



本件の報道解禁につきましては、平成30年8月14日(火)午後1時以降にお願いいたします。

平成30年8月9日

【本件リリース先】
文部科学記者会、科学記者会、
広島大学関係報道機関

希土類プラセオジウムを希薄に含む化合物における
単サイトの電気四極子による非フェルミ液体状態の観測
～世界で初めて2チャンネル近藤効果の理論モデルの実験的な検証に成功～

【本研究成果のポイント】

- ◆ 希土類プラセオジウム (Pr) を希薄に含む化合物の純良な単結晶において、電気抵抗率と比熱が通常の金属とは全く異なる温度変化を示す非フェルミ液体の状態を見いだしました。
- ◆ この特異な温度変化は、約30年前に理論的に予測されていた単サイトの電気四極子による2チャンネル近藤効果により説明できました。1対の4f電子がもつ電気四極子が金属中を遍歴する伝導電子によって過剰に遮蔽されたことを示唆します。
- ◆ 純良な単結晶を絶対温度 0.1 K (= -273.05°C) 以下の極低温まで冷却し、比熱と電気抵抗を精密に測定することによって、温度変化の異常を捉えることに成功しました。

【概要】

広島大学大学院先端物質科学研究科・創発的物性物理研究拠点の鬼丸孝博 教授、同博士課程後期学生 山根悠と同大学自然科学研究支援開発センターの梅尾和則 准教授らの研究グループは、4f電子に1対の電子をもつ希土類 Pr を希薄に含む化合物において、電気抵抗率と比熱が従来の金属とは全く異なる温度変化を示すことを見出しました。これらの温度依存性は、Pr の組成ごとに求めた特性温度を用いることでよくスケールされ、Pr による単サイトの効果を示唆します。

さらに、これらの温度依存性は、約30年前に予言された単サイトの電気四極子による2チャンネル近藤効果の理論モデルによる予測と一致します。本研究では、自己フラックス法によって作製した Pr 希薄系カゴ状化合物 (Y(Pr)Ir₂Zn₂₀) の純良な単結晶を、液体ヘリウムを使った断熱消磁冷凍機で絶対温度 0.1 K 以下の極低温まで冷却し、比熱と電気抵抗を自作の測定システムによって精密に測定することにより、単サイトの非フェルミ液体的な温度変化を捉えることに成功、世界で初めて実験的に検証するに至りました。

本研究の成果は、平成30年8月13日(米国東部時間)にアメリカ物理学会の速報誌 Physical Review Letters のオンライン版に掲載予定です。

【論文情報】

論文タイトル

Single-Site Non-Fermi-Liquid Behaviors in a Diluted 4f² System

Y_{1-x}Pr_xIr₂Zn₂₀

著者名

山根悠¹、*鬼丸孝博²、協舎和平³、松本圭介⁴、梅尾和則⁵、高畠敏郎¹
(*責任著者)

1. 広島大学大学院先端物質科学研究科
2. 広島大学大学院先端物質科学研究科・創発的物性物理研究拠点
3. 広島大学大学院先端物質科学研究科、現・横浜国立大学大学院工学研究院
4. 広島大学大学院先端物質科学研究科、現・愛媛大学大学院理工学研究科
5. 広島大学自然科学研究支援開発センター

掲載雑誌

Physical Review Letters

DOI

未定

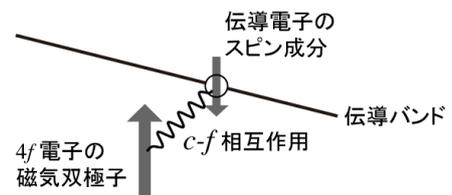
【背景】

希土類を含む金属間化合物では、希土類イオンの最外閉殻の $5s^25p^6$ 電子よりも内側に局在している $4f$ 軌道に電子が14個まで入り、これが磁性を担っています。局在した $4f$ 電子が遍歴的な伝導電子と強く相互作用 ($c-f$ 相互作用) することにより、例えば、 $4f^1$ 配位をとる Ce の化合物 (CeNiSn) における重い電子の半金属状態をはじめ、多彩な物理現象を創出することが知られています。Ce や Yb イオンを希薄に含む化合物における磁気的な近藤効果⁽¹⁾ (図 1(a) 参照) が確立されてから、格子系の近藤効果と磁気的な交換相互作用の競合によって生じる重い電子状態⁽²⁾ での超伝導や非フェルミ液体⁽³⁾ は、物性物理学の主要なテーマの一つとして世界中で精力的に研究されています。

