



Title	High-Quality Single Crystal Growth and Novel Electronic States in the Quantum Critical Region of Rare Earth and Uranium Compounds
Author(s)	Hirose, Yusuke
Citation	大阪大学, 2012, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/24538
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

氏 名	ひろ せ ゆう すけ 廣 瀬 雄 介
博士の専攻分野の名称	博 士 (理学)
学 位 記 番 号	第 2 5 6 9 0 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 24 年 9 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 理学研究科物理学専攻
学 位 論 文 名	High-Quality Single Crystal Growth and Novel Electronic States in the Quantum Critical Region of Rare Earth and Uranium Compounds (希土類・ウラン化合物の純良単結晶育成と量子臨界点近傍の特異な電子状態)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 田島 節子 (副査) 教 授 野末 泰夫 教 授 花咲 徳亮 教 授 萩原 政幸 准教授 杉山 清寛 名誉教授 (招へい教授) 大貫 惇睦

論 文 内 容 の 要 旨

希土類・ウラン化合物は磁気秩序、多極子秩序、重い電子系や異方的超伝導など様々な電子状態をとる。これらは、ルダーマン・キッテル・槽谷・芳田(RKKY)相互作用と近藤効果の競合の中で生じる。前者は伝導電子を介して f 電子の磁気モーメントを秩序化し、後者は伝導電子のスピンが f 電子の磁気モーメントを消失させる。両者が拮抗した状態が量子臨界点である。本研究では、純良な $\text{CePtSi}_2, \text{CeRhGe}_2, \text{CeIrGe}_3, \text{LaNiC}_2, \text{YbT}_2\text{Zn}_{20}(\text{T} : \text{Co, Rh, Ir}), \text{UT}_2\text{Zn}_{20}(\text{T} : \text{Co, Ir}), \text{CeCu}_6$ 等の単結晶を育成し、量子臨界点近傍で出現する特異な電子状態を実験的に明らかにした。

反強磁性体 $\text{CePtSi}_2, \text{CeRhGe}_2, \text{CeIrGe}_3$ では、圧力 P の増大とともにネール点 T_N がゼロになる量子臨界点近傍で重い電子系の超伝導を発見した。加圧により近藤効果が RKKY 相互作用よりも強く増強されるためである。 $T_N \rightarrow 0$ の臨界圧力 P_c と超伝導転移温度 T_{sc} は CePtSi_2 で $P_c = 1.51 \text{ GPa}, T_{sc} = 0.18 \text{ K}$, CeRhGe_2 で $P_c = 7.1 \text{ GPa}, T_{sc} = 0.45 \text{ K}$, CeIrGe_3 で $P_c = 24 \text{ GPa}, T_{sc} = 1.6 \text{ K}$ であった。特に結晶反転対称性のない正方晶の CeIrGe_3 では、[001] 方向に磁場を加えたとき、上部臨界磁場は著しく増大し、常磁性効果がはたらかないことを見出した。これは結晶反転対称性がないことによって伝導電子のスピンへの向きが全て磁場と垂直になるためである。同様に結晶反転対称性のない斜方晶の LaNiC_2 では、スピン三重項超伝導の可能性がこれまで議論されてきたが、従来の BCS 型の超伝導であることを初めての純良単結晶を用いた比熱測定から明らかにした。結晶反転対称性の破れに伴うフェルミ面の分裂もドハース・ファンアルフエン効果の測定から明らかにした。ただし、分裂の大きさは 230K 程度と前述の CeIrGe_3 に対する参照物質である LaIrGe_3 の約 1000K と比較して小さい。

磁気秩序を持たない重い電子系の磁化率はキュリー・ワイス則に従い降温とともに増大し、ある温度 $T_{x\text{max}}$ で極大となり、 $T_{x\text{max}}$ 以下でわずかに減少して一定値となる。 $T_{x\text{max}}$ は近藤温度 T_K に対応し、 T_K が小さいほど重い電子状態となる。磁気秩序を持たないいくつかの Ce や U 化合物では磁化がある磁場 H_m で非線形に増大する、いわゆるメタ磁性が見出されていた。本研究では $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}(\text{T} : \text{Co, Rh, Ir})$

