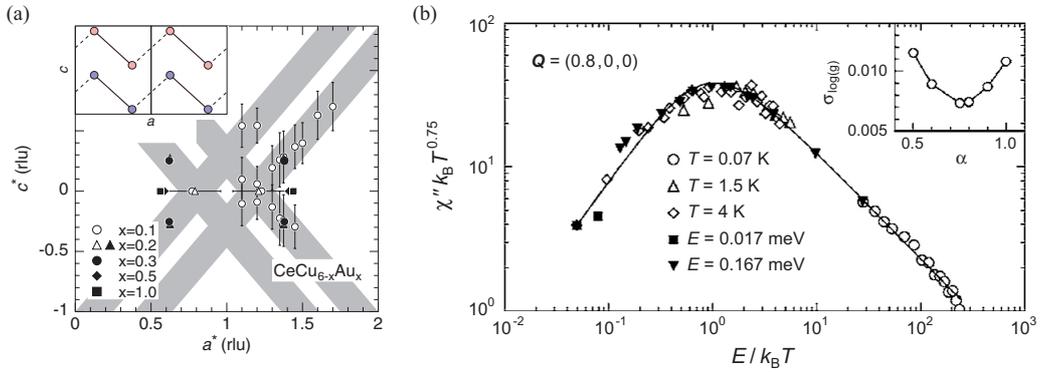


Fig.10 (a)  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  の逆格子空間  $a^*-c^*$  平面における磁気相関 (白抜き) と磁気 Bragg ピーク (塗りつぶし) [29]。  $x = 0.2$  における白三角のシンボルは短距離秩序ピークを表す。 縦横のバーはピークの線幅を表す。 差し込み図は  $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$  の結晶構造の実空間  $a-c$  平面における Ce 原子の位置を表す。 逆格子空間における磁気相関構造 (灰色で示された 4 本の棒状構造) は実空間における挿入図中の実線、破線を  $b$  軸方向 (紙面に垂直な方向) に拡張した平面に対応する。 (b)  $\text{CeCu}_{5.8}\text{Au}_{0.2}$  の  $q = (0.8, 0, 0)$  における中性子散乱のデータのスケールリング [30]。  $E$  は中性子の散乱過程におけるエネルギー変化、実線は式 (1.11) の  $\alpha = 0.74$  を用いたスケールリングによるフィッティングを表す。 差し込み図は  $\alpha$  を変化させたときのフィッティングの誤差の度合いを表している (詳細は [30] 参照)

■**YbRh(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub>** Yb を含む化合物の多くは、化合物中の Yb が (Yb)<sup>3+</sup> および (Yb)<sup>2+</sup> の状態をとり、価数揺動状態を示すものが多い。Yb が化合物中で (Yb)<sup>3+</sup> の電子状態であるとき、Ce とは対照的に 1 つの正孔を持つ。YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> は後述する CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> と同じ正方晶構造を持ち、 $T_N = 70$  mK で反強磁性に転移する。小さな磁場 ( $c$  軸方向  $B_{||c} = 0.66$  T :  $ab$  面内  $B_{\perp c} = 0.06$  T) を印加することで反強磁性相は消失し、磁場増加に従い系は非 Fermi 液体、Fermi 液体状態へと移行する [32–34]。また YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の Si サイトの 5% を Ge に置換し、負の化学圧力を与えることで零磁場における  $T_N$  を 20 mK まで抑制することができる [35]。Fig. 11 に YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> と YbRh<sub>2</sub>(Si<sub>0.95</sub>Ge<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub> の相図、帯磁率、比熱を示す。

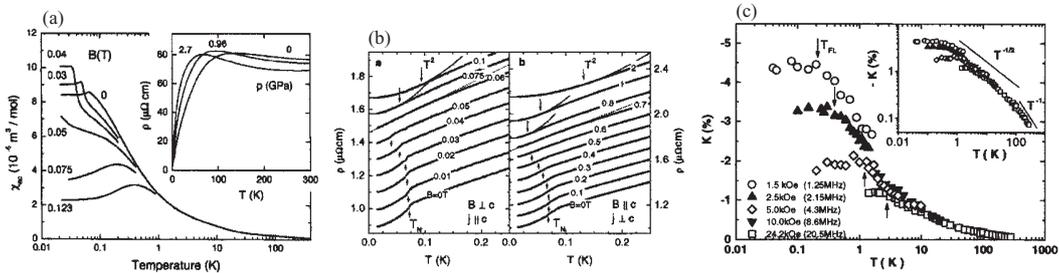


Fig.11 (a)(b)YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> と YbRh<sub>2</sub>(Si<sub>0.95</sub>Ge<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub> の電気抵抗の温度依存性を用いた  $T$ - $B$  相図 [35]。ε は  $\rho \propto T^\epsilon$  で定義される。(c)YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> と YbRh<sub>2</sub>(Si<sub>0.95</sub>Ge<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub> の交流帯磁率の温度依存性 [36]。(d)YbRh<sub>2</sub>(Si<sub>0.95</sub>Ge<sub>0.05</sub>)<sub>2</sub> の電子比熱係数  $C_{el}/T$  の温度依存性 [35]。(a)、(b) の磁場の方向は図中に示す。(c)、(d) では  $c$  軸方向に垂直に磁場を印加している。

この系で特徴的なのは「大きな Fermi 面」から「小さな Fermi 面」への連続転移を示し、そのエネルギースケールが量子臨界点近傍で消失する点である [37]。Fig. 12 に Fermi 面の連続転移に起因する特徴的な物性の例を示す。Fig. 12(a) の磁歪係数は 70 mK 以下では反強磁性相の臨界磁場で不連続なとびを示し、70 mK 以上では低磁場で  $B$  に比例し、ある磁場  $B_0$  で異なる傾きを持つ高磁場領域へクロスオーバーする。Fig. 12(b) で示されるように  $B_0$  での折れ曲がり磁化  $M$ 、Hall 抵抗  $\rho_H$  でも観測されている [38]。また Hall 係数  $R_H$  は  $B_0$  で大きく変化しており、これは Fermi 面の体積が急激に変化していることを表している。この Fermi 面の変化は降温に従い鋭くなっているが、 $dR_H/dB$  の半値幅の絶対零度での外挿値から、絶対零度でも二次転移であると考えられている [37]。更に  $B_0$  を  $T$ - $B$  相図にプロットすると、 $B_0$  が量子臨界点  $B_c$  で消失するような振る舞いを示しており、局在モーメント型量子相転移の証拠ではないかと考えられている。

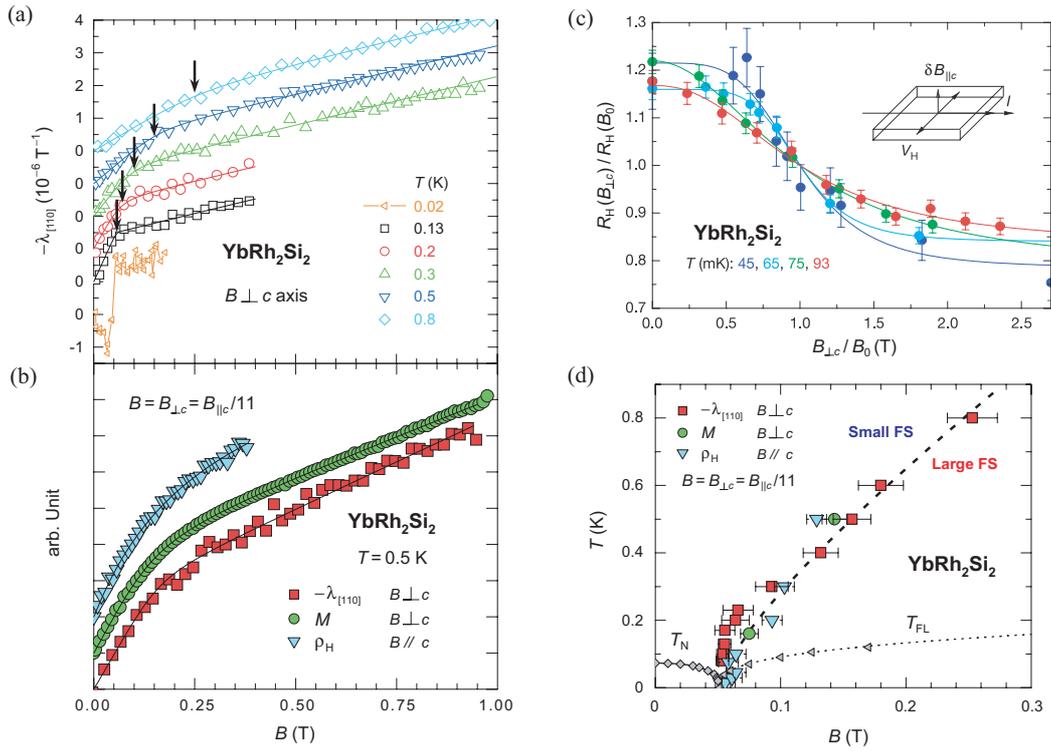


Fig.12 (a)  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  の磁歪係数  $\lambda$  の磁場依存性 [38]。温度は図中に示す。矢印は低磁場領域から高磁場領域へのクロスオーバー磁場  $B_0$  を表す。(b)  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  の磁歪係数  $\lambda$ 、磁化  $M$ 、Hall 抵抗  $\rho_H$  の磁場依存性 [38]。(c)  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  の微分 Hall 係数  $R_H \equiv d\rho_H(B)/dB$  の規格化磁場  $B/B_0$  依存性 [37]。図中に測定方法を示す。(d)  $B_0$  を書き加えた  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  の相図 [38]。 $T_N$ 、 $T_{FL}$  はそれぞれ反強磁性転移温度、Fermi 液体状態の特性温度である。(b)、(d) では ab 面内の磁場は異方性因子 11 で割って  $B = B_{\perp c}/11$  としてプロットしてある。

## 1.3 CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の物性

### 1.3.1 CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の基本物性

CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> は ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 型の立方晶構造 (空間群  $I4/mmm$ ) を持ち、格子定数は  $a=4.192\text{\AA}$ 、 $c=9.78\text{\AA}$  である。  $f$  電子の結晶場基底状態は磁気モーメントの自由度のみを持つ  $\Gamma_7$  二重項で第一励起状態とは 220 K 離れている [39]。 Fig. 2(a) に示されるように、 $\sim 70$  K 以上では帯磁率は Curie-Weiss 則に従って変化し有効磁気モーメントは  $\mu_{\text{eff}} = 2.38 \mu_{\text{B}}/\text{Ce}$  である [40]。低温では  $T_{\text{K}} = 20$  K で近藤効果による磁気モーメントの遮蔽が始まり、 $T < 1$  K で電子比熱係数は  $\gamma = 350 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$  まで増大する。

Fig. 13 に示すように de Haas-van Alphen (dHvA) 効果や光電子分光の実験より、 $T_{\text{K}}$  以下において 4 つの Fermi 面 (正孔面が 3 つ、電子面が 1 つ) が観測されており、それらの形状は  $4f$  電子を遍歴電子として扱ったバンド計算とよく一致している [41]。観測されている 4 つの Fermi 面の軌道の中で準粒子有効質量が最も重い FS 4 の  $\Psi$  軌道の  $m^*$  は  $\sim 120m_e$  程度であり、これは  $cf$  混成により形成した混成バンドによって有効質量が増大していることが明らかになっている。よって、CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> は典型的な Fermi 液体的振る舞いを示す。

Fig. 14 に示すように、CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> は 10 K 以下、磁場  $B_M = 7.8$  T において磁化  $M$  が階段状に変化するメタ磁性的振る舞いを示す [42–44]。また、磁化の急劇な増加に伴って磁歪も非常によく似た振舞いを示す。この  $B_M$  での微分帯磁率  $\partial M/\partial B$  と磁歪係数  $\lambda_V = V^{-1}\partial V/\partial B$  のピークは温度低下と共に鋭くなるが、ピークは絶対零度でも発散しないため、このメタ磁性的振る舞いは 1 次転移ではなくクロスオーバーのメタ磁性である [44]。現在ではこのメタ磁性的振る舞いは、最も重い有効質量を持つホール面 (Fig. 13 図 (c) の FS 4) が Zeeman 分裂によって満たされることに起因するという考え方が有力である。しかしホール面が満たされることによって、Fermi 面の变形と  $f$  電子の見かけ上の局在化が起きているという説 [45] と、Fermi 面の变形なしでも Hall 効果や磁気抵抗などの物性は説明できるという説 [46] があり、この問題は未解決である。

Fig. 15 は比熱係数の温度依存性および磁場依存性である。比熱係数は低温で近藤一重項の形成に伴って増加していき、1 K 付近で Fermi 液体的な一定値をとる。これは Fig. 5 に示すように、SCR 理論によるフィッティングとよく一致し、非 Fermi 液体状態から Fermi 液体状態へのクロスオーバーが起きていることを示している。更に、磁場印加によって比熱係数の増加が観測されており、これは de Haas-van Alphen (dHvA) 効果の実験からメタ磁性転移に伴う電子の有効質量の増加と定性的に一致する。図 (b) より 0.25 K で一つのピークだった比熱係数が、昇温につれて  $B_M$  近傍でダブルピークを形成する。この 2 重ピーク構造は準粒子の状態密度が異方的混成バンドに起因しているとされ、ゼーマン分裂によるアップスピンとダウンスピンの状態密度が Fermi 準位を通過する際に起こるも

のと説明されている [47]。

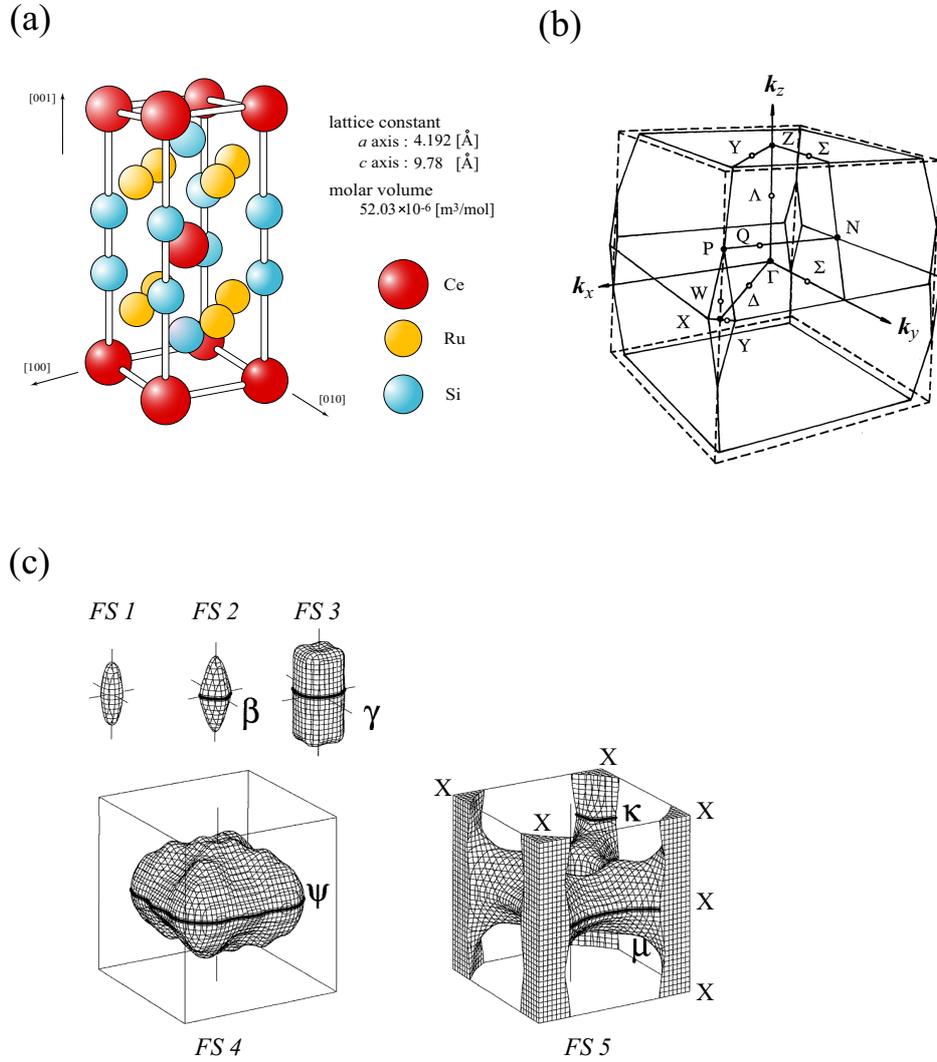


Fig.13 (a)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の結晶構造。(b) 体心正方晶構造の Brillouin ゾーン。(c)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の Fermi 面 (FS) の形状 [41]。FS 1~4 はホール面で Brillouin ゾーンを中心は Z 点、FS 5 は電子面で Brillouin ゾーンを中心は  $\Gamma$  点である。FS 1 はバンド計算では予想されたが、実際に実験では観測されていない Fermi 面である。

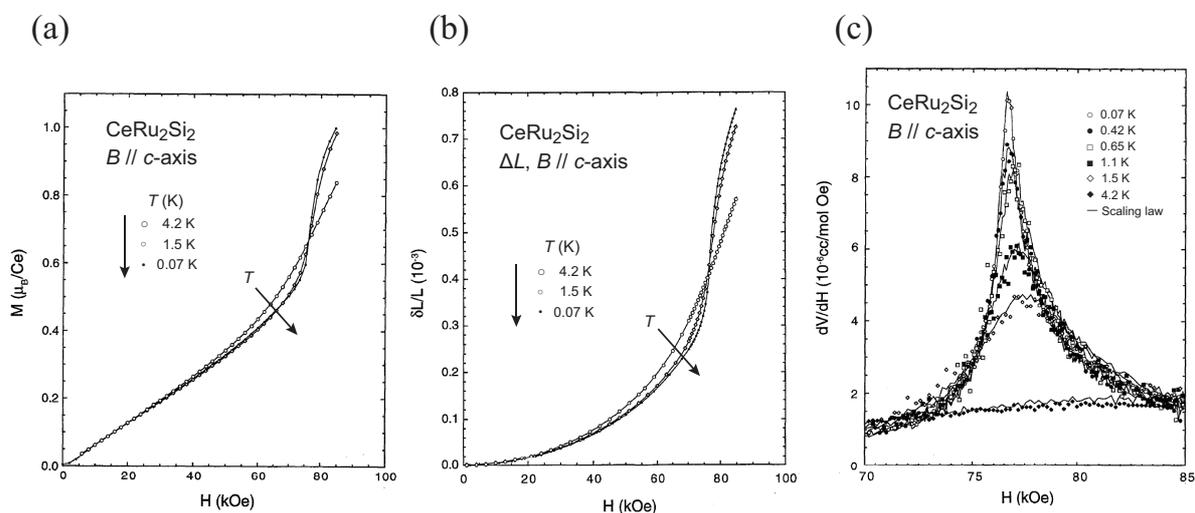


Fig.14 (a)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $c$  軸方向の磁化  $M$  の磁場依存性 [44]。 (b)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $c$  軸方向の磁歪  $\Delta L_{||c}(B)/L_{||c}$  の磁場依存性 [48]。 (c)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の体積の磁場微分  $\partial V/\partial B$  の磁場依存性 [48]。実線はスケーリング則より (a) の磁化でスケーリングした結果である。

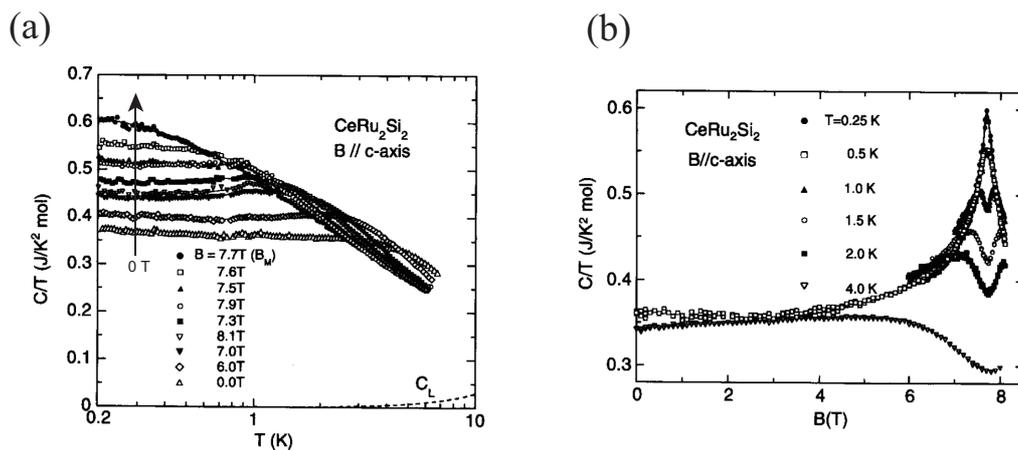


Fig.15 (a)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の比熱係数の温度依存性 [47]。 (b) 各温度における  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の比熱係数の磁場依存性 [47]。

Fig. 16 は線熱膨張  $\Delta L(T)/L$  および線熱膨張係数の温度依存性を示している。図 (a) は  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$ 、 $c$  軸と  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$ 、 $c$  軸の熱膨張を示しており、 $f$  電子を持たない  $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$  に比べて、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は  $T_K$  付近でショットキー的なピークを示す。低温での  $a$  軸と  $c$  軸との磁気異方性は  $c/a \sim 3$  程度である。図 (b) および図 (c) は  $B_M$  付近までの  $c$  軸の磁場中熱膨張および熱膨張係数の温度依存性を示している。磁場印加によりピークは低温側にシフトし、 $B_M$  近傍でピークが増大した後、 $B_M$  より高磁場では横軸反転したような下凸のピークを持ち熱膨張係数は負の値を持つ。また、図 (d) の様に  $B_M$  近傍では  $B < B_M$  と  $B > B_M$  で非常に対称的な温度依存性を示す。これらの対称的振舞いは Ising 対称性に起因していると解釈でき、ピークを通して高温側の臨界状態から低温側の Fermi 液体状態へのクロスオーバーが起きていると説明されている [49]。

Fig. 16 の熱膨張と Fig. 15 の比熱測定の結果から求められた H-T 相図を Fig. 16 の図 (e) に示す。低温低磁場領域では Pauli 常磁性状態、メタ磁性転移後の低温高磁場領域は分極した常磁性状態であり、両方とも十分低温で Fermi 液体的に振舞う。一方で 2 つの相に挟まれた領域は、これまで述べた物理量に示されているように非 Fermi 液体的な状態にある。

これまで述べてきたように  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は低温まで非磁性物質であり、典型的な Fermi 液体的振舞いを示す。一方、約 70 K で  $k_1 = (0.3, 0, 0)$ 、 $k_2 = (0.3, 0.3, 0)$ 、 $k_3 = (0, 0, 0.35)$  の 3 つの非整合反強磁性相関が観測されている [42, 54]。これらの反強磁性相関は  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の Fermi 面にネスティングが存在し、反強磁性転移寸前であることを意味する。Fig. 17 および Fig. 18 に非弾性中性子散乱実験の結果を示す。Fig. 17 図 (a) に示すように各  $k$  ベクトルの散乱は  $Q$  に依存しない格子上の相関の上に見える。また近藤効果に起因した散乱に対し、散乱のエネルギー幅  $\sim 20$  meV の値が得られ、近藤温度は 20 K と見積もられた。Fig. 17 図 (b) より反強磁性相関は  $\sim 70$  K より発生し、相関長は  $T < 6$  K では 3 unit cell 程度になって温度に依存しなくなる。Fig. 17 図 (c) は  $c$  軸方向へ磁場印加したときの  $Q = (0.7, 0.7, 0)$  の磁場依存性であるが、低磁場では 2 種類の散乱が観測されている。1 つは反強磁性的な短距離相関 (correlations) によるものであり、2 つめは局所的な近藤スピン揺動 (localized) によるものである。メタ磁性転移後の 8.3 T の高磁場では反強磁性相関が消失している。40 K 以下での動的帯磁率の振る舞いは SCR 理論による解析とよく一致している [55]。さらに  $\mu\text{SR}$  の実験から  $\sim 2$  K で  $10^{-3} \mu_B/\text{Ce}$  程度の非常に小さな磁気モーメントによる短距離磁気秩序の報告がされている [56]。

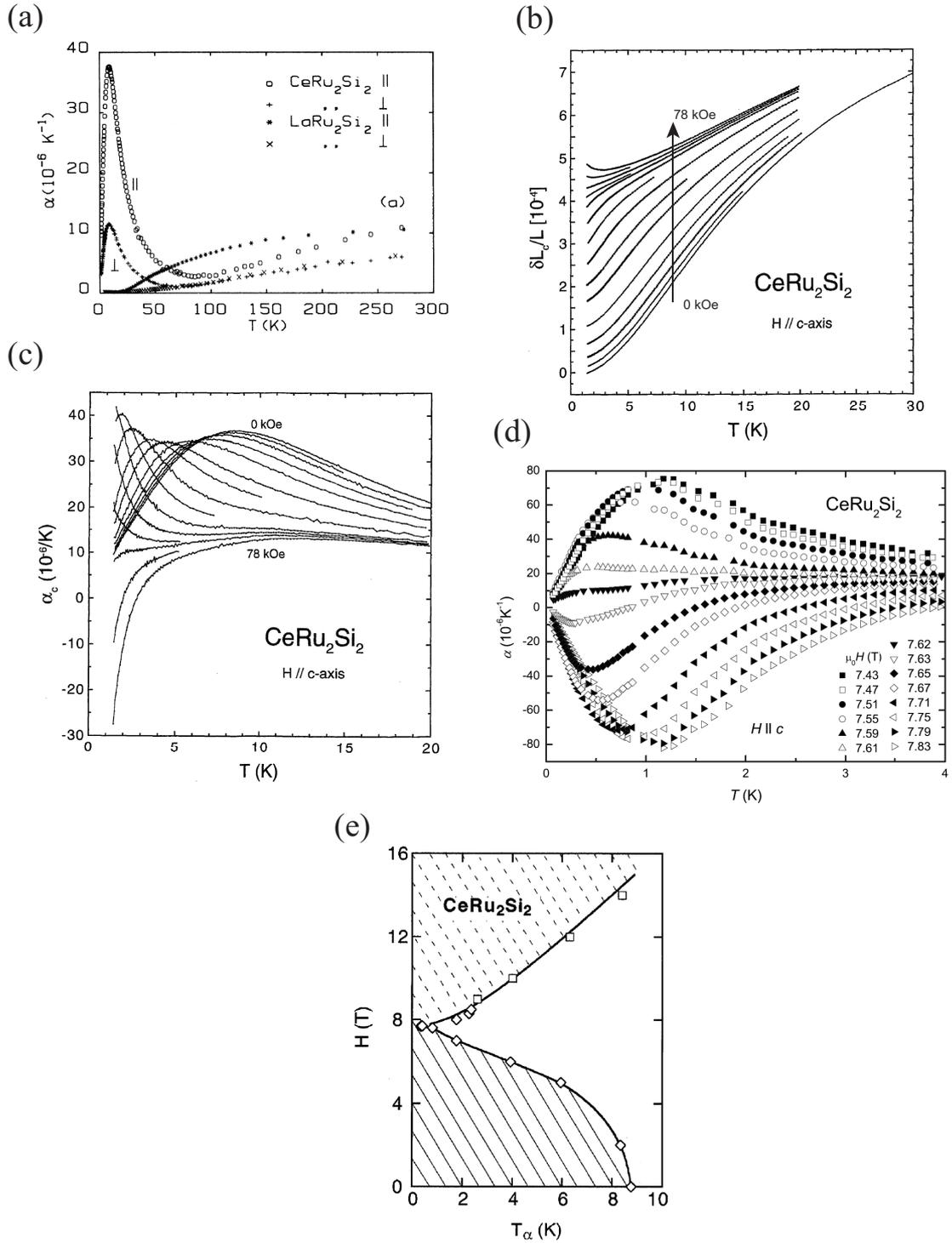


Fig.16 (a) CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> と LaRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の零磁場における熱膨張係数の温度依存性 [50]。 (b) CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の  $c$  軸方向の各磁場における熱膨張  $\Delta L(T)/L$  の温度依存性 [51]。各磁場は、 $B = 0 \text{ T}, 2 \text{ T}, 3 \text{ T}, 4 \text{ T}, 5 \text{ T}, 6 \text{ T}, 6.5 \text{ T}, 7 \text{ T}, 7.3 \text{ T}, 7.5 \text{ T}, 7.6 \text{ T}, 7.65 \text{ T}, 7.7 \text{ T}, 7.8 \text{ T}$  である。 (c) 図 (b) の熱膨張から求められた各磁場における熱膨張係数の温度依存性 [51]。 (d) メタ磁性転移磁場近傍における  $c$  軸方向の熱膨張係数の温度依存性 [49]。 (e) 熱膨張係数の温度依存性変曲点と比熱係数の磁場依存性におけるピーク (Fig. 15) から求められた H-T 相図 [52]。

