

論文審査の結果の要旨

氏名 志村 恭通

希土類元素を含む金属間化合物は、局在した 4f 電子が示す磁気秩序や多極子秩序、また 4f 電子と伝導電子の混成によって巨大な有効質量を持つ準粒子が出現する重い電子状態など多彩な現象を示し、強く相互作用する量子多体系の中心的なテーマとして過去 40 年にわたり精力的な研究がなされてきた。その多くは Ce 化合物を対象としてのものであったが、近年 Yb を含む化合物に関心が持たれている。Yb は Ce に比べて 2 価と 3 価の価数揺動状態を取りやすい、また 3 価の Yb イオンは大きな角運動量 $7/2$ を持ち、対称性の高い立方晶の結晶場中では Ce に比べて高次の多極子自由度が重要になる、といった特徴をもち、より多彩な基底状態や量子相転移が期待される。志村恭通氏提出の本論文は、以下に述べる 3 種類の Yb 化合物に対して、特に極低温の磁化過程において磁化がある磁場で急激に増加するメタ磁性と呼ばれる現象に焦点を当てて、その機構や量子状態の変化について考察した結果を述べたもので、全 6 章からなる。

第 1 章は序論で、希土類元素が示す磁性、特に結晶場中の f 電子の状態、多極子自由度とその秩序、Yb を含む重い電子系が示す量子臨界現象や価数相転移について説明されている。第 2 章では、本研究の主要な実験手段である極低温下の直流磁化測定と、測定に用いた単結晶試料について説明されている。磁化測定は勾配磁場を含む直流磁場中の試料が受ける力を検出するファラデー法と呼ばれる原理に基づいている。これは志村氏が所属する物性研・榊原研究室で開発された技術であるが、志村氏は本研究を遂行するに当たり、バックグラウンドとなる試料ホルダーからの反磁性磁化を極力小さくし、測定精度を向上させる工夫を行っている。

続く 3 章が本論文の主要な部分である。第 3 章では、Zn 原子が立方対称のカゴ状構造を形成しその中心に Yb が位置する重い電子系化合物 $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ において、従来知られていた 0.6 テスラの磁場における等方的なメタ磁性に加えて、6 テスラ以上の磁場下で [111] 方向でのみ観測される新たなメタ磁性転移を発見した結果が述べられている。磁化測定の結果に対する熱力学的な考察や、結晶場準位を仮定したモデル計算と実験結果の比較によって、基底 2 重項から 6K という小さなギャップを隔てた励起 4 重項の結晶場レベルが [111] 方向の磁場印加によって基底状態と交差することが、メタ磁性転移の起源であることを結論した。Zn の作る高対称のカゴ状構造が、多重に擬似縮退した結晶場準位の原因となっていると考えられる。一方で新しい高磁場相における秩序変数を決定することは、今後の研究に委ねられている。また $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ は 8J/molK^2 という超巨大な電子比熱係数を持つこと、磁化率が 0.3 ケルビンという低温でピークを示すことから非常に小さい特性エネルギーを持つフェルミ液体の形成が示唆されている。志村氏は、Co を約 1%Ni で置換し化学的圧力を加えた試料において、磁化率が 70 ミリケルビンまで飽和することなく増加し続けることを観測し、反強磁性の量子臨界点に極めて近い系を実現した。

第 4 章では $\text{YbCo}_2\text{Zn}_{20}$ と同じ結晶構造を持ち f 電子の遍歴性がより強いと考えられる $\text{YbIr}_2\text{Zn}_{20}$ に関する結果が述べられている。この物質は 10 テスラ付近の磁場下でメタ磁性転移を示すことが

すでに知られているが、志村氏は転移の異方性や温度依存性を詳細に調べ、その起源を考察した。特に、磁化の磁場微分として定義される微分磁化率がメタ磁性転移磁場においてシャープなピークを示すこと、更にその値が低温に向かって発散的に増大すること、またこの増加が Yb 原子核に起因するものではないことを検証した。本論文では、このようなフェルミ液体では記述できない量子臨界性が Yb の価数変化に起因する可能性が言及されている。

第 5 章では、f 電子系がほぼ局在しているとみなせる $\text{Yb}_2\text{Pt}_2\text{Pb}$ の低温秩序状態に関する結果が述べられている。擬 2 次元的な結晶構造を持つこの物質においては、3 価の Yb イオンが、互いに直交する 2 種類のダイマーから成るシャストリー・サザーランド格子と呼ばれる格子を形成する。以前の研究から、ゼロ磁場では 2.1 ケルビン以下で反強磁性秩序が現れ、磁化過程が多段のステップを示すこと、1-2 テスラの磁場を境に低磁場相 I と高磁場相 II の二つの秩序相が存在することが分かっている。更に、ダイマー方向に強いイジング異方性を仮定した直交イジングモデルによって、磁気相図の異方性がおおよそ説明されていた。志村氏は 80 ミリケルビンの極低温下において精密な磁化測定を行い、I 相から II 相へのメタ磁性転移が 1 次転移であるのに対し、II 相から磁化飽和相への転移が 2 次転移であること、これら以外にも多くの多段のメタ磁性転移が存在すること、II 相においては磁化がほぼ磁場に比例して増加することを見出した。II 相における磁化の磁場依存性は、通常の反強磁性体におけるスピン・フロップ相の振る舞いと良く似ている。しかしスピン・フロップ相を特徴づける磁場に垂直な磁化成分は、強いイジング性とは相容れない。この矛盾を解決するモデルとして、志村氏は II 相における高次の反強多極子秩序を提案した。Yb の結晶場基底状態が $J_z=7/2$ と $J_z=-7/2$ のクラマース 2 重項から成る単純なケースを仮定すると、反強秩序を形成する多極子は 7 次のモーメントに限られる。志村氏は最近接の磁気双極子間および 7 次のモーメント間に交換相互作用が働く簡単なモデルに分子場近似を適用して、実験で得られた相図や II 相における磁化過程の特徴をほぼ再現することに成功した。より現実の物質に近いモデルを構築することは、今後の課題として残っている。

第 6 章は全体のまとめである。最後に付録として Yb を含まない $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ の高磁場において新しい秩序相を発見した最近の研究成果が述べられている。

本論文では、遍歴性の異なる 3 種類の Yb 化合物の精密な低温磁化測定の実験と、熱力学的な考察やモデルハミルトニアンを仮定した計算結果との比較を通じて、Yb を含む化合物が多彩な量子状態を取り得ること、そこにはこれまで知られている Ce 化合物とは異なる特徴が表れていることが明らかになった。本論文の成果及びそこで明らかになった問題は、今後の Yb 化合物に関する実験的・理論的研究を更に促すことが期待される。本論文は f 電子系の研究の進展に大きく貢献し、学位論文に十分相応しい水準にあるという点で、審査員全員の意見が一致した。

なお、本論文は、指導教員である榊原俊郎氏をはじめ、大貫惇睦氏、吉内伸吾氏、杉山清寛氏、岩川健氏、本田史憲氏、摂待力生氏との共同研究に基づいているが、論文提出者が主体となって実験及び考察をおこなったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断できる。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。