



Title	Investigation of Localized and Delocalized Character of 4f Electrons in Cage-Structure Compounds [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	門別, 翔太
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第12235号
Issue Date	2016-03-24
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/61692
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Shota_Mombetsu_review.pdf, 審査の要旨



学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称	博士 (理 学)	氏 名	門 別	翔 太
主 査	准教授	柳 澤	達 也	
副 査	教 授	網 塚	浩	
審査担当者	副 査 教 授	小 田	研	
	副 査 講 師	井 原	慶 彦	
	副 査 主任研究員	Sergei Zherlitsyn		
(ドレスデン強磁場研究所 (ドイツ・ドレスデン))				

学 位 論 文 題 名

Investigation of Localized and Delocalized Character of 4f Electrons in Cage-Structure Compounds
(カゴ状化合物における 4f 電子の局在・非局在性の研究)

博士学位論文審査等の結果について (報告)

4f 電子軌道が不完全核となる希土類元素を含む金属間化合物のうち、特に 4f 軌道に電子が 1 つ入った Ce 系や、正孔が 1 つ入った Yb 系化合物では、低温で伝導電子と f 電子の間の混成 (c-f 混成) が起こり、近藤効果や RKKY 相互作用の拮抗が生じることが知られている。一方、4f 軌道に複数の電子を持つ希土類 (Pr や Sm、Eu 等) を含む化合物における c-f 混成効果とそれが低温物性に与える影響については、詳しいことはわかっていない。近年、多数の配位子が希土類イオンを取り囲むカゴ状結晶構造を持つ Pr や Sm 化合物において Ce 化合物の重い電子状態とは対照的な磁場に鈍感な重い電子状態が発見されており、その性質や発現機構が問題になっている。

本学位論文の研究対象である充填スクッテルダイト $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ は、磁場に鈍感かつ大きな電子比熱係数 $820 \text{ mJ mol}^{-1} \text{ K}^{-2}$ を持ち、重い電子状態を形成していると考えられている。この風変わりな重い電子状態の発現機構には様々な理論提案が為されているが統一的理解には至っていない。また、本系は $T_c \sim 2.5 \text{ K}$ で弱い強磁性モーメントを伴った相転移を示すが、秩序変数に多極子自由度の寄与が指摘されている。その解明のためには結晶場基底状態が Γ_5 二重項基底か、 Γ_{67} 四重項基底のどちらであるかを知る必要があるが、論争となっている。本学位論文において著者は、 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ における c-f 混成効果と多極子自由度の寄与を調べることを目的とし、局在電子系の四極子モーメントの応答や局所電荷揺らぎを観測できる超音波測定を、パルス磁場中ならびに静水圧力下で行なった。

パルス磁場中弾性定数測定の結果、4.2 K において弾性定数 C_{44} が 10 T 以下の低磁場で減少し、高磁場側で増大する振る舞いが観測され、本系の結晶場基底状態が Γ_{67} 四重項であることの有力な証拠が得られた。著者は局在電子模型を用いた弾性定数の定量的な解析を行い、少なくとも 20 T 以上での高磁場領域で c-f 混成効果が抑制され、4f 電子の局在性が回復していることを明らかにした。

静水圧力下における超音波測定の結果、圧力によっても c-f 混成効果が抑制されていく振る舞いを明瞭に観測した。このような磁場・圧力に敏感な c-f 混成効果は Ce 化合物のそれに類似しており、本系の重い電子状態の形成に本質的である可能性が高い。本研究によって、Sm 化合物においても Ce 化合物と同様に c-f 混成効果による重い電子状態が形成されうること示したことは意義深い。一方で、本研究の結果は磁場に鈍感な電子比熱係数とは矛盾しており、c-f 混成効果による重い電子状態の形成以外の起源で、低温の残留エントロピーが生じていることを指摘した。また、著者らは圧力下での秩序状態について議論するために、本研究では平均場近似による解析を行なった。その結果、低温秩序相において磁気八極子間相互作用の寄与が重要であり、それが高圧でより支配的になることを指摘した。本研究では高周波を用いた 1.3 GPa までの静水圧力下における $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$ の弾性定数測定を達成したが、広帯域かつ線形性の良い実験結果はハイブリッドピストンシリンダー型圧力セルに極細の同軸線を 2 本導入することで初めて可能となった。その恩恵により、弾性定数 C_{11} に現れるラットリングに伴う超音波分散の圧力依存性も高精度で観測することに成功した。著者が開発した本研究手法の更なる応用が期待される。

これらを要するに、著者は強相関電子系における重要課題の 1 つに位置づけられる非従来型の重い電子状態について、その発現機構を議論するための非常に有益な知見を得ると共に、静水圧力下高周波超音波測定技術を確立したものであり、物性物理学の学術分野に対して貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士 (理学) の学位を授与される資格があるものと認める。