

# 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

著者	井上 大貴
著者別表示	Inoue Daiki
雑誌名	博士論文要旨Abstract
学位授与番号	13301甲第4397号
学位名	博士(理学)
学位授与年月日	2016-03-22
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2297/45359">http://hdl.handle.net/2297/45359</a>



# 学位論文要旨

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  
Thermal expansion and magnetostriction measurements of  
heavy fermion  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$   
at ultralow temperatures and high magnetic fields

金沢大学大学院自然科学研究科  
数物科学専攻

井上 大貴

## Abstract

Heavy fermion systems are suitable for studying a quantum critical point which is a continuous order-disorder transition point at zero temperature.  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  is well known as a heavy fermion compound for an example of a pressure-driven quantum phase transition. It is interpreted that the system is in the Fermi-Liquid state. On the other hand, the magnetic susceptibility measurements for undoped  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  indicate a quantum critical state at ultra low temperatures. I have measured linear thermal expansion and magnetostriction of single crystal  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  in order to study of the quantum critical phenomenon in magnetic fields up to 9 T and at temperatures down to 10 mK. At high temperatures, thermal expansion coefficient and magnetostriction coefficient are proportional to the temperature and magnetic field, respectively. It means that the system is in the Fermi-Liquid state. In addition, we observed a strong anisotropy between  $a$  and  $c$  axis for the magnetostriction coefficient. In contrast, a pronounced non-Fermi-Liquid behavior with negative deviations from Fermi-Liquid state are found in thermal expansion measurement below 60 mK. Furthermore, the negative deviations from the magnetic field dependence for magnetostriction are observed below 0.4 T. These negative contributions imply the existence of a hidden quantum critical point at higher-than-ambient pressure.

## 論文要旨

**序論** 希土類やアクチノイドを含む金属間化合物は磁性を担う  $f$  電子を持っていることで、非常に興味深い現象が低温で現れる。これは局在性の強い  $4f$  電子または  $5f$  電子間に働くクーロン相互作用と  $f$  電子-伝導電子 ( $c$  電子) 間に起こる混成 ( $cf$  混成) の結果、2つの相互作用が働き多彩な状態を実現することになる。2つの相互作用とはすなわち、 $f$  電子- $c$  電子間に働く近藤効果と  $c$  電子を媒介に隣接した  $f$  電子- $f$  電子間に働く RKKY 相互作用のことである。

$cf$  混成が強い場合は近藤効果が支配的になり、 $f$  電子と  $c$  電子は一重項束縛状態を作る。このような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、 $f$  電子の局在性は  $c$  電子によりスピンの遮蔽され遍歴する。近藤一重項状態ではスピンが見かけ上消失するため磁気秩序を持たない。また電子間相互作用の強さが無視できず、電子の有効質量が自由電子の数十倍～数百倍に達する。そのような物質群を総称して重い電子系と呼ぶ。重い電子系は準粒子の概念を取り入れた Fermi 液体論で理解される。

RKKY 相互作用は隣接する二つの  $f$  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。 $f$  電子スピンを感じた  $c$  電子のスピン分極密度の振動による長距離相互作用

であり、磁気秩序を形成する。

近藤効果と RKKY 相互作用はどちらも  $cf$  混成を起源に持つにも関わらず、無秩序状態と磁気秩序状態の相反する状態が実現する。2つの相互作用は  $cf$  混成の強さによって優劣が決まり、競合している。絶対零度において両者が拮抗しているとき、無秩序状態と秩序状態の境目を量子臨界点 (QCP) と呼ぶ。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。

本研究の研究対象物質である  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は近藤温度  $T_K = 14 \text{ K}$ 、電子比熱  $\gamma = 350 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$  の典型的な重い電子系であり、基底状態は重い Fermi 液体状態である。また、各元素置換系の実験から格子間隔が伸びると反強磁性秩序状態に相転移することが知られている。すなわち、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  が位置する常圧よりも低圧側に QCP が存在することを意味している。