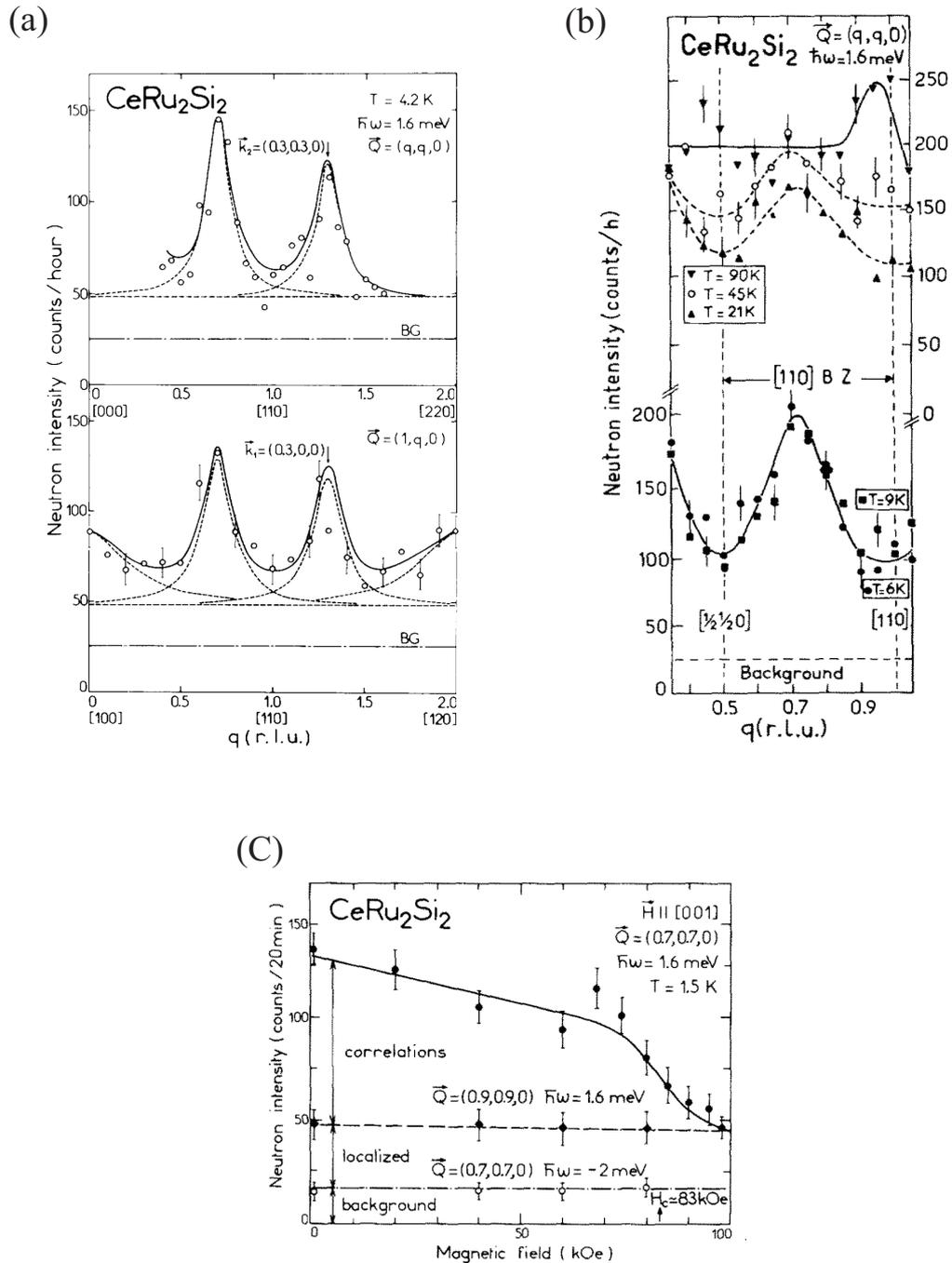


Fig.17  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の非弾性中性子散乱実験の結果 [53]。(a) [110](上段) と [010](下段) 方向への散乱ベクトル  $\mathbf{Q} = (1,1,0)$  による測定。(b) (1,1,0) 方向への  $q$  スキャンの温度依存性。(c)  $c$  軸方向へ磁場印加したときの  $\mathbf{Q} = (0.7,0.7,0)$  の磁場依存性。

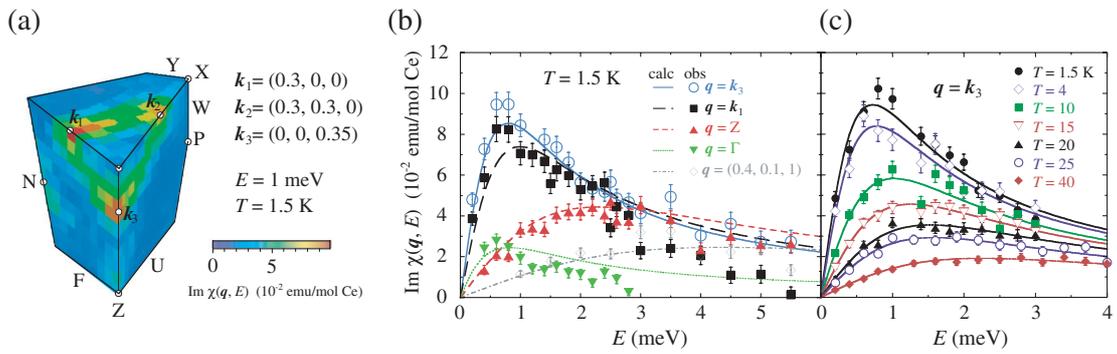


Fig.18  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の非弾性中性子散乱実験 [55]。(a)  $E = 1 \text{ meV}$ 、 $T = 1.5 \text{ K}$ での  $q$  スキャンによる Brillouin ゾーン上における動的帯磁率の強度マップ。(b) Brillouin ゾーン上の様々な波数ベクトル  $q$  のスキャン。(c) 様々な温度における  $k_3$  ベクトルの  $q$  スキャン。

### 1.3.2 高压下における物性

圧力下における  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の主な物性を Fig. 19 に示す。Fig. 19 図 (a) に示されるように、圧力増加に従い、低温における  $c$  軸方向の帯磁率は大きく抑制される。一方、帯磁率のピーク温度  $T_{\text{max}} (\propto T_K)$  は  $p = 0$  での 10 K から、 $p = 0.4$  GPa では  $\sim 20$  K まで増加する [57]。この  $T_{\text{max}}$  の圧力変化は  $\partial \ln T_{\text{max}} / \partial p = 1.69 \times 10^{-9} \text{ Pa}^{-1}$  に従う。Fig. 19 図 (c) に示されるように、これは  $1/\chi_0$  ( $\chi_0$  は帯磁率の絶対零度での外挿値)、 $1/\sqrt{A}$  ( $A$  は  $\rho \propto AT^2$  で定義)、 $H_M$  (メタ磁性転移磁場) の圧力依存性においても同様である。体積圧縮率  $\kappa = 9.38 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$  を用いると、 $\partial \ln T_{\text{max}} / \partial \ln V \sim 180$  となり、これは熱膨張測定から導出された Grüneisen パラメーターと一致する [50]。また Grüneisen パラメーターは特性温度の圧力と体積に対する依存性を与える。また帯磁率の温度依存性は、 $\chi(T, P)/\chi_0(P) = \phi[T/T^*(p)]$  と  $T^*(p) \propto 1/\chi_0(p)$  による単純なスケーリング ( $\phi$  はスケーリング関数) で記述できる。更に、Fig. 19 図 (b) の赤矢印で示されるように、電気抵抗が  $\rho - \rho_0 \propto T^2$  に従う温度領域は、圧力を加えることによって高温へ拡大している。これらは圧力によって近藤効果が増強され、Fermi 液体状態がより安定化していることを示している。dHvA 効果によって、 $p = 0$  では軌道  $\beta$ 、 $\kappa$  の有効質量がそれぞれ  $1.5m_0$ 、 $11m_0$  であるが、 $p = 0.6$  GPa では  $1.1m_0$ 、 $7m_0$  に減少する [58]。また、軌道  $\mu$  でも、 $p = 0$  では大きい  $m^*$  のため dHvA 振動は観測できないが、0.6 GPa では  $m^*$  が  $34m_0$  まで減少することによって dHvA 振動が観測できるようになる。これら  $m^*$  の減少は、圧力増加による帯磁率、電気抵抗の  $T^2$  係数が減少が観測されていることと定性的に一致する。また、Fig. 19 図 (d) に示されるように、dHvA 周波数は軌道  $\beta$ 、 $\gamma$  では圧力増加によって減少するが、FS 5 の軌道  $\kappa$ 、 $\mu$  の場合は増加する。

### 1.3.3 化学圧力効果

前項では  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は Fermi 液体的性質を示しながら、波数ベクトル  $\mathbf{k}_1$ 、 $\mathbf{k}_2$ 、 $\mathbf{k}_3$  で特徴づけられる 3 つの非整合短距離反強磁性相を持つ磁気秩序寸前の物質であることを述べた。この項では  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  に少量の原子置換をした場合に起こる磁気秩序、量子臨界点について述べる。

■  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  Ce を非磁性原子 La (電子状態:  $4f^0 5d^1 6s^2$ ) に置換すると、 $x = 0.075$  において反強磁性相が現れる。この反強磁性相は、 $c$  軸方向に整列した、非置換  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  で観測された非整合反強磁性相の波数ベクトル  $\mathbf{k}_1$  が長距離化した秩序状態である [60]。もしこの反強磁性相が局在モーメントの秩序ならば、正弦波構造の秩序状態はエントロピーが残っており、一般的には残りのエントロピーを解放するため更に低温で矩形波構造に転移する。 $x = 0.13$ 、 $0.20$  では正弦波構造から矩形波構造への転移が観測されており、この反強磁性相は局在モーメントによる秩序であると考えられる。これは  $\mu\text{SR}$  の実験に

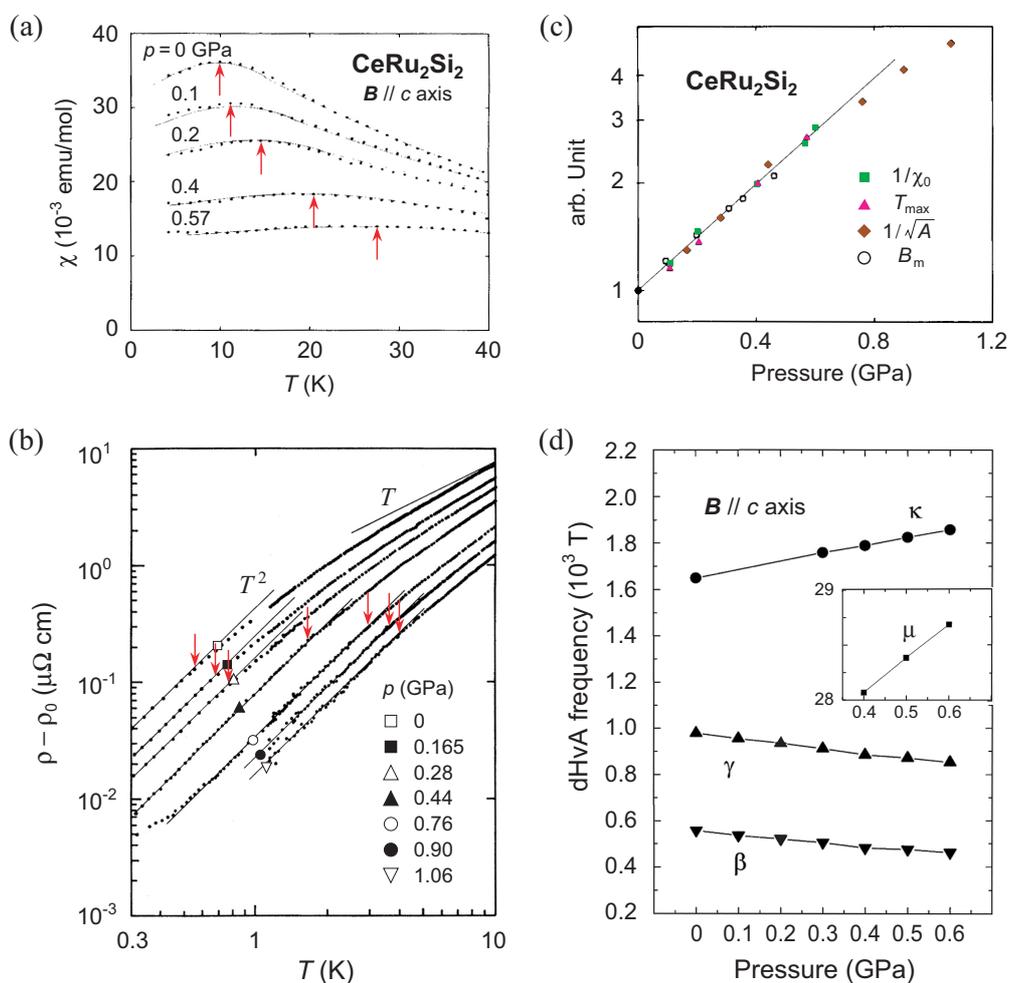


Fig.19 (a) 圧力下  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の帯磁率の温度依存性 [57]。実線は本文中のスケールリングによるもの。図中の矢印は帯磁率が極大値をとる温度  $T_{\text{max}}$  を表す。(b) 圧力下  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の電気抵抗の温度依存性 [59]。低温部の実線は  $T^2$  依存性を表す。図中の矢印は  $\rho - \rho_0 \propto T^2$  に従い始める温度を表す。(c)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の様々な物理量 ( $v$  とおく) の圧力依存性 [57]。縦軸は  $p = 0$  での値によって規格化された各物理量  $v(p)/v_0$  であり、 $\log$  スケールであることに注意されたい実線は  $\partial \ln v / \partial p = 1.69 \times 10^{-9} \text{ Pa}^{-1}$  をプロットしたもの。詳しくは本文参照。(d)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の Fermi 面の各軌道における de Haas-van Alphen 周波数の圧力依存性 [58]。各軌道の名前は Fig. 13(c) に準じている。

よっても支持されている [60, 61]。Fig. 20 に  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  の相図と磁気モーメントの大きさを示す。

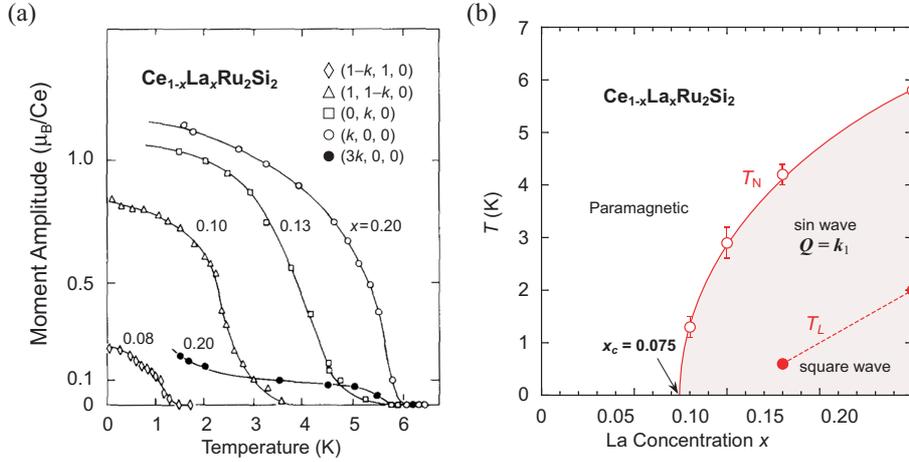


Fig.20 (a)  $x > x_c$  での  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  の秩序化した磁気モーメントの大きさの温度依存性 [60]。 (b) 反強磁性転移温度 (青四角) の La 濃度  $x$  依存性 [62]。  $T_N$ 、 $T_L$  はそれぞれ反強磁性転移温度、正弦波から矩形波構造への転移温度を表している。

$x > 0.1$  では、比熱、磁化は磁気転移点  $T_N$  で極大を示す [63]。電気抵抗は  $a$  軸方向にのみ  $T_N$  以下で僅かな増加が報告されており、異方的なギャップ構造によるものと考えられる [64]。  $x \leq x_c$  の非磁性領域において電子比熱係数  $C/T$  は  $-\sqrt{T}$  で上昇する非 Fermi 液体的振舞いを示した後、低温で一定の値をとる Fermi 液体的振舞いを示す。Kambe らによって、SCR 理論を用いた解析が行われており、Fig. 21 に比熱の実験結果と解析結果を示す。

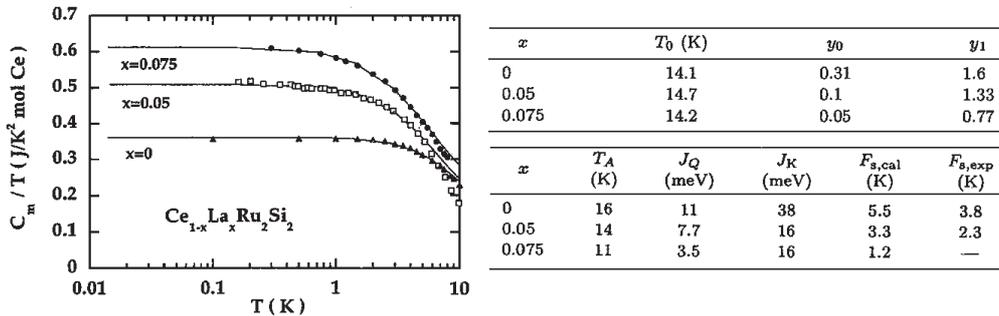


Fig.21  $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  の  $x \leq x_c$  における  $x = 0, 0.05, 0.075$  での比熱測定と SCR 理論による解析結果 [65]。図は比熱の測定結果と SCR 理論によるフィッティングを示している。表はフィッティングの結果得られたパラメータである。  $F_S$  は異なるモード間の結合定数である。他のパラメータの物理的意味は 1.2.1 の本文を参照。

■ $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{Si}_2$  Ru の Rh 置換は、Fig. 22 図 (a) に示されるように  $c$  軸方向の格子間隔は伸びるが  $a$  軸方向は逆に縮むため、異方的な化学圧力効果を与える [66]。Fig. 22 図 (b) に示すように、 $0.03 < x < 0.4$  の Rh 濃度において非置換  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $\mathbf{k}_3$  で特徴付けられる縦波  $\sin$  波構造の反強磁性相への転移が起きる。秩序波数ベクトルは、 $\mathbf{Q}(x = 0.15) = (0, 0, 0.42)$  から  $\mathbf{Q}(x = 0.25) = (0, 0, 0.5) \sim$  Rh 濃度の増加に従い連続的に変化する [67]。また  $x = 0.5$  近傍で一旦、反強磁性相が消失し非 Fermi 液体状態の観測が報告されている [68]。

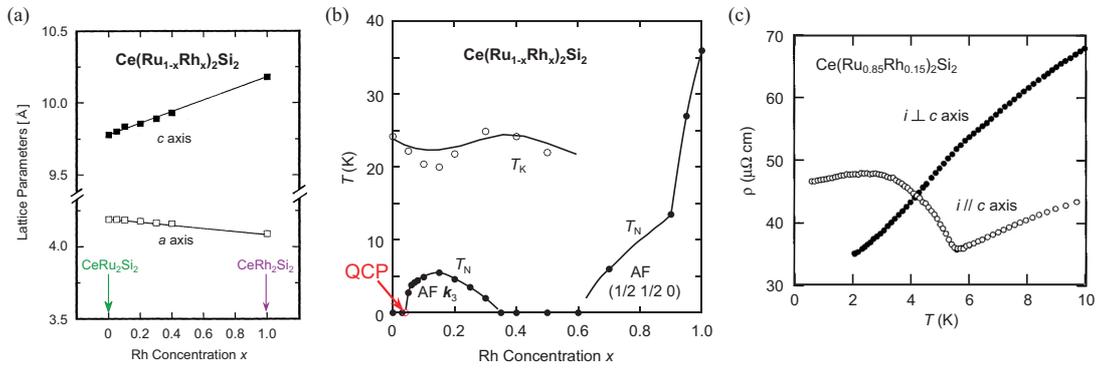


Fig.22 (a)  $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{Si}_2$  の格子定数の Rh 濃度  $x$  依存性 [66]。  
 (b)  $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{Si}_2$  の磁気相図 [66, 69]。 (c)  $\text{Ce}(\text{Ru}_{0.85}\text{Rh}_{0.15})_2\text{Si}_2$  の各軸方向の電気抵抗の温度依存性 [70]。

Fig. 23 に示すように、 $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{Si}_2$  において、La 置換系と同様に臨界濃度  $x_c = 0.03$  近傍において比熱、帯磁率、非弾性中性子散乱の結果が SCR 理論を用いて解析されている [71, 72]。Fig. 23(d) で示す、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  と  $\text{Ce}(\text{Ru}_{0.97}\text{Rh}_{0.03})_2\text{Si}_2$  において  $1 \text{ K}$  以上での反強磁性波数ベクトル  $\mathbf{k}_3$  に対する動的帯磁率の低エネルギー励起におけるスペクトルは、SCR 理論による動的帯磁率の式でよく記述できる。さらに、動的帯磁率スペクトルの式によるフィッティングから得られたスペクトル線幅  $\Gamma$  の温度依存性は、Fig. 23(e) で示すように、動的帯磁率スペクトルの式に表 1 の三次元反強磁性相関の場合の  $\chi(\mathbf{Q})$  の臨界指数を代入して得た  $\Gamma \propto T^{3/2}$  に従う [72]。

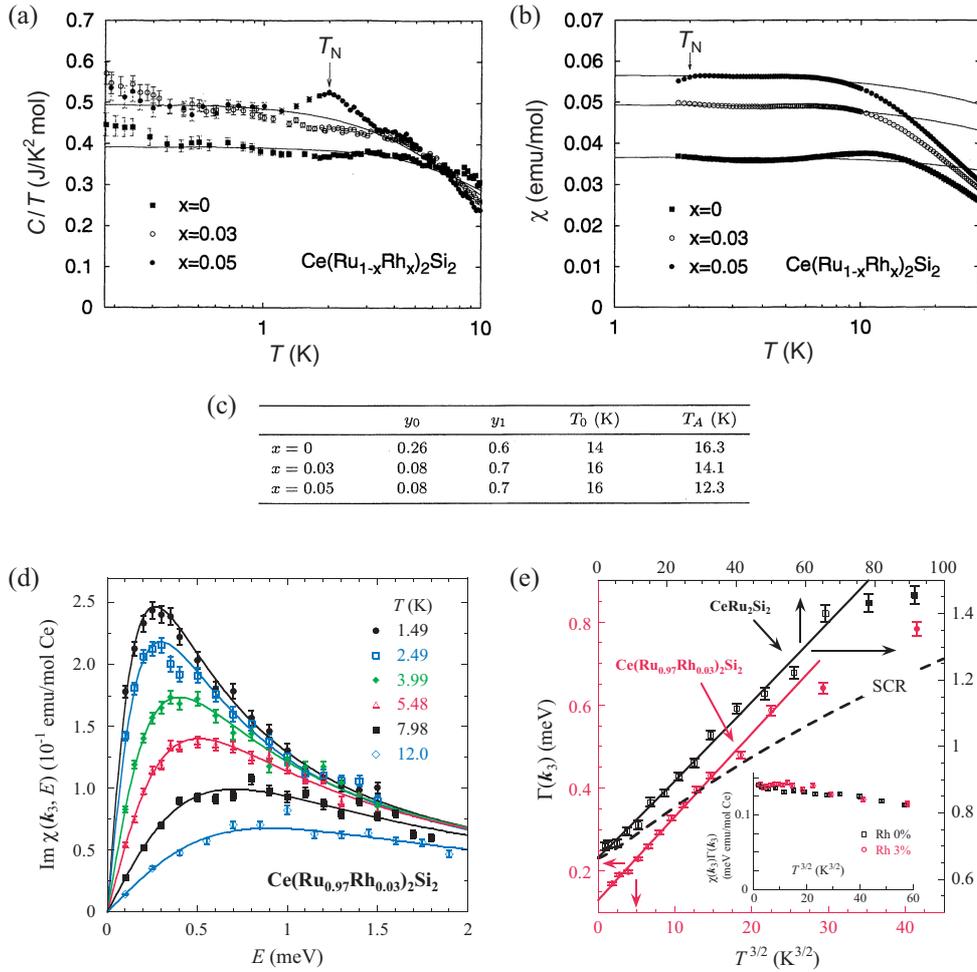


Fig.23 (a)  $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{Si}_2$  の比熱の温度依存性 [71]。実線は SCR 理論によるフィッティング。(b)  $\text{Ce}(\text{Ru}_{1-x}\text{Rh}_x)_2\text{Si}_2$  の帯磁率の温度依存性 [71]。実線は SCR 理論によるフィッティング。(c) 比熱、帯磁率の SCR 理論による解析 (a, b) から得られたパラメータ。パラメータの物理的意味は 1.2.1 の本文を参照。(d)  $\text{Ce}(\text{Ru}_{0.97}\text{Rh}_{0.03})_2\text{Si}_2$  の動的帯磁率 [72]。実線は SCR 理論による式を用いたフィッティング。(e)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  と  $\text{Ce}(\text{Ru}_{0.97}\text{Rh}_{0.03})_2\text{Si}_2$  における動的帯磁率のスペクトル線幅  $\Gamma$  の温度依存性 [72]。挿入図は積  $\chi(k_3)\Gamma(k_3)$  の温度依存性を示す。

**■CeRu<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub>** CeRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> は多くの Ce 化合物とは異なり、 $T_C = 8\text{ K}$  で強磁性を示す [73]。Fig. 24 の図 (b) に示す通り、CeRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> に圧力を加えることによって急激に  $T_C$  は抑制され、代わりに反強磁性相が現れる。55 更に圧力を加えると反強磁性転移温度は抑制され、 $p_c \sim 6.5\text{ GPa}$  で転移温度はほぼゼロに達する。一方、CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> に Ge をドーピングした系では反強磁性相が現れる [74]。Fig. 24 図 (a) に示すように、Ge のドーピングによって格子間隔は拡張する。Ge ドーピングは La 置換と異なり磁性原子の数を変えないため、純粋に負の圧力だけを与えることになる。CeRu<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> の  $x$ - $T$  相図は、 $x = 1$  のとき 6.75 GPa の負の圧力に相当すると仮定すると、CeRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の  $p$ - $T$  相図とよく一致する [75]。Fig. 24 図 (b) は CeRu<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> の  $x$ - $T$  相図、CeRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の  $p$ - $T$  相図を合わせて示したものであり、AFM1、AFM2 相は波数ベクトル  $\mathbf{k}_1$  の磁気構造を持つ反強磁性相である。このような同一の秩序波数ベクトル  $\mathbf{k}_1$  で特徴付けられる 2 つの反強磁性相の存在は、同じく波数ベクトル  $\mathbf{k}_1$  で特徴付けられる正弦波構造と矩形波構造の 2 つ反強磁性相を持つ La 置換系の相図とよく似ている。従って、AFM1 相から AFM2 相への転移は、La 置換系と同様、正弦波から矩形波への磁気構造の転移ではないかと考えられている [74]。

