

## Pr化合物中に発見された 4f 電子と核の複合準位系

希土類化合物の物性は、磁性や超伝導に関連した多彩な電子状態の宝庫として、多くの研究者を魅了し続けている。これまでの研究によって、こうした現象の多くは、希土類イオンの 4f 電子が持つスピン角運動量と軌道角運動量によりもたらされると考えられている。一方、希土類イオンの原子核も同様に核スピン角運動量を持つが、その磁気モーメントの大きさは非常に小さいことが知られている（電子の 1000 分の 1 程度）。また、4f 電子と核スピンの間には、両者の状態を互いに縛り付けようとする（量子力学的に両者の状態を混ぜる）超微細相互作用と呼ばれる効果が働いているが、通常この強さは磁性や超伝導をもたらす他の相互作用に比べて非常に弱いため、核スピンの表に出てくることはない。

最近、首都大学東京、富山大学、東京大学物性研究所、新潟大学、東京工業大学、神戸大学の研究グループは、充填スクッテルダイトと呼ばれる一連の化合物の一つである  $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  において、Pr イオンの持つ 4f 電子が超微細相互作用を通して核スピンと結合し、両者が複合した特異な状態を形成していることを見出した。Pr イオンの内部において、3 重縮退した状態にある 4f 電子が、大きさ  $I=5/2$  の核スピンと超微細相互作用することにより、4 重、6 重、8 重に縮退した 3 つの新たな多重項から成る複合準位系が形成される。彼らは、 $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  の純良単結晶を用いて比熱と磁化の高精度測定を行い、その結果をこの複合準位モデルではほぼ矛盾無く説明することに成功した。この成果は、日本物理学会が発行する英文誌 *Journal of the Physical Society of Japan (JPSJ)* の 2011 年 5 月号に掲載された。

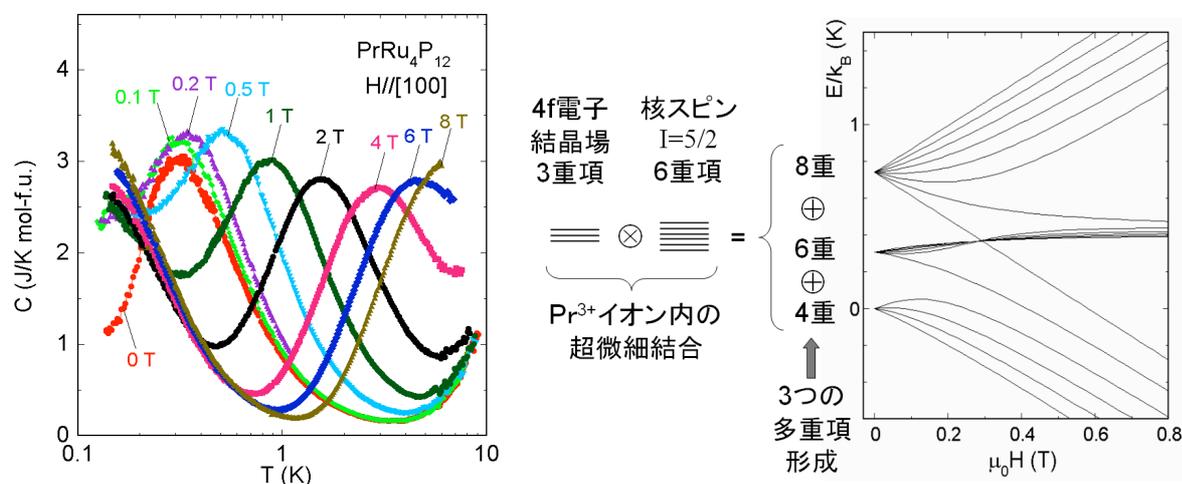


図 1. (左)  $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  の磁場中における比熱の温度依存。ゼロ磁場で 0.3 K に現れる比熱の山は、磁場増大に伴い高温側に移動する。この振る舞いは、f 電子-核複合準位系の形成の証拠である。(右) 4f 電子の結晶場 3 重項状態が、核スピンと超微細結合して形成される 3 つの多重項の磁場依存性は、観測された比熱データの特徴を良く再現する。

比熱の温度依存を図 1 に示すが、ゼロ磁場中では 0.3 K に比熱の山が見られる。これは、磁場がないときに、分裂した複数の多重項が既に形成されていることに対応する。磁場を印加していくと、約 0.3 T を境にこのピークが高温側へ移動し始めるが、この振る舞いも、超微細相互作用が支配的な低磁場領域から、外部磁場が支配的な高磁場領域への移り変わりとして理解

できる (Paschen-Back 効果と呼ばれる現象である)。磁化の温度依存や磁場依存に見られる特徴的な異常も、同様にほぼ定量的に説明された。

充填スクッテルダイト  $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  は温度を下げていくと 63 K で金属から絶縁体へと転移するが、本現象はこの低温側における絶縁体相内で観測された。この絶縁体相は、4f 電子の結晶場準位が相内で激しく温度依存することから、4f 電子の関与した特異な電荷秩序相であるとして研究者の注目を集めている。この相内では Pr イオン間の相互作用が抑制されることと、Pr イオンが希土類の中でも比較的大きな超微細結合定数を持つことの 2 つの条件が組み合わさることにより、この相内の低温領域において超微細相互作用が顕在化し、極めて珍しい純粋な 4f 電子と核の複合準位構造の形成がもたらされたものと考えられる。

この多重項は、4f 電子と核スピンのミックスして形成されたものであるから、結晶固体中で伝導電子と相互作用した際、従来のもとは異なる新しい状態を形成する可能性がある。実際、この物質では外部磁場をかけると抵抗が 90% も減少する現象など、電子の運動が磁場に敏感に影響を受けることが観測されており、今後の新たな研究の展開が期待される。

一方、電子と核の複合準位構造は、冷却された原子気体を用いた高精度原子時計や将来の量子コンピュータへの応用において、重要な役割を持つ。空間の原子密度を高くするため、レーザー光を用いて作った格子 (光格子) に原子を並べる技術も用いられている。 $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  では、複合準位構造を持つ Pr イオンが約 8 オングストロームの間隔で完全格子を形成している高密度状態にあるので (結晶構造を図 2 に示す)、このような次世代の基礎技術研究に役立つかもしれない。

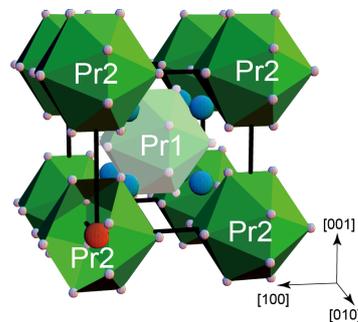


図 2  $\text{PrRu}_4\text{P}_{12}$  の結晶構造。Pr2 と印がついたカゴ状構造の中央に、複合準位系を持つ Pr イオン(赤球)が位置する。

論文掲載誌 J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011) No.5, p. 054704

電子版 <http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/80/054704> (5月10日公開済)

< 情報提供：青木勇二 (首都大学東京大学院 理工学研究科) >