

# 博士論文審査報告書

氏名	阪口 友唯 (サカグチ ユイ)
学位の種類	博士 (理学)
学位記番号	博理第 86 号
学位授与報告番号	甲第 256 号
学位授与年月日	平成 28 年 3 月 22 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条 1 項該当
論文題目	重い電子化合物 $\text{YbAlB}_4$ の高圧力下における構造および電子状態に関する研究
論文審査委員	(主査) 教授 小林 寿夫 (副査) 教授 赤浜 裕一 (副査) 教授 住山 昭彦 (副査) 教授 田中 義人 (副査) 教授 高畠 敏郎 (広島大学大学院先端物質科学研究科)

## 1. 論文内容の要旨

重い電子系と呼ばれる希土類やアクチノイド元素を含む金属間化合物では、伝導電子と局在  $f$  電子間の交換相互作用に由来する、局在磁気モーメントを揃えようとする相互作用と伝導電子が局在磁気モーメントを遮蔽する相互作用が存在する。この競合する相互作用を制御することで起こる、絶対零度での磁気秩序 - 無秩序転移 (量子臨界点) およびその近傍で観測される特異な現象に大きな関心が寄せられている。そこで観測される量子臨界現象は、スピンゆらぎ理論の枠組みで説明されてきた。しかし近年、常磁性金属状態において、スピンゆらぎによる量子臨界現象の枠組みに従わない新奇量子臨界現象が観測されている。本論文の対象物質である  $\beta\text{-YbAlB}_4$  は、常圧力下で強い価数揺動状態にあり、従来型とは大きく異なる量子臨界性を示すことが報告されている。しかし、相互作用を制御した環境下において微視的実験手法を用いた研究は行われていなかった。本論文の目的は、圧力・磁場により相互作用を制御した環境下での精密構造と  $\text{Yb}$  イオン価数を実験的に求めることで、 $\beta\text{-YbAlB}_4$  での局所精密構造と  $\text{Yb}$  イオン価数の詳細な関係を明らかにすることである。

近年の放射光施設の充実により測定精度が向上した低温・高圧力下 X 線回折法及び多重極限 (低温・高圧力・強磁場) 下 X 線吸収分光法などを用いて、 $\beta\text{-YbAlB}_4$  での局所精密構造と  $\text{Yb}$  イオン価数との詳細な研究を行った。低温・高圧力下 X 線回折パターンの解析から  $\text{Yb}$  イオン・サイトを取り囲む  $\text{B}$  原子が作る局所構造が、3.5 と 5.8 GPa の間で結晶の対称性を変えることなく大きく変化していることを見出した。さらに低温・高圧力下  $\text{Yb}L_{III}$  端近傍 X 線吸収スペクトルの測定結果から、この局所構

造変化と Yb イオン価数が密接に関係していることも実験的に明らかにした。この結果は、伝導電子と局在電子間の混成効果の変化が、圧力の単純な関数ではないことを示している。また、本論文の目的達成のために、SPring-8 磁性材料ビームラインに超伝導マグネットを導入し、加圧治具（ダイヤモンド・アンビル・セル）中微小試料においても十分な信号対雑音比で X 線吸収スペクトルが測定可能な分光系を構築した。この多重極限下 X 線吸収分光系を用い、単結晶  $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> 試料での Yb L<sub>III</sub> 端近傍 X 線吸収スペクトルを測定した。得られた低温・高圧力下吸収スペクトルの磁場依存性から、 $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> の磁氣的相互作用が ~3 GPa で変化することを見出した。さらに、X 線吸収分光法より固有測定時間の数桁短い <sup>174</sup>Yb 放射光メスバウア分光法を用いて Yb イオンの価数揺動ダイナミクスを検出しようとして試みた。これらの結果から、局所構造変化にともなう Yb イオン価数揺動の変化が  $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> での新奇量子臨界現象や圧力誘起転移に重要な役割を担っていることを示した。

## 2. 論文審査結果

本論文は、Yb 系重い電子化合物で初めて超伝導状態の出現が示されたことで注目される  $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> で、観測されている非従来型量子臨界現象や高圧力下の物性を Yb イオン価数と局所構造との関係から明らかにすることを目的とし、放射光を用いた多重極限下 X 線吸収分光法や低温・高圧力下 X 線回折法を主な実験的手法として研究を行ったものである。

申請者は、低温・高圧力下 X 線回折法を用いた精密構造解析から、 $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> で Yb イオン・サイトを取り囲む B 原子が作る局所（7 回対称性）構造が、圧力 3.5 と 5.8 GPa の間で結晶対称性を保ったまま大きく変化していることを発見した。さらに、低温・高圧力下 X 線吸収分光測定結果から Yb イオン価数変化と局所構造変化に伴う伝導バンドの変化が、 $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> の新奇量子臨界現象や圧力誘起転移を考察する上で重要な役割を担っていることを示した。さらに、多重極限下 X 線吸収分光系を SPring-8 磁性材料ビームラインに構築し、単結晶  $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> 試料での低温・高圧力下 X 線吸収スペクトルの磁場依存性から、圧力下における  $\beta$ -YbAlB<sub>4</sub> での磁氣的相互作用の変化についても指摘した。

以上のように、本論文の成果は、近年重い電子系化合物の常磁性金属状態において観測されている新奇量子臨界現象を議論する上で、局所構造による混成効果と希土類イオン価数揺動の重要性を示す基本的な知見を与えている。さらに、本成果は高圧力下における精密構造解析の重要性を示すもので、今後、圧力を用いて軌道混成や磁気相互作用を制御する研究の展開に重要な示唆を与える知見である。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値のあるものと認める。

また、平成 28 年 1 月 26 日、論文内容およびこれに関連する事項について試問を行った結果、合格と判定した。