

氏名・(本籍)	ほし の しんたろう 星 野 晋太郎
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	理博第2681号
学位授与年月日	平成24年3月27日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科, 専攻	東北大学大学院理学研究科(博士課程)物理学専攻
学位論文題目	非クラマース配置を持つf電子系の近藤効果と秩序化
論文審査委員	(主査) 准教授 柴田 尚 和 教授 青木 晴 善 教授 倉本 義 夫 教授 石原 純 夫 准教授 岩佐 和 晃

論 文 目 次

1. Introduction
 - 1.1 f Electrons in Solids
 - 1.2 Typical Behaviors in f-Electron Systems
 - 1.3 Non-Kramers Systems with CEF Singlet Ground State
 - 1.4 Non-Kramers Doublet Systems
 - 1.5 Purpose of Thesis
2. Theoretical Approaches
 - 2.1 Green Function Method in Bipartite Lattice
 - 2.2 Dynamical Mean-Field Theory in Bipartite Lattice
 - 2.3 Other Susceptibilities in Single-Sublattice DMFT
3. Numerical Method as Impurity Solver
 - 3.1 Perturbation Expansion of Partition Function
 - 3.2 Physical Quantities
 - 3.3 Monte Carlo Simulation
4. Singlet-Triplet Kondo Lattice
 - 4.1 Phase Diagram
 - 4.2 Staggered Kondo-CEF Singlet Order
 - 4.3 Properties of Paramagnetic State
 - 4.4 Application to Scalar Order in PrFe₄P₁₂
5. Two-Channel Kondo Lattice
 - 5.1 Phase Diagram
 - 5.2 Antiferro-Channel Ordering at Quarter Filling

- 5.3 Channel-Symmetry Breaking at Half Filling
- 5.4 Comparison between AF-Spin and F-Channel Orders at Half Filling
- 5.5 Physical Consequences Described by Non-Kramers Doublet
- 6. Summary

論 文 内 容 要 旨

局在性の強い f 電子と結晶中を遍歴する伝導電子が織りなす強相関電子系は多彩な現象を引き起こし、近年注目を集めている。私はこれまで、 $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ や URu_2Si_2 などのサイトあたり偶数 f 電子配置を持つ物質群における特異な振る舞いの理論的解明を目指し、非クラマース配置を持つ f 電子系の動的平均場理論 (DMFT)+連続時間量子モンテカルロ法(CT-QMC)による理論を展開してきた。

サイトあたり f 電子を奇数個持つ Ce^{3+} や Yb^{3+} から成る化合物では、時間反転対称性に基づくクラマース縮退が必ず残る。一方、 Pr^{3+} や U^{4+} の持つ f 電子配置では、時間反転対称性とは関係のない非クラマース結晶場基底状態が実現する。このような系ではクラマース系とは定性的に異なる新しい物理が期待される。実験的には $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ 、 URu_2Si_2 、 PrAg_2In 等の系で f 電子と伝導電子の強い相互作用が指摘されており、非自明な秩序化や重い電子的振る舞いなど特異な現象が観測されている。これらの物質の振る舞いは非クラマース近藤系に起因したものであると考えられ、その機構の理論的解明は新しい物理概念の創出につながる。

クラマース系における局在スピンと伝導電子の相互作用系は近藤格子として知られている。相互作用の大きさ J が小さい領域では、伝導電子を介した局在スピン間の RKKY 相互作用によって秩序化する。それとは逆に J が大きい領域では、近藤効果によって局在スピンは伝導電子に遮蔽され非磁性の重い電子状態が実現する。このような振る舞いは f 電子系の典型である。ところが私の研究では、f 状態が伝導電子と強く相互作用した系において、RKKY 相互作用ではなく近藤効果によって秩序が誘起されるという、クラマース系とは対照的な振る舞いを示すことを明らかにした。

以下に結晶場一重項および二重項を持つ系における私の研究成果を記述する。

【 $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ と一重項・三重項近藤格子】

充填スクッテルダイト構造を持つ $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ は非自明な秩序化を示すことから注目を集めてきた。電気抵抗に近藤効果的な対数温度依存性を示し、6.5K で非磁性の秩序状態へ 2 次相転移する。非弾性中性子散乱には次のような特徴的振る舞いが報告されている。非秩序相において近藤効果に特徴的なブロードな準弾性ピークが観測されるが、秩序相に入ると結晶場励起的な鋭い非弾性ピークが現れる。このことから、 $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ の秩序化は近藤効果(準弾性ピーク)と結晶場効果(鋭い非弾性ピーク)の競合によることが考えられる。

Pr スクッテルダイトにおける f 電子配置の低エネルギー結晶場状態は一重項と三重項であると想定される。本研究では $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ の秩序相の理解を目的とし、結晶場一重項・三重項と 2 つの伝導バンドが相互作用するモデルの解析を行った。研究を遂行するにあたり、まず CT-QMC をこのモデルに拡張した。これを用いて、近藤効果と結晶場効果の競合するパラメータ領域において、近藤一重項と結晶場一重項が交互に並ぶという新しいタイプの秩序を見出した。この秩序は f 電子と伝導電子の相互作用 SJS が大きい極限から理解されるため、近藤効果が本質的に重要である。つまり、通常 f 電子系の秩序の起源として考え