われわれはこれまでに、 $4f^2$ 配位をとる Pr を含む立方晶カゴ状化合物 ($\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$) において、結晶場効果⁽⁴⁾ によって $4f$ 電子の電気四極子⁽⁵⁾ が活性となることを見出し、電気四極子の秩序化ならびにそれと共存する超伝導を発見していました。さらに2016年には、電気四極子が秩序する温度以上で、電気抵抗率や比熱の温度依存性が通常金属とは全く異なる非フェルミ液体的挙動を示すことを見出し、従来の近藤効果より関与する伝導バンドの数が多い「2チャンネル近藤効果」によって電気四極子の「近藤格子」が形成されている可能性を指摘しました。ここで、2チャンネル近藤効果とは、図 1(b) のように、局在した $4f^2$ 電子の電気四極子が $c-f$ 相互作用を介して二つの等価な伝導電子のバンドの電気四極子の成分によって過剰遮蔽される効果です。約30年前に提唱された理論モデルによる計算から、電子の状態が不安定な非フェルミ液体的挙動を示すことが予測されていました。しかしながら、 $\text{PrIr}_2\text{Zn}_{20}$ では Pr イオンが周期的に並んだ格子を組んでいるため、電気四極子と伝導電子の相関以外にサイト間の相互作用が有効にはたらいっており、理論モデルで提唱されていた単サイトでの2チャンネル近藤効果の実験的な確証には至っていませんでした。

【研究成果の内容】

(a) 通常の磁気的な近藤効果



(b) 電気四極子による2チャンネル近藤効果

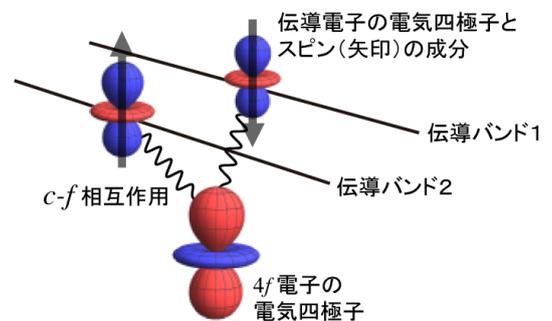


図 1. (a) 通常の磁気的な近藤効果の概念図。(b) 電気四極子による2チャンネル近藤効果。局在的な $4f^2$ 電子の電気四極子が、等価な二つの伝導バンドの電気四極子の成分により過剰に遮蔽される。

本研究では、Pr イオンを希薄に含むカゴ状化合物 $Y(Pr)Ir_2Zn_{20}$ の純良単結晶を自己フラックス法で作製しました。純良な金属原料を使用し、広島大学大学院先端物質科学研究科磁性物理学研究室に設置された試料育成炉によって加熱することで、Pr 組成の異なる純良な単結晶を得ました。また、同大学自然科学研究支援開発センターに設置された断熱消磁冷凍機と液体ヘリウムを用いて 0.1 K 以下の極低温まで冷却し、電気抵抗率と比熱を自作の測定システムによって精密に測定しました。Pr の組成の異なる単結晶を用いることで、2チャンネル近藤効果から期待される非フェルミ液体的振る舞いが発現するのか実証を試みました。

図2に $Y(Pr)Ir_2Zn_{20}$ の結晶構造を示します。4f電子をもたない非磁性の Y^{3+} イオンが $4f^2$ 配位の Pr^{3+} イオンでわずかに置換された場合、Pr が孤立した単サイトの状態が実現していると考えられます。したがって、単一の Pr^{3+} イオンの $4f^2$ 電子は $c-f$ 相互作用によって伝導電子と強く相関し、異常物性を引き起こすことが期待されます。

