



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Study of exotic low-temperature ordering of 5f electrons in isostructural heavy-electron compounds URu ₂ Si ₂ and UAu ₂ Si ₂ [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	田端, 千紘
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第12234号
Issue Date	2016-03-24
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/61685
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Chihiro_Tabata_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（理 学） 氏 名 田端 千紘

学 位 論 文 題 名

Study of exotic low-temperature ordering of 5f electrons in isostructural heavy-electron
compounds URu₂Si₂ and UAu₂Si₂

（重い電子系化合物 URu₂Si₂ および UAu₂Si₂ における 5f 電子低温秩序状態の研究）

近年の物性物理学の強相関電子系分野における重要課題のひとつに、ウランなどのアクチノイド元素を含む金属間化合物における 5f 電子状態の解明がある。5f 電子系化合物は、磁気秩序を担う局在的な 5f 電子と重い電子として結晶中を遍歴する 5f 電子が安定した状態で共存するといった、これまでの磁性理論の枠組みでは記述できない特異な性質を示す。また、5f 電子系には、未知の秩序状態を示す URu₂Si₂ という物質がある。この秩序は 5f 電子が担うということが分かっているが、約 30 年間にわたる精力的な研究にもかかわらず、その秩序変数が特定されていない。これら 5f 電子系に特有の現象を理解および記述するためには、典型例となる物質を実験的に見出し、理論考察に資する確かな基礎データを蓄積することが非常に重要である。本研究では、局在的な磁気秩序と重い電子状態の共存が実現している可能性のある UAu₂Si₂ と、未知の秩序状態を示す URu₂Si₂ において、低温で 5f 電子が示す秩序状態の性質を調べた。

URu₂Si₂ は 17.5 K で未知の秩序相、いわゆる「隠れた秩序」相への相転移を起こす。この秩序変数を特定すべく、これまでに多くの理論・実験両面からの研究が行われてきたが、時間反転対称性や並進対称性の破れの証拠は見つかっていなかった。そのような中で最近、正方晶のもつ 4 回回転対称性の破れの可能性が磁気トルク実験等から報告され、同時に結晶格子も斜方晶歪みを起こしていることが高分解能 X 線回折実験から指摘された。しかし、過去に行われた熱膨張係数や弾性定数測定の結果との整合性が無く、格子歪みの有無の検証は最近の議論の争点のひとつとなっていた。そこで本研究では URu₂Si₂ の斜方晶歪みの有無を高精度に検証するため、背面反射配置と高分解能モノクロメーターを組み合わせることによって、非常に高い分解能を実現した X 線回折実験を行った。実験の結果、過去に指摘された斜方晶歪みは起こっていないことが明らかになった。さらに、この結果と過去

の報告の違いが、試料の純良性の度合いによるものではないことを確認するために、純良性の非常に高い試料においても同様の実験を行った。その結果、試料結晶性、装置分解能のいずれにおいても過去の実験を凌駕する実験条件を実現することに成功し、観測された Bragg 反射プロファイルから、本物質では隠れた秩序に伴う斜方晶歪みは格子定数の変化率で 1×10^{-6} の精度で起こっていないことを確認した。本研究により、隠れた秩序は格子の 4 回回転対称性を破らない秩序であるということを明らかにした。

UAu₂Si₂ に関してはこれまで単結晶の報告が無く、その磁氣的基底状態は不明瞭なままであった。それぞれの報告によって物理量の試料依存性が非常に大きいこともあり、約 50 K と 20 K における強磁性的な磁気異常の起源についての見解に食い違いが見られていた。一方で低温では約 100 mJ/K²mol という大きな電子比熱係数が報告されており、重い電子状態を形成している物質である。この物質の低温における磁気秩序状態を明らかにするために、本研究で初めて単結晶育成を行い、その基礎物性（磁化、比熱、電気抵抗）測定を行った。また、粉末試料に対して ²⁹Si-NMR 実験を行い、20 K 以下で実現している磁気構造の特定を行った。単結晶を用いた測定より、正方晶の c 軸方向のみに強磁性成分が生じるという、この物質の磁気異方性を明らかにした。さらにこの異方性は、結晶場一イオン異方性から来るものではなくスピン-スピン間相関の異方性によるものであることが分かった。また、比熱測定から大きな電子比熱係数（約 150 mJ/K²mol）が観測され、この試料においても重い電子状態が実現していることを確認した。また、磁化と比熱から磁場-温度相図を作成し、この物質が多重磁気相をもっている可能性を指摘した。NMR 実験においては、20 K 以下でスペクトル形状が変化する振る舞いを観測した。このスペクトルと磁化の温度・磁場依存性を説明する磁気構造として、 $q = (2/3, 0, 0)$ の秩序波数で秩序モーメントが [001] 軸と平行に整列するスピン非補償の反強磁性を提案した。さらに、局在スピンモデルを用いたスペクトルの解析から、超微細結合定数のサイト依存性の見積もりを行い、サイト間距離の大きさと定性的に整合する結果を得た。同時に見積もられた秩序モーメントの大きさは 1 ウランあたりおよそ 1.5 μ_B であり、局在的な磁気モーメントによる秩序であることを示唆する。以上の一連の実験から UAu₂Si₂ でも他のウラン系化合物同様、局在的な磁気秩序と遍歴的な重い電子状態が共存していることが明らかになった。同型物質のうち零磁場で秩序波数が [100] 方向となる物質は他に無く、今後の理論解析から本結晶構造における局在スピン間相互作用に関する理解が進展するものと期待される。以上、本研究により、UAu₂Si₂ が 5f 電子の遍歴一局在二重性を研究する上で格好の研究対象になり得ることを明らかにした。