

## 基底状態に $\Gamma_3$ 二重項を持つPr化合物の四極子自由度 に起因する量子現象の研究

佐藤, 由昌

<https://doi.org/10.15017/1500720>

---

出版情報：九州大学, 2014, 博士（工学）, 課程博士  
バージョン：  
権利関係：全文ファイル公表済

氏 名 : 佐藤 由昌

論 文 名 : 基底状態に $\Gamma_3$  二重項を持つ Pr 化合物の四極子自由度に起因する  
量子現象の研究

区 分 : 甲

## 論 文 内 容 の 要 旨

物質が示す多彩な性質は、電子の持つ「電荷」・「スピン」・「軌道」の自由度に由来する。「電荷」と「スピン」の自由度は電気伝導・磁化測定による直接観測が可能であるため、それらの自由度に起因する現象は機構解明が進み、集積回路などへの応用にもつながっている。一方、「軌道」の自由度は直接観測が困難なためマクロ物性との関連が明らかではなかった。しかし近年、共鳴 X 線散乱など新たな測定法を用いることでその直接観測が可能になり、軌道自由度に起因する現象の研究が大きく進展し、非常に注目を浴びている。特に  $f$  電子軌道は内殻に強く局在するため、 $f$  電子物質は軌道自由度由来の物性を探究する上で理想的な系である。事実、希土類やアクチナイド化合物において、 $f$  電子軌道自由度、つまり、四極子モーメントの自由度に起因すると考えられる秩序相・近藤効果・超伝導状態が報告されている。

以上の背景より本論文は、非磁性 $\Gamma_3$  二重項基底物質である  $\text{PrPb}_3$ ,  $\text{PrAg}_2\text{In}$ ,  $\text{Pr}_x\text{La}_{1-x}\text{Pb}_3$  の持つ四極子自由度に注目し、その新奇な秩序状態および四極子近藤効果について研究した結果をまとめたものであり、以下の 6 章から構成されている。

第 1 章では、まず、 $f$  電子化合物における局在電子描像をもとにした一般的理論を紹介し、 $f$  電子に対する結晶場効果を説明した。それから  $f$  電子のスピン・軌道自由度に相当する多極子モーメントの導入を行い、結晶場中の多極子の特徴について記述した。次に、先行研究結果を交えながら多極子モーメントに起因する物理現象として磁場誘起多極子秩序・四極子近藤効果を紹介し、これまでの研究の大まかな流れをまとめた。そして、四極子現象研究を行う上で非磁性 $\Gamma_3$  二重項基底物質を対象とすることの利点を明示した。これらを踏まえて研究目的を設定し、本研究の位置付けを明確にした。

第 2 章では、まず、本研究で用いた低温装置とその冷却原理についてまとめた。特に、本研究の特色である非線形磁化率測定を行うことを目的に開発した SQUID 磁束計用  $^3\text{He}$  インサートについて詳述した。まず、本研究で用いた SQUID 磁束計の構造・特徴を示した上で、低温インサートの設計方針を述べた。次に、作製したインサートの構造をまとめ、実験例を交えながら SQUID 磁束計用  $^3\text{He}$  インサートの性能・特徴について記述した。次に、非磁性 $\Gamma_3$  二重項基底系を用いた四極子現象の探究において、試料の純度および結晶性(純良性)が重要な要素となることについて述べた。そして本研究で用いた単結晶試料の作製方法を示し、電気抵抗・中性子散乱実験結果を元に本試料の純良性について議論した。最後に、本実験で行った比熱・磁化・非線形磁化率の測定方法を示し、これらの物理量と四極子自由度との関連をまとめた。

第 3 章は、本研究で新たに見つかった  $\text{PrPb}_3$  の極低温・低磁場秩序相と外部磁場  $H = 5 \text{ T}$  以上で出現する磁場誘起多極子秩序相についてまとめた。まず、ゼロ磁場における  $T = 0.25 \text{ K}$  付近で比熱量・

磁化率に対して新たなピークが現れることを示し、そのピークの磁場依存から、先行研究で観測されていた整合-不整合秩序相とは異なる相が低磁場・極低温領域で存在することを明らかにした。さらに磁場中における比熱測定結果から、[100], [110]結晶軸方向において高磁場秩序相が出現することを示し、磁場誘起多極子を考慮することで、これらが  $O_2^0$  秩序相から  $O_2^2$  秩序相への磁場誘起相転移であることを明らかにした。

第4章は、 $\text{PrAg}_2\text{In}$  の極低温域で出現する新奇秩序相についてまとめた。まず、ゼロ磁場における比熱測定結果から、試料を純良化することで  $T = 0.33 \text{ K}$  に鋭いピークが出現することを示した。さらに高磁場域で  $\Gamma_3$  二重項の分裂によるショットキー比熱が観測されることから、 $T = 0.33 \text{ K}$  におけるピークが  $\Gamma_3$  二重項の自由度に起因する秩序であることを明らかにした。また、[100], [111]方向の非線形磁化率  $\chi_3$  に結晶場効果のみでは説明が出来ない振る舞いが現れ、これらの振る舞いを反強的な四極子相互作用を考慮することで定性的に説明できることを示した。以上の結果をまとめ、試料の純良化による秩序相の出現とその秩序相の性質について議論を行った。

第5章は、 $\text{Pr}_{0.05}\text{La}_{0.95}\text{Pb}_3$  における四極子近藤効果についてまとめた。まず、四極子近藤効果に対する非線形磁化率測定の重要性を指摘し、四極子近藤効果下で予想される非線形磁化率の振る舞いと、 $\Gamma_3$  二重項基底物質における一般的な非線形磁化率の振る舞いを対比させ、両者の違いを説明した。次に、 $\text{Pr}_{0.05}\text{La}_{0.95}\text{Pb}_3$  単結晶試料の[100], [110], [111]の各結晶軸方向における非線形磁化率測定結果を示し、それらの結果が四極子近藤効果下での理論的予想と定性的に一致することを示した。さらに、磁場中比熱測定結果において観測された非フェルミ液体-フェルミ液体クロスオーバーの異方的振る舞いが、四極子近藤効果による理論的予測と定量的に一致することを示した。以上より、本実験結果は四極子近藤効果の現実性を実証した初めての例であると結論づけた。

最後に第6章において以上の結果を総括し、今後の展望・課題について記述した。

〔作成要領〕

1. 用紙はA4判上質紙を使用すること。
2. 原則として、文字サイズ10.5ポイントとする。
3. 左右2センチ，上下2.5センチ程度をあげ，ページ数は記入しないこと。
4. 要旨は2,000字程度にまとめること。  
(英文の場合は，2ページ以内にまとめること。)
5. 図表・図式等は随意に使用のこと。
6. ワードプロ浄書すること（手書きする場合は楷書体）。  
この様式で提出された書類は，「九州大学博士学位論文内容の要旨及び審査結果の要旨」  
の原稿として写真印刷するので，鮮明な原稿をクリップ止めで提出すること。