精密超音波測定法による多チャンネル近藤効果の実証

柳　澤　達　也*

Experimental Verification of Multichannel Kondo Effect Using High-precision Ultrasonic Measurements

Tatsuya YANAGISAWA*

We performed ultrasonic measurements on the non-Kramers system $Y_{1-x}Pr_xIr_2Zn_{20}$ to search the evidence and verify the systematic change of the single-site quadrupolar Kondo effect. The elastic constant $(C_{11}-C_{12})/2$ of the Pr-37% system obeys a Curie law down to ~1 K and shows the temperature dependence proportional to $+\sqrt{T}$ below ~150 mK, which is theoretically derived by the quadrupolar Kondo (virtual) lattice model rather than the logarithmic T dependence derived by single site quadrupolar Kondo model. We also found the low-energy ultrasonic dispersion in an intermediate temperature region of 0.9–0.2 K, which strongly suggest a presence of the low-energy phonon excitation due to the vibronic state.

1．研究の背景

一般に，金属化合物中では伝導電子は遍歴的に振る舞い，導電性や高い熱伝導性を示す．不純物を含まない金属においては温度が下がると電気抵抗は減少する．しかしCuやAuといった導電性の高い金属にFeなどの磁性不純物が微量に含まれた系において，電気抵抗が温度変化に対して極小をとる場合がある．この現象の起源は長年未解明であったが，伝導スピンと局在スピンの交換相互作用を通した散乱機構の二次摂動まで考慮することで1964年に近藤惇によって理論的に解決された[1]．この物理的描像では，フェルミの海に一つの局在した磁気双極子（ランク1の多極子）が存在しており，周囲の電子のスピン自由度と相互作用していると見なせ，現在ではその相互作用に起因するスピン演算子の非可換性が低エネルギー励起に現れる量子多体効果「（磁気的な）近藤効果」として知られている．

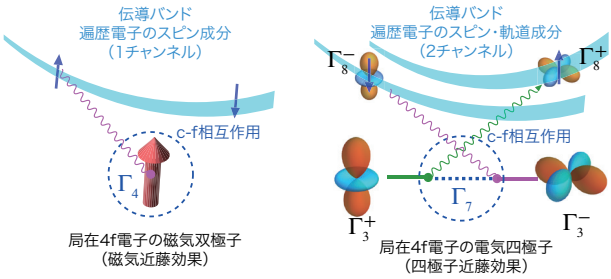

図1　磁気近藤効果（左）と四極子近藤効果（右）の概念．

次に，金属の中に一つの局在した電気四極子（ランク2の多極子）が存在している系を考えてみる．このような状況では，局在電気四極子モーメントが伝導電子に過剰遮蔽されることによって非フェルミ液体的挙動を示すことが1987年にD. L. Coxによって理論提案された[2]．この現象は「電気的な近藤効果」として捉えることができるため四極子近藤効果と呼ばれ，局在電気四極子と伝導電子の軌道自由度間に働く電気的相互作用（図1）に起因する．そのため一般に磁気測定では検出されにくく，本質的理解が進んでおらず，物性物理学の残された課題の一つであった．これまでに基底状態として，電気四極子自由度を残す非磁性の非クラマース二重項をとり得るU系（$5f^2$）化合物やPr系（$4f^2$）化合物を中心にこれまで多くの実験的検証が試みられてきたが，理論と完全に一致するような系は未だに見つかっていない．本研究は，電気自由度である電気四極子の揺らぎを感受率として直接観測できる「精密超音波測定法」を用いてこの四極子近藤効果を直接捉えることを眼目とした．

2．研究手法

30年前に提案された「四極子近藤効果」の理論では四極子感受率が対数的温度変化を示すことが予言されているものの，それを明確かつ直接捉えた実験は行なわれていない．そのため精密超音波測定法を用いて，対象物質において局所的な電気応答である四極子感受率を直接観測し，四極子近藤効果理論が予言する対数的温度変化を検証することができれば本理論を実証できる．本研究では対象物質として，これまでに比熱・電気抵抗率によって単サイト2チャンネル近藤効果の間接的な証拠[3]が得られているPr希釈系

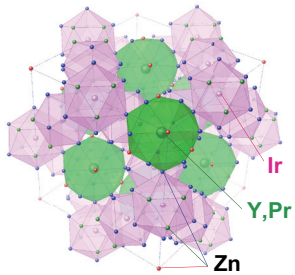

図2　$Y_{1-x}Pr_xIr_2Zn_{20}$の結晶構造．

2022年3月4日 受理
* 豊田理研スカラー
北海道大学大学院理学研究院物理学部門

$Y_{1-x}Pr_xIr_2Zn_{20}$（図2）に注目した．母物質の$PrIr_2Zn_{20}$は$T_Q = 0.11$ KにおいてΓ_3型の反強四極子秩序を示し，さらに低温の$T_c = 0.05$ Kで超伝導を示す．我々は最近Prイオンを非磁性のYで3.4%まで希釈した系の極低温・強磁場下における精密超音波測定に成功し，四極子近藤効果の証拠となる弾性定数の対数的温度変化の観測に初めて成功した[4]．本研究では当該物質のPrイオン濃度を様々に変えた系統的実験を行い，四極子近藤効果理論が予言する四極子感受率の対数的温度変化の普遍性と，量子基底状態の変化の様子を検証する．