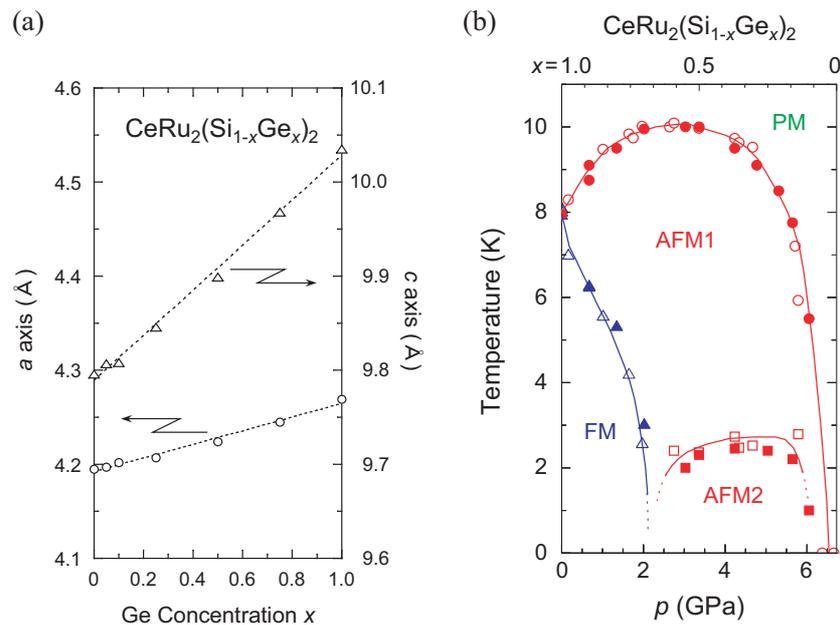


Fig.24 (a) CeRu<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> の格子定数 [76]。 (b) CeRu<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> の  $T$ - $x$  相図と電気抵抗測定による CeRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の  $p$ - $T$  相図 [75]。上部横軸は Ge のドーピング量、下部横軸は CeRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の  $p$ - $T$  相図の圧力を示している。中抜きのシンボルは圧力下 CeRu<sub>2</sub>Ge<sub>2</sub> の物性測定で得られた転移温度、それ以外のシンボルは CeRu<sub>2</sub>(Si<sub>1-x</sub>Ge<sub>x</sub>)<sub>2</sub> の物性測定で得られた転移温度である。

### 1.3.4 超低温領域での磁氣的性質

Fig. 25 に Takahashi らによる交流帯磁率および静磁化率の測定結果を示す [77]。  $T \leq 50$  mK、  $B < 0.94$  mT の温度磁場領域で、交流帯磁率、静磁化ともに Curie 則  $\chi \propto T^{-1}$  に従った立ち上がりが観測された。  $B = 0.016$  mT の帯磁率は低温を下げるとともに単調に増加し、臨界指数は 6 mK 以上で Curie 則的だったのが、 $\sim 2$  mK 以下になると  $T^{-2/3}$  になる。  $B = 0.20, 0.39, 0.94$  mT では温度を下げると Curie 則から外れて、交流帯磁率はピークをつくる。印加磁場を大きくするとピーク温度は高温側にシフトし、ピーク値は抑制される。静磁化も同様に温度を下げると Curie 則から外れ、飽和する。この飽和磁化の大きさは磁場に依存し、Curie 定数から見積もられた有効磁気モーメントとの比は  $10^{-3}$  で非常に小さい。また、6.21 mT まで外部磁場を上げると帯磁率の立ち上がりは Pauli 常磁性の値までほぼ抑制される。

Curie 則から外れた超低温領域での帯磁率の振る舞いはピーク値、ピーク温度で規格化することでスケーリング則が成り立つ。ピーク値より低温側は SDW による反強磁性転移の振舞いに似ており解析されたが、SDW 型の描像によって与えられる量子臨界状態での帯磁率の温度依存性と、Fig. 25(c) に示した解析結果は一致しなかった。またネール温度の見積もりも行われたが、 $T_N = 2.8$  mK であり、その温度付近で反強磁性的な転移が確認されなかったことなどから、SDW による反強磁性転移の可能性は否定されている。一方で、局在モーメント型で記述される非磁性状態での  $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  の帯磁率のピークと非常に良く似ており、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  のピーク温度以下ではコヒーレントな準粒子が形成されている可能性がある。また Fig. 25(d) に示されるように直流、交流帯磁率の絶対零度での外挿値  $\chi_0$  の磁場依存性は  $B^{-0.6 \pm 0.1}$  であり、 $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$  のそれと一致する。従って  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の零磁場における基底状態は何らかの量子臨界状態にあると考えられ、それは磁場によって抑制されるが、その起源は不透明である。

### 1.3.5 超低温における $c$ 軸方向の熱膨張・磁歪測定

上記の帯磁率の結果を受けて、先行研究にて超低温低磁場での  $c$  軸方向の熱膨張・磁歪測定が行われた。その結果、帯磁率の結果と同じ温度領域に量子臨界現象の観測が報告された [78]。しかし、本研究期間中において近年開発した超低温高磁場環境にて当時と同じ試料、同じサンプルセルで改めて  $c$  軸方向の高磁場下の熱膨張・磁歪測定を行ったところ、本来観測されるはずのメタ磁性的な振舞いが観測されなかった。本研究期間中にて測定されたデータは当時の測定データと再現するため、試料、サンプルセルの状態に明確な経時的変化はなく、先行研究で測定した当時からメタ磁性が起こらない状態で測定されていたと推測される。メタ磁性が起こらない原因は不明であるが、現在のところ先行研究における  $c$  軸方向の熱膨張・磁歪データに関して信頼性は高くないものと考えられる。

本研究で使用した  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  試料は先行研究で使用したものとは別の試料であり、磁歪

測定においてメタ磁性を確認している。また他研究グループのデータと比較してもほぼ一致しているため、本研究で測定された熱膨張・磁歪測定データは信頼できるものと考えてよい。

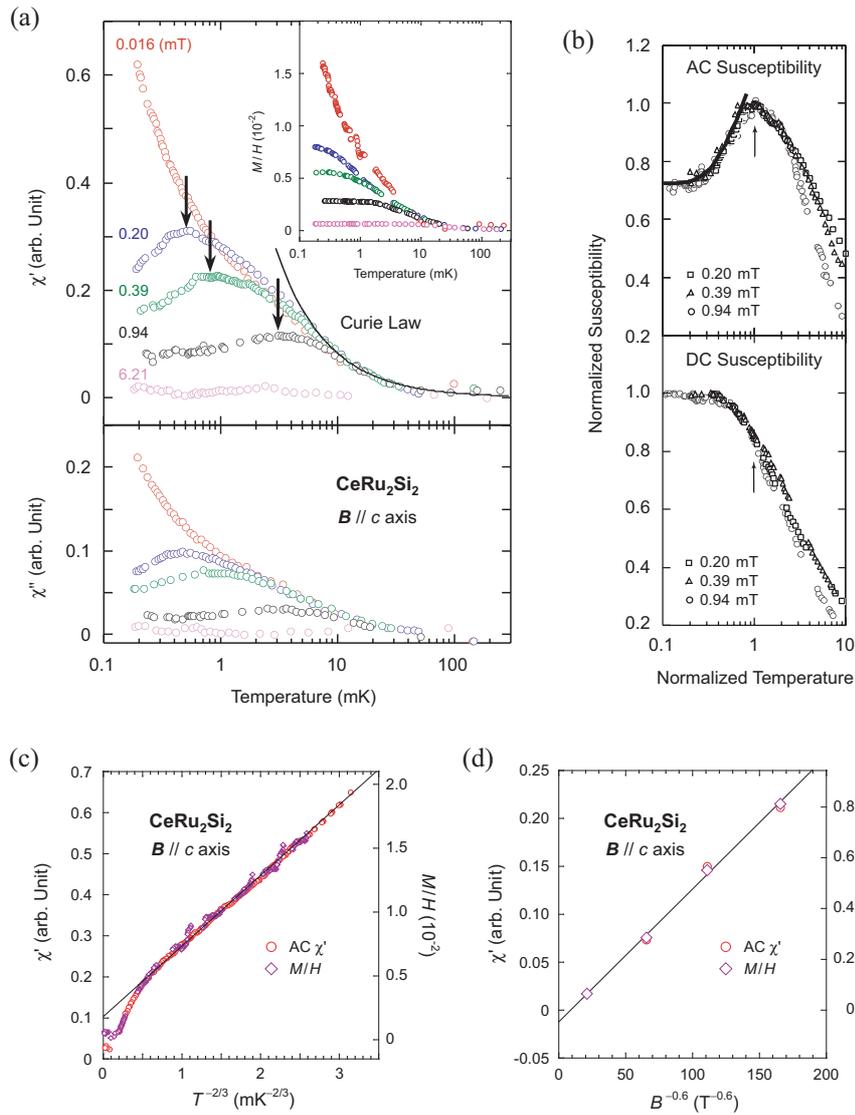


Fig.25 (a) 超低温領域での  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $c$  軸方向の交流帯磁率と直流帯磁率 (inset 図) の温度依存性 [77]。図中の矢印は交流帯磁率のピーク、数字は  $c$  軸方向への印加磁場、実線は Curie 則を示す。(b) 上図は交流帯磁率のピーク温度とピーク値で規格化した交流帯磁率の温度依存性。下図は交流帯磁率のピーク温度と静磁化の飽和磁化で規格化した直流帯磁率の温度依存性 [77]。(c) 帯磁率の  $T^{-2/3}$  依存性。(d) 帯磁率の絶対零度における外挿値の  $B^{-0.6}$  依存性。

## 1.4 研究目的

以上に述べたように  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の基底状態は Fermi 液体状態であると考えられているが、中性子散乱や  $\mu\text{SR}$  の実験より  $T_K$  以下でも反強磁性相関をもち、また非常に小さな磁気モーメントの存在が観測されている。常磁性でありながらこのような振舞いが観測されている物質には、さらに低温まで冷却するかわずかに元素置換するだけで SDW 型の量子相転移する物質が度々報告されている。

また本研究グループの先行研究では  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $c$  軸について  $150 \mu\text{K}$  までの超低温での帯磁率測定より、Pauli 常磁性からの立ち上がりが観測され、新しい量子臨界現象を発見した [77]。さらに、超低温低磁場での  $c$  軸方向の熱膨張・磁歪測定が行われたが、超低温高磁場環境を備えた最近の再現実験ではメタ磁性が観測されなかったことから、測定結果の信頼性に疑いが残っておりメタ磁性が確認できる試料で再度  $c$  軸の熱膨張・磁歪測定が望まれる [78]。そもそも、超低温領域での実験を行える環境は限られており、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  に関する実験の大部分が極低温以上の高温で行われているため、超低温領域の実験データはほとんどない。よって、この新しい量子臨界現象に関しては未だ殆ど未解明の状態である。しかし重い電子系では  $f$  電子と  $c$  電子との混成の強さが基底状態を決定しており、混成の強さを決める温度、磁場、圧力の外部パラメータに対して広い領域で実験を行うことが求められる。すなわち、超低温・高磁場・高圧の多重極限環境での実験が、重い電子系の本質に迫る上で必要とされる。

本研究では、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の超低温で観測された新しい量子臨界現象を解明するため、 $10 \text{ mK}$  までの超低温領域に高磁場環境 ( $9 \text{ T}$ ) を備えた超低温高磁場多重極限環境を開発し、主に  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の磁化困難軸である  $a$  軸方向の熱膨張・磁歪測定を行い、新しい量子臨界現象の起源に関する研究を行った。

## 2 Experimental procedure

本研究では  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機を用いて最低到達温度  $\sim 10\text{mK}$  まで冷却した。超低温とは一般に  $\sim 50\text{mK}$  より低温の温度領域を指し、 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機あるいはさらに核断熱消磁冷却法を用いることで実現する。それより高い温度は極低温という。低温実験では冷却温度の低下に伴い、また印加磁場を大きくするにしたがって、熱的な接触や平衡状態の実現が難しくなるため、実験装置に様々な工夫が必要である。以下に本研究で用いた冷却装置、温度計、キャパシタンス法を用いた熱膨張・磁歪測定装置、および測定試料について説明する。

### 2.1 冷却装置

#### 2.1.1 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$ 希釈冷凍機

ヘリウムには同位体として  $^3\text{He}$  と  $^4\text{He}$  が存在するが、 $^3\text{He}$  は Fermi 統計、 $^4\text{He}$  は Bose 統計に従い、1 K 以下の低温ではこれらの量子統計性の違いが顕著になる。このため液体  $^3\text{He}$  の比熱は、1K 以下において液体  $^3\text{He}$  の比熱に比べて数桁大きくなる。エントロピー  $S$  は比熱  $C$  と  $dS = (C/T)dT$  の関係にあり、液体  $^3\text{He}$  のエントロピーも大きいため液体  $^3\text{He}$  のエントロピーを制御できれば、冷却に応用できる。一方で、液体  $^4\text{He}$  は 2.17 K に超流動転移点を持ち、それ以下の温度では急激にエントロピーを失っていく。 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機は  $^3\text{He}$  と  $^4\text{He}$  の混合液を利用し、 $^3\text{He}$  のエントロピーを制御することで冷却能力を得ることができる。以下にその原理を述べる。

$^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  混合液の相図を Fig. 26 に示す。三重点 0.87 K 以下の温度で 2 本の共存線を持ち、共存線で囲まれた条件にある状態では混合液体は 2 相に分離し、共存線に沿って各相の  $^3\text{He}$  の濃度が増える。この 2 相分離状態の  $^3\text{He}$  濃度の薄い方を  $^3\text{He}$  希釈相 (d 相)、 $^3\text{He}$  濃度の濃い方を  $^3\text{He}$  濃厚相 (c 相) という。T $\rightarrow$ 0 において c 相は純粋な  $^3\text{He}$  に近づくが、d 相の方は T=0 でも約 6.4% の  $^3\text{He}$  濃度をもつ。 $^3\text{He}$  は  $^4\text{He}$  に比べ軽いため、重力下においては c 相が d 相に浮かんだ状態になる。c 相中では  $^3\text{He}$  同士の相互作用が強く、Fermi 液体状態だと考えられる。d 相では 0.5 K 以下の低温において  $^4\text{He}$  の常流動成分は無視できるので、エントロピーゼロ、粘性ゼロの超流動  $^4\text{He}$  中を  $^3\text{He}$  が自由に運動する Fermi 気体状態だと考えられる。低温で Fermi 縮退した  $^3\text{He}$  のエントロピーは  $S \propto T/T_F$  と温度に比例する。 $T_F$  は Fermi 温度でありモル体積  $v$  を用いて、 $T_F \propto v^{-2/3}$  で与えられる。従って、 $^3\text{He}$  濃度の低い (モル体積の大きい) d 相は同じ温度では c 相に比べて大きなエントロピーをもつ。0.8 K まで下がると  $^4\text{He}$  の蒸気圧はほぼゼロであるが  $^3\text{He}$  の方は有限の値をもつ。この蒸気圧の差を利用して、d 相中の  $^3\text{He}$  を選択的に取り除くと、c 相から d 相へ  $^3\text{He}$  が溶解込み、c 相と d 相のエントロピー差に比例した吸熱が起こる。これ

は液体  $^3\text{He}$  の蒸発とみなすことが出来る。d 相から分留した  $^3\text{He}$  は液化された後に再び c 相へ送って  $^3\text{He}$  を循環させる。この過程を連続的に実現したものが  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機であり数 mK までの低温を定常的に実現できる唯一の方法である。冷凍機の冷凍能力について c 相、d 相共に  $^3\text{He}$  が Fermi 縮退した温度領域ならばエントロピーは温度に比例するので、冷凍能力は  $T^2$  に比例する。

本研究で使用した冷凍機は、Oxford 社製の Kelvinox300 で、100 mK で約  $300\ \mu\text{W}$  の冷凍能力を持ち、希釈冷凍機単体での最低到達温度は 9 mK である。

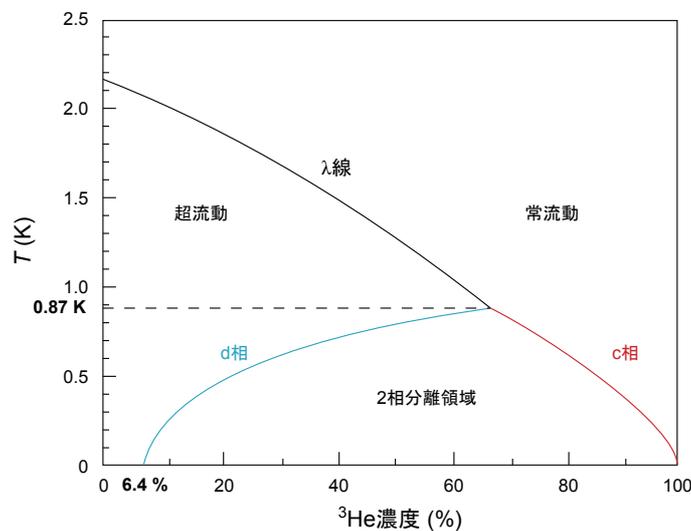


Fig.26  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  混合液の相図 [79]

## 2.2 温度測定

温度計は、測定物理量の温度依存性が既知であり、その関数形が簡単かつ温度変化が大きく検出が容易なものが望ましい。しかし超低温ではわずかな熱流入が温度上昇の原因になり、場合によっては温度の測定自体が系の温度上昇の原因になることがある。また超低温では試料と温度計の間の界面熱抵抗による熱緩和時間や温度差の増大などの困難が生じる。様々な種類の温度計があり、各々の測定原理によって測定に適した温度領域が違うため、通常は複数種類の温度計を装置に搭載し各温度領域をオーバーラップして最終的に系の温度を決定する。

本研究では  $^3\text{He}$  融解圧温度計 ( $1\text{mK} < T < 200\ \text{mK}$ )、抵抗温度計 ( $\text{RuO}_2$ 、炭素抵抗温度計) ( $T > 100\ \text{mK}$ ) を各温度領域で使用した。

### 2.2.1 $^3\text{He}$ 融解圧温度計

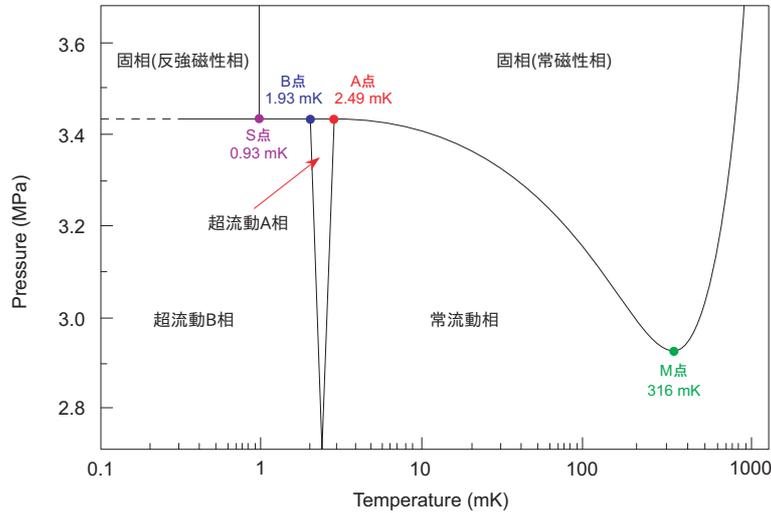


Fig.27  $^3\text{He}$  の  $T$ - $p$  相図 [80]。

Fig. 27 に  $^3\text{He}$  の  $T$ - $p$  相図を示す。 $^3\text{He}$  は質量が非常に軽く、ゼロ点振動が大きいために常圧では絶対零度においても液体状態を保ち、およそ 3.4MPa の圧力をかけると固化する。 $T$ - $p$  相図において、融解圧曲線が 318 mK に極小点を持ち低温側では負の勾配を持って大きく変化する。これは液体  $^3\text{He}$  は Fermi 液体状態でエントロピーが温度に比例して減少するのに対し、固体  $^3\text{He}$  は 1 mK 付近で反強磁性転移するまで核スピンの自由度による  $R\ln 2$  のエントロピーが残っていることに起因する。定積過程において  $^3\text{He}$  の状態は融解圧曲線に沿って変化するため、精度良く系の圧力測定ができれば高精度の温度測定が可能となる。

$^3\text{He}$  融解圧温度計 (MCT : Melting Curve Thermometer) は、セル内に高圧で封入した  $^3\text{He}$  の融解圧を容量型歪み圧力計を用いて測定し、その融解圧の温度依存性から温度を求める。Fig. 28 に典型的な MCT の内部構造を示す。融解圧力の校正は、融解圧曲線上の 4 つの温度定点、圧力極小点 (M 点 : 2.931 MPa、318 mK)、超流動 A 相転移点 (A 点 : 3.4338 MPa、2.491 mK)、超流動 B 相転移点 (B 点 : 3.4358 MPa、1.932 mK)、bcc 固体  $^3\text{He}$  の反強磁性転移点 (S 点 : 3.43905 MPa、0.931 mK) を用いることができる [81–83]。低温部の 3 つの温度定点 (A 点、B 点、S 点) では、相転移に伴う潜熱や比熱のとびを反映し、融解圧の時間変化に異常が観測されるため、温度変化の過程でこれらの点を発見することは容易である。

本研究では  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機のみで冷却を行っているため、実験で確認できる温度定点は M 点のみである。よって、温度校正は Ref. [82] 中で与えられた A 点を基準とする融解圧温度スケールを M 点基準に換算したものを使用した。

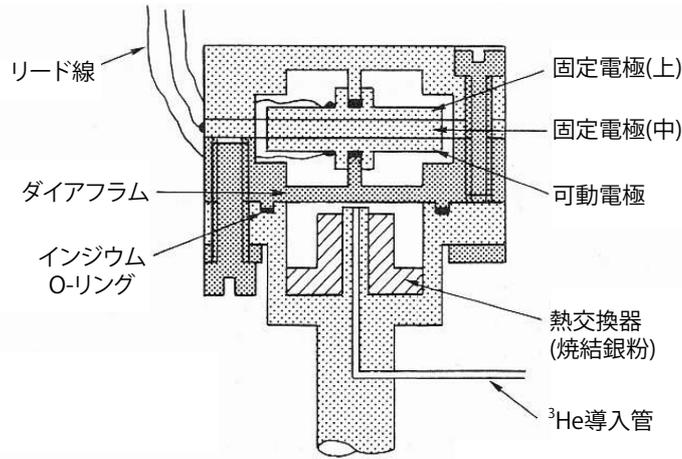


Fig.28 MCT の内部構造 [81]。

### 2.2.2 MCT の校正と温度測定

MCT は最低温度にいたっても  $^3\text{He}$  が融解圧曲線上に位置 (液体と固体が共存) していなければ温度測定ができない。また、 $^3\text{He}$  の固体は熱伝導度が  $T^3$  に比例して小さくなり、比熱はその核スピンのため温度低下に伴い  $T^{-2}$  で大きくなるので、セル内の固体が多いと被測定系と温度計の間の熱緩和時間が長くなり、正確な温度測定が困難になる。MCT への  $^3\text{He}$  の仕込み圧は絶対零度での固体の体積比が最小 ( $\leq 0.5\%$ ) となる 3.4 MPa 程度が良いとされている [81]。 $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機にある 1Kpot (循環する  $^3\text{He}$  を液化させる) は  $\sim 1.6\text{ K}$  の温度を保持しており、室温にある  $^3\text{He}$  ガスは MCT 本体に封入される道中で、1Kpot にアンカーされた部分で冷却され液化する。冷却した状態で MCT の使用圧力域である 2.9~3.5 MPa の圧力範囲において試料空間に圧力掃引してダイヤフラムのトレーニングを行った後、MCT の校正、及び  $^3\text{He}$  試料の仕込みを行った。本研究では MCT の圧力校正に水晶振動型圧力計を用い、を 3.4~3.43MPa の間で仕込んだ。

試料空間の圧力  $p$  とダイヤフラムの変位  $d$  の間にはほぼ線形式が成り立ち、 $p \propto d$  と表すことができる。電極間のキャパシタンス  $C$  と融解圧力  $p$  の関係は以下のように与えられる。

$$\frac{1}{C_{MCT}} = \frac{d_0 + \Delta d}{\epsilon S} = \alpha p + \beta \quad (2.1)$$

$\alpha$  はダイヤフラムの厚みや面積などによって決まる比例係数であり、 $d_0$  は大気圧下における電極間距離で圧力下では  $\Delta d$  変化する。1.6 K において、ガスハンドリングシステムの  $^3\text{He}$  圧力を変化させながら、MCT の静電容量を測定し、式 (2.1) でフィッティングを行うことによって  $\alpha$  と  $\beta$  の値が決定される。融解曲線上の M 点と他の温度との圧力差は Ref. [82] 中にある Greywall の式によって与えられ、式 (2.1) を用いて温度を求める。即

ち、M 点を基準にする場合

$$\frac{1}{C_{MCT}(p)} - \frac{1}{C_{MCT}(p = p_M)} = \alpha(p - p_M) \quad (2.2)$$

とすることで温度が一義的に決まる。

本研究では静電容量の測定に、エヌエフ回路設計ブロック社製の 2 相ロックインアンプ LI5640 もしくは 5610B、サンジェム社製ディケード変成器 Type 6415-A、YOKOGAWA の可変抵抗器 2793 および標準キャパシタンス (dipped silvered mica : 1Kpot に設置) を組み合わせた三端子キャパシタンスブリッジを使用した。ブリッジの概略図を以下に示す。測定は入力信号 0.5 または 1.0 V<sub>pp</sub>、交流周波数 1.19291 kHz の下で行った。

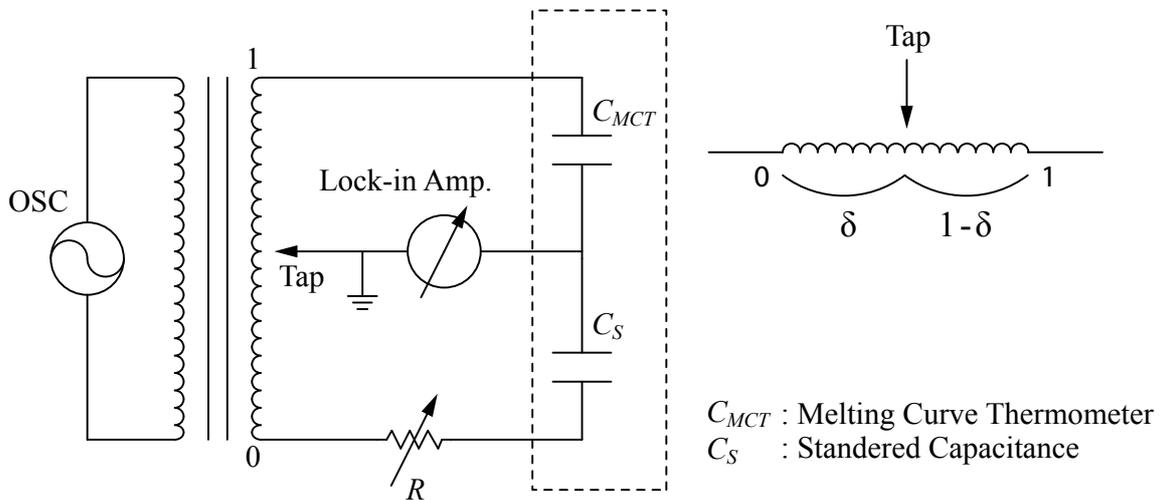


Fig.29 三端子キャパシタンスブリッジの理想的回路図。図中、破線で囲まれた部分がクライオスタット内に設置されている。 $C_s$  および  $C_{MCT}$  はそれぞれ標準キャパシタンス、MCT である。

Fig. 29 に示した理想的な回路の下で、入力信号を  $V_i$ 、レシオトランスの設定値を  $\delta$  としたときのロックインアンプへの出力信号を  $V_o$  とすると

$$\frac{V_o}{V_i} = \frac{C_{MCT}\delta + C_s(\delta - 1)}{C_{MCT} + C_s} \quad (2.3)$$

の関係が導かれる。これから三端子キャパシタンスとレシオトランスがバランスした時 ( $V_o = 0$  の時)、次式が成立する。

$$\frac{C_{MCT}}{C_s} = \frac{\delta}{1 - \delta} \quad (2.4)$$

最終的に求めたい M 点との圧力差  $p - p_M$  [MPa] は式 (2.4) と式 (2.2) より以下の式から求まる。実際に行った校正では  $\alpha \sim -0.3$  であった。

$$p - p_M = \frac{1}{\alpha} \left( \frac{1 - \delta}{\delta} - \frac{1 - \delta_M}{\delta_M} \right) \quad (2.5)$$