られる RKKY 相互作用では理解することができない。このモデルによって $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ の電気抵抗の温度依存性や、非弾性中性子散乱の非秩序相で準弾性ピーク、秩序相で非弾性ピークなどの特徴的振る舞いを説明することに成功した。

【非クラマース二重項近藤格子の複合秩序】

次に非クラマース二重項近藤系について述べる。立方結晶場中の非クラマース二重項はスピン(磁気双極子)を持たず、非磁性の軌道(電気四極子)自由度を持つことが特徴的である。このとき f 電子は伝導電子の軌道自由度と結合する。伝導電子はスピン自由度(チャンネルと呼ぶ)も持つので、伝導電子のほうが f 電子よりも内部自由度が多くなり 2 チャンネル近藤系が実現する。不純物系では、基底状態で特異な残留エントロピー $R = (1/2)\ln 2$ が残ることなど、振る舞いはよく理解されている。格子系ではこのエントロピーはサイト間相互作用によって消失するはずである。この系がどのようにして基底状態に至るかを明らかにするため、非クラマース二重項系の最もシンプルな格子モデルである 2 チャンネル近藤格子を解析した。

サイトあたり伝導電子が 2 個のとき、低温でチャンネル対称性が自発的に破れる。それにもかかわらず、この秩序相ではチャンネルモーメントはゼロである。本研究ではこの秩序状態は f 電子と伝導電子の自由度が結合した複合秩序変数によって特徴づけられることを明らかにした。秩序相では f 電子は片方のチャンネルの伝導電子と近藤一重項を形成し、もう片方の伝導電子はフェルミ液体の性質を示す。つまり軌道選択型近藤効果が起こっている。また、自己エネルギーの振動数依存性から、この複合秩序は奇周波数秩序と解釈することもできることを示した。これまで奇周波数超伝導は盛んに議論されてきたが、本研究の結果は超伝導以外の奇周波数秩序の初めての例である。

上記 2 つの私の研究では、非クラマース配置を持つ電子系において近藤効果によって誘起される新しいタイプの秩序を見出した。この秩序化は通常 f 電子系の秩序の起源として考えられる RKKY 相互作用とは異なるメカニズムである。従って、本研究の結果は f 電子系の秩序化の概念を押し広げるものと考えられる。

論文審査の結果の要旨

固体中の f 電子は一般に局在的性格を持つが、伝導電子と強く相互作用する場合には遍歴的性格も合わせ持つ。近藤効果によって遍歴性を獲得した f 電子は、低温で巨大な有効質量を持つので、重い電子と呼ばれている。重い電子系の実験的・理論的研究は主にイオン当たり 1 個の f 電子を持つ Ce 化合物を対象として累積されてきた。一方、イオン当たり偶数個の f 電子を持つ Pr^{3+} あるいは U^{4+} の化合物は非クラマース系と呼ばれ、局在する f 電子が各サイトで結晶場単重項を形成することが可能である。 $\text{PrFe}_2\text{P}_{12}$ や URu_2Si_2 などの非クラマース系では、近藤効果が見られ、しかも低温で秩序化する。この電子秩序形成には大きな比熱異常が伴うが、秩序変数自体は未だに同定されていない。このような「隠れた秩序」の解明は、電子の遍歴・局在両義性の理解とも関連しており、大きな意義を持つ。

星野晋太郎提出の博士論文は、近藤格子モデルを非クラマース系に拡張した上で、その特徴的秩序状態を論じたものである。特に近藤温度の大きさと結晶場分裂の大きさが近い場合に、結晶場単重項のサイトと近藤単重項のサイトが交互に整列することを、連続時間量子モンテカルロ法(CT-QMC)と副格子動的平均場理論(DMFT)を組み合わせた計算手法により数値的に厳密に立証した。さらに、この系の状態密度と動的帯磁率も導出した。得られた結果は、 $\text{PrFe}_2\text{P}_{12}$ の秩序状態における特徴的物性をよく説明する。さらに、結晶場 2 重項が整列した近藤格子モデルも同じ手法で研究し、新しい遍歴 8 極子秩序状態を発見した。この秩序では、局在擬スピンのモーメントがゼロのままで時間反転対称性が破れる。秩序パラメータは擬スピンの内積に対応する複合量である。本論文は、これを局在擬スピンの奇振動数秩序とみなせることを示し、奇振動数秩序の安定性が複合秩序に由来することを理論的に示した。

これらの研究は固体電子の物性に対して新しい知見をもたらし、自立した研究活動を行うに足る高度の研究能力と学識を有することを示している。よって星野晋太郎提出の論文は博士（理学）の学位論文として合格と認める。