3．実験結果

広島大鬼丸グループから提供された$Y_{1-x}Pr_xIr_2Zn_{20}$（$x = 0, 0.08, 0.37$）の純良単結晶試料を用いて超音波測定を行い，各Pr濃度の試料に対してΓ_3対称性の四極子の応答に対応する弾性定数（$(C_{11}-C_{12})/2\,(\equiv C_v)$），及び$\Gamma_5$対称性に対応する$C_{44}$を測定した．4*f*電子を持つPrイオンが全く含まれないPr-0%系（YIr_2Zn_{20}）を除き，全てのPr濃度でC_vにおけるキュリー的な低温ソフト化が観測され，Pr希釈系においても結晶場基底が非クラマースΓ_3二重項の縮退を保っていることが確認された．

Pr-37%系の30 mKまでの極低温におけるC_vの温度・周波数依存性を抜粋して図3に示す．温度軸（横軸）は対数軸である．零磁場下では$T^* \sim 1$ K以下の温度域において局在電子模型（結晶場）を仮定した$1/T$の温度変化から外れる結果が得られた．0.5 K付近に現れる周波数依存性は，緩和の現象論を用いて動的弾性定数として解析できる．解析の結果，周波数依存性がなくなる極低温領域の温度変化として，単サイト四極子近藤模型に基づく対数的温度変化よりも，四極子近藤「（仮想）格子」模型[5]に基づく$+\sqrt{T}$に比例した冪を仮定した方が，T^*近傍におけるクロスオーバー領域の実験結果をよく再現することがわかった．この結果は，単サイト四極子近藤模型から（仮想）格子模型へのクロスオーバーを捉えた重要な結果である．

更に，Pr-37%系において発見した周波数依存性は他の濃度では観測されておらず，低エネルギーの超音波分散が存在することを示している．この周波数依存性は磁場印加によって消失することから，基底Γ_3二重項が持つ電気四極子自由度が起源であると考えられる．Pr系化合物では，極低温まで多極子自由度やイオンの局所振動などの自由度を残し，それらが複合的に伝導電子系と混成していると考えられる系が他にも報告されている[6]．

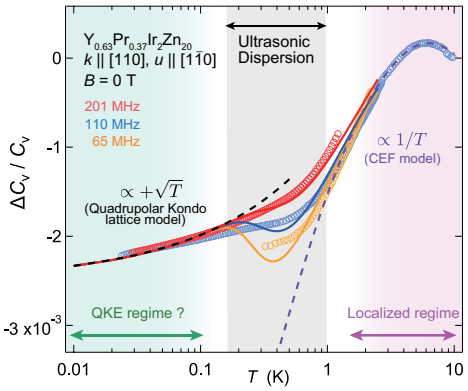

図3　弾性定数C_vの温度／周波数依存性．

4．まとめ

本研究のまとめとして$Y_{1-x}Pr_xIr_2Zn_{20}$の量子基底状態がPr濃度を変えることでどのように変化するのかを表した温度-Pr濃度（*T*-*x*）相図を図4に示す．本系はPr濃度を変えることで多彩な量子状態が実現されることがわかる．特に本研究の精密超音波測定からPrの中間濃度領域（37%）では，基底Γ_3二重項が格子系と結合したヴィブロニック状態[6]が四極子近藤効果と共存する新奇量子状態が形成され，絶対零度に向け残留エントロピーを放出している可能性を強く示唆していることが明らかになった．四極子近藤効果の残留エントロピーが残る基底状態は仮想的にマヨラナ粒子と等価であるが，本研究は実際の物質中に於ける四極子近藤効果の残留エントロピーの問題を理解する端緒となる可能性を秘めている．それらを更に追求することによって，将来的には多極子・マヨラナ粒子を用いた量子コンピュータ用デバイス開発などの科学技術応用にも繋がることが期待できる．

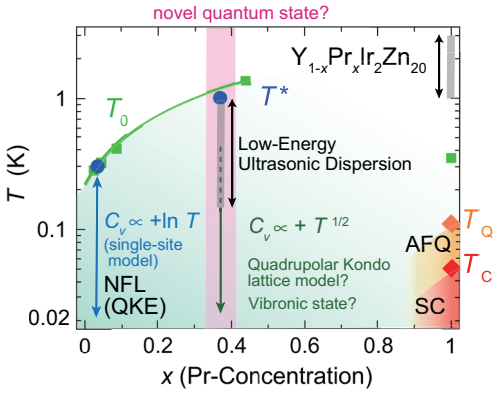

図4　極低温の温度-Pr濃度（*T*-*x*）相図．

REFERENCES

1) 近藤　淳，*日本物理学会誌*，**60** (2005) 85-87.
2) D. L. Cox, *Phys. Rev. Lett.*, **59** (1987) 1240.
3) Y. Yamane, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **121** (2018) 077206.
4) T. Yanagisawa, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **123** (2019) 067201.
5) A. Tsuruta and K. Miyake, *J. Phys. Commun.*, **6** (2022) 015006.
6) K. Araki, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81** (2012) 023710.