### 2.2.3 炭素抵抗温度計

電子回路に使用される炭素抵抗はグラファイトと黒鉛の粉を固めて作られており、抵抗の温度依存性は半導体のように  $\exp(\Delta E/T)$  に従い、温度低下により抵抗は増加する。炭素抵抗温度計は低温での感度が良い、安価で入手しやすい、小型であるなど利点も多い。よく使用されるものは、アランプラッドレー社製や松下電器製が多い。特に松下電器製のものは 1 K 以下の極低温で数 k $\Omega$  を出しやすいためよく使用される。本研究では松下電器の抵抗 50  $\Omega$  を使用し、測定には PICOWATT 社製の AC 抵抗ブリッジ AVS-47 を用いた。

## 2.3 極低温高磁場測定装置

超低温もしくは極低温実験において、ヒートリークや熱伝導に関する実験上の困難があるが、高磁場を伴う実験の場合、特に極低温以下の温度領域では、さらに以下に述べる問題が生じる。磁場 Sweep を行う実験では、渦電流発熱による系の温度上昇が懸念され、それによる試料と温度計の間の温度差が無視できなくなる場合がある。また、一般的に数 K、数 T の低温高磁場下では磁場による温度測定の誤差が数 % に達するため、精度の高い測定が行えるよう幾つかの工夫が必要になる。本研究では、極低温以下の領域でも 9.5 T まで磁場印加可能で高精度な温度測定ができる装置を製作した [84]。冷凍機および実験装置の全体図を Fig. 30 に示す。図は大まかに  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機本体部分、Thermal link・温度計・超低温実験空間、高磁場実験空間の 3 つの部分に分かれている。Fig. 30 はサンプルセルを装置の先端に取り付け、最低到達温度 9 mK、最大印加磁場 9.5 T の多重極限環境での物性測定に対応したセットアップである。装置の先端はサンプルセルを磁場に平行方向と垂直方向に取り付け可能である。磁場印加には、クライオマグネティクス社製の 9.5 T 超伝導マグネット (NbTi)、シグマ電子株式会社製の安定化定電流電源 SMR-80 と SMR-10 を使用した。マグネットの中心磁場  $B(\text{T})$  と電流値  $I(\text{A})$  は次の関係にある。

$$B(\text{T}) = \frac{9.5}{78.5} \times I(\text{A}) \quad (2.6)$$

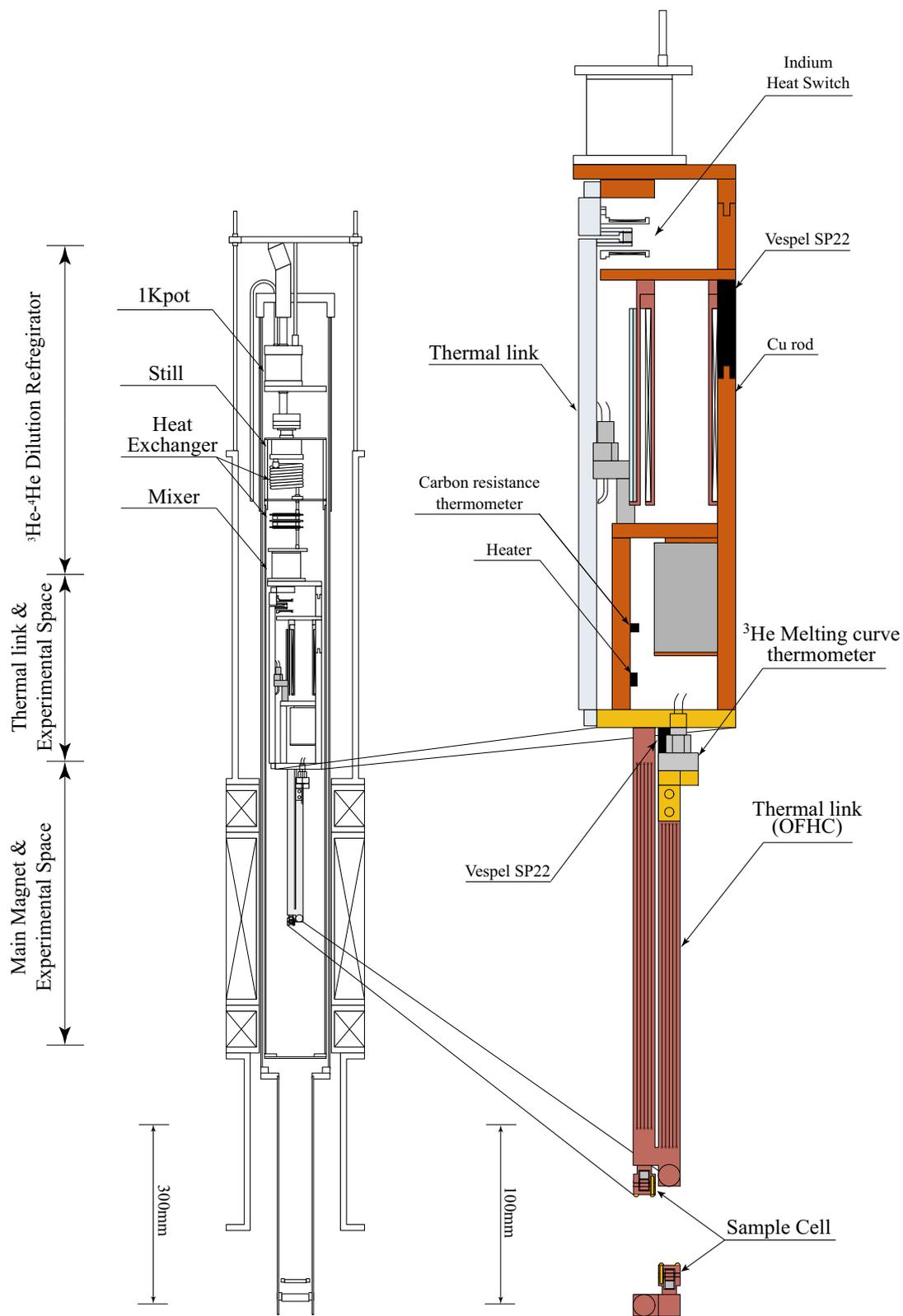


Fig.30 実験装置の全体図。右図は全体図中の実験ステージを3倍スケールに拡大したもの。

### 2.3.1 実験空間の熱伝導と温度差

$^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機本体および実験空間は断熱真空中に設置されているが、冷媒である液体  $^4\text{He}$  温度 4.2 K および輻射シールドなどからの輻射が存在する。従って、試料を冷却するためには冷凍機の最低温度部である Mixer と実験空間の間には高い熱伝導性が必要である。

そこで実験空間の材質のほとんどは無酸素銅 (OFC) を使用し、さらに熱伝導率を上げるため残留抵抗比 (RRR)=3000 程度までアニール処理を行った。金属の熱伝導はウィーデマン・フランツ則  $k/\sigma = L_0 T$  で与えられる。 $k$  は熱伝導率 [ $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ]、 $\sigma$  は電気伝導率  $\Omega^{-1} [\text{m}^{-1}]$ 、 $L_0 = 2.44 \times 10^{-8}$  はローレンツ数 [ $\text{W}\Omega\text{K}^{-2}$ ]、 $T$  は温度 [K] である。アニールされた OFC の電気抵抗測定から 20 mK における熱伝導率は  $k = 81.45 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  と見積もられる [85]。更に、各部品同士の接触部分は接触熱抵抗を抑えるために金メッキした。

温度勾配と熱流量の関係は以下の式で表される。

$$\dot{Q} = \frac{S}{L} \int_{T_2}^{T_1} k(T) dT \quad (2.7)$$

$S$  は熱流の断面積 [ $\text{mm}^2$ ]、 $L$  は温度差間の長さ [m]、 $T_1$ 、 $T_2$  は温度 [K] である。従って、Thermal link における  $\Delta x$  離れた試料と温度計の間の温度差  $\Delta T$  は以下の式で与えられる。

$$\Delta T = -\frac{\dot{q}}{kS} \Delta x \quad (2.8)$$

$\dot{q}$  は熱量 [W]、 $k$  は熱伝導率 [ $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ ]、 $S$  は熱が伝導する断面 [ $\text{m}^2$ ] である。ただし、温度差が十分に小さいため、 $k$  の温度依存性は無視した。

ここで零磁場での 20 mK における試料と温度計の間の温度差を見積もる。試料と温度計を繋ぐ Thermal link が約 2.13 mol、銅の電子比熱が  $C_e = 1.39 \times 10^{-5} \text{ Jmol}^{-1}\text{K}^{-1}$  であるから Thermal link の熱容量は約  $2.96 \times 10^{-5} \text{ J/K}$  である。なお温度計自身の熱容量は無視している。熱膨張測定より温度計の温度上昇の勾配が約  $2.6 \mu\text{K/sec}$  であるとき、温度計に流入している熱量は  $\dot{q} = 77 \text{ pW}$  程度である。従って、Thermal link の断面が  $1.14 \times 10^{-4} \text{ m}^2$ 、試料と温度計の距離は 0.23 m であるから温度差は  $\Delta T = 1.9 \text{ nK}$  だと見積もられる。これは 20 mK の温度に対して十分に小さく、温度差は無視できる。

### 2.3.2 渦電流によるヒートリーク

超低温ではフォノンによる比熱はほぼ無視でき、伝導電子が寄与する小さな比熱しか残っていないため、磁場変動による導体内で発生する渦電流は系の温度上昇をまねいてしまう。以下に実験に際して影響される渦電流による発熱とその対策を述べる。

一般的に円柱状の渦電流による発熱  $\dot{Q}[W]$  は  $\dot{Q} = \pi r^4 l \dot{B}(t)^2 / 8\rho$  の式で与えられる。 $r$  は円柱の半径 [m]、 $l$  は円柱の長さ [m]、 $\rho$  は電気抵抗率 [ $\Omega \cdot m$ ]、 $B$  は磁束密度 [T]、 $t$  は時間 [sec] である。従って渦電流発熱を抑えるには、磁束が貫く断面積と磁場が侵入する円柱の長さを小さくし、磁場印加速度を遅くすればよい。

Fig. 31 は装置と磁場分布の関係を示しているが、磁場を強く受けるのはサンプルセルと、Thermal link である。Thermal link は熱伝導を上げるためアニール処理を行った結果、電気伝導率も上がるため  $\dot{Q}[W]$  も大きくなってしまう。そこで  $\dot{Q}[W]$  をなるべく小さくするため、断面積を保ったまま  $r$  が小さくなるようスリット加工を施してある。Thermal link の断面はスリット加工によって 6 本の矩形状になっており、断面が矩形状の場合の渦電流による  $\dot{Q}[W]$  は以下の式で与えられる。

$$\dot{Q} = \frac{l}{16\rho} \frac{a^3 b^3}{a^2 + b^2} \dot{B}(t)^2 \quad (2.9)$$

$a$  と  $b$  は矩形状の縦と横の長さである。磁場分布から求まる Thermal link の有効長は左右でそれぞれ 135 mm、121 mm であり、磁場印加速度を  $2 \times 10^{-5} [T/sec]$  としたとき、渦電流発熱を見積もると  $\dot{Q} = 1.4 \text{ nW}$  程度である [85]。また 2.4.3 でも述べるがサンプルセルは円柱状をしており、同じ磁場印加速度でのサンプルセルの発熱は  $\dot{Q} = 52 \text{ pW}$  程度である。試料である  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は 4 mm 角程度の大きさで、試料自身の発熱を見積もると  $\dot{Q} = 0.026 \text{ pW}$  程度で無視できる大きさである。試料はサンプルセルに接着されており、試料に対するヒートリークの大部分は Thermal link からの熱流入によるものと考えられる。

Fig. 32 は 100 mK における磁場印加速度と渦電流による試料と MCT の温度上昇  $\Delta T$  の様子を時間プロットしたものである。試料の  $\Delta T$  は温度上昇した磁歪データから、渦電流の影響が無視できる  $0.02 \text{ mT/sec}$  の磁場印加速度の磁歪データを差し引き、試料の 100 mK における熱膨張係数を使って算出した。試料-MCT 間の温度差  $\Delta T$  は図中の Sample と MCT のプロットの差であり、100 mK において  $0.2 \text{ mT/sec}$  以上の磁場印加速度では  $\Delta T \sim$  数 mK に達し、(2.3.1) 項で述べた温度差と比べて渦電流による影響が非常に大きいことがわかる。Fig. 31 より MCT は十分に小さい磁場強度に位置しているが、試料は中心磁場にあるため試料近傍に局所的に発生した  $\dot{Q}$  の影響をより強く受けていると考えられる。

$^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機の冷凍能力は  $T^2$  に比例して小さくなるため、最低温付近では磁場印加速度を非常に遅くしなければならない。本研究で行った磁歪測定では、測定温度にもよるが 9 mK から 200 mK の温度範囲で  $0.2 \sim 8 \times 10^{-5} [T/sec]$  の間で磁場印加した。

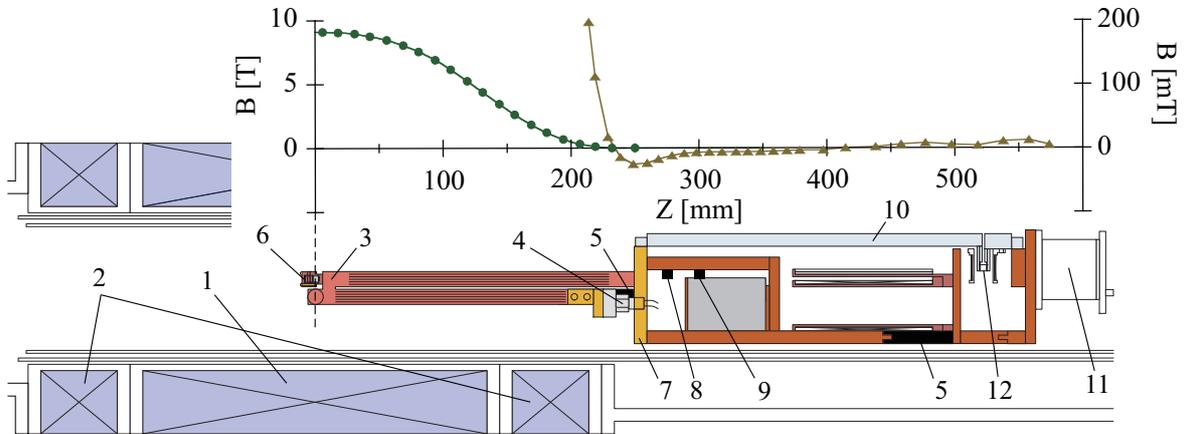


Fig.31 中心磁場 9 T を印加した場合の装置の磁場分布図 [84]。補償コイルによって MCT が設置されている位置で磁場は十分に減衰し、温度計への影響は無視できる。図中の番号は 1. Magnet コイル、2. 補償コイル、3. Thermal link(OFC)、4. MCT、5. Vespel SP22、6. サンプルセル、7. 実験ステージ、8. 炭素抵抗温度計、9. ヒーター、10. Thermal link(Ag)、11. Mixer、12. Indium ヒートスイッチ。

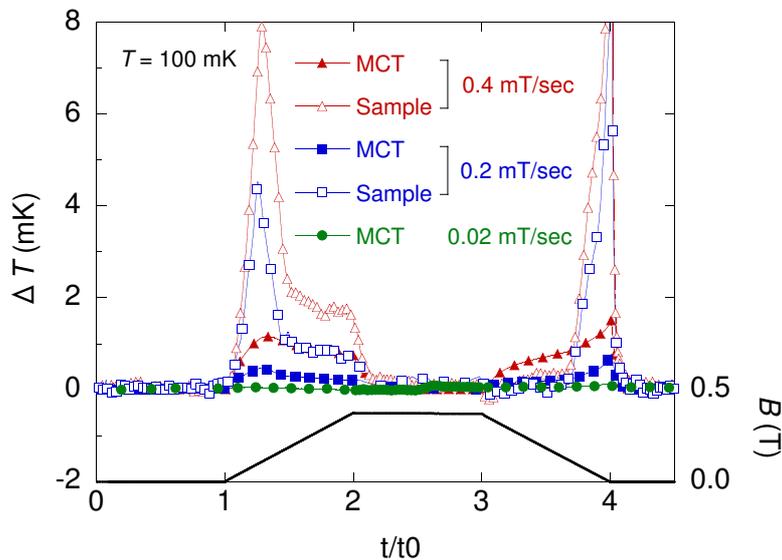


Fig.32  $T=100$  mK における磁場印加速度と渦電流による試料と MCT の温度上昇の時間プロット。縦軸に温度上昇  $\Delta T$ 、横軸は時間を規格化してある。

### 2.3.3 温度計の磁場依存性

磁場印加によって、温度測定にも磁場の影響が現れる。mK 領域で使用できる温度計では超伝導転移点をもつ1次温度計の場合は温度定点が磁場に依存するし、磁気相転移点を持つ場合も同様である。また伝導電子は磁場でローレンツ力による磁気抵抗効果が生じるため、磁場中測定では磁場の影響を考慮する必要がある。MCTは固体<sup>3</sup>Heが磁気転移点(S点)を持つが、10mK以上であれば磁場依存性は小さく、25 mKでも磁場5 Tにおいて $\delta T/T = 2\%$ 程度である[86]。

よく使用される各種温度計の磁場依存性について表2にまとめた。抵抗温度計は測定範囲が広く低温で感度も良いが、1 K程度ですでに数%の誤差がでてしまう。一々各磁場中で校正を行っていけば使用できるが、ゲルマニウム抵抗温度計のように磁場依存性が大きいものは正確度が落ちる。一方、キャパシタンス温度計は磁場の影響をほとんど受けないのが利点である。しかし、キャパシタンス温度計は室温までの熱履歴によって温度応答特性に若干の変化が起こるため、低温まで冷却するたびに校正が必要である。またキャパシタンスの誘電特性としてキャパシタンスのドリフトが起こるため、長期間の測定に向かない。他にも磁場方向に依存したり再現性の低下など、基本的にmK領域で温度計を磁場中において使用するべきでない。

本研究ではFig. 31に示すように、使用した温度計はすべて中心磁場が9 Tの場合でも10 mT程度以下の磁場強度位置に設置しており、基本的に磁場による影響は無視できる。

温度計	温度 (K)	$\Delta T/T(\%)$			
		2 T	5 T	8 T	18.7 T
MCT	0.025	2			
RuO <sub>2</sub>	0.025	15-120			
	2	-0.13		-2.2	
炭素抵抗 (アランブラッドレー)	2	-0.13		-2.2	
Cernox(CX-1050)	2	1.3		3.1	
ゲルマニウム抵抗	2	-8		-60	
キャパシタンス温度計 (CS-501R)	4.2				-0.15

表2 各種温度計の磁場による温度測定誤差 [79, 86–88]

## 2.4 熱膨張・磁歪

### 2.4.1 熱膨張係数

熱力学において体積熱膨張係数  $\alpha_V$  は以下の式で定義される。

$$\alpha_V = \frac{1}{V} \left( \frac{\partial V}{\partial T} \right)_p \quad (2.10)$$

ここで  $p$ 、 $V$ 、 $T$  はそれぞれ圧力、体積、温度である。 $\alpha_V$  の単位は  $[\text{K}^{-1}]$  である。自由エネルギー  $F$  と Maxwell の関係式を用いると式 (2.10) は以下のように表され、 $\alpha_V$  がエントロピーの圧力依存性に関係していることがわかる。

$$\alpha_V = \frac{1}{V} \left( \frac{\partial^2 F}{\partial T \partial p} \right) = -\frac{1}{V} \left( \frac{\partial S}{\partial p} \right)_T \quad (2.11)$$

### 2.4.2 磁歪係数

熱力学において体積磁歪係数  $\lambda_V$  は以下の式で定義される。

$$\lambda_V = \frac{1}{V} \left( \frac{\partial V}{\partial B} \right)_p \quad (2.12)$$

ここで  $B$  は磁束密度  $[\text{T}]$  である。 $\lambda_V$  の単位は  $[\text{T}^{-1}]$  である。式 (2.12) を Maxwell の関係式を用いて変形すると以下のようになり、 $\lambda_V$  が磁化  $M = m/V$  ( $m$  は磁気モーメント) の圧力依存性に比例していることがわかる。

$$\lambda_V = \frac{1}{V} \left( \frac{\partial^2 F}{\partial B \partial p} \right) = -\frac{1}{V} \left( \frac{\partial m}{\partial p} \right)_B = -\left( \frac{\partial M}{\partial p} \right)_B \quad (2.13)$$

$M = \chi H = \chi B / \mu_0$  を代入すると

$$\lambda_V = -\left( \frac{\partial \chi}{\partial p} \right)_B \frac{B}{\mu_0} \quad (2.14)$$

となり、 $\chi$  が  $B$  に依存しない場合、 $\lambda_V$  は  $B$  に線形であることが導かれる。

### 2.4.3 キャパシタンス式膨張計

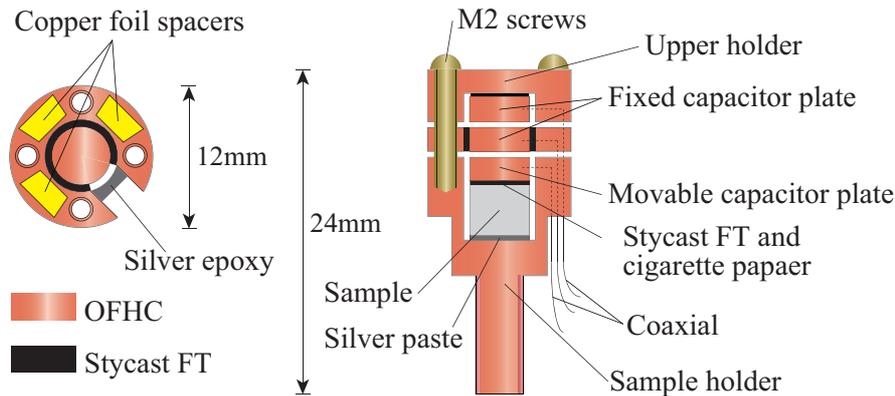


Fig.33 熱膨張・磁歪測定用サンプルセル [89]。

熱膨張・磁歪測定はキャパシタンス法を用いた。キャパシタンス法は試料の伸縮を静電容量変化で検出する、膨張計の中でも極めて高感度・高分解能な測定方法である。測定原理的に小型化しやすく、試料への測定による発熱は小さいため、実験空間が制限された低温実験でよく用いられる。

熱膨張・磁歪測定に用いたサンプルセルの構造を Fig. 33 に示す。サンプルセルは試料キャパシタと標準キャパシタからなる三端子キャパシタ構造をとり、上蓋と中蓋と下蓋の3つのパーツで構成される。上蓋は固定極板 (Fixed Capacitor Plate) 及び固定極板が接着された上蓋ホルダー (Upper Holder) からなる。中蓋は固定極板を接着する中蓋ホルダー (Middle Holder) からなる円盤状である。下側は試料を接着する下蓋ホルダー (Lower Holder)、試料及び試料に接着した可動極板 (Movable Capacitor Plate) から構成される。各極板は外径 5 mm、厚み 2 mm のサイズで、接地された各 Holder は極板とそれぞれ 0.5 mm の距離をとってガードリングとして働き、極板のエッジ効果を抑えた。サンプルセルの主要な部分は熱伝導を考慮して高純度無酸素銅 (OFHC) を材質としている。試料と下蓋の接着も熱伝導の良い銀ペースト (Arzerite VL-10) を使用した。極板と上蓋・中蓋ホルダー、試料と極板の接着には電氣的に絶縁するため Stycast 2850FT を使用した (念のため Stycast の間にシガレットペーパーを挟んだ)。Stycast の厚みは多少ばらつきがあるが約 0.1 mm である (そのうちシガレットペーパーの厚みは 40  $\mu\text{m}$  である)。また、極板同士でショートしないようホルダー間にスペーサーを挟む必要がある。スペーサーの厚みは試料の熱膨張係数・磁歪係数を考慮しなければならない。参考として Fig. 34 に  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  試料の  $a$  軸、 $c$  軸の熱膨張と、サンプルセルの材質に使用した Cu、Stycast FT の線熱膨張

$\Delta L(T)/L$  を示す。本研究で製作したサンプルセルは極板間距離がおよそ  $9 \mu\text{m}$  より近づくと  $\tan\delta$  が急激に大きくなり測定できなくなるため、1 K 付近で極板間が  $15 \mu\text{m}$  程度になるようスペーサーとして  $10\sim 20\mu\text{m}$  の銅箔を使用した。スペーサーは対向する極板の片側にワニス (GE7031) で接着した。そのため、各ホルダー・極板は同一平面になるようあらかじめ紙ヤスリ (1500 番まで) で研磨した。静電容量を測定する同軸ケーブルは蓋の断面に入れた溝から、極板の側面にあけた直径 1 mm の穴に通し、同軸ケーブルの接着には熱伝導よりも強度を優先させ銀ペーストの Ecobond 56C を使用した。

本研究で使用するサンプルセルは試料と極板、ホルダーを接着するため、複数の試料を一つのサンプルセルで使い回せず試料ごとに製作する必要がある。従って、サンプルセルには少なからず個体差がある。

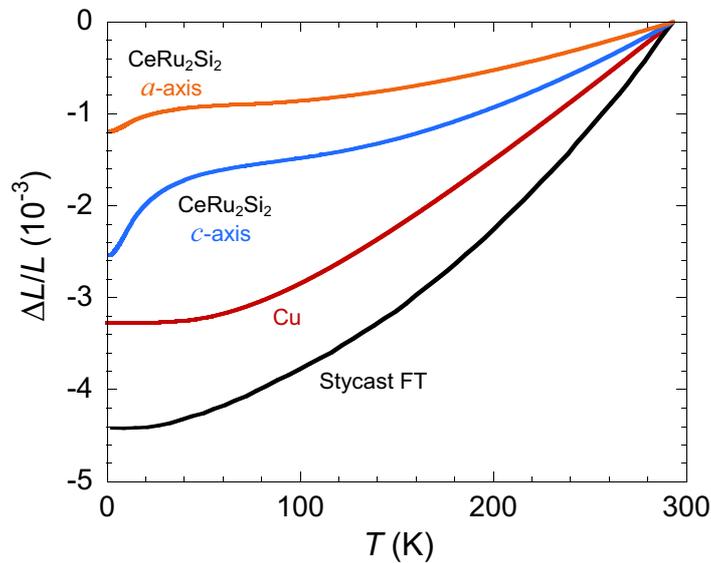


Fig.34 CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の a 軸、c 軸、Stycast2850FT、Cu の 300 K から極低温までの線熱膨張 [50,90]。ΔL/L の基準は 293 K である。

## 2.5 Cell effect

キャパシタンス法による膨張測定では試料長変化  $\Delta L$  によって極板間が変化し、静電容量変化  $\Delta C$  を直接検出する。極板面積  $S$ 、極板間隔  $d$  の理想的な平行平板コンデンサーが真空中にあるときの静電容量は、真空の誘電率を  $\epsilon_0$  として

$$C = \epsilon_0 \frac{S}{d} \quad (2.15)$$

で表される。極板間隔が  $\Delta d$  変化したときの静電容量  $C + \Delta C$  は

$$C + \Delta C = \epsilon_0 \frac{S}{d + \Delta d} \quad (2.16)$$

となるから、 $\Delta d \ll d$  のとき、静電容量の変化率  $\Delta C/C$  と極板間隔  $d$  の関係は以下の式で近似される。

$$\frac{\Delta C}{C} = \frac{d}{d + \Delta d} - 1 \simeq -\frac{\Delta d}{d} \quad (2.17)$$

試料長変化は  $\Delta L = -\Delta d$  であるから、膨張率と静電容量の関係は理想的には次式で表される。

$$\frac{\Delta L}{L} = -\frac{d}{L} \frac{\Delta d}{d} = \frac{d}{L} \left( \frac{\Delta C}{C} \right) \quad (2.18)$$

しかし、実際の測定では試料以外のサンプルセル自身の伸縮等が、**Back ground** として寄与するためこれを評価する必要がある。Fig. 35 にサンプルセルの断面図を示す。図中の A 軸と B 軸の伸縮の差が実際の静電容量の変化として測定される。まず、試料キャパシタンス  $C_X$  について考える。図中に示した各部の長さが微小変化したときの試料キャパシタンスの極板間距離の変化  $\Delta d_X$  は、

$$\Delta d_X = (\Delta l_{sp} + \Delta l_{holder}) - (\Delta l_{sty} + \Delta l_p + \Delta L_{sample})$$