一方、非置換  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の交流帯磁率および静磁化率の測定が超低温低磁場領域で行われたが、どちらも低温に下げると帯磁率の増加が観測された。帯磁率は低温を下げるとともに単調に増加し、磁場を印加すると交流帯磁率はピークを作り、静磁化率はピークを作らないがどちらも磁場印加によって減少し、最終的に Pauli 常磁性の値まで抑制される。このような低温で常磁性状態でありながら更に低温に下げると帯磁率の増加を示すような物質あるいは反強磁性相関を持つ物質は、Fermi 液体状態から更に温度を下げると磁気転移する例が度々報告されている。 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の帯磁率の異常にも類似する特徴がみられたが、既存の理論では説明できず、 $150 \mu\text{K}$  まで冷却しても磁気転移のような振舞いはみられなかった。しかし、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の零磁場近傍での帯磁率・静磁化の異常は新しい量子臨界点であると考えられ、それは磁場によって抑制されるが、その起源は不明確である。

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の起源を解明するため、 $10 \text{ mK}$  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・磁歪測定を行った。

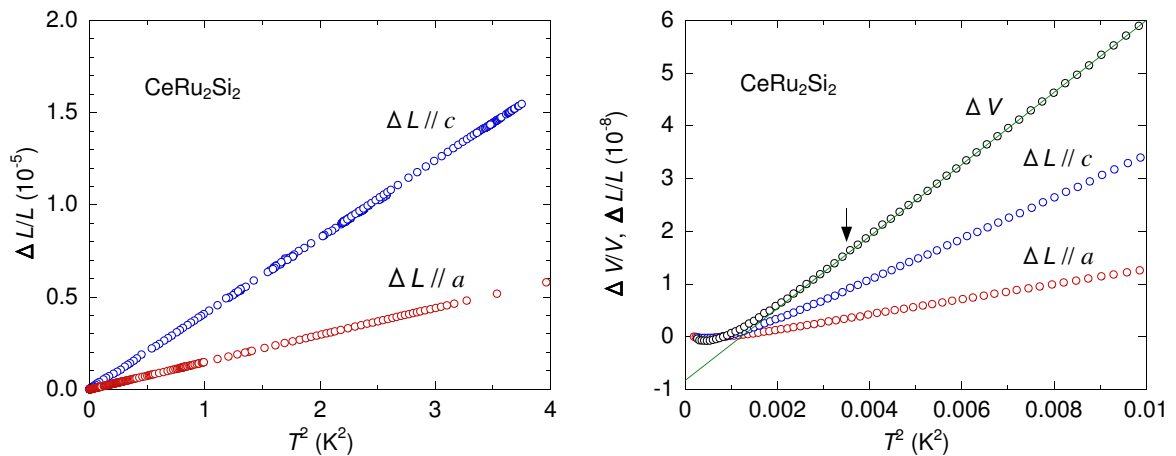
**実験方法** 本研究では試料の冷却に  $^3\text{He}$ - $^4\text{He}$  希釈冷凍機を用いて最低温度  $10 \text{ mK}$  まで冷却した。また超低温高磁場の多重極限環境を開発し、 $10 \text{ mK}$  で  $9 \text{ T}$  までの磁場印加を可能とした。

熱膨張・磁歪測定には試料長変化を静電容量変化で検出するキャパシタンス法を用いた。本研究で製作したキャパシタンス式膨張計は三端子構造をしており、試料キャパシタ部分と標準キャパシタ部分が一体になった構造である。

測定は、三端子膨張計を交流インピーダンスブリッジ回路に組み込み標準キャパシタンスに対する試料キャパシタンスの変化を零位法で測定した。測定分解能は試料長の変化率  $\Delta L/L$  で  $10^{-11}$  の高精度な測定を実現した。試料は Czochralski 法で作製され、 $4 \text{ mm}$  角程度の立方状の単結晶  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  である。

**実験結果と考察** Fig. 1 は  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸と  $c$  軸の線熱膨張  $\Delta L/L$  と線熱膨張から求められた体積膨張  $\Delta V/V$  である。横軸は  $T^2$  スケールでプロットしてある。左図の熱膨張は ANDEEN 社の自動キャパシタンスブリッジで試料キャパシタンスと標準キャパシタンスを別々に、右図の熱膨張はキャパシタンスブリッジで測定された結果である。左では  $T^2$  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、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  は Fermi 液体状態であることを示している。右図は 100 mK 以下をより精密に測定したデータである。 $a$ 、 $c$  軸共に 60 mK 以上で  $T^2$  に線形で、 $a$  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。体積膨張は  $\Delta V/V = 2(\Delta L_a/L_a) + \Delta L_c/L_c$  より、70~170 mK の間で線形フィッティングを行った結果、 $\Delta V/V = 6.8 \times 10^{-6} T^2$  であった。これらの結果は 2 K 以上で測定された文献値とよく一致している。