と $\text{UT}_2\text{Zn}_{20}$ (T : Co, Ir) で初めてメタ磁性を見出した。例えば、 $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ では $T_{\chi\text{max}}=7.4\text{K}$ で $H_m=97\text{kOe}$ 、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ では $T_{\chi\text{max}}=0.32\text{K}$ で $H_m=6\text{kOe}$ 、 $\text{UCo}_2\text{Zn}_{20}$ では $T_{\chi\text{max}}=8.5\text{K}$ で $H_m=80\text{kOe}$ であった。従来のデータと本研究の実験結果を合わせ、 $T_{\chi\text{max}}$ と H_m との間に $H_m(\text{kOe})=15T_{\chi\text{max}}$ 、すなわち、 $\mu_B H_m = k_B T_{\chi\text{max}}$ の単純な関係式が成り立つことがわかった。 $T_{\chi\text{max}}$ 以下で f 電子が局在から遍歴に、 H_m 以上で遍歴から局在に変わることを意味し、重い電子系の一般則の一つを明らかにしたと言えるだろう。また、これまで研究されてきた重い電子系の CeCu_6 のメタ磁性の圧力効果の研究も行なった。

本研究では量子臨界点近傍の重い電子状態、反転対称性のない結晶での新奇な超伝導、及び重い電子系に特有なメタ磁性を純良単結晶を育成して明らかにしてきたが、 CeRhGe_2 や YbPd_5Al_2 での新物質の発見、 LaNiC_2 や YbGa_4 で初めて単結晶を育成したことを付言したい。

論文審査の結果の要旨

本研究は、純良な CePtSi_2 , CeRhGe_2 , CeIrGe_3 , LaNiC_2 , $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ (T : Co, Rh, Ir), $\text{UT}_2\text{Zn}_{20}$ (T : Co, Ir), CeCu_6 等の単結晶を育成し、量子臨界点近傍で出現する特異な電子状態を実験的に明らかにしたものである。

まず、反強磁性体 CePtSi_2 , CeRhGe_2 , CeIrGe_3 では、圧力 P の増大とともにネール点 T_N がゼロになる量子臨界点近傍で重い電子系の超伝導を発見した。加圧により近藤効果が RKKY 相互作用よりも強く増強されるためである。 $T_N \rightarrow 0$ の臨界圧力 P_c と超伝導転移温度 T_{sc} は CePtSi_2 で $P_c=1.51\text{GPa}$ と $T_{sc}=0.18\text{K}$, CeRhGe_2 で $P_c=7.1\text{GPa}$ と $T_{sc}=0.45\text{K}$, CeIrGe_3 で $P_c=24\text{GPa}$ と $T_{sc}=1.6\text{K}$ であった。特に結晶反転対称性のない正方晶の CeIrGe_3 では、 $[001]$ 方向に磁場を加えたとき上部臨界磁場は著しく増大することを見いだした。これは結晶反転対称性がないことによって伝導電子のスピン向きが全て磁場と垂直になるためである。

次に、近藤温度とメタ磁性の関係について研究を行った。磁気秩序を持たない重い電子系の磁化率はキュリー・ワイス則に従い降温とともに増大し、ある温度 $T_{\chi\text{max}}$ で極大となり、 $T_{\chi\text{max}}$ 以下でわずかに減少して一定値となる。 $T_{\chi\text{max}}$ は近藤温度 T_K に対応し、 T_K が小さいほど重い電子状態となる。磁気秩序を持たないいくつかの Ce や U 化合物では、磁化がある磁場 H_m で非線形に増大する、いわゆるメタ磁性が見出されていた。本研究では $\text{YbT}_2\text{Zn}_{20}$ (T : Co, Rh, Ir) と $\text{UT}_2\text{Zn}_{20}$ (T : Co, Ir) で初めてメタ磁性を見出した。 $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ では $T_{\chi\text{max}}=7.4\text{K}$ で $H_m=97\text{kOe}$ 、 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ では $T_{\chi\text{max}}=0.32\text{K}$ で $H_m=6\text{kOe}$ 、 $\text{UCo}_2\text{Zn}_{20}$ では $T_{\chi\text{max}}=8.5\text{K}$ で $H_m=80\text{kOe}$ であった。従来のデータと本研究の実験結果を合わせ、 $T_{\chi\text{max}}$ と H_m との間に $H_m(\text{kOe})=15T_{\chi\text{max}}(\text{K})$ 、すなわち、 $\mu_B H_m = k_B T_{\chi\text{max}}$ の単純な関係式が成り立つことがわかった。 $T_{\chi\text{max}}$ 以下で f 電子が局在から遍歴に、 H_m 以上で遍歴から局在に変わることを意味し、重い電子系の一般則の一つを明らかにしたことになる。

また物質開発も行い、新物質である CeRhGe_2 や YbPd_5Al_2 を開発し、 LaNiC_2 や YbGa_4 については初めて単結晶を育成した。これらの新物質・新結晶は、重い電子系の今後の研究の発展に寄与するものと思われる。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値あるものと認める。