である。次に Stycast2850FT、Cu、試料それぞれの試料長変化を  $\left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{sty}$ 、 $\left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{Cu}$ 、 $\left(\frac{\Delta L}{L}\right)_{sample}$  とすると、

$$\Delta d_X = \left( \left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{Cu} l_{sp} + \left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{Cu} l_{holder} \right) - \left( \left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{sty} l_{sty} + \left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{Cu} l_p + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)_{sample} L_{sample} \right) \quad (2.19)$$

に変形できる。各極板とホルダーが同一平面にあるときは  $l_{holder} - l_p = L_{sample} + l_{sty}$  であり、 $\Delta d_X \ll d_X$  の微小変化では  $-\Delta d_X/d_X \simeq \Delta C_X/C_X$  と近似できるから、

$$\frac{\Delta C_X}{C_X} \simeq -\frac{\Delta d_X}{d_X} = \frac{L_{sample}}{d_X} \left( \left(\frac{\Delta L}{L}\right)_{sample} - \left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{Cu} \right) - \frac{(l_{sty} + l_{sp})}{d_X} \left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{Cu} + \frac{l_{sty}}{d_X} \left(\frac{\Delta l}{l}\right)_{sty} \quad (2.20)$$

となる。上式の第2項と第3項の和は試料以外の変化に寄るから **Back ground** あるいは **Cell effect** と呼ばれ、試料キャパシタンスの変化率  $\Delta C_X/C_X$  は以下のように表される。

$$\frac{\Delta C_X}{C_X} \approx \frac{L_{sample}}{d_X} \left( \left( \frac{\Delta L}{L} \right)_{sample} - \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{Cu} \right) + \left( \frac{\Delta C}{C} \right)_{Cell} \quad (2.21)$$

**Cell effect** はサンプルセルと同材質を試料とすることで測定できる。すなわち試料が OFHC の場合は以下の式の通りである。

$$\begin{aligned} \frac{\Delta C_X}{C_X} &\approx \frac{L_{sample}}{d_X} \left( \left( \frac{\Delta L}{L} \right)_{Cu} - \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{Cu} \right) + \left( \frac{\Delta C}{C} \right)_{Cell} \\ &= 0 + \left( \frac{\Delta C}{C} \right)_{Cell} \\ &= \left( \frac{\Delta C}{C} \right)_{Cell} \end{aligned} \quad (2.22)$$

標準キャパシタンス  $C_S$  についても、標準キャパシタンスの極板間距離の変化  $\Delta d_S$  から、以下の式が導出される。

$$\frac{\Delta C_S}{C_S} \approx -\frac{\Delta d_S}{d_S} = -\frac{(l_{sty} + l_{sp})}{d_S} \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{Cu} + \frac{l_{sty}}{d_S} \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{sty} \quad (2.23)$$

ここで  $d_X = d_S$  の場合、**Cell effect** は標準キャパシタンスの変化と等しくなり、試料長変化は以下の様に表される。

$$\left( \frac{\Delta L}{L} \right)_{sample} - \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{Cu} = \frac{d_X}{L_{sample}} \left( \frac{\Delta C_X}{C_X} - \frac{\Delta C_S}{C_S} \right) \quad (2.24)$$

このとき、Cu の熱膨張  $(\Delta l/l)_{Cu}$  は 1 K 以下で  $10^{-10}$  以下のオーダーで変化し、十分に小さく無視できる。

しかし、実際には  $d_X$  と  $d_S$  は一致しておらず **Cell effect** を完全に打ち消すことはできない。実際の測定から得られる標準キャパシタンスを  $C'_S$ 、膨張の基準となる極板間距離が  $d = d_S = d_X$  の理想的な場合を  $C_S$  とし、 $C'_S$  と  $C_S$  の極板間距離の差を  $\delta_d = d'_S - d$  とすると  $C'_S$  は  $\Delta d_S \ll d_S$  のとき以下の様になる。

$$C'_S = \frac{\epsilon_0 S}{d'_S} = \frac{\epsilon_0 S}{(d + \delta_d)} \quad (2.25)$$

$$\begin{aligned} \frac{\Delta C'_S}{C'_S} &\approx -\frac{\Delta d_S}{d + \delta_d} \\ &= \frac{\Delta C_S}{C_S} \frac{1}{1 - \delta_d \Delta C_S / C_S \Delta d_S} \end{aligned} \quad (2.26)$$

$\Delta C'_S/C'_S$  を  $\delta_d$  の二次まで展開して

$$\frac{\Delta C'_S}{C'_S} = \frac{\Delta C_S}{C_S}(1 + \delta) \quad (2.27)$$

$$= \frac{\Delta C_S}{C_S} \left( 1 - \frac{d'_S - d}{d} + \left( \frac{d'_S - d}{d} \right)^2 \right) \quad (2.28)$$

従って、試料キャパシタンスと標準キャパシタンスの変化率の差は以下の式で表される。

$$\begin{aligned} \frac{\Delta C_X}{C_X} - \frac{\Delta C'_S}{C'_S} &= \frac{L_{sample}}{d} \left( \left( \frac{\Delta L}{L} \right)_{sample} - \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{Cu} \right) - \frac{(l_{sty})_X - (l_{sty})_S}{d} \left( \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{sty} - \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{Cu} \right) \\ &\quad + \frac{(l_{sp})_X - (l_{sp})_S}{d} \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{Cu} + \frac{\Delta C_S}{C_S} \left( \frac{d'_S - d}{d} - \left( \frac{d'_S - d}{d} \right)^2 \right) \end{aligned} \quad (2.29)$$

第2項、第3項はそれぞれ試料キャパシタ側と標準キャパシタ側の **Stycast** とスペーサーの厚みの差からくる項で、第4項は試料キャパシタ側と標準キャパシタ側の極板間距離の差から影響する項である。第2項、第3項は第4項に比べて一桁かそれより小さく無視できると考えてよいので、試料の膨張率は

$$\begin{aligned} \frac{\Delta L}{L} - \left( \frac{\Delta l}{l} \right)_{Cu} &= \frac{d}{L} \left( \frac{\Delta C_X}{C_X} - \frac{\Delta C'_S}{C'_S} + \delta \frac{\Delta C_S}{C_S} \right) \\ &= \frac{d}{L} \left( \frac{\Delta C_X}{C_X} - \frac{\Delta C'_S}{C'_S} \right) - \frac{\Delta d_S}{L} \left( \frac{d'_S - d}{d} - \left( \frac{d'_S - d}{d} \right)^2 \right) \end{aligned} \quad (2.30)$$

から得られる。式 (2.29) の第4項に対する見積もりは (3.1.1) 節にて述べる。

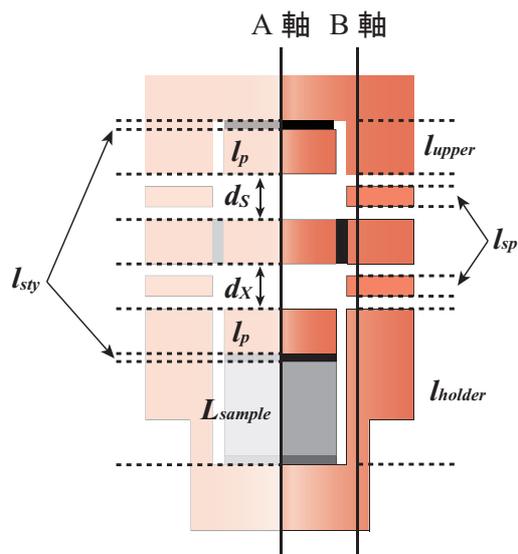


Fig.35 サンプルセルの伸縮に関する図。 $d$  : 極板間距離、 $l_p$  : 極板の厚さ、 $l_{sty}$  : Sty-cast2850FT の厚さ、 $L_{sample}$  : 試料長、 $l_{sp}$  : 銅スペーサー厚み、 $l_{holder}$  : 下蓋の深さ、 $l_{upper}$  : 上蓋の深さ。

### 2.5.1 キャパシタンスブリッジ回路

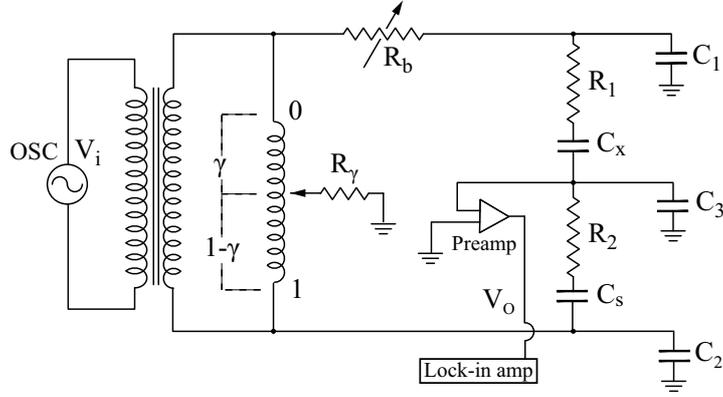


Fig.36 キャパシタンスブリッジの回路図

静電容量変化を高精度に測定することができるキャパシタンス交流ブリッジ回路を Fig. 36 に示す。入力電圧  $V_i$  に対する出力電圧  $V_o$  の比は以下の式で与えられる [91]。

$$\frac{V_o}{V_i} = \frac{(r-1)C_X + rC_S}{C_X + C_S + C_3} - j\omega R_r \frac{C_X + C_S}{C_X + C_S + C_3} ((r-1)C_1 + rC_2) \quad (2.31)$$

$V_o$  はロックインアンプにより殆ど実数成分だけが取り出されるから、ブリッジがバランスするとき ( $V_o = 0$ ) 試料キャパシタンス  $C_X$ 、標準キャパシタンス  $C_S$ 、レシオの値  $\gamma$  の間に、

$$\frac{C_X}{C_S} = \frac{\gamma}{1-\gamma} \quad (2.32)$$

が成り立つ。静電容量が  $C_X$  から  $C_X + \Delta C_X$ 、 $C_S$  から  $C_S + \Delta C_S$  に微小変化したときの  $\gamma$  の値を  $\gamma + \Delta\gamma$  とおくと、

$$\frac{C_X + \Delta C_X}{C_S + \Delta C_S} - \frac{C_X}{C_S} = \frac{\gamma + \Delta\gamma}{1 - (\gamma + \Delta\gamma)} - \frac{\gamma}{1 - \gamma}$$

となる。従って、 $\Delta\gamma \ll 1 - \gamma \sim 0.5$  のとき

$$\begin{aligned} \frac{\Delta C_X}{C_X} - \frac{\Delta C_S}{C_S} &= \frac{1-\gamma}{\gamma} \left[ \frac{\gamma + \Delta\gamma}{1 - (\gamma + \Delta\gamma)} - \frac{\gamma}{1 - \gamma} \right] \\ &\approx \frac{\Delta r}{\gamma(1-\gamma)} \end{aligned} \quad (2.33)$$

を得る。これより実験的に求まる試料の膨張率  $\Delta L/L$  は以下の式より導出され、これは式 (2.30) の第 1 項に相当する。

$$\frac{\Delta L}{L} = \frac{d}{L} \frac{\Delta\gamma}{\gamma(1-\gamma)} \quad (2.34)$$

実際の実験ではレシオトランスフォーマーの設定値  $\gamma$  は固定されているため、試料の伸縮によるオフバランス電圧の変化を測定し、データ解析時にバランスレシオの変化に換算して  $\Delta L/L$  を導出する。

測定にはエヌエフ回路設計ブロック社製の 2 相ロックインアンプ LI5640、サンジェム社製ディケード変成器 Type 6415-A、YOKOGAWA の可変抵抗器 2793 を使用した。Oscillator は LI5640 の内部発信機を利用し、入力信号は  $2.0 V_{pp}$ 、発信周波数および参照周波数 1.6158 kHz の下で測定を行った。測定の際のオフバランス  $\delta$  は 0.45~0.55 の間で変化し、 $R_b$  は約  $2\Omega$  であった。

(2.4.3) 項のキャパシタンス式膨張計とキャパシタンスブリッジ法を用いた結果、試料の伸縮率  $\Delta L/L$  を 1 K 以下において  $\sim 10^{-10}$  オーダーの高精度で測定が可能となった [84]。

## 2.6 熱膨張・磁歪係数の導出方法

熱膨張係数、磁歪係数は試料長変化  $\Delta L/L$  をそれぞれ温度  $T$ 、磁場  $B$  で微分して導出する。しかし実験データ  $(x_i, y_i)$  に対して  $dy/dx|_{x_i} = (y_{i+1} - y_i)/(x_{i+1} - x_i)$  のようにそのまま差分をとる数値微分は、 $x_{i+1} - x_i$  が微小であるとき、僅かなデータのばらつきが微分の結果に大きく影響する。そこで本研究では最小二乗法によるフィッティングを利用して数値微分を行った。一般的な  $N$  次多項式をモデル関数とし、行列を用いて表すと以下の様になる。

$$\begin{aligned} f(x) &= \sum_{k=1}^M a_k X_k(x) \\ &= (X_1(x), X_2(x), \dots, X_k(x), \dots, X_M(x))(a_1, a_2, \dots, a_k, \dots, a_M)^T \\ &= (X_1(x), X_2(x), \dots, X_k(x), \dots, X_M(x)) \mathbf{a} \end{aligned} \quad (2.35)$$

$\mathbf{a}$  は係数  $a_k$  を要素とした行ベクトルの転置行列で、 $\mathbf{a} = (a_1, a_2, \dots, a_k, \dots, a_M)^T$  である。測定で得られた  $x$ 、 $y$  のデータ対  $N$  個を  $(x_1, y_1), (x_2, y_2), \dots, (x_i, y_i), \dots, (x_N, y_N)$  とするとモデル関数に対するデータの分散  $\chi^2$  は

$$\begin{aligned} \chi^2 &= \sum_{i=1}^N \left( \sum_{k=1}^M a_k X_k(x_i) - y_i \right)^2 \\ &= (\mathbf{X}\mathbf{a} - \mathbf{y})^T (\mathbf{X}\mathbf{a} - \mathbf{y}) \end{aligned} \quad (2.36)$$

となる。 $\mathbf{X}$  は  $X_k(x_i)$  を要素とする  $N \times M$  行列である。また  $\mathbf{y}$  は  $\mathbf{y} = (y_1, y_2, \dots, y_k, \dots, y_N)^T$  である。 $\chi^2$  が最小値をとる条件は、 $\partial \chi^2 / \partial a_k = 0$  であるから、

$$\mathbf{X}^T \cdot \mathbf{X} \cdot \mathbf{a} = \mathbf{X}^T \cdot \mathbf{y} \quad (2.37)$$

を満たせば良い。この解を求めるのに特異値分解を利用して数値計算を行った。行列  $\mathbf{X}$  を特異値分解すると

$$\begin{aligned} \mathbf{X} &= \mathbf{U} \cdot \mathbf{W} \cdot \mathbf{V}^T \\ &= \mathbf{U} \cdot [\text{diag}(\omega_j)] \cdot \mathbf{V}^T \end{aligned} \quad (2.38)$$

と表すことができる。 $\mathbf{U}$  は  $N$  次直行行列、 $\mathbf{W}$  は  $N$  次対角行列、 $\omega_j$  は対角要素、 $\mathbf{V}$  は  $M$  次直行行列である。(2.37) 式を特異値分解を用いて表すと

$$\mathbf{W}^T \cdot \mathbf{W} \cdot \mathbf{V}^T \cdot \mathbf{a} = \mathbf{W}^T \cdot \mathbf{U}^T \cdot \mathbf{y} \quad (2.39)$$

となる。結局、計算するべき  $\mathbf{a}$  は

$$\mathbf{a} = \mathbf{V} \cdot [\text{diag}(1/\omega_j)] \cdot \mathbf{U}^T \cdot \mathbf{y} \quad (2.40)$$

である。

熱膨張係数の計算は全測定データの内、 $(T_{i-n/2}, (\Delta L/L)_{i-n/2})$  から  $(T_{i+n/2}, (\Delta L/L)_{i+n/2})$  までの  $n$  個のデータ区間において  $\Delta L/L$  を  $T$  の 2 次までの多項式としてフィッティングのモデル関数を

$$\frac{\Delta L(T)}{L} = a_1 + a_2 T + a_3 T^2 \quad (2.41)$$

とおいた。算出された  $a_1$ 、 $a_2$ 、 $a_3$  から温度  $T_i$  における熱膨張  $\Delta L/L$  のフィッティングと熱膨張係数  $\alpha$  は以下のように求めた。

$$\frac{\Delta L(T_i)}{L} = a_{1i} + a_{2i} T_i + a_{3i} T_i^2 \quad (2.42)$$

$$\alpha(T_i) = \left. \frac{d}{dT} \frac{\Delta L}{L} \right|_{T=T_i} = a_{2i} + 2a_{3i} T_i \quad (2.43)$$

この計算を全てのデータ点に対して区間フィッティングを行い、熱膨張  $\Delta L/L$ 、熱膨張係数  $\alpha$  を計算した。

磁歪の場合も同様に、磁歪  $\Delta L/L$  を磁場  $B$  の関数とし 2 次の項まで考えて以下の式を与えた。

$$\frac{\Delta L(B)}{L} = b_1 + b_2 B + b_3 B^2 \quad (2.44)$$

$b_1$ 、 $b_2$ 、 $b_3$  から磁場  $B_i$  における磁歪  $\Delta L/L$ 、磁歪係数  $\lambda$  は以下の式のように求められる。

$$\frac{\Delta L(B_i)}{L} = b_{1i} + b_{2i} B_i + b_{3i} B_i^2 \quad (2.45)$$

$$\lambda(B_i) = \left. \frac{d}{dB} \frac{\Delta L}{L} \right|_{B=B_i} = b_{2i} + 2b_{3i} B_i \quad (2.46)$$

実際の測定では、生データを時間に対して一定間隔で測定しているため、横軸を温度、磁場にとって微分するとき、データの間隔が不均一になってしまう。微分するときのフィッティング範囲は測定温度磁場領域でデータ密度が均等になるように抽出し、微分を行った。抽出したデータ密度は熱膨張データが 20point/mK、磁歪データが 1point/mT である。また各熱膨張・磁歪データに対して行ったフィッティング範囲は温度磁場領域によって異なるが、熱膨張測定では 10 mK または 20 mK、磁歪測定では 1 T 以下で数百 mT、1 T 以上で 1~2 T の範囲で微分を行った。

## 2.7 試料

熱膨張・磁歪測定に使用する単結晶  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  試料は室蘭工業大学の村山先生に製作して頂いた。試料製作時の母材の純度は **Ce** (99.99%)、**Ru** (99.99%)、**Si** (99.999%) である。試料育成は Czochralski 法を用い、 $c$  軸方向に引き上げを行った。測定セルに組み込んだ試料の質量、モル数は 0.3598 g、 $9.029 \times 10^{-4}$  mol、形状は長さ 4 mm 程度の立方体である。

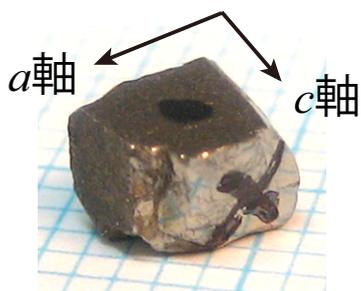


Fig.37 試料  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の写真。軸の向きを図に示す。

### 3 Results & Discussion

#### 3.1 熱膨張測定

##### 3.1.1 熱膨張測定における Back Ground の温度依存性

サンプルセルの Back ground は節 (2.5) で述べたように、試料キャパシタンスの変化には試料以外のサンプルセル自身の伸縮の効果も含んでおり、Cell effect と呼んだ。Cell effect はサンプルセルと同材質の試料を用いて評価できるが、本研究で用いたサンプルセルは試料ごとに組み立てるため、Cell effect も試料ごとに異なる可能性がある。従って、節 (2.5) で述べたように、Cell effect をサンプルセルの標準キャパシタンスで見積もる。

Fig. 38 に  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  試料の  $a$  軸測定用にセットアップしたサンプルセルの、1 K 以下の試料キャパシタンスと標準キャパシタンスの変化率  $\Delta C/C$  の温度依存性を示す。キャパシタンスの測定は Andeen Hagerling 社の自動キャパシタンスブリッジ (2700A) で行った [92]。左図の高温側の温度依存性は試料キャパシタンスと標準キャパシタンス共に  $T^2$  スケールに線形に変化している。試料キャパシタンスに対する標準キャパシタンスの大きさは、ほぼ 2% で Back ground としての影響は無視できる大きさである。右図は 0.3 K 以下の拡大図であり、Back ground としての影響は 2% 程度であるが、約 100 mK に標準キャパシタンスの変化に極小が現れた。100 mK 以下では標準キャパシタンスの変化が 2700A の測定精度と同程度になるため正確に求めるのは難しいが、およそ 50 mK より低温では標準キャパシタンスの温度変化は試料キャパシタンスの温度変化の約 30% まで増

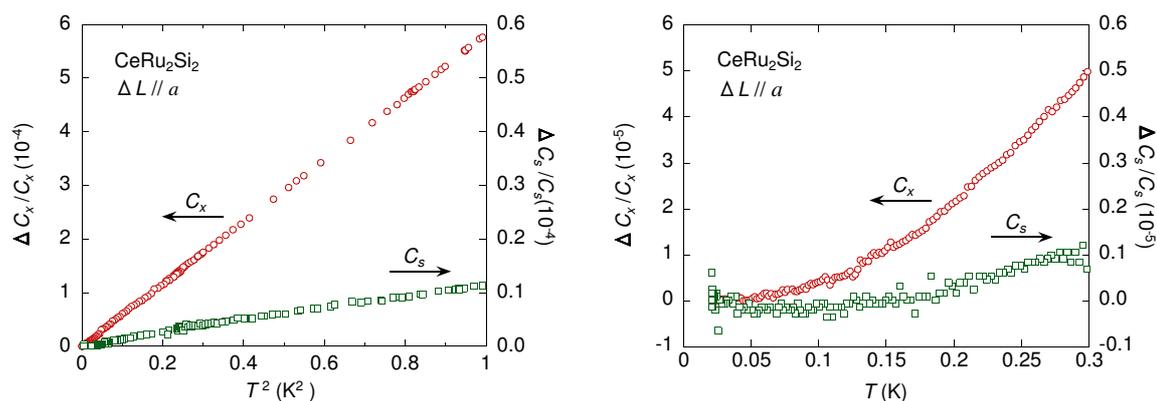


Fig.38 左図： $T < 1$  K 以下の試料キャパシタンス、標準キャパシタンスの温度変化率。横軸は  $T^2$  スケールである。右図： $T < 0.3$  K 以下の試料キャパシタンス、標準キャパシタンスの温度変化率。横軸は  $T$  スケールである。

大する可能性がある。

節 (2.5) で述べたように **Cell effect** と標準キャパシタンスの変化は伸縮の絶対値としては同じ程度だと考えられるが、両者で極板間距離が異なるために変化率の大きさが違う。試料キャパシタンス  $C_X$ 、標準キャパシタンス  $C_S$  の測定を行ったところ、最低温度では  $C_X = 16.76$  pF、 $C_S = 13.43$  pF で極板間距離に直すと  $d_X = 10.37$   $\mu\text{m}$ 、 $d_S = 12.94$   $\mu\text{m}$  であった。最低温度を熱膨張の基準にとると **Cell effect** の基準は  $d_X$  であり、実際に測定した標準キャパシタンスから求めた変化率  $\Delta C'_S/C'_S$  と  $d_X$  を基準にした場合の換算変化率  $\Delta C_S/C_S$  を計算すると、 $(\Delta C'_S/C'_S)/(\Delta C_S/C_S) \sim 0.81$  であった。つまり式 (2.27) で与えたように  $\delta \sim -0.19$  であり、 $C_X$  と  $C_S$  をキャパシタンスブリッジで測定した場合、実際に測定される標準キャパシタンスの変化率の 25% 程度が、キャンセルしきれずに残った **Cell effect** として熱膨張測定に影響を与えると考えられる。これを考慮すると、**Back ground** としての影響はおよそ 1 K より低温で 0.2% 以下、更に 50 mK 以下で数 % 程度と見積もられる。

キャパシタンスブリッジによる **Cell effect** の相殺が不十分である場合、試料の熱膨張においても約 100 mK において極小、または温度勾配に折れが出現するはずであるが、後述する熱膨張測定の結果にはいずれも出現しておらず、**Back ground** の影響は無視できると考えられる。

### 3.1.2 熱膨張の温度依存性

Fig. 39 に  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸と  $c$  軸の線熱膨張  $\Delta L(T)/L$  を示す。横軸は  $T^2$  スケールである。Fig. 39 の結果は 2700A で試料キャパシタンスと標準キャパシタンスを別々に測定してから式 (2.24) から Cell effect を除いた結果である。2 K 以下では  $T^2$  に線形であり、これは Fermi 液体論で伝導電子に関わる熱膨張係数  $\alpha$  が温度  $T$  に比例することと同義である。つまり極低温領域では、この系は Fermi 液体状態であることを示しており、比熱や電気抵抗など他の物性測定でも同様の結果が得られている。

Fig. 40 は 100 mK 以下をキャパシタンスブリッジを用いて精密に測定した線熱膨張  $\Delta L(T)/L$  と線熱膨張から計算した体積熱膨張  $\Delta V(T)/V$  である。図中に矢印で示す 60 mK より高温側では  $T^2$  に線形である。70 mK から 170 mK の間で線形フィッティングを行うと  $a$  軸が  $\Delta L_a/L_a = 1.40 \times 10^{-6} T^2$ 、 $c$  軸が  $\Delta L_c/L_c = 4.01 \times 10^{-6} T^2$  であった。また  $a$  軸、 $c$  軸の線熱膨張から体積熱膨張  $\Delta V/V = 2(\Delta L_a/L_a) + \Delta L_c/L_c$  を求めると、 $\Delta V/V = 6.8 \times 10^{-6} T^2$  であった。

一方、より低温側では各軸共におよそ 60 mK あたりで線形フィッティングラインからの逸脱が観測された。逸脱が始まる温度は帯磁率が Pauli 常磁性から立ち上がる温度にほぼ一致しており、これは非 Fermi 液体的な寄与と考えられる。また 21 mK 付近に  $a$  軸と  $c$  軸共に極小が観測された。これは 21 mK より低温で負の熱膨張係数を持つことを示している。 $a$  軸と  $c$  軸の熱膨張は高温側の Fermi 液体状態で異方性を持っているのは明らかだが、極小の大きさには両軸の間で差はなかった。

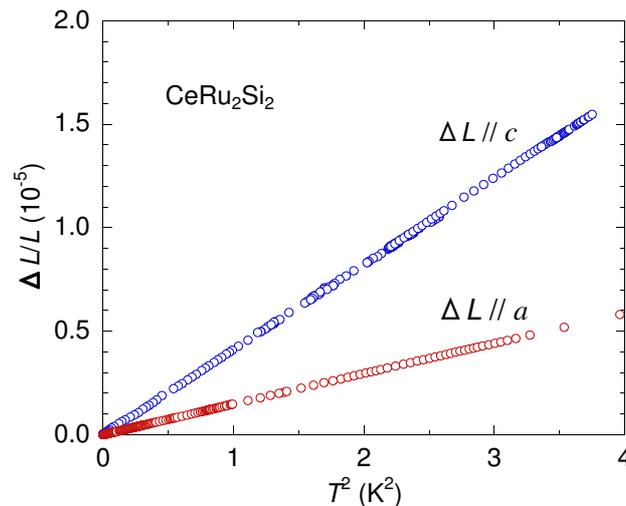


Fig.39  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸と  $c$  軸の線熱膨張。横軸は  $T^2$  スケールである。