Pr 組成の異なる $Y(Pr)Ir_2Zn_{20}$ の電気抵抗率の温度変化を図3(a)に示します。縦軸の値は、Pr あたりの電気抵抗率の変化量 $\Delta\rho$ を特性温度 T_0 における値で割ったものであり、横軸 (T/T_0) に対してプロットされています。ここで、特性温度 T_0 は、磁気エントロピーが Pr の基底状態の二重項から期待される値の75%に達する温度としました。 $0.5 < (T/T_0) < 3$ の範囲で、組成に依らず一つの曲線にのることが分かります。また、図3(b)に、Pr モルあたりの磁気比熱 C_m を温度 T で割った量の温度依存性を示します。縦軸は、 T_0 での値で割ったものです。電気抵抗率と同様に、 $0.5 < (T/T_0) < 3$ の範囲で、組成に依らず一つの曲線に乗ります。電気抵抗率と比熱が Pr の組成によらず T_0 でスケールできることは、これらの特異な温度変化が Pr の単サイト効果に起因することを示しています。さらに、これらの温度依存性は、赤線で示した通り、約30年前に理論的に提案されていた電気四極子による2チャンネル近藤効果の理論モデルによる予測とよく一致します。

以上のことから、この系の非フェルミ液体的の状態は、単サイトの電気四極子による2チャンネル近藤効果によって生じたと考えられます。2チャンネル近藤効果の可能性については、ウラン(U)を希薄に含むいくつかの金属間化合物において、その可能性が長年追求されてきましたが、U イオンの価数が非整数であるため、その

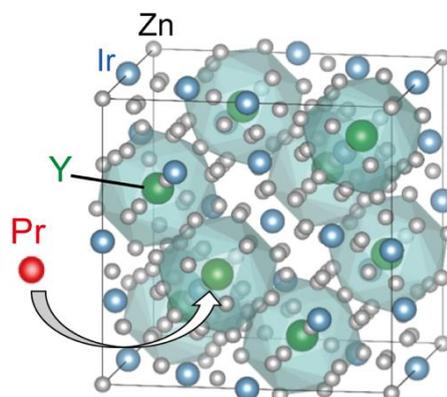


図2. $Y(Pr)Ir_2Zn_{20}$ の結晶構造。非磁性の Y^{3+} イオンの一部を $4f^2$ 配位の Pr^{3+}

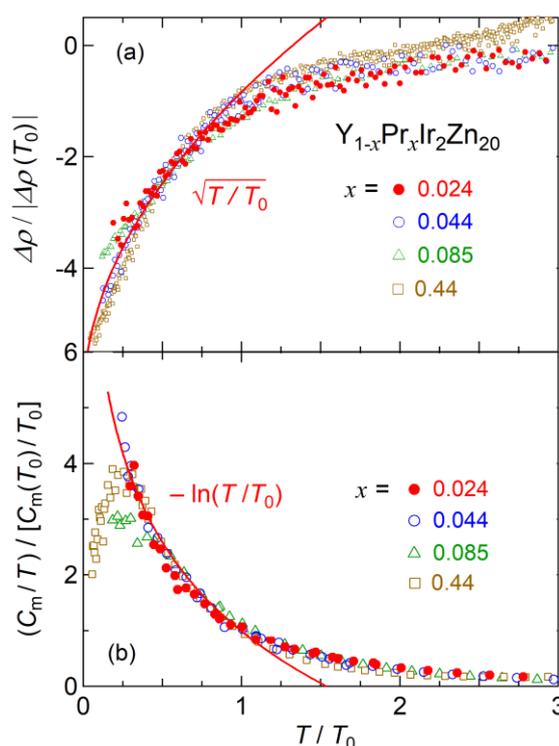


図3. $Y(Pr)Ir_2Zn_{20}$ の(a)電気抵抗率の変化量 $\Delta\rho$ と(b)磁気比熱 C_m を温度 T で割った量の温度依存性。いずれも特性温度 T_0 における値で割った量であり、横軸 (T/T_0) に対してプロットされている。特異な温度変化は Pr の組成に依らず、赤線で示した通り、2チャンネル近藤効果の理論モデルによる予測と一致する。

確証には至っていませんでした。本研究では、 $4f^2$ 配位の Pr^{3+} イオンをカゴ状化合物に希薄に導入することによって $c-f$ 相互作用が増強され、2チャンネル近藤効果による単サイトの非フェルミ液体状態が発現したと結論しました。