一方、60 mK より低温では Fermi 液体的振舞いからの逸脱が  $a$ 、 $c$  軸共に観測された。これは超低温まで冷却することで現れた臨界揺らぎによる非 Fermi 液体的寄与だと考えられる。



**Fig.1**  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸と  $c$  軸の線熱膨張と線熱膨張から求められた体積膨張。横軸は  $T^2$  スケールでプロットしてある。左図：2 K 以下の線熱膨張。右図：100 mK 以下の熱膨張。 $a$  軸と  $c$  軸の線熱膨張はそれぞれ  $\Delta L_a(T)/L_a = 1.4 \times 10^{-6} T^2$ 、 $\Delta L_c(T)/L_c = 4.01 \times 10^{-6} T^2$  の温度依存性を示し、これらより体積膨張は  $\Delta V(T)/V = 1.36 \times 10^{-5} T^2$  (右図中の緑線) を示す。

Fig. 1 で示した線膨張あるいは体積膨張を温度微分すると線熱膨張係数、体積熱膨張係数が求まる ( $\alpha = (dL/dT)/L$ )。60 mK 以下で現れる非 Fermi 液体的寄与の熱膨張係数を  $\alpha_{cr}$  として Fermi 液体的寄与と分離すると、 $\alpha = \alpha_{FL} + \alpha_{cr}$  で与えられる。Fig. 2 は  $a$  軸方向に磁場印加したとき、各磁場における  $a$  軸方向の熱膨張係数の非 Fermi 液体的寄与  $\alpha_{cr}$  を示す。磁場を 9 T までかけても  $\alpha$  はほとんど磁場依存性を示さず、かつ  $\alpha_{cr}$  は負の値を示した。熱膨張係数は熱力学関係式から  $\alpha = -\frac{1}{V} \left( \frac{\partial S}{\partial p} \right)$  であり、 $\alpha$  は等温過程におけるエントロピーの圧力微分を表す。つまり  $\alpha_{cr}$  は負の値だから、圧力を増大させるとエントロピーが増大することを示している。 $T - p$  相図における磁気秩序-無秩序転移を考えたとき、磁気転移点では等エントロピー線は極小を持つから、常圧より負の圧力側に反強磁性量子臨界点をもつ  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  では  $\alpha_{cr}$  の符号は正の値を持つはずである。従って、 $\alpha_{cr}$  の負の値は非置換  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の常圧より高圧側に磁気秩序相が存在することを示唆している。

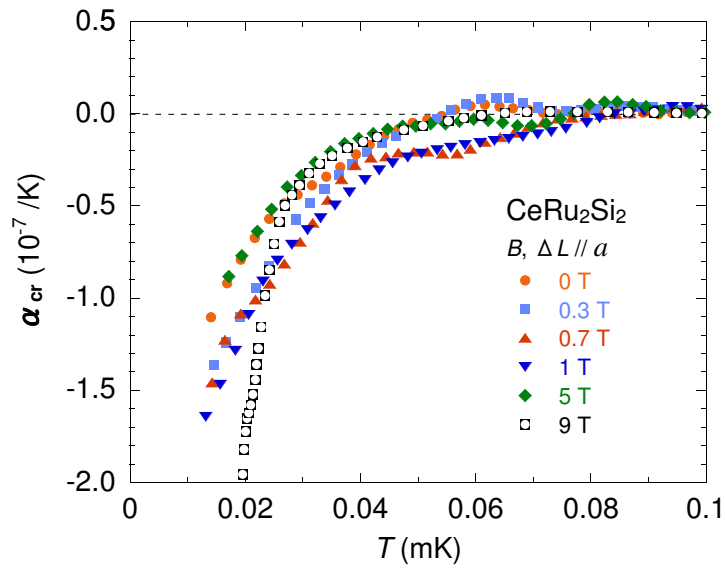


Fig.2  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸方向に磁場印加した場合の  $a$  軸方向の線熱膨張係数の臨界寄与  $\alpha_{cr}$ 。