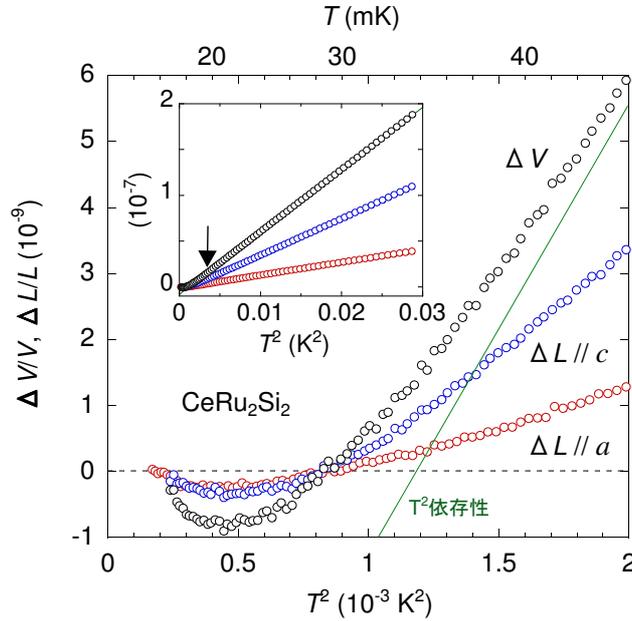


Fig.40  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸と  $c$  軸の 100 mK 以下の線熱膨張と線熱膨張から計算した体積膨張。横軸は  $T^2$  スケールである。図中の実線は体積熱膨張のフィッティングライン、 $\Delta V(T)/V = 6.86 \times 10^{-6} T^2$ 。矢印は熱膨張が Fermi 液体的振舞いからの逸脱を示す温度である。

**熱膨張係数の導出** Fig. 41 は 100 mK 以下の  $a$  軸と  $c$  軸の線熱膨張係数と体積熱膨張係数および熱膨張係数を温度  $T$  で割ったものを示す。図 (a) の実線は 60m K 以上で Fermi 液体な領域に対する線形フィッティングを示している。Fermi 液体状態である 60 mK 以上は温度  $T$  に比例するため、図 (b) のように  $\alpha/T = \text{constant}$  である。各軸の比例係数  $\alpha/T(\text{K}^{-2})$  は以下の様に求まった。

$$\begin{aligned}\alpha_a/T &= 2.81 \times 10^{-6} \\ \alpha_c/T &= 8.00 \times 10^{-6} \\ \alpha_V/T &= 1.36 \times 10^{-5}\end{aligned}$$

Matsuhira らのグループによる 1.5 K 以上の熱膨張測定によると、 $c$  軸の熱膨張係数は 2 K で  $\alpha_c = 1.4 \times 10^{-5}$  程度であり、比例係数に直すと  $\alpha_c/T = 7.0 \times 10^{-6}$  である [51]。本研究で得られた  $c$  軸の結果はそれによく一致している。

また  $a$  軸と  $c$  軸の間の軸異方性は Fermi 液体領域では  $\alpha_c/\alpha_a \approx 2.9$  で 1 K 付近からほぼ変化していない。 $\alpha$  は 21 mK で正から負の値に変わるが、これは式 (2.11) より熱膨張係数が  $\alpha \propto -(\partial S/\partial p)_T$  で与えられ、圧力印加によってエントロピーが増大することを意味している。

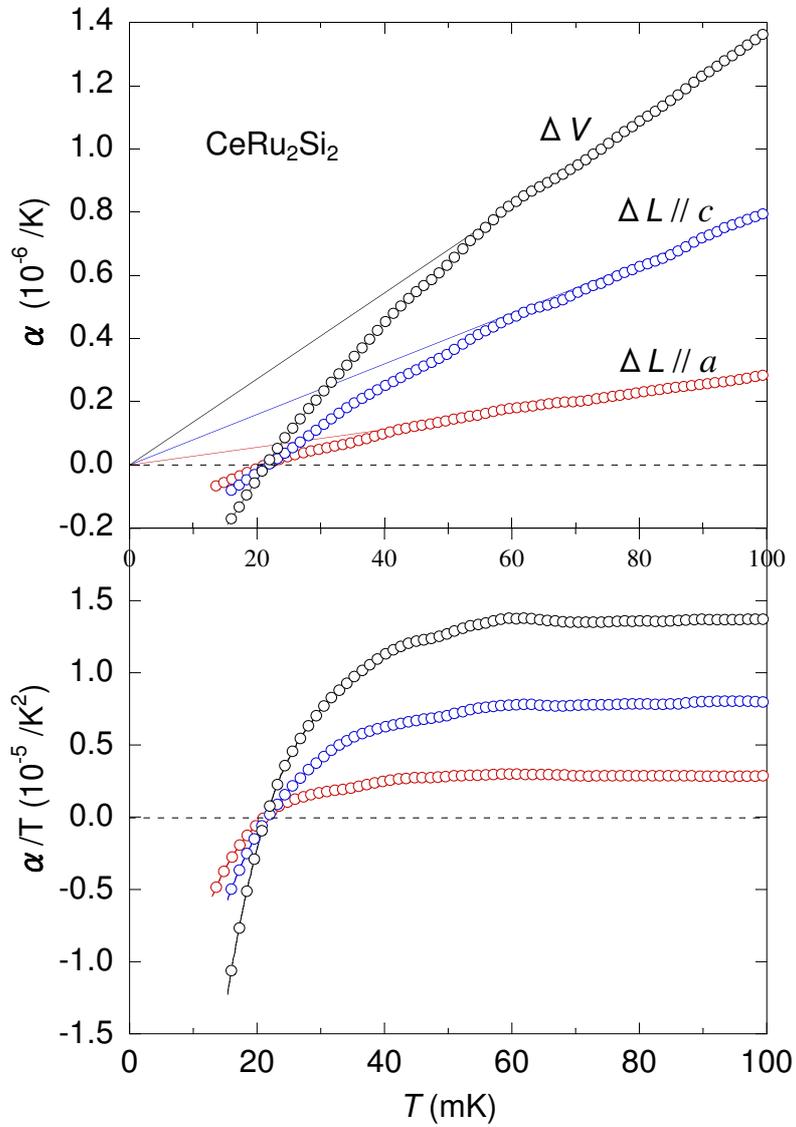


Fig.41 (a)  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸と  $c$  軸の線熱膨張係数と体積熱膨張係数。横軸は  $T$  スケールである。各実線は  $\alpha(T) = aT$  で線形フィッティングしたもの。(b)  $\alpha/T$  のプロット。高温側の Fermi 液体的な領域では  $\alpha_a/T = 2.81 \times 10^{-6}$ 、 $\alpha_c/T = 8.00 \times 10^{-6}$ 、 $\alpha_V/T = 1.36 \times 10^{-5}$ 。

**磁場中の熱膨張係数** 次に磁場中における熱膨張の温度依存性について述べる。 $c$  軸方向へ磁場印加した場合、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の熱膨張係数はメタ磁性により大きく変化し、転移磁場  $H_m \sim 7.8\text{T}$  近傍でシンメトリックな振舞いをする [49]。つまり熱膨張係数は  $H < H_m$  では正、 $H > H_m$  では負の値をもつ。Fig. 42 は  $a$  軸方向へ磁場印加したときの、 $a$  軸方向の線熱膨張係数である。 $a$  軸方向へ磁場印加した場合、 $H_m$  まで上げててもメタ磁性による特徴的な振舞いは観測されず、 $a$  軸の全体的な振舞いにはほとんど磁場依存性がない。磁場中でも高温側は Fermi 液体的であるがやはり  $20\text{ mK}$  付近で熱膨張係数は負の値を持つ。

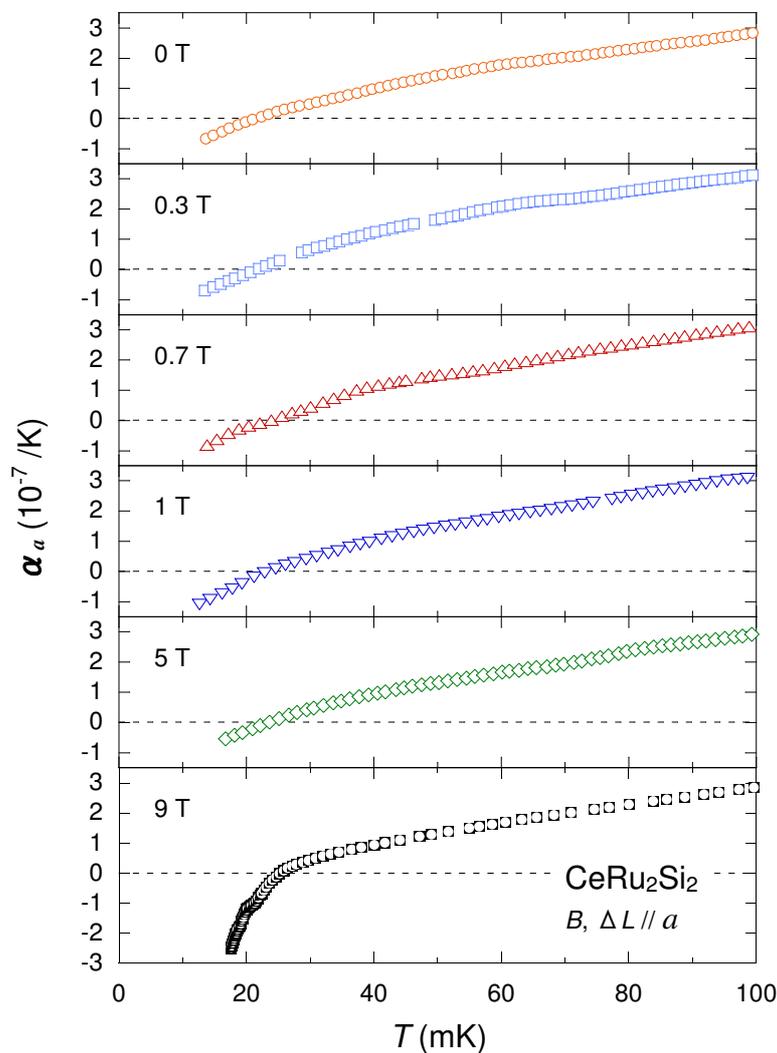


Fig.42  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸の磁場中における熱膨張係数

線熱膨張係数  $\alpha$  を Fermi 液体的寄与  $\alpha_{FL}$  と非 Fermi 液体的寄与  $\alpha_{cr}$  で

$$\begin{aligned}\alpha_V &= \alpha_{FL} + \alpha_{cr} \\ &= aT + \alpha_{cr}\end{aligned}\tag{3.1}$$

の様に定義し、 $\alpha_{cr}$  を Fig. 43 に示す。 $\alpha_{cr}$  にはおおきな磁場依存性がみられず、 $\alpha_{cr}$  に対して磁場が有効な外部パラメータではないことを示している。

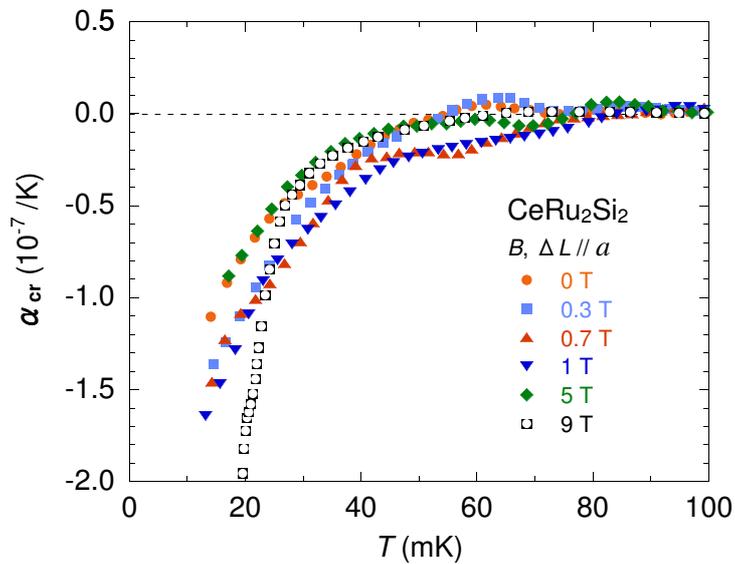


Fig.43 CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の  $a$  軸方向に磁場印加した場合の  $a$  軸方向の線熱膨張係数の臨界寄与  $\alpha_{cr}$ 。

## 3.2 磁歪測定

### 3.2.1 磁歪測定における Back Ground の磁場依存性

サンプルセルの Back ground の磁場依存性については 3.1.1 の温度依存性の時と同様の考え方で Cell effect の影響を考える。Fig. 44 に  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  試料の  $a$  軸測定用にセットアップしたサンプルセルの、1.5 K から 0.3 K までの各温度における試料キャパシタンスと標準キャパシタンスの変化率  $\Delta C/C$  の磁場依存性を示す。各温度で 9 T まで磁場印加し、横軸は  $B^2$  スケールである。本研究で測定された 9 T までの磁場範囲では  $\Delta C_X/C_X$  に対する  $\Delta C_S/C_S$  の大きさは高磁場であるほど小さく、9 T における  $(\Delta C_S/C_S)/(\Delta C_X/C_X)$  は 5% 程度である。一方、低温低磁場であるほど  $\Delta C_S/C_S$  の割合は大きくなり、1 T 以下では  $\Delta C_X/C_X$  より  $\Delta C_S/C_S$  の変化が大きい磁場範囲もある。

$\Delta C_S/C_S$  には若干の温度依存性がある。1.5 K では  $B^2$  に比例しているが、温度を下げるるとともに低磁場側の磁場勾配が大きくなって  $B^2$  則からのずれが大きくなり、およそ 0.5 K より低温では温度依存性を示さなくなる。本研究が測定する主な温度範囲は 0.3 K 以下であるから Back ground の温度依存性はほぼ無視してよいと考えられる。

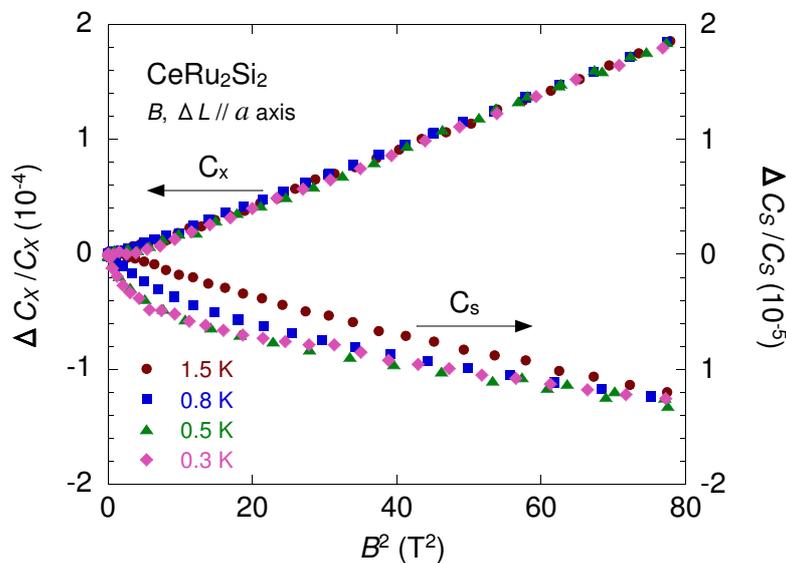


Fig.44 各温度における 9 T までの試料キャパシタンス、標準キャパシタンスの変化率の磁場依存性。横軸は  $B^2$  スケールで示す。

■**Cell effect の再現性について** サンプルセルに低温から室温までの熱サイクルを与えると、熱履歴などによりキャパシタンスの絶対値が再現しなことがある。サンプルセルの構造上、OFC のホルダー、スペーサーを真鍮のネジで固定しているため、材料のクリープ、熱応力による変形などの可能性が考えられるが具体的な理由は不明である。試料キャパシタンスに関しても同様の変化が確認されており、これは標準キャパシタ側と同じ理由であると考えられる。しかし、1 K 以下での試料キャパシタと標準キャパシタで極板間距離の温度磁場変化量は再現している。標準キャパシタンスの磁場依存性は定性的に再現するが、室温への熱サイクルによってその絶対値は大きくて数十 % の相違がある。従って、Cell effect の温度依存性については (2.5) で述べたような補正で除去することができるから、磁場依存性については以下に述べる補正を行った。

**磁歪係数の Back ground 補正** 前述の通り、1 T 以下では Cell effect の寄与が大きく、かつ Cell effect の再現が悪くなる可能性があるため、Back ground 補正が必要になる。

本研究では磁歪係数の Back ground 補正に 2 K の磁歪係数の結果を Fermi 液体状態の基準として補正した。これは、2 K における試料キャパシタンスに対する標準キャパシタンスの変化率の大きさは最大 10% 程度で、 $\delta \sim -0.19$  なら Back ground としての実質的な影響は最大でも 2% 程度で十分に無視できると考えられるからである。また 2 K の磁歪係数は 0-9 T まで  $B$  に比例した Fermi 液体的な振舞いである。磁歪係数は式 (2.14) の様にほとんど温度依存性のない Pauli 常磁性帯磁率に関連している。従って、基本的に 2 K 以下の磁歪は Fermi 液体状態が安定していて、磁歪係数の傾きは温度依存性を持たないと考えてよい。

もし、磁歪係数の結果が  $B$  に比例した Fermi 液体的な振舞いであって、Fermi 液体的領域の線形フィッティングラインを外挿しても原点を通らない場合、測定データには試料の磁歪の他に Cell effect による変化も含まれていると考えられる。そこで、Cell effect と定性的に同じ磁場依存性をもつ標準キャパシタンスの変化率  $dC_S/C_S$  を Back ground 補正に使用する。つまり、2 K の磁歪係数の結果に合うように  $dC_S/C_S$  に任意のファクターを掛けた値を Back ground として磁歪データから差し引く。

Fig. 45 の Back ground 補正を説明する。実際に測定された 2 K の磁歪係数は 0-9 T までの測定磁場範囲で Fermi 液体的な  $B$  に比例した振舞いである。一方、図中の赤は 20 mK における磁歪の測定結果であるが、高磁場側の Fermi 液体的領域を線形フィッティングし外挿しても原点を通らない。そこで、Fig. 44 の 0.3 K 以下で温度変化しなくなった  $dC_S/C_S$  を任意に拡大(または縮小)した Back ground(緑色)を用意し、磁歪の測定結果から差し引くと、青色の高磁場側の  $B$  に比例して原点を通るようなデータが得られる。試料が Fermi 液体状態であれば、Back ground(緑色)を差し引くと 2 K の磁歪係数に一致するはずである。従って、一致しない領域は定性的に Back ground で説明できないため、非 Fermi 液体的な振舞いであることを示している。全データに対してこのような補正を行っ

たところ、これまで整合していなかったデータに関してはほぼすべて整合した。

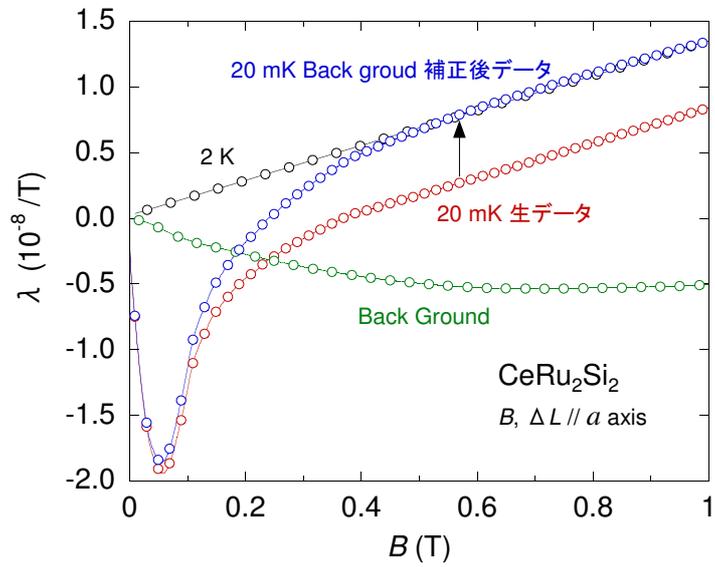


Fig.45 2 K の磁歪係数と 20 mK の磁歪係数、Back ground、Back ground を差し引いた後の 20 mK の磁歪係数。

### 3.2.2 磁歪の磁場依存性

Fig. 46 に測定された  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の線磁歪  $\Delta L(B)/L$  を示す。左図は 2 K における  $a$  軸と  $c$  軸の線磁歪であるが、磁場方向は  $a$  軸の変化に対しては  $B//a$ 、 $c$  軸の変化に対しては  $B//c$  である。

これまでに磁化容易軸である  $c$  軸方向に磁場印加した場合、 $a$  軸と  $c$  軸共に  $H_m \approx 7.8\text{T}$  でクロスオーバーメタ磁性による  $10^4$  オーダーの急激な膨張を示し、 $a$  軸と  $c$  軸には  $c/a \approx 3$  程度の磁気異方性があることが Lacerda らによって示されている [50]。

本研究の左図における  $c$  軸の振舞いも同様で、およそ 2 T 付近まで  $B^2$  に比例した振舞いをしているが、2 T を越えた辺りから磁歪の勾配が大きくなってゆき、 $H_m$  で最大になる。一方、 $a$  軸方向に 9 T まで磁場印加した場合には  $a$  軸方向の磁歪にメタ磁性は現れなかった。

$B^2$  の比例係数は  $a$  軸が  $\Delta L_a/L_a = 1.33 \times 10^{-8} B^2$ 、 $c$  軸が  $\Delta L_c/L_c = 8.8 \sim 9.5 \times 10^{-6} B^2$  であり、磁場印加方向が測定軸に平行の場合、 $a$  軸と  $c$  軸の磁氣的異方性は

$$\frac{c(B//c)}{a(B//a)} = 660 \sim 710 \quad (3.2)$$

であった。この巨大な磁氣的異方性は式 (2.14) から帯磁率の圧力感度の比を示しており、 $c$  軸方向へ磁場印加した場合の帯磁率の圧力依存性が  $a$  軸方向へ磁場印加した場合に比べて非常に大きいことを意味している。

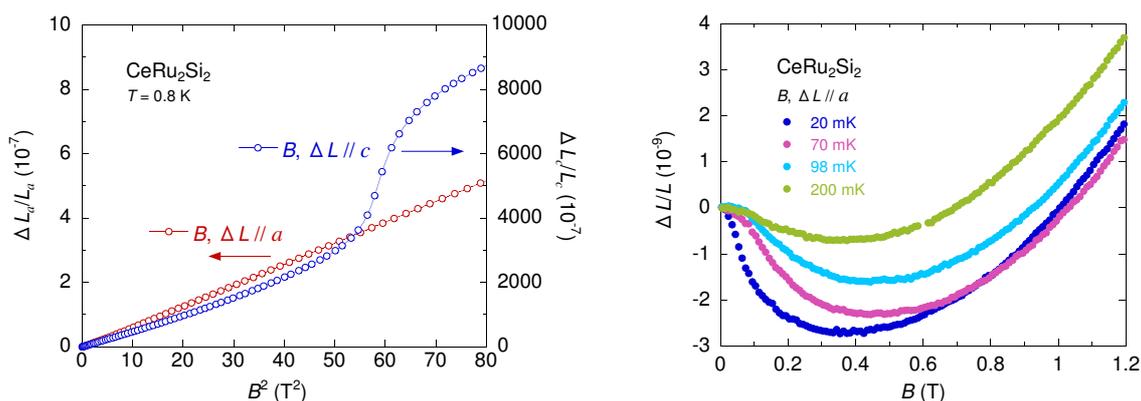


Fig.46  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の磁歪  $\Delta L(B)/L$ 。左図：2 K における  $a$  軸と  $c$  軸の線磁歪  $\Delta L_a/L_a$ 、 $\Delta L_c/L_c$ 。磁場方向は測定した結晶軸に平行である。実線は  $a$  軸の磁歪に対する  $B^2$  スケールの線形フィッティングである。各軸の  $B^2$  スケールの比例係数は  $\Delta L_a(B)/L_a = 2.66 \times 10^{-8} B^2$ 、 $\Delta L_c(B)/L_c = 1.76 \times 10^{-5} B^2$  で表される。右図：1.2 T 以下、200 mK 以下の  $a$  軸方向の磁歪。

Fig. 46 右図は、mK 領域で測定した  $a$  軸方向の磁歪の磁場依存性である。およそ 300 mK 以下で磁歪に極小が現れる振舞いを観測した。磁場を印加すると最初に減少し、0.5 T 以下の範囲で極小をとったあと 9 T まで単調に増加する。極小は低温になるほど大きくなり、これが非 Fermi 液体的振舞いであるのは明らかである。

**磁歪係数の導出** Fig. 47 に mK 領域で 9 T まで磁場印加した磁歪測定から計算された  $a$  軸方向の線磁歪係数の結果を示す。約 0.6 T 以上の高磁場領域ではすべての温度範囲で、磁歪係数は  $B$  に比例しており、Fermi 液体状態であることを示している。このような関係は式 (2.14) で与えられたように、 $\lambda \propto -B(\partial\chi/\partial p)_B$  の関係から磁歪係数が  $B$  に比例し、 $\chi$  が温度に依存しない Pauli の常磁性帯磁率であることから導かれる。低温で磁気秩序を持たない場合、伝導電子系は Fermi 液体論に従うから、この場合は体積 (線) 磁歪は  $B$  に比例する。

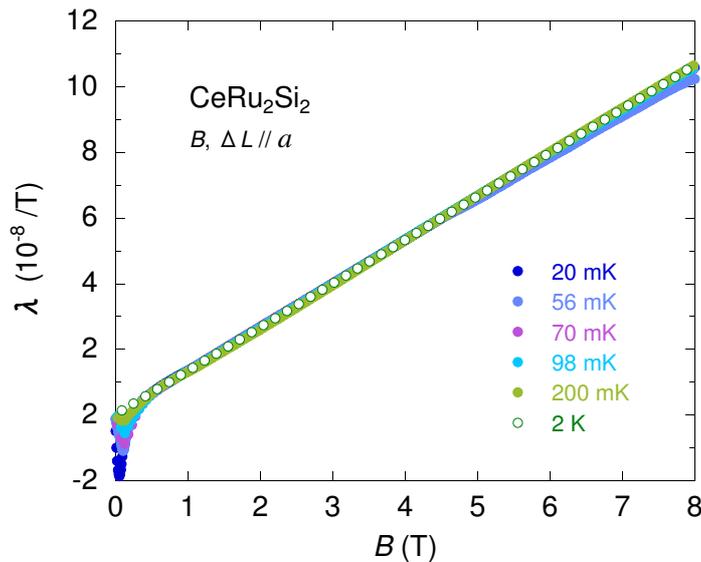


Fig.47 9 T までの  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸方向の磁歪係数。

一方、1 T 以下の磁場範囲を示した Fig. 48 には 0.6 T 以下で磁歪の極小に対応した、非 Fermi 液体的振舞いが明確に表れている。低温で大きくシャープな極小をつくり、温度を上げていくと極小はブロードになっていく。極小の位置は 0 T 付近から 0.12 T までシフトするが更に温度を上げると反対に低磁場へシフトしていき、300 mK あたりを越えると極小もなくなり、Fermi 液体的振舞いに戻った。磁歪係数が負の値を持つことは、圧力印加により磁化が増大していくことを意味している。

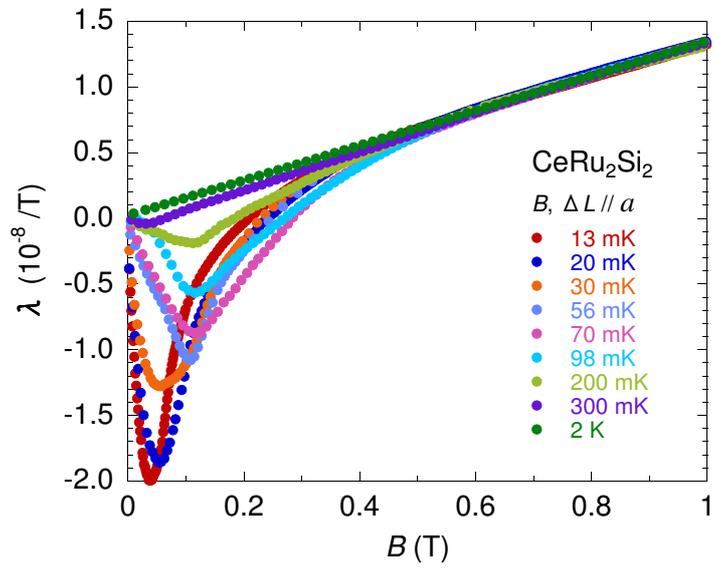


Fig.48 1 T までの  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸方向の磁歪係数。

### 3.3 熱膨張・磁歪の非 Fermi 液体的振舞いについての考察

この節では、(3.1.2) 項の熱膨張、(3.2.2) 項の磁歪の結果から観測された非 Fermi 液体的振舞いがどのような状態を意味しているのかを考察する。

#### 3.3.1 熱膨張係数の非 Fermi 液体的振舞いについての考察

前述したように、極低温で行われた他グループの幾つかの物性測定は Fermi 液体的な振舞いによく一致し、この系は近藤効果が支配的になっていることを示している。しかし、本研究グループの帯磁率、熱膨張測定は超低温領域に非 Fermi 液体的な振舞いを観測し、近藤温度とは別のエネルギースケールの現象が寄与していると考えられる。