【今後の展開】

希土類イオンを含む金属間化合物において、 $4f$ 電子の磁気双極子だけでなく電気四極子も伝導電子との $c-f$ 相互作用を介して、多彩な物性を担っていることが分かってきました。本研究では、電気四極子による単サイトの2チャンネル近藤効果が発現している可能性を、極低温での電気抵抗と比熱の精密マクロ測定の結果により提案しました。今後、中性子散乱や核磁気共鳴などのミクロ手法によって2チャンネル近藤効果を検証し、その機構解明を目指します。近藤効果における磁気双極子と電気四極子の役割の相違点を捉え、近藤効果のチャンネル数による特性の変化を明らかにできれば、その機能を生かしたデバイス開発への応用が期待されます。

なお、本研究は、広島大学創発的物性物理研究拠点（拠点長：広島大学大学院理学研究科教授 木村昭夫）の支援を受けて実施されました。また、日本学術振興会の科学研究費である、基盤研究B(課題番号 JP18H01182)、新学術領域（研究領域提案型）「J-Physics:多極子伝導系の物理」課題番号 JP15H05882(研究代表者: 播磨尚朝)における研究計画班「DO1:強相関多極子物質の開発」課題番号 15H05886(研究代表者: 野原実)の一環として行われました。

【参考資料】

(1) 近藤効果

磁性原子を希薄に含む合金において、磁性原子の局在スピンの、伝導バンドの電子のスピンとの $c-f$ 相互作用によって、温度の減少に伴う電気抵抗の増大を引き起こす効果のこと（図 1(a)参照）。 $4f^1$ 配位の Ce や $4f^{13}$ 配位の Yb を含む化合物では、 $4f$ 電子のスピンと軌道の相互作用によって生じた磁気双極子が、一部の伝導電子のスピン成分により遮蔽されて近藤効果が起こる。また、 $4f$ 電子による磁気双極子が周期的に並んだ場合にも、希薄合金の近藤効果と同様の現象が現れることがあり、これを区別して近藤格子と呼ぶ。

(2) 重い電子状態

結晶中の電子が、磁性原子の局在スピンの $c-f$ 相互作用のために、大きな有効質量を持つ準粒子として振る舞う状態のこと。Ce や U を含む化合物では、局在的な f 軌道の電子が伝導バンドの電子と相互作用して近藤効果を示し、重い電子状態になることがある。その場合、電子比熱係数は $1 \text{ J}/(\text{K}^2 \text{ mol})$ になることもあり、そこから求めた有効質量は銅などの通常金属の数 100 倍にも達する。

(3) 非フェルミ液体

比熱、磁化率、電気抵抗などが、電子相関によって形成されるフェルミ液体とはまったく異なる温度依存性を示す状態。近藤効果とサイト間の磁気相互作用が強く競合した量子臨界点近傍でよく観測される。一方、ウラン(U)を希薄に含むいくつかの金属間化合物で $5f$ 電子による非フェルミ液体的な挙動が観測され、2チャンネル近藤効果の可能性が議論されたが、非整数の価数をもつ U イオンの $5f$ 電子系の結晶場基底状態を記述することができないため、その同定には至っていなかった。

(4) 結晶場効果

結晶中のある 1 個のイオン(または原子)に局在している電子において、自由な場合には縮退していたエネルギー準位が、その隣接イオンの幾何学的配置からくる対称性を反映した静電ポテンシャルにより分裂すること。結晶場は配位子場とも

呼ばれる。

(5) 電気四極子

大きさの等しい 2 つの電気双極子が反対向きにおかれたものを対として見なすとき、電極が 4 つあることからこれを電気四極子という。ここでは、有限の広がりをもった電荷分布がこれと同等の場をつくる場合に拡張して用いる。4f 電子の電荷分布が球対称からずれているときに電気四極子が現れる。

【お問い合わせ先】

【研究に関すること】 広島大学大学院先端物質科学研究科 教授 鬼丸 孝博
広島大学創発的物性物理研究拠点
Tel: 082-424-7027 FAX: 082-424-7029
E-mail: onimaru@hiroshima-u.ac.jp

【報道に関すること】
広島大学財務・総務室広報部 広報グループ 佐々木 和人
TEL: 082-424-3749 FAX: 082-424-6040
E-mail:koho@office.hiroshima-u.ac.jp

発信枚数：A4版 5枚（本票含む）