

論文審査の結果の要旨

氏名 酒井 明人

本論文は全4章で構成されており、 $\text{PrTl}_2\text{Al}_{20}$ ($Tl = \text{Ti}, \text{V}$)の純良単結晶の合成と、極低温度までの比熱、電気抵抗率、帯磁率測定を行った結果がまとめられている。その結果この物質が低温で四極子（軌道）自由度のみを有し、かつ伝導電子との混成効果が強い初めての物質であることが明らかにした。さらに異常金属状態や重い電子超伝導といった大変興味深い現象が観測され、その起源に対する考察と可能性も提示している。

第1章では近藤効果と四極子近藤効果の理論的に考えられる相違点や、これまでのPr化合物の研究の問題点など、研究の背景や目的について述べられている。

第2章では研究に用いた実験手法について述べられている。試料育成はアルミセルフフラックス法を用いて行い、条件を最適化することで純良化と大型化に成功した。また高真空縦型炉を作成し、それを用いた合成で更なる純良化にも成功した。育成した試料は市販のX線回折装置やSEM-EDXを用いて評価を行い、純良な単結晶であることを確認した。低温測定は温度範囲によって測定装置を分け、2 K（または0.6 K）以上の温度では市販の汎用測定装置を、2 Kから40 mKまでの極低温度の測定には希釈冷凍機を用いて実験が行われた。特に希釈冷凍機温度での低磁場磁化測定にはSQUIDを用いた測定が行われており、論文提出者自らこの立ち上げに関わったことが述べられている。

第3章では実験の結果と考察が述べられている。第3.1節では比熱や磁化の振る舞いから、 $\text{PrTl}_2\text{Al}_{20}$ ($Tl = \text{Ti}, \text{V}$)が非磁性立方晶 Γ_3 結晶場基底状態を持っていることを明らかにした。また、電気抵抗率の振る舞いなどから伝導電子との混成が強いことを明らかにした。このように混成が強く、かつ非磁性立方晶 Γ_3 結晶場基底状態を持つ系は初めてであり、四極子と伝導電子の混成を研究するのに最適な物質である。加えて、 $\sim 1 \text{ K} < T < \sim 10 \text{ K}$ において $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ が異常金属状態になっていることがわかった。この温度範囲では磁気双極子自由度を持たないため、四極子と伝導電子の混成がその起源である可能性が高いと考えられる。

第3.2節では $\text{PrTl}_2\text{Al}_{20}$ ($Tl = \text{Ti}, \text{V}$)が示す四極子転移について述べられている。比熱の磁場中での変化と電気抵抗率の温度依存性から、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ の $T_Q = 2.0 \text{ K}$ での秩序は強四極子秩序であり、比較的局在した秩序であることを明らかにした。一方、 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ は $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ で見られた振る舞いを示さず、より遍歴性の強い反強四極子秩序を $T_Q = 0.6 \text{ K}$ で示すと考えられる。これまで研究されてきた多極子秩序は全て局在性が強く、 $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$

で見つかった混成の強い四極子秩序相は新奇な秩序の可能性を秘めており大変興味深い。

第 3.3 節では $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ で見つかった転移温度 $T_c = 0.2 \text{ K}$ の超伝導の性質について述べられている。磁化率の反磁性の大きさ、比熱の飛びの大きさからこの超伝導はバルク超伝導である。また臨界磁場の T_c での傾き、電子比熱係数から重い電子超伝導であることを示した。さらに La 希釈効果を調べることで、 $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ がマルチバンド超伝導であること、すなわち $\text{LaTi}_2\text{Al}_{20}$ と共通なバンドの他に $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ には重い準粒子質量をもつバンドがあることを明らかにした。この常圧での超伝導は約 8 GPa の高圧下で転移温度 1 K、有効質量 $100 m_0$ の重い電子超伝導になる（上床研との共同研究）。この圧力下の超伝導も、本研究で明らかになったマルチバンド性を仮定すると自然に理解できる。

第 4 章は本論文で明らかにした $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($Tr = \text{Ti}, \text{V}$) の物性について総括し、今後のさらなる研究の指針や、軌道自由度が重要な強相関物理の展望について述べられている。

このように本論文は $\text{PrTr}_2\text{Al}_{20}$ ($Tr = \text{Ti}, \text{V}$) がピュア軌道自由度を持ち混成が強いというこれまでにない新しい性質を持つことを明らかにした。これはこれまで現実の物質を用いた研究が不可能であった、四極子近藤効果や四極子の量子臨界の研究が初めて可能になったことを意味し、実際に $\text{PrV}_2\text{Al}_{20}$ や圧力下の $\text{PrTi}_2\text{Al}_{20}$ でそれらが実現している可能性が高い。今後この研究を礎に軌道自由度を用いた新しい現象や電子状態が発見されることが期待される。

上記の研究は中辻知、松本洋介、久我健太郎、E. C. T. O'Farrell、辻本真規、各氏との共同研究であるが、論文提出者が中心となって単結晶育成、装置開発、物性測定を行ったものであり、論文提出者の寄与は十分にあると認められる。また、論文提出者の知識、技術、発想力は学位を与えるのに十分な水準を満たしている。

したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。

以上 1,774 字