QCP の存在が確認されている重い電子系物質の多くは SDW 型量子相転移に当てはまり、QCP 近傍の熱膨張係数の振舞いは SCR 理論によると温度のべき乗か対数で表された臨界指数に従う。このような理論では QCP より低圧側に位置する系で、かつ有限温度で磁気オーダーする熱的臨界領域における非 Fermi 液体的振舞いを扱っている [10]。

一方、非置換  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の場合はそのドーピング系において確認されている AFMQCP より少し高压側に位置しており、QCP 近傍では有限温度で QCP の臨界的な性質を持った非 Fermi 液体状態から、十分低温で Fermi 液体状態へのクロスオーバーが起こるとされている。現に、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の比熱の振舞いなどは 1 K 付近まで SCR 理論によりよく説明されており、さらに mK 領域の低温でも本研究で測定された熱膨張のように Fermi 液体的振舞いを示している。故に、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の基底状態は Fermi 液体状態であると考えられてきた。

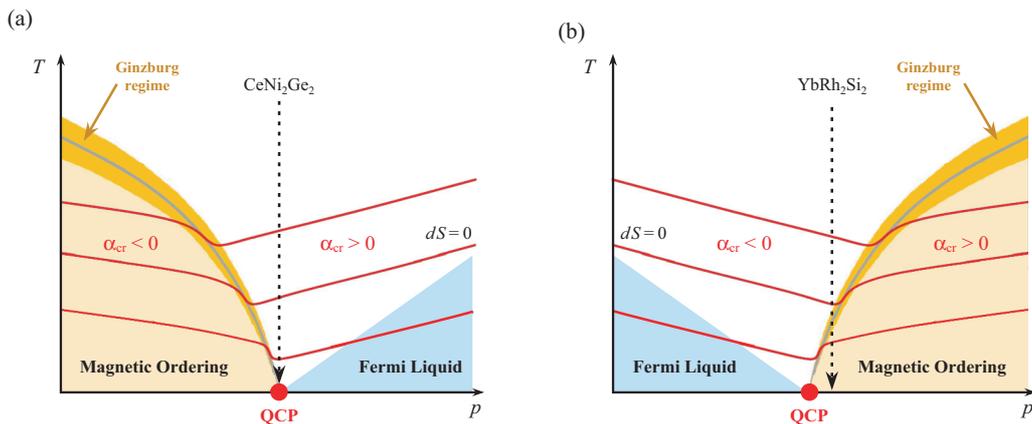


Fig.49 重い電子系化合物の典型的な  $p$ - $T$  相図 [93]。(a) Ce 系化合物にみられる  $p$ - $T$  相図。(b) Yb 系化合物にみられる  $p$ - $T$  相図。QCP の両領域はそれぞれ磁気秩序相、Fermi 液体状態を表す。灰色の線は磁気転移点、赤色の線は等エントロピー線を表す。Ginzburg regime と書かれた領域は熱揺らぎが支配的な熱的臨界領域で古典的相転移が成立する。

磁氣的量子相転移における典型的な  $p$ - $T$  相図を Fig. 49 に示す [93]。図 (a) は一般的に Ce 系化合物にみられる相図で、圧力をかけると  $cf$  混成が増強され磁気秩序は抑制されて Fermi 液体状態がより安定的になる。従って QCP より高压側では Fermi 液体状態が広がるような相図をとる。図 (b) は磁気秩序相と Fermi 液体状態が入れ替わった場合である。このような相図は Yb 系化合物など価数揺動を示す物質でみられ、圧力をかけると Fermi 液体状態が抑制される。また磁気転移点ではエントロピーは極大をとるため、等エントロピー線を引くと図中の赤線のように磁気転移点で極小をとる。このように対象とする系が QCP のどちら側に位置するか、また磁気秩序相が QCP より高压側か低压側にあるかによって系の振る舞いが違う。

■熱的 Grüneisen パラメータ  $\Gamma_T$  の導出  $p$ - $T$  相図におけるエントロピーの描像は熱膨張係数を求めることで知ることが出来る。Fig. 41 に示すように、 $\alpha/T$  は高温側の *constant* な状態 (Fermi 液体状態) から 60 mK 付近で  $a$  軸と  $c$  軸共に減少し、20 mK 付近で熱膨張係数の値が正から負に変わる。このような符号の反転は、 $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{Ru}_2\text{Si}_2$  など低温で反強磁性転移する物質で確認されている [94]。

ここで式 (2.11) を等温体積圧縮率  $\kappa_T = -V^{-1}(\partial V/\partial p)_T$  と定積比熱  $C_V = T(\partial S/\partial T)_V$  を用いて表すと以下のようになる。

$$\begin{aligned}\alpha_V &= \kappa_T \left( \frac{\partial S}{\partial V} \right)_T & (3.3) \\ &= \kappa_T \frac{C_V}{T} \left( \frac{\partial T}{\partial S} \right)_V \left( \frac{\partial S}{\partial V} \right)_T \\ &= -\kappa_T \frac{C_V}{T} \left( \frac{\partial T}{\partial V} \right)_S \\ &= \frac{\kappa_T}{V} C_V \Gamma_T & (3.4)\end{aligned}$$

体積熱膨張係数は定積比熱とこのようにして関連付けられる。 $\Gamma_T$  は熱的 Grüneisen パラメータと呼ばれる無次元数であり、以下のように定義される。

$$\begin{aligned}\Gamma_T &= \frac{V}{\kappa_T} \frac{\alpha_V}{C_V} & (3.5) \\ &= -\frac{V}{T} \left( \frac{\partial T}{\partial V} \right)_S\end{aligned}$$

$$= -\left( \frac{\partial \ln T}{\partial \ln V} \right)_S \quad (3.6)$$

$V > 0$ 、 $\kappa > 0$ 、 $C_V > 0$  であるから  $\alpha$  の値が負であるとき、 $\Gamma_T$  も負の値を持つ。 $\Gamma_T$  や熱膨張係数は QCP 近傍で特徴的な発散や、有限温度での磁気相転移に伴う符号反転が起こるため QCP の検出、研究に有効な物理量である。

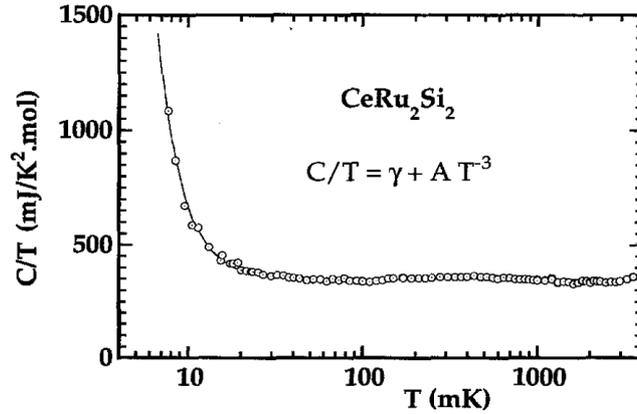


Fig.50  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の比熱の温度依存性。およそ 100 mK 以下で比熱係数に急激な立ち上がりが現れているが、これは超微細構造による Ru 核 ( $I=5/2$ ) の四極子分裂によるものだと考えられる [95]。

超低温領域での比熱の見積もり  $\Gamma_T$  の導出には比熱の値が必要であるが、Flouquet らによる測定では Fig. 50 にあるように 100 mK より低温側で比熱の立ち上がりが観測されている [95]。これは超微細構造による Ru 核の四極子分裂の寄与だと考えられている。このような寄与が存在する場合、量子揺らぎによる電子系の比熱に変化があったとしても、四極子分裂の寄与に隠れて観測できない可能性がある。

そこで、本研究の先行研究である  $c$  軸の静磁化測定の結果を用いて、比熱の変化を見積もった。Fig. 25 の静磁化測定の結果によると、磁化  $M(T)$  は数百 mK あたりから上昇し、交流帯磁率のピーク温度 ( $T_p$ ) 以下で飽和する [77]。また先行研究で吉田氏は磁化  $M$  を規格化温度  $t = T/T_p$  でスケールリングして比熱係数の計算を行っている [78]。磁化の温度依存性は  $t < 0.6$  の範囲 (約数 mK より低温) で  $M \propto \beta(B)(T/T_p)^2$  で近似でき、Maxwell の関係式から

$$\frac{\partial(C_p/T)}{\partial B} = \left( \frac{\partial^2 M}{\partial T^2} \right)_{p,B} = \frac{2\beta}{T_p^2} \quad (3.7)$$

が成り立つ。磁場を 6.21 mT から 0.20 mT まで数値積分を行った結果、 $C_p/T$  は  $26 \pm 14$  mJ/K<sup>2</sup>mol だけ増加することがわかった。

しかし本研究で測定された熱膨張は 10 mK より高温側であり、上で述べたような規格化温度でスケールリングできる温度領域を越えているため同様の計算はできない。そこで、静帯磁率の 10 mK 以上での Curie 則的变化から比熱の変化分を見積もった。Curie 定数はすべての印加磁場で  $C \sim 1.3 \times 10^{-2}$  mK である [77]。その場合、Maxwell の関係式から以下の関係が成立する。

$$\frac{\partial(C_p/T)}{\partial B} = \left( \frac{\partial^2 M}{\partial T^2} \right)_{p,B} = \frac{2C}{\mu_0 T^3} B \quad (3.8)$$

本研究では、試料は磁場印加していない状態で地磁気程度の磁場中にいると仮定し、 $60 \mu\text{T}$  から  $6.21 \text{ mT}$  まで積分した結果、 $10 \text{ mK}$  までの Pauli 常磁性からの比熱係数の増加分は  $\Delta C_p/T = 20.6 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$  となる。

また  $\Gamma_T$  の計算には式 (3.5) にあるように  $C_p$  ではなく  $C_V$  が必要である。定圧比熱と定積比熱の差は  $(C_p - C_V)/T = V_m \alpha^2 / \kappa_T$  で表される。 $\kappa_T = 9.5 \times 10^{-12} \text{ Pa}^{-1}$ 、 $V_m = 5.175 \text{ m}^3/\text{mol}$  の値と Fig. 41 の  $\alpha_V$  より  $100 \text{ mK}$  において  $(C_p - C_V)/T \approx 0.01 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$  の差であった。従って、定圧比熱と定積比熱の差は静磁化から見積もられた比熱係数の増加より三桁小さく無視できるため、 $C_V$  の代わりに  $C_p$  を用いてもよい。

比熱の増加は静磁化より見積もった定圧比熱を用いてよいことがわかった。しかし、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の極低温での比熱係数の大きさは  $350 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$  あり、比熱の増加分を考慮しても  $\Gamma_T$  の値への影響は  $1\%$  程度であるから  $C_p = 350 \text{ mJ/K}^2 \text{ mol}$  として計算した。

Fig. 51 に  $\Gamma_T$  の計算結果を示す。 $100 \text{ mK}$  において  $\Gamma_T$  はおよそ  $200$  程度で一定である。通常金属において  $\Gamma_T$  は  $1\sim 2$  程度だが、重い電子系におけるこの大きな  $\Gamma_T$  は近藤温度以下での準粒子と音響フォノンの結合によるものである。しかし、およそ  $60 \text{ mK}$  まで下げると  $\Gamma_T$  は減少し、 $20 \text{ mK}$  付近で符号が正から負に転じる。 $10 \text{ mK}$  までに  $\Gamma_T$  は  $-200$  を越え、絶対零度まで外挿した場合  $-10^3$  のオーダーまで増大すると考えられる。

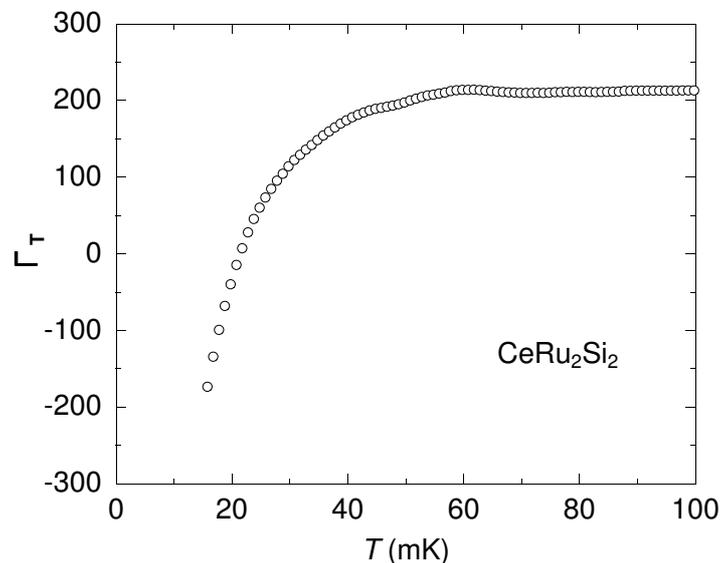


Fig.51  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の Grüneisen パラメータ  $\Gamma_T$  の温度依存性。

■ $\alpha$  と  $\Gamma$  に関する考察 熱膨張係数  $\alpha$  は式 (2.11) より一定温度におけるエントロピーの圧力微分係数で与えられた。また  $\Gamma_T$  は式 (3.5) で与えられるが、 $C_V$  の代わりに  $C_p$  を代入した場合、それぞれ以下のようなエントロピーに関する情報が得られる。

$$\alpha = -\frac{1}{V} \left( \frac{\partial S}{\partial p} \right)_T \quad (3.9)$$

$$\kappa_T T \Gamma_T = \left( \frac{\partial T}{\partial p} \right)_S \quad (3.10)$$

式 (3.9) は Fig. 49 の図 (a) において磁気秩序相に位置している場合は負の値、無秩序相に位置している場合は正の値をとることがわかる。式 (3.10) は等エントロピー線の傾きを示しており、 $\Gamma_T$  の符号は等エントロピー線の勾配の符号を示す。

Fig. 41 や Fig. 51 で示したように高温側は Fermi 液体状態で  $\alpha$  も  $\Gamma_T$  も正の符号であり、元素置換による研究から、非置換  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は AFMQCP より高压側に位置し、図 (a) に矛盾していない。一方、60 mK より低温に下げると  $\alpha$  も  $\Gamma_T$  も Fermi 液体状態から減少し、およそ 21 mK で正から負へ符号を変える非 Fermi 液体的な寄与を示した。すなわちこれは 21 mK において等エントロピー線が極値を持ち、21 mK より低温では圧力を加えるとエントロピーが増大することを意味する。このような振舞いは、図 (a) に矛盾する。

図 (a) によると等エントロピー線が極値を持つ可能性の一つとして、21 mK 以下での磁気相転移が考えられる。非弾性中性子散乱実験により  $T_K$  以下でも 3 つの短距離反磁性相関が存在し、150  $\mu\text{K}$  までの静磁化測定と、 $T_K$  以下の  $\mu\text{SR}$  の実験から 2 K 以下で、それぞれ 10  $-3\mu_B/\text{Ce}$  程度の小さな磁気モーメントが観測されており熱膨張測定の結果がこれに関連している可能性がある。

SDW 型量子相転移における QCP 近傍の熱膨張係数の振舞いを Fig. 52 に示す [93]。Fig. 49 の図 (a) に対応する三次元系の反強磁性 (AFM)QCP に関する  $\alpha/T$  の振る舞いを Fig. 52 の図 (a) に示す。  $p = p_c$  に位置する場合、 $\alpha/T \propto T^{-1/2}$  で発散し、 $p < p_c$  に位置する場合は磁気転移温度で正から負の値へ鋭いピークを持ち、磁気秩序状態では  $\propto -T^{-1/2}$  で変化する。符号は  $\Gamma_T$  も同様に反転することになる。  $p > p_c$  に位置する非磁性状態の場合は高温領域で  $T^{-1/2}$  の  $p = p_c$  に従った振舞いをするが、最終的に Fermi 液体状態へクロスオーバーし温度に *constant* な値をとる。

一方で、Fig. 49 の図 (b) の相図に対応するような場合、磁気秩序相と無秩序相の位置関係が入れ替わるから、Fig. 52 の図 (b) のように図 (a) の振舞いが y 軸反転した対称的な振舞いをする。

**超低温での磁気相転移の可能性**  $\alpha/T$  の正の値から負の値への変化(あるいはその逆)は、磁気転移の際に見られる一般的な振舞いであり、重い電子系においても図 (a) に示したように **Ginzburg regime** と呼ばれる古典的相転移が成立する熱揺らぎが大きい領域で、 $\alpha/T$  の発散的な振舞いが見られる。

Fig.41 に示した  $\alpha/T$  の急激な変化が見られた 60 mK から 10 mK の温度領域は  $c$  軸の交流帯磁率、静磁化率が Curie 則的に立ち上がる領域であるが、交流帯磁率、静磁化率の結果には磁気転移と考えられる明確な振舞いは見られず、 $\alpha/T$  との対応関係もない。また交流帯磁率は磁場印加によってピークを形成して抑制されるが、ピークよりも低温側の振る舞いが SDW による反強磁性転移後の振舞いに酷似していることから、高橋氏によってネール温度  $T_N$  が 2.8 mK と見積もられている [77]。しかし帯磁率の結果は 2.8 mK 付近において反強磁性転移による明確な変化が観測されておらず、むしろ 0.016 mT では最低温まで発散するような振舞いをしているため、反強磁性転移の可能性は否定されている。従って、 $\alpha/T$  においても反強磁性転移の可能性はないと考えられる。

**非置換 CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の高圧側にもう一つの QCP が存在する可能性** Fig. 49 の図 (b) のように QCP の高圧側に磁気秩序相が存在する場合を考える。 $\alpha/T$  の振舞いは QCP の低圧側に位置する場合、 $\alpha/T$  は負の値を持つ(つまり低温に下げると膨張する)。この場合も絶対零度に到達する前に Fermi 液体状態へのクロスオーバーが起こり温度に *constant* になると考えられる。このような低温で磁気転移しないが負の熱膨張係数を持つような振舞いは、本研究で測定された熱膨張係数の結果に当てはまる。

Fig 53 は  $\alpha/T$  を横軸  $-T^{-1/2}$  にとったプロットで、横軸は Fig. 52 図 (b) における  $p \leq p_c$  の Fermi 液体領域での振舞いに相当する。 $\alpha/T$  が負の値になる領域では  $-T^{-1/2}$  に線形で、3次元系の反強磁性量子臨界点 (AFMQCP) が高圧側に存在することを示唆する。しかし、本研究で得られた  $-T^{-1/2}$  の領域は約 15 mK~20 mK の限定された温度範囲であり、

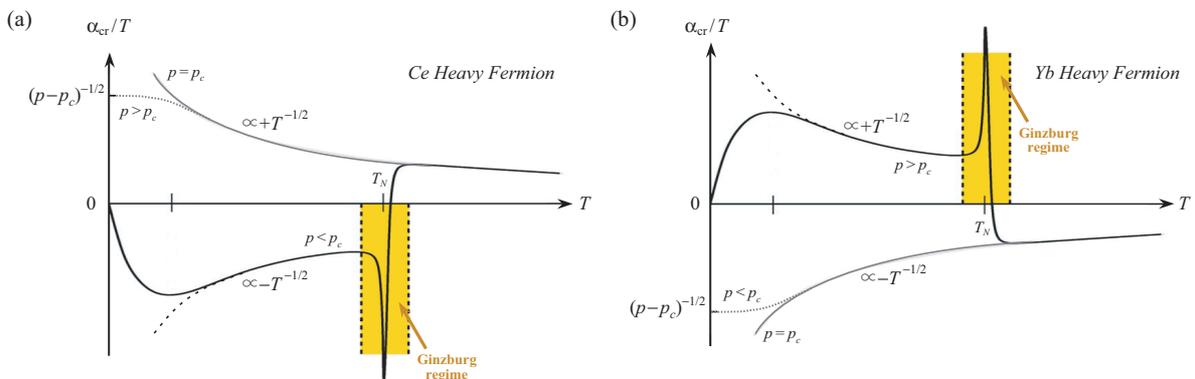


Fig.52 SDW 型量子相転移における三次元反強磁性 QCP 近傍の  $\alpha/T$  の振舞い [93]。(a) は Fig. 49(a)、(b) は Fig. 49(b) の相図に対応する。 $P_c$  は臨界圧力を示している。

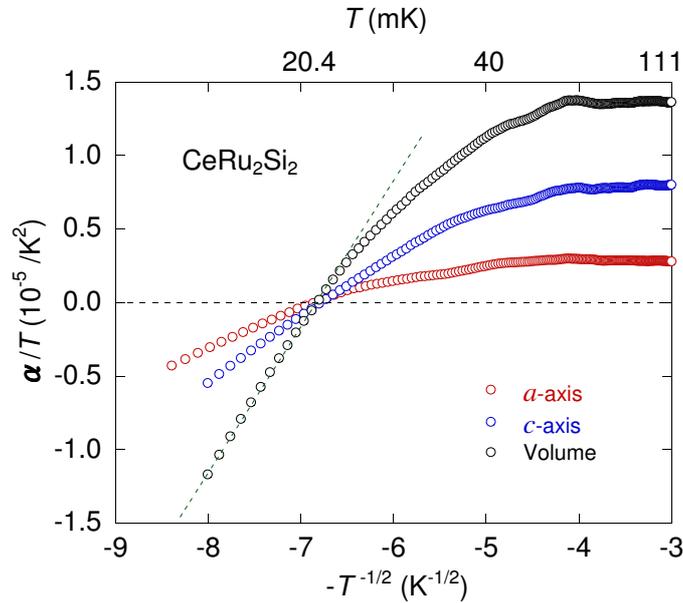


Fig.53  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $\alpha/T$  の振舞い。横軸は  $-T^{-1/2}$  であり、Fig. 52 の図 (b) における  $p \leq p_c$  の場合に対応する。図中の破線 (緑) は  $-T^{-1/2}$  スケールが成り立つ目安。破線は体積熱膨張係数のみに描いたが、 $a$  軸も  $c$  軸も共に  $-T^{-1/2}$  に線形である。

今後より低温での測定が必要である。

本研究では、新しい AFMQCP を観測することはできなかったが、約 21 mK で  $\Gamma_T$  が正から負に反転し、高压側でエントロピーの増加が起こっていることを示した。また  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は負の化学圧力で磁気秩序相が誘起され、 $p_c = -0.3$  GPa に AFMQCP の存在が知られていること、等エントロピー線は磁気転移点で極小を持つことを踏まえると、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $p$ - $T$  相図には 2 つの量子臨界点が存在し、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は 2 つの量子臨界点に挟まれた領域に位置している Fermi 液体状態である可能性が考えられる。21 mK で起きた  $\Gamma$  の符号の正から負への反転は等エントロピー線の傾きが正から負へ反転したことと同義であり、等エントロピー線の極大を観測したものと考えられる。等エントロピー線の傾きの符号の変化は、降温によって  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  が低压側の AFMQCP より高压側に存在する未知の量子臨界点 (Hidden QCP) に近づき、Hidden QCP に起源をもつ量子臨界状態が支配的になったことで起こったと解釈できる。また熱膨張係数の非 Fermi 液体的振舞いは 9 T まで磁場印加してもほとんど変わらず、圧力が有効なコントロールパラメータだと考えられる。Fig. 54 に予想される  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の新しい  $p$ - $T$  相図を示す。

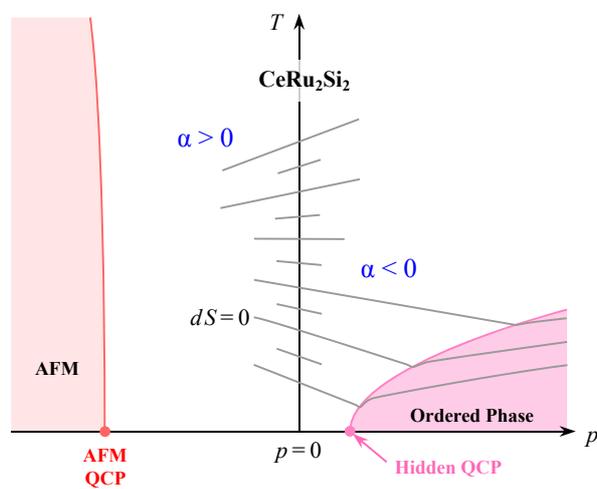


Fig.54 熱膨張測定の結果から予想される  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の新しい  $p$ - $T$  相図。低圧側の磁気秩序相および  $p_c = -0.3$  GPa に位置する AFM QCP は La、Rh、Ge 置換系で観測されている。高圧側に示された Hidden QCP および磁気秩序相は本研究の熱膨張測定から予測されているものである。灰色の線は等エントロピー線を表し、Hidden QCP より低圧側に位置する  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の熱膨張係数の値は負の値をとる。

### 3.3.2 磁歪係数の非 Fermi 液体的振舞いについての考察

$a$  軸に磁場印加したときの  $a$  軸の磁歪係数は Fig. 48 に示したように低温低磁場になるほど鋭い負のピークを持った非 Fermi 液体的振舞いを示し、負のピークは磁場印加または昇温によって抑制される。磁歪係数  $\lambda$  は式 (2.14) で与えられ、磁歪係数が負の値を持つとき、圧力印加によって磁化または帯磁率が増加することを意味する。

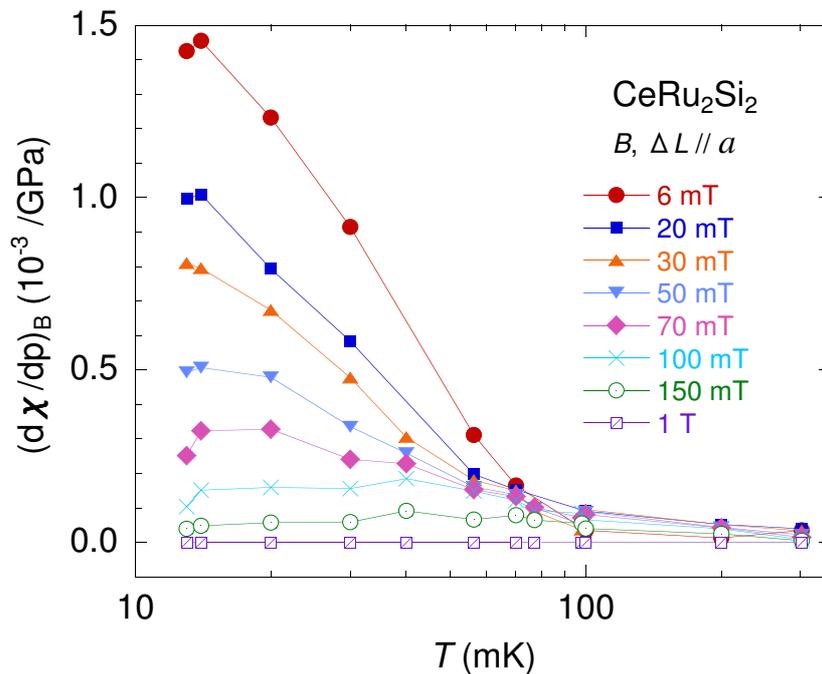


Fig.55 CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の磁歪測定から求まる帯磁率の圧力微分係数。

本研究で測定された線磁歪係数に対して非 Fermi 液体的寄与  $\lambda_{cr}$  を  $\lambda = \lambda_{FL} + \lambda_{cr}$  の様に定義し、 $(\partial\chi/\partial p)_B = -\mu_0\lambda/B$  の温度依存性を Fig. 55 に示す。6 mT の低磁場では温度を下げると  $\partial\chi/\partial p$  が少しずつ増加し、約 60~70 mK 付近から急に増加した。磁場を強くすると  $\partial\chi/\partial p$  の増加が抑制されるように振舞い、1 T にするとほぼ零になった。この振舞いは先行研究の帯磁率の温度依存性 (Fig.25) に類似しており、両者の間にスケーリング則が成立することを示唆している。

### 3.3.3 磁歪係数のスケーリング則

図 25(b) に示すように交流帯磁率・静磁化率は交流帯磁率のピーク値、ピーク温度と静磁化率の飽和磁化で規格化するとそれぞれスケーリング則が成立する。本研究で測定された磁歪係数にも (3.3) 項にて磁化とスケーリング則が成り立つ可能性が見い出された。この項では測定された磁歪と熱膨張にスケーリング則が成立するかを議論する。

