

# 論文審査の結果の要旨

氏名 森江孝明

本論文は、4f 電子系化合物における、非磁性 $\Gamma_3$  二重項に対する近藤効果(四極子近藤効果)の研究結果について述べられている。四極子近藤効果は、Ce 化合物において見られる従来の近藤効果とは、異なる低エネルギー励起の振る舞いを示すことが理論的に予測され注目されている。

第一章では、4f 電子の示す磁性について説明し、中でも結晶場基底状態に軌道の自由度を有する 4f 電子化合物の磁性について説明を行っている。後半では、結晶場基底状態に非磁性 $\Gamma_3$  二重項を持つ Pr 化合物を取り上げ、それらの過去に行われた実験結果を紹介している。その中で  $\text{PrInAg}_2$  において大きな電子比熱係数が観測されており、近藤効果の可能性が示唆されている。しかし、申請者はその結果に対し、ホイスラー結晶構造のサイト置換の問題が比熱測定に及ぼす影響を指摘し、結晶の不均一性により誘発される歪みによっても、大きな C/T が観測される可能性を指摘している。

第二章では、本研究の目的、“四極子近藤効果に伴う低エネルギー励起を実験的に観測する事”について述べている。上記サイト置換による歪みの問題に対して、サイト置換の問題の無い結晶構造を持ち、非磁性 $\Gamma_3$  二重項基底を有する  $\text{PrPb}_3$  化合物と、サイト置換による歪みの寄与が、H/[111]方向の磁化率の温度依存性には現れにくい性質の二点に着目した。

$\text{PrPb}_3$  は、 $T_Q = 0.4$  K で反強四極子秩序(AFQ 秩序)を示し、低磁場領域で  $O_2^0 \sin$  波構造(AFQ-I)である。この秩序構造は、基底状態の縮退が解かれていないサイトが存在するが、決定された磁気相図から低磁場で絶対零度までこの構造は保持されていると考えられる。一方、100 mK、1 T 以上では反位相秩序構造(AFQ-II)になっており、この相では基底状態の縮退はすべてのサイトで解かれる。この AFQ-I の持つ特異な性質が、伝導電子による基底自由度の遮蔽に拠るためであると考え、近藤効果の振る舞いを観測するため、極低温下の比熱、電気抵抗、磁化測定を行っている。

第三章では、実験についての説明を行っている。

極低温下における磁場中比熱測定を精度良く行うために、希釈冷凍機を用いた擬断熱測定法を行うための環境を立ち上げた。試料のサイズが小さくても絶対値をより精度良く正確に出せるように、バックグラウンドを小さくし、理想的な加熱曲線を得るための工夫を施している。また、試料の取り扱いにも工夫の跡が見受けられた。

第四章では、研究対象とした3つの Pr 化合物( $\text{PrPb}_3$ 、 $\text{Pr}_{0.97}\text{La}_{0.03}\text{Pb}_3$ 、 $\text{PrMg}_3$ )の各種測定結果を示し、考察を行っている。

$\text{PrPb}_3$  においては、予想されたように零磁場(AFQ-I)では大きな電子比熱係数が観測された。一方、AFQ-II では零磁場程大きな電子比熱係数は見られない事が分かった。電気抵抗の測定結果は、AFQ-I では測定最低温度 100 mK まで温度依存性を示すが、AFQ-II ではそれと比較してほとんど温度依存性を示さない事が分かった。電気抵抗の結果は、各秩序相において、基底状態の縮退が残っているサイトが AFQ-I では存在し、AFQ-II では存在しないことを表していると考えられる。AFQ-I で大きな電子比熱係数が観測された結果から、この系において $\Gamma_3$  基底二重項を持つ 4f 電子

と伝導電子が混成し、重い電子状態を形成している事を明らかにした。

$\text{Pr}_{0.97}\text{La}_{0.03}\text{Pb}_3$  および  $\text{PrMg}_3$  においては、零磁場 100 mK まで長距離秩序が存在しないことを比熱測定から明らかにした。また  $\text{PrMg}_3$  においては、試料依存性が存在することから、サイト置換により誘発される歪みが基底二重項に影響を与えることを明らかにした。しかし、 $H//[111]$  方向の磁化率の温度依存性にはこの影響が現れにくいことを計算により示している。そして、磁化測定から上記二つの Pr 化合物において、磁化の温度依存性が四極子近藤効果の理論で予想される  $-T^{0.5}$  の温度依存性を示すことを明らかにした。これらの結果から  $\Gamma_3$  二重項基底を持つ局在 4f 電子と伝導電子の混成が存在する事を明らかにした。

第 5 章で以上の結果をまとめている。

以上のように、本論文は、四極子近藤効果について非磁性 Pr 化合物を研究対象物質として極低温における比熱測定を中心に測定を行い、多くの新しい情報を初めて得ることが出来た。これらの結果は、四極子近藤効果の存在を示唆しており、高く評価された。

なお、本論文の一部は、鬼丸孝博、柄木良友、榊原俊郎、Jeroen Custers および鈴木博之との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験および考察を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）を授与できると認める。