Fig. 3 に 2 K における、 $a$  軸と  $c$  軸の線磁歪  $\Delta L(B)/L$  を示す。印加磁場方向はそれぞれ試料長の変化方向に平行である。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は、 $a$ 、 $c$  軸共に  $H_m \approx 7.8$  T でクロスオーバーメタ磁性による急激な体積膨張を示すことが知られている。図中の  $c$  軸 (青色) はメタ磁性を示しており、最初の 2 T まで  $B^2$  スケールに線形であるが、それより大きい磁場範囲では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  $a$  軸の変化にメタ磁性は現れなかった。低温で磁気秩序を持たない場合、金属中の伝導電子系は Fermi 液体論に従うため体積 (線) 磁歪は  $B^2$  に比例する。 $B^2$  の比例係数は  $a$  軸が  $\Delta L_a/L_a = 1.33 \times 10^{-8} B^2$ 、 $c$  軸で  $B < 2$  T では  $\Delta L_c/L_c = 8.8 \sim 9.5 \times 10^{-6} B^2$  であった。磁場印加方向が異なる場合の  $a$  軸と  $c$  軸の磁氣的異方性は

$$\frac{c(B//c)}{a(B//a)} = 660 \sim 710 \quad (0.1)$$

であった。この巨大な異方性は帯磁率の圧力感度の比に対応しており、 $c$  軸方向については圧力が有効な物理パラメータであることを示している、。

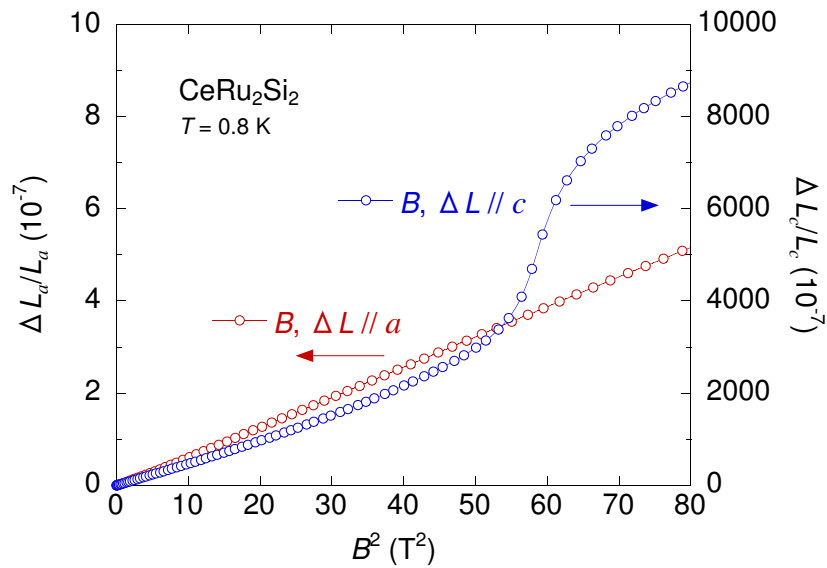


Fig.3 CeRu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> の 2 ケルビンにおける  $a$  軸と  $c$  軸の線磁歪  $\Delta L_a/L_a$ 、 $\Delta L_c/L_c$ 。磁場方向は測定した結晶軸に平行である。 $a$  軸は  $\Delta L_a(B)/L_a = 2.66 \times 10^{-8} B^2$ 、 $c$  軸は 2 T 以下で  $\Delta L_c(B)/L_c = 1.76 \times 10^{-5} B^2$  で示される。

Fig. 4 にミリケルビン領域で 9 T まで磁場印加した磁歪測定から導かれた  $a$  軸方向の線磁歪係数  $\lambda$  の磁場依存性を示す。0.6 T 以下で磁歪係数の極小が現れ、磁場を強くすると Fermi 液体的な  $B$  に線形な振舞いに戻った。これは低磁場領域で Fermi 液体状態から逸脱した非 Fermi 液体的振舞いを示している。 $\lambda$  は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。これは 300 mK 以下で非 Fermi 液体状態が出現し、温度低下とともに増大することを示している。また、磁歪係数  $\lambda$  は熱力学関係式から  $\lambda = -\left(\frac{\partial M}{\partial p}\right)$  で表され、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。