超低温で現れる静磁化  $M$  が特性的な磁場  $B_S(p)$  で  $M = M(B/B_S(p))$ 、エントロピー  $S$  が特性的な温度  $T_S(p)$  で  $S = S(T/T_S(p))$  で、スケーリングが成立するとき、以下の関係で定義されたスケーリングパラメータを用いて各物理量の間で成立するスケーリング式を導出する。

$$\Omega_B \equiv \frac{\partial \ln B_S}{\partial p} = \kappa_T \Gamma_B \quad (3.11)$$

$$\Omega_T \equiv \frac{\partial \ln T_S}{\partial p} = \kappa_T \Gamma_T \quad (3.12)$$

$\kappa_T$  は等温圧縮率、 $\Gamma_B$  は磁氣的 Grüneisen パラメータ、 $\Gamma_T$  は熱的 Grüneisen パラメータである。ここで微小圧力変化を考えたとき、 $\Omega \approx const$  である。CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の場合、メタ磁性近傍では磁化測定や電気抵抗、帯磁率の加圧実験から  $\Omega$  が  $\Omega \approx \Omega_B \approx \Omega_T = 171 \text{ Mbar}^{-1}$  との報告がある [96]。

(3.3.1) 項でも述べたように、Fig. 25 の静磁化率の温度依存性は本研究の測定温度領域 ( $T > 10 \text{ mK}$ ) では Curie 則的に変化しているから、(3.11) 式より磁歪係数  $\lambda$  と磁化  $M$  の間には

$$\begin{aligned} \lambda &= -\frac{B}{\mu_0} \left( \frac{\partial \chi}{\partial p} \right)_{B,T} = \frac{B}{B_S^2} \frac{\partial B_S}{\partial p} \frac{\partial M}{\partial b} \\ &= \Omega_B H \left( \frac{\partial M}{\partial H} \right)_{p,T} \simeq \Omega_B M \end{aligned} \quad (3.13)$$

の線形性が成り立つ。ここで  $b = B/B_S(p)$  である。

Fig. 56 は 6 mT における  $a$  軸の  $\lambda_{cr}$  と Fig. 25 の  $c$  軸の静磁化  $M_{cr}$  の間のスケーリングの結果である。 $\Omega_B = -370 \text{ Mbar}^{-1}$  であるとき  $\lambda_{cr}$  と  $\Omega_B M_{cr}$  はよく一致する。磁場印加方向と測定軸方向がそれぞれ違うから  $\Omega_B =$  に異方性が現れる可能性はある。しかし、この結果は結晶軸方向に関係なくスケーリング則が成り立っていることを示している。

また式 (3.12) より、(3.3.1) 項で示すように熱膨張係数  $\alpha$  はエントロピー  $S$  から  $t = T/T_S(p)$  を用いて、

$$\alpha = -\frac{1}{V} \left( \frac{\partial S}{\partial p} \right)_{T,B} = \frac{1}{V} \frac{T}{T_S^2} \frac{\partial T_S}{\partial p} \frac{\partial S}{\partial t} = \Omega_T \frac{C}{V} = \frac{C_V}{V} \kappa_T \Gamma_T \quad (3.14)$$

の関係が成り立つ。 $\Gamma_T$  は Fig. 51 に示した、本研究で測定された体積熱膨張から  $\kappa_T = 0.95 \text{ Mbar}^{-1}$  を用いて求められ、60 mK 以上の Fermi 液体状態では  $\Gamma_T \sim 210$  である。また式 (3.12) より  $\Omega_T \sim 200 \text{ Mbar}^{-1}$  である。一方、60 mK 以下は負の方へ減少し、絶対零度まで外挿した場合、 $\Omega_T$  は  $-10^3 \text{ Mbar}^{-1}$  オーダーまで増加する可能性がある。これは上述した  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の磁化や電気抵抗、帯磁率の振舞いが  $\Omega = 171 \text{ Mbar}^{-1}$  という単一のパラメータで表されるのに対し、本研究で明らかになった  $\Omega_T$  の負の符号はこれまで知られてきた高温側のものとは、全く別のエネルギースケールが寄与していることを示している。熱膨張係数と比熱にスケーリング則が成立するかについてはまだ明らかではない。

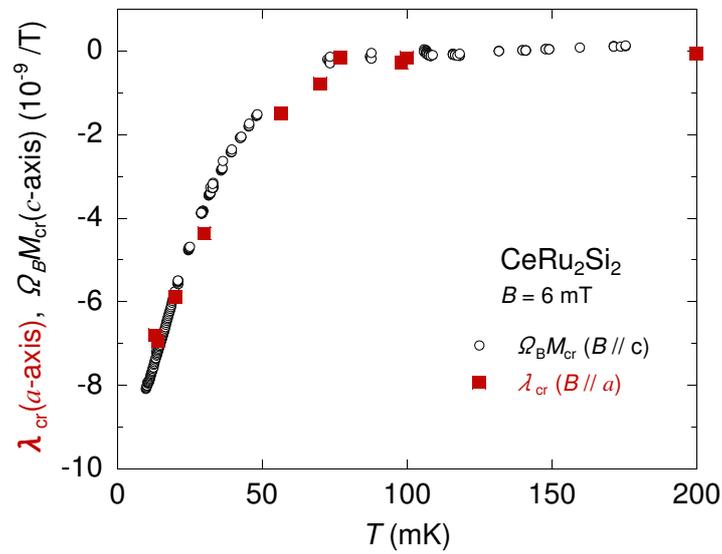


Fig.56  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸の磁歪係数に対する  $c$  軸の静磁化のスケーリング [式 (3.13)]。

## 4 Conclusion

重い電子系  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の超低温領域における量子臨界現象の起源を解明するために熱膨張・磁歪測定を行った。

10 mK まで零磁場で  $a$  軸と  $c$  軸方向の熱膨張  $\Delta L(T)/L$  を測定したところ 60 mK より高温側では  $T^2$  に比例した Fermi 液体的振舞いを示した。一方、60 mK より低温では  $T^2$  依存性から逸脱した非 Fermi 液体的振舞いを観測した。 $a$  方向に磁場印加した場合の  $a$  軸の熱膨張は、9 T まで磁場を上げてても零磁場のときとほとんど振舞いは変わらず、60 mK 以下の非 Fermi 液体的振舞いも観測された。熱膨張係数  $\alpha$  を導出し解析した結果、非 Fermi 液体的振舞いは 21 mK より低温で負の  $\alpha$  を持つことがわかった。これは圧力印加によって  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の常圧より高圧の状態では、エントロピーが増大していることを示している。また Grüneisen パラメーター  $\Gamma_T$  から約 21 mK で、等エントロピー線の勾配が正から負に反転することがわかった。

$\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は負の化学圧力で磁気秩序相が誘起され、 $p_c = -0.3$  GPa に AFMQCP が存在することが知られており、等エントロピー線は磁気転移点で極小を持つことから、AFMQCP の高圧側にある  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の基底状態が Fermi 液体状態であるなら  $\alpha$  と  $\Gamma_T$  は正の値をとる。しかし、本研究から等エントロピー線の勾配は超低温領域で負に転じており、これは等エントロピー線の極大があることを意味する。これらの結果を考慮すると、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の高圧側には未知の量子臨界点 (Hidden QCP) が存在しており、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は低圧側の AFMQCP と Hidden QCP に挟まれた領域に位置している可能性が考えられる。 $\alpha$  と  $\Gamma_T$  の符号の反転は 21 mK 以下まで低温に下げることによって、系が AFMQCP より Hidden QCP に近くなり等エントロピー線の勾配が反転して起こったものと解釈できる。

次に 1 K 付近の  $c$  軸、 $a$  軸方向の磁歪測定および、300 mK 以下で  $a$  軸方向の磁歪測定を行った。1 K 付近では  $c$  軸方向に磁場印加し、 $c$  軸方向の磁歪測定で 8 T 付近にメタ磁性を確認した。一方、 $a$  軸方向に磁場印加した場合、 $a$  軸方向の磁歪にはメタ磁性が現れず、9 T まで Fermi 液体的振舞いを示した。測定軸方向に磁場印加した場合、 $a$  軸、 $c$  軸方向の各磁歪の磁気異方性は  $c/a = 660 \sim 710$  の巨大な磁気異方性を持つことを明らかにした。

300 mK 以下、1 T 以下の低温低磁場での  $a$  軸方向への磁歪測定では、0.5 T 以下に磁歪係数  $\lambda$  が極小をとる非 Fermi 液体的振舞いを明らかにした。極小の大きさは最低温低磁場で最も大きくシャープで、昇温・磁場印加によって極小はブロードに小さくなり高磁場側にシフトしていく。約 100 mK より高温では、 $\lambda$  は極小が反対に低磁場側にシフトし、およそ 300 mK を越えると極小が消えて Fermi 液体状態に戻ることがわかった。 $\lambda$  に関する非 Fermi 液体的振舞いは圧力印加によって磁化または帯磁率が增大することを示し、 $\alpha$  と  $\Gamma_T$  の結果を支持する。一般に QCP 近傍では磁化率の増大が観測されるため、 $\lambda$  の結果

は Hidden QCP の存在を示唆するものと考えられる。

次に  $a$  軸の  $\lambda$  と先行研究の  $c$  軸の静磁化  $M$  にスケーリング則が成立することを指摘した。エントロピーや磁化などが特性的な温度、磁場を持つ場合、異なる物理量の間にもスケーリング則が成立する。本研究における熱膨張・磁歪の結果は特性温度・磁場が圧力依存性を持つスケーリングパラメータを導入することで、非 Fermi 液体状態について  $\lambda$  を静磁化でスケーリングできることを明らかにした。又、 $\Gamma_T$  の温度依存性は高温側の Fermi 液体領域で  $\Omega_T \sim 200 \text{ Mbar}^{-1}$  から 60 mK で減少に転じ、絶対零度まで外挿すると  $-10^{-3} \text{ Mbar}^{-1}$  オーダーの負の値をとる可能性があり、高温側とは全く別のエネルギースケールが寄与していることが示唆される。スケーリング則が成立することで、これまでの先行研究も含めた本研究における非 Fermi 液体的振舞いが、同じ起源による量子臨界現象として理解できる。今後は同じ測定軸、磁場印加方向、測定温度磁場領域での追加測定や、他の物理量の測定、また元素置換系の超低温での実験など更なる追加実験が望まれる。

## 5 謝辞

超低温研究室に所属してから現在までの6年間、あっという間の充実した研究生活でした。指導教官である阿部聡准教授には要領が良いとは言えない私に実験の基礎から根気よくご指導して頂き、またたくさんの助言をいただいたことに感謝しております。松本宏一教授には、私の拙い実験や学会発表・論文・ミーティング資料等への添削・指摘など、呆れる様なこともあったでしょうが的確なアドバイスをして頂きまた最後までお付き合い頂き感謝しております。お二人の助力がなければ、乗り切れなかったこともあったかと思えます。本当にありがとうございます。

辻井宏之准教とは部屋が離れているため、たまの飲み会やBQなどの行事ごとで会う機会が多かったと思いますが、楽しい時間を過ごさせていただきました。また辻井氏の研究業績は私の研究内容とも関連があるため参考にさせていただきました。ありがとうございます。布村晃一技官には液体ヘリウム関連の管理をして頂き感謝しております。おかげさまで実験をスムーズに進行させることができました。本当にありがとうございます。また事務の森廣美さんにはTAや学会などや細かな雑務に関してまでお世話していただいて大変感謝しております。

低温研究室の学生の皆さんと一緒に過ごさせて頂いた期間は、たいへん有意義なものでした。ここで出会った先輩・同僚・後輩の皆様と助け合い励みあったおかげで研究生活に勤しむことができました。Oxfordグループの人たちには特に感謝しております。実験は時には厳しく辛いこともあったかと思えますが、それ以上に楽しいこともありましたし、やりがいがありました。皆さんと共に時間を共有し、研究生活が送れたことに感謝しております。佐々木さん、大西さん、高間君、海道君、峯岸君、上野君のみなさんの協力があってこそ、ここまで乗り切ることが出来ました。本当にありがとうございます。また修士まで一緒でした山田君にはゲーム制作のイロハを教えていただきました。今後の新作に期待しております。また、6年間一緒に過ごしてきた岩上君の存在は私にとって、とても大きかったです。私の研究生活においてどれほど励みになったか計り知れません。本当にありがとう。これからの新しい環境での成功を祈っています。そして最後に、今まで心配ばかりさせながらも最これまで暖かく見守ってくれた家族に心から感謝します。

## 6 Reference

- [1] 芳田奎ほか. 日本物理学会誌, Vol. 41, p. 721, 1987.
- [2] 上田和夫, 大貫惇睦. 重い電子系の物理. 裳華房, 東京, 1998.
- [3] K. Wilson. *Rev. Mod. Phys.*, Vol. 47, p. 773, 1975.
- [4] K. Kadowaki and S. B. Woods. *Solid State Commun.*, Vol. 58, p. 507, 1986.
- [5] K. Miyake and T. Matsuura. *Solid State Commun.*, Vol. 71, p. 1149, 1989.
- [6] D. Aoki, W. Knafo, and I. Sheikin. *Comptes Rendus Physique*, Vol. 14, No. 1, pp. 53–77, 2013.
- [7] N. Tsujii, H. Kontani, and K. Yoshimura. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 94, No. 5, p. 057201, 2005.
- [8] T. Moriya and T. Takimoto. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 64, p. 960, 1995.
- [9] S. Kambe, J. Flouquet, and T. E. Hargreaves. *J. Low Temp. Phys.*, Vol. 108, p. 383, 1997.
- [10] L. Zhu, M. Garst, A. Rosch, and Q. Si. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 91, p. 066404, 2003.
- [11] 青木晴善, 小野寺秀也. 強相関電子物理学. 朝倉書店, 2013.
- [12] G. Knebel, M. Brando, J. Hemberger, M. Nicklas, W. Trinkl, and A. Loidl. *Phys. Rev. B*, Vol. 59, No. 19, p. 12390, 1999.
- [13] P. Gegenwart, F. Kromer, M. Lang, G. Sparn, C. Geibel, and F. Steglich. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 82, p. 1293, 1999.
- [14] R. KÜchler, N. Oeschler, P. Gegenwart, T. Cichorek, K. Neumaier, O. Tegus, C. Geibel, J. A. Mydosh, F. Steglich, L. Zhu, and Q. Si. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 91, p. 066405, 2003.
- [15] P. Gegenwart, Y. Tokiwa, J. G. Donath, R. KÜchler, C. Bergmann, H. S. Jeevan, E.D. Bauer, J. L. Sarrao, C. Geibel, and F. Steglich. *J. Low Temp. Phys.*, Vol. 161, No. 1-2, pp. 117–133, 2010.
- [16] Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent, and J. L. Smith. *Nature (London)*, Vol. 413, p. 804, 2001.
- [17] Q. Si, S. Rabello, K. Ingersent, and J. L. Smith. *Phys. Rev. B*, Vol. 68, p. 115103, 2003.
- [18] T. Senthil, S. Sachdev, and M. Vojta. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 90, p. 21603, 2003.
- [19] T. Senthil, M. Vojta, and S. Sachdev. *Phys. Rev. B*, Vol. 69, p. 035111, 2004.
- [20] H. Tsujii, E. Tanaka, Y. Ode, T. Katoh, T. Mamiya, S. Araki, R. Settai, and Y. Ōnuki. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 84, p. 5407, 2000.
- [21] H. v. Löhneysen, M. Sieck, O. Stockert, and M. Waffenschmidt. *Physica B*, Vol.

- 223&224, p. 471, 1996.
- [22] A. Amato, D. Jaccard, J. Flouquet, F. Lapierre, J. L. Tholence, R. A. Fisher, S. E. Lacy, J. A. Olsen, and N. E. Phillips. *J. Low Temp. Phys.*, Vol. 68, p. 371, 1987.
- [23] G. Fraunberger, B. Andraka, J. S. Kim, U. Ahlheim, and G. R. Stewart. *Phys. Rev. B*, Vol. 40, p. 4735, 1989.
- [24] K. Heuser, E. W. Scheidt, T. Schreiner, and G. R. Stewart. *Phys. Rev. B*, Vol. 57, p. R4198, 1998.
- [25] M. Sieck, C. Speck, M. Waffenschmidt, S. Mock, and H. v. Löhneysen. *Physica B*, Vol. 223-224, p. 325, 1996.
- [26] A. Schröder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H. v. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman. *Nature (London)*, Vol. 407, p. 351, 2000.
- [27] H. v. Löhneysen, T. Pietrus, G. Portisch, H. G. Schröder, M. Sieck, and T. Trappmann. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 72, p. 3262, 1994.
- [28] R. KÜchler, P. Gegenwart, K. Heuser, E. W. Scheidt, G. R. Stewart, and F. Steglich. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 93, p. 096402, 2004.
- [29] O. Stockert, H. v. Löhneysen, A. Rosch, N. Pyka, and M. Loewenhaupt. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 80, p. 5627, 1998.
- [30] A. Schröder, G. Aeppli, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 80, p. 5623, 1998.
- [31] D. R. Grempel and Q. Si. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 91, p. 026401, 2003.
- [32] O. Trovarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F. M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, and F. Steglich. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 85, p. 626, 2000.
- [33] P. Gegenwart, J. Custers, C. Geibel, K. Neumaier, T. Tayama, K. Tenya, O. Trovarelli, and F. Steglich. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 89, p. 056402, 2002.
- [34] K. Ishida, K. Okamoto, Y. Kawasaki, Y. Kitaoka, O. Trovarelli, C. Geibel, and F. Steglich. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 89, p. 107202, 2002.
- [35] J. Casters, P. Gegenwart, H. Wilhelm, K. Neumaler, Y. Tokiwa, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, C. Pépin, and P. Coleman. *Nature (London)*, Vol. 424, p. 524, 2003.
- [36] P. Gegenwart, Y. Tokiwa, J. Custers, C. Geibel, and F. Steglich. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 75, p. 155, 2006.
- [37] S. Paschen, T. Lühmann, S. Wirth, P. Gegenwart, O. Trovarelli, C. Geibel, F. Steglich, P. Coleman, and Q. Si. *Nature (London)*, Vol. 432, p. 881, 2004.
- [38] P. Gegenwart, T. Weterkamp, C. Krellner, Y. Tokiwa, S. Paschen, C. Geibel, F. Steglich, E. Adrahams, and Q. Si. *Science*, Vol. 315, p. 969, 2007.
- [39] V. Vildosola, A. M. Llois, and M. Alouani. *Phys. Rev. B*, Vol. 71, p. 184420, 2005.
- [40] L. C. Gupta, D. E. MacLaughlin, C. Tien, C. Godart, M. A. Edwards, and R. D. Parks.

- Phys. Rev. B*, Vol. 28, p. 3673, 1983.
- [41] H. Yamagami and A. Hasegawa. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 62, p. 592, 1993.
- [42] M. Sato, S. Kawarazaki, Y. Miyako, and H. Kadowaki. *J. Phys. Chem. Solids*, Vol. 60, p. 1203, 1999.
- [43] P. Haen, H. Bioud, S. Zherlitsyn, S. Holtmeier, P. Lejay, and J. Flouquet. *Czechoslovak Journal of Physics*, Vol. 46, p. 2073, 1996.
- [44] T. Sakakibara, T. Tayama, H. Mitamura, H. Amitsuka, K. Maezawa, and Y. Ōnuki. *Phys. Rev. B*, Vol. 51, p. 12030, 1995.
- [45] M. Sugi, Y. Matsumoto, N. Kimura, T. Komatsubara, H. Aoki, T. Terashima, and S. Uji. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 101, p. 056401, 2008.
- [46] R. Daou, C. Bergemann, and S. R. Julian. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 96, p. 026401, 2006.
- [47] Y. Aoki, T. D. Matsuda, H. Sugawara, H. Sato, H. Ohkuni, R. Settai, E. Yamamoto, Y. Haga, A. V. Andreev, V. Sechovsky, et al. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 177, pp. 271–276, 1998.
- [48] K. Matsuhira, T. Sakakibara, A. Komachi, T. Tayama, K. Tenya, H. Amitsuka, K. Maezawa, and Y. Ōnuki. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 68, p. 3402, 1999.
- [49] F. Weickert, M. Brando, F. Steglich, P. Gegenwart, and M. Garst. *Phys. Rev. B*, Vol. 81, No. 13, p. 134438, 2010.
- [50] A. Lacerda, A. de Visser, P. Haen, P. Lejay, and J. Flouquet. *Phys. Rev. B*, Vol. 40, p. 8759, 1989.
- [51] K. Matsuhira, T. Sakakibara, K. Maezawa, and Y. Ōnuki. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 68, No. 7, pp. 2420–2425, 1999.
- [52] J. Flouquet, P. Haen, S. Raymond, D. Aoki, and G. Knebel. *Physica B: Condensed Matter*, Vol. 319, No. 1, pp. 251–261, 2002.
- [53] J. Rossat-Mignod, L. P. Regnault, J. L. Jacoud, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard, and A. Amato. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 76, pp. 376–384, 1988.
- [54] J. Rossat-Mignod, L. P. Regnault, J. L. Jacoud, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard, and A. Amato. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 76&77, p. 376, 1988.
- [55] H. Kadowaki, M. Sato, and S. Kawarazaki. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 92, p. 097204, 2004.
- [56] A. Amato, R. Feyerherm, A. Schenck, J. Flouquet, and P. Lajay. *Phys. Rev. B*, Vol. 50, p. 619, 1999.
- [57] J. M. Mignot, J. Floquet, P. Haen, F. Lapierre, L. Puech, and J. Voiron. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 76&77, p. 97, 1988.
- [58] H. Aoki, M. Takashita, N. Kimura, T. Terashima, S. Uji, T. Matsumoto, and Y. Ōnuki. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 70, p. 774, 2001.

- [59] J. M. Mignot, A. Ponchet, P. Haen, F. Lapierre, and J. Flouquet. *Phys. Rev. B*, Vol. 40, p. 10917, 1989.
- [60] S. Quezel, P. Burllet, J. L. Jacoud, L. P. Regnault, J. Rossat-Mignod, C. Vettier, P. Lejay, and J. Flouquet. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 76&77, p. 403, 1988.
- [61] Y. Yamamoto, K. Marumoto, Y. Miyako, K. Nishiyama, and K. Nagamine. *Hyperfine Interactions*, Vol. 104, p. 227, 1997.
- [62] S. Raymond, D. Raelison, S. Kambe, L. P. Regnault, B. Fak, R. Calemczuk, J. Flouquet, P. Haen, and P. Lejay. *Physica B*, Vol. 259-261, p. 48, 1999.
- [63] R. A. Fisher, C. Marcenat, N. E. Phillips, P. Haen, F. Lapierre, P. Lejay, J. Flouquet, and J. Voiron. *J. Low Temp. Rhys.*, Vol. 84, p. 49, 1991.
- [64] R. Djerbi, P. Haen, F. Lapierre, P. Lehmann, and J. P. Kappler. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 76&77, p. 260, 1988.
- [65] S. Kambe, S. Raymond, L. Regnault, J. Flouquet, P. Lejay, and P. Haen. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 65, p. 3294, 1996.
- [66] C. Sekine, T. Sakakibara, H. Amitsuka, Y. Miyako, and T. Goto. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 61, p. 4536, 1992.
- [67] Y. Miyako, T. Takeuchi, T. Taniguchi, S. Kawarazaki, K. Marumoto, R. Hamada, Y. Yamamoto, M. Ocio, P. Pari, and J. Hammann. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 65, p. 12, 1996.
- [68] Y. Tabata, D. R. Grempel, M. Ocio, T. Taniguchi, and Y. Miyako. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 86, p. 524, 2001.
- [69] B. Lloret, B. Chevalier, B. Buffat, J. Etourneau, S. Quezel, A. Lamharrar, J. Rossat-Mignod, R. Calemaczuk, and E. Bonjour. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 63&64, p. 85, 1987.
- [70] S. Murayama, C. Sekine, A. Yokoyanagi, K. Hoshi, and Y. Ōnuki. *Phys. Rev. B*, Vol. 56, p. 092, 1997.
- [71] Y. Tabata, T. Taniguchi, M. Sato, S. Kawarazaki, and Y. Miyako. *J. Phys. Soc. Jpn.*, Vol. 67, p. 2484, 1998.
- [72] H. Kadowaki, Y. Tabata, M. Sato, N. Aso, S. Raymond, and S. Kawarazaki. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 96, p. 016401, 2006.
- [73] M. B. Fontes, M. A. Comtinentino, S. L. Bud'ko, M. El-Massalami, L. C. Sampaio, A. P. Guimaraes, E. Baggio-Saitovitch, M. F. Hundley, and A. Lacerda. *Phys. Rev. B*, Vol. 53, p. 678, 1996.
- [74] P. Haen, F. Lapierre, J. Voiron, and J. Flouquet. *J. Phys. Soc. Jpn. Suppl. B*, Vol. 65, p. 16, 1996.
- [75] S. Süllow, M. C. Aronson, B. D. Rainford, and P. Haen. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 82, p. 2963, 1999.

- [76] C. Godart, A. M. Umarji, L. C. Gupta, and R. Vijayaraghavan. *Phys. Rev. B*, Vol. 34, p. 7733, 1986.
- [77] D. Takahashi, S. Abe, H. Mizuno, D. A. Tayurskii, K. Matsumoto, H. Suzuki, and Y. Ōnuki. *Phys. Rev. B*, Vol. 67, No. 18, p. 180407, 2003.
- [78] J. Yoshida, S. Abe, D. Takahashi, Y. Segawa, Y. Komai, H. Tsujii, K. Matsumoto, H. Suzuki, and Y. Ōnuki. *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 101, No. 25, p. 256402, 2008.
- [79] 小林俊一, 大塚洋一. 低温技術 [第2版]. 東京大学出版会, 東京, 1987.
- [80] 田沼静一, 馬宮孝好. 超低温. 共立出版, 東京, 1998.
- [81] 福山寛. 固体物理, Vol. 30, p. 938, 1995.
- [82] D. S. Greywall. *Phys. Rev. B*, Vol. 33, No. 11, p. 7520, 1986.
- [83] D. S. Greywall. *Phys. Rev. B*, Vol. 31, No. 5, p. 2675, 1985.
- [84] D. Inoue, D. Kaido, Y. Yoshikawa, M. Minegishi, K. Matsumoto, and S. Abe. Vol. 568, p. 032001. IOP Publishing, 2014.
- [85] 井上大貴, 修士論文, 金沢大学, 2013 年度.
- [86] H. Fukuyama, K. Yawata, D. Ito, H. Ikegami, and H. Ishimoto. *Physica B: Condensed Matter*, Vol. 329, pp. 1560–1561, 2003.
- [87] Lake Shore Cryotronics Inc. <http://www.toyo.co.jp/material/>.
- [88] W. A. Bosch, F. Mathu, H. C. Meijer, and R. W. Willekers. *Cryogenics*, Vol. 26, No. 1, pp. 3–8, 1986.
- [89] S. Abe, F. Sasaki, T. Oonishi, D. Inoue, J. Yoshida, D. Takahashi, H. Tsujii, H. Suzuki, and K. Matsumoto. *Cryogenics*, Vol. 52, No. 10, pp. 452–456, 2012.
- [90] C. A. Swenson. *Review of scientific instruments*, Vol. 68, No. 2, 1997.
- [91] E. Dwight Adams. *Review of scientific instruments*, Vol. 64, No. 3, pp. 601–611, 1993.
- [92] AH2700A, Andeen-Hagerling, Inc., 31200 Bainbridge Road Cleveland, Ohio 44139-2231 U.S.A.
- [93] M. Garst and A. Rosch. *Phys. Rev. B*, Vol. 72, No. 20, p. 205129, 2005.
- [94] P. Haen, S. Kambe, H. Bioud, and A. De Visser. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 226, pp. 252–253, 2001.
- [95] J. Flouquet, S. Kambe, L. P. Regnault, P. Haen, J. P. Brison, F. Lapierre, and P. Lejay. *Physica B: Condensed Matter*, Vol. 215, No. 1, pp. 77–87, 1995.
- [96] J. M. Mignot, J. Flouquet, P. Haen, F. Lapierre, L. Puech, and J. Voiron. *J. Magn. Magn. Mat.*, Vol. 76, pp. 97–104, 1988.