新規遍歴電子物性を創成する*f*電子系化合物の開拓

Search of *f*-electron compounds with novel itinerant electronic properties

所属機関：金沢大学　　代表研究者氏名：大橋　政司
研究期間：2022 年 4 月 1 日～2023 年 3 月 31 日
滞在研究機関：　Institute of Low Temperature and Structure Research, Polish Academy of Sciences, ul. Okólna 2, 50-422 Wrocław, Poland
共同研究者等：　Prof. D. Kaczorowski

UPd_2Si_2 crystallizes with the tetragonal unit cell of $ThCr_2Si_2$ type (space group *I*4/*mmm*). The compound orders magnetically at low temperatures with magnetic moments oriented parallel to the tetragonal axis. It exhibits large magnetic anisotropy in both ordered and paramagnetic (P) states. The magnetic phase diagram constructed along the easy magnetic direction is complex and consists of four phases - P and three types of ordered states. In zero field, with decreasing temperature, UPd_2Si_2 undergoes two successive transitions, at T_N from P to incommensurately modulated (IC) phase and at T_1 to simple antiferromagnetic (AF) state. Application of magnetic field results in the formation of ferrimagnetic (Fi) phase. Most remarkably, in a field of about 20 T, the P, IC and Fi phases meet each other at a Lifshitz point (LP), a multicritical point that differs from any other [3]. Furthermore, even in zero magnetic field, LP can be induced in UPd_2Si_2 by applying hydrostatic pressure of 3.4 GPa.

Aiming to study the effect of pressure on the magnetic phase diagram of UPd_2Si_2, and in particular to look for the occurrence of LP, we performed electrical resistivity measurements in magnetic fields up to 14 T under pressures up to 7 GPa. Our experiments revealed that pressure stabilizes the AF phase. We confirmed that in zero field, T_1 increases and tends to T_N, which remains nearly constant. We found that the boundary line between the AF and Fi phases shifts towards higher fields with increasing pressure. In turn, the boundary line between the IC and Fi phases hardly changes. Our findings thus suggest that pressure-induced LP may occur in UPd_2Si_2 below 2.5 GPa only in magnetic fields stronger than 14 T.

研究目的

希土類あるいはアクチノイド元素を含む金属間化合物においては、*f*電子と伝導電子との強い電子相関効果により多くの興味深い物性が観測される。これは *f* 電子が持つ電荷や電子軌道、電子スピンが持つ複数の自由度が複雑に絡み合って生じる交換相互作用によるものである。当該分野の課題は複数の交換相互作用が拮抗する近傍で生じる量子相転移および臨界現象、またそこで生じる新しい量子相の発見およびその機構解明にある。

本研究ではウラン(U)原子がジグザグ鎖の構造を持つ UPd_2Si_2 に注目した。結晶構造は重い電子系で典型的な結晶構造の $ThCr_2Si_2$ 型である。これ前の研究から、(140 K, 13 T, 0 GPa)および(133 K, 0 T, 3.5 GPa)においてリフシッツ転移と思われる 3 重臨界点が観測されている[1,2]。低温で見られる重い電子的振る舞いと比較的高温で秩序に至る局在的磁性との共存がどのように理解できるのかは興味深い点である。本研究では UPd_2Si_2 について、高圧低温強磁場下における物性測定を行い、特に 3 重臨界点が圧力によってどのように推移するのか調べる事を目的とした。また、さらに高圧下では磁気秩序相が消失する可能性もあり(圧力誘起秩序無秩序転移)、その量子臨界点の探索を試みた。

研究経過

2022 年 4 月 1 日に日本を出国、同 3 日にポーランドに入国し、低温構造研究所の Kaczorowski グループを訪問した。その際、日本から 10GPa まで測定可能な高圧発生装置を持ち込んだ。Kaczorowski グループは、2K,14T までの低温強磁場環境下において精密な電気抵抗測定が可能な装置を所有しているので、まずその装置に圧力発生装置を組み込むための環境整備を行なった。取り付け用の治具の製作、圧力発生テスト、電気抵抗測定テスト、室温、および 4K 付近の低温にて圧力校正を行なった。

また Kaczorowski グループは純良育成技術を持ち、UPd_2Si_2 単結晶育成実績がある[1]。本研究ではその試料を圧力発生装置に組み込めるように成型、配線した。その試料を圧力発生装置内に封入し、まずは大気圧下(0 GPa)にて、2 K,14 T までの低温強磁場環境下における電気抵抗測定を行い、その抵抗異常からインコメ秩序(IC)や反強磁性秩序(AF)温度・磁場を導出し、磁場-温度相図を作成した。得られた結果は先行研究[1]と同等なものであった。次に圧力を印加し、7 GPa, 2 K,14 T までの高圧低温強磁場環境下における電気抵抗測定を行った。これにより磁場-温度相図が圧力の増加によってどのように変化するか調べる事が出来る。