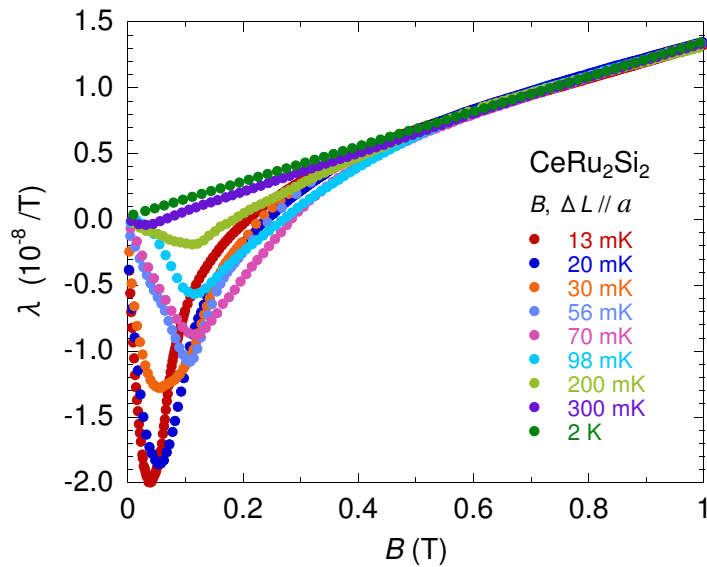


Fig.4 1 T までの  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸方向の磁歪係数。

**結論** 超低温高磁場領域で主に  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の  $a$  軸方向の熱膨張・磁歪測定を行ったところ低温低磁場で出現する新しい非 Fermi 液体状態を発見した。熱膨張係数と磁歪係数の臨界成分  $\alpha_{cr}$ 、 $\lambda_{cr}$  は負の寄与を示し、 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の常圧より高圧ではエントロピーと磁化の増大が起こっていることを指している。一般的に量子臨界点の近傍では磁化やエントロピーの増大が起こるため、これらの結果は  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の高圧側に未知の新しい QCP の存在を示唆している。



## 学位論文審査報告書（甲）

1. 学位論文題目（外国語の場合は和訳を付けること。）

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

2. 論文提出者 (1) 所 属 数物科学 専攻

(2) 氏 名 <sup>ふり</sup> <sup>がな</sup> <sup>いのうえ</sup> <sup>だいき</sup>  
井上 大貴

3. 審査結果の要旨（600～650字）

本学位論文は超低温高磁場多重極限環境における重い電子系化合物  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の熱膨張・磁歪に関する研究論文である。典型的な重い電子系化合物である  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の基底状態は常圧下で強い電子相関により有効質量が増大したフェルミ流体状態であり、元素置換等により負の圧力領域で反強磁性秩序状態となることが知られていたが、先行研究である超低温低磁場での帯磁率・熱膨張測定から反強磁性量子相転移点では説明できない新しい量子臨界現象の存在が指摘された。本学位論文では、最低温度 10mK、磁場 9T の超低温・高磁場極限環境の構築、キャパシタンス式高精度歪測定装置の開発を行い、これまでほとんど測定がなされていない重い電子系化合物  $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$  の磁化難易軸である a 軸方向の熱膨張・磁歪の高精度測定を行った。その結果、約 100mK、1T 以上の高温高磁場領域で a 軸方向の磁歪係数が磁化容易軸である c 軸の約 1/800 と強い軸異方性を持つフェルミ流体状態であり、60mK、0.6T 以下の超低温低磁場領域で、熱膨張係数および磁歪係数に負の非フェルミ流体効果が現れることを明らかにした。さらに、その量子臨界指数、帯磁率とのスケーリング則を求め、新しい量子臨界点が高圧側に存在することを示した。論文審査および平成 28 年 2 月 2 日に行なわれた口頭発表結果を踏まえ、本博士論文は博士（理学）の学位に値するものと判断した。

4. 審査結果 (1) 判定（いずれかに○印）合格・不合格

(2) 授与学位 博士（理学）