それと並行して磁化測定用圧力発生装置の設計･製作にも取り組んだ。それを用いる事により、UPd_2Si_2 について、6 GPa,2 K,7 T までの高圧低温強磁場環境下における磁化測定を行った。

考察

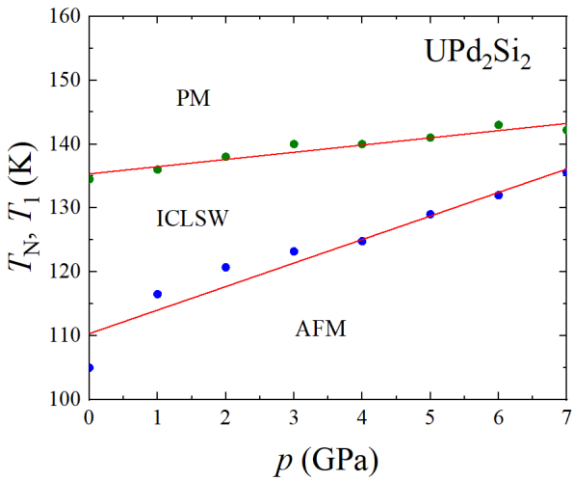

図 1 ゼロ磁場における圧力温度相図

図 1 はゼロ磁場における圧力温度相図である。この系は低温から高温に至る過程で AF 相~IC 相~常磁性相(P)に移り変わるが、その相転移温度は T_N, T_{IC} はどちらも加圧とともに上昇している。先行研究[2]では T_{IC} が圧力によらず一定だったため 3.5 GPa において T_N, T_{IC} が一致する 3 重臨界点が観測されたが、本研究では 7 GPa まで加圧しても観測されなかった。UPd_2Si_2 は結晶育成が難しく試料依存性があったかも知れないし、電気抵抗測定からの相転移温度導出自体が難しいのかも知れない。本研究では電気抵抗測定と並行して高圧下磁化測定も行っているので、現在は磁化測定結果からの相転移温度導出を試みており、それについて 2023 年 9 月の日本物理学会にて報告予定である。

一方、磁場中電気抵抗測定により磁場-温度相図が圧力によってどのように移り変わるかも調べた。一般に反響磁性体(AF)は磁場をかける事により強磁性相(F)が安定となる。それに加えて UPd_2Si_2 は IC 相が存在し、強磁場では IC, FM, P の 3 重臨界点が存在する[1,2]。本研究では更に、圧力の増加によって AF と F の相境界および 3 重臨界点が強磁場側にシフトして行く事を見出した。

参考文献

(1). T. Plackowski, D. Kaczorowski, and J. Sznajd, Phys. Rev. B 83, 174443 (2011)

(2). H. Hidaka, A. Tanaka, S. Takahashi, T. Yanagisawa, H. Amitsuka, J. Phys. Conference Series 273 (2011) 012032

研究の発表

口頭発表

1. Adam Pikul, Maria Szlawska, Xiaxin Ding, Józef Sznajd, Masashi Ohashi, Dorota Kowalska, Mathieu Pasturel, Krzysztof Gofryk, Magnetic phase diagram resulting from the presence of uranium layers in single-crystalline $UNi_{0.38}Ge_2$, JdA2022: 51èmes Journées des Actinides, Santa Margherita, Italy, April 10-14, 2022
2. M. Ohashi, Effect of pressure on the heavy-electronic states in $Ce_{1-x}R_xAl_2$ and quantum critical

phenomena, Department of magnetic research seminar, Wroclaw, Poland, November 2, 2022

3. M. Szlawska, M. Ohashi, M. Majewicz, K. Wochowski, and D. Kaczorowski, Hunting Lifshitz point in UPd_2Si_2, 14th SPCA 2023 and 52ND JDA2023, Dresden, Germany, April 17-21, 2023

誌上発表

1. Competition of magnetocrystalline anisotropy of uranium layers and zigzag chains in $UNi_{0.34}Ge_2$ single crystals, Adam P. Pikul, Maria Szlawska, Xiaxin Ding, Józef Sznajd, Masashi Ohashi, Dorota A. Kowalska, Mathieu Pasturel, and Krzysztof Gofryk, Phys. Rev. Materials 6, 104408 (2022)
2. Correlation between magnetic properties and crystal growth in perovskite typr $La_{0.6}Ca_{0.4}MnO_3$ ferromagnet, K. Ida, K. Ishiwatari, M. Ohashi, JPS Conf. Proc. **38**, 011120 (2023)
3. Electronic Density of States in $CeSi_{2-x}$ Studied by Point-contact Spectroscopy, Takuya Takahashi, Tsubasa Teramoto, Masanobu Shiga, Isao Maruyama, Keisuke Ida, Kousei Ishiwatari, Masashi Ohashi, and Tatsuya Kawae, JPS Conf. Proc. **38**, 011081 (2023)
4. Single crystal growth of $PrNiGe_2$ compounds, Kousei Ishiwatari, Kaito Hoshii, Keisuke Ida and Masashi Ohashi, SciPost Physics Proceedings 11, 022 (2023)