The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	Probing strongly correlated 4f orbital symmetry of Ce, Sm and Yb compounds by linear dichroism in angle-resolved core-level photoemission
Author(s)	金井, 惟奈
Citation	大阪大学, 2019, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/72263
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　金井　惟奈　）	
論文題名	Probing strongly correlated 4f orbital symmetry of Ce, Sm and Yb compounds by linear dichroism in *angle-resolved* core-level photoemission （内殻角度分解光電子線二色性によるCe, Sm, Yb化合物の強相関4f軌道対称性の決定）

論文内容の要旨

4*f*不完全殻を持つ強相関希土類化合物は、4*f*電子と伝導電子の混成により低温において磁気秩序・超伝導・重い準粒子状態など様々な物性を示す。これらの物性解明には結晶場による4*f* 軌道対称性を知ることが重要であるが、結晶場分裂幅の小ささから希土類4*f*準位分裂とその対称性を一意的に決定するのは困難なことが多く、現実の希土類強相関電子系に対しては4*f*基底状態の決定自身が重要な研究課題となっている。

近年我々は光学過程における遷移選択則により希土類内殻光電子スペクトルに4*f*電荷分布を反映した線二色性が生じることを発見した。また、高エネルギー光学過程計算プログラムXTLS 9.0を使用して結晶場を考慮したイオンモデル計算を行うことで正方晶および立方晶希土類化合物の4*f*基底状態の決定に成功してきた。この手法の利点の1つは4*f*電子電荷分布対称性が球形に近いものであっても光電子放出方向の選択により詳細な4*f*軌道対称性を見分けられる点である。

本論文では立方晶YbB_{12},$CeAl_2$,CeB_6および正方晶$SmCu_2Si_2$の内殻光電子スペクトル線二色性を測定した結果を議論する。近藤半導体であるYbB_{12}の基底状態がΓ_8で証拠が定性的かつ定量的に示されたほか、低温で反強磁性転移を起こす$CeAl_2$とCeB_6が異なる基底状態をとることが判明した。正方晶$SmCu_2Si_2$はその4*f*電子数ゆえ4*f*電子電荷分布対称性が球形に近いため、基底状態決定が困難であったが、実験配置を工夫することにより基底状態Γ_7^1が得られた。この測定を行う上で硬X線の偏光切替手法および二軸回転マニピュレータの開発も行い、ダイヤモンド移相子による偏光切替により垂直偏光成分～98%を実現したことについてもまとめている。

また、内殻と同様にイオンモデル計算を適用すると、4f光電子スペクトルにおいても線二色性が得られることが期待され、実際に観測した結果についてまとめた。実験により得られた線二色性は計算による予想より小さなものであり、4f光電子スペクトル線二色性のイオンモデルによる解析が適切ではないことが示された。

様式７

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（　金井　惟奈　）		
論文審査担当者	（職）	氏　名
	主 査　教 授	関 山　明
	副 査　教 授	藤 本　聡
	副 査　教 授	山 本　俊

論文審査の結果の要旨

4f不完全殻を持つ強相関希土類化合物は、希土類イオンが並進対称性を有する場合でも強い局在性から実空間情報と言えるイオン的な4f軌道対称性の性質が結晶内で残り磁気秩序を含む多極子秩序を理解する上で重要になる。この軌道対称性は、混成効果も繰り込んだ希土類イオンに働く局所的な結晶場によってエネルギー準位が決定されうるが、結晶場分裂幅は数～数十meVであり従来の光電子分光では直接的に観測することが実験技術的に難易度が高いことに加え軌道対称性を決定することが困難であった。また、他の実験手法でも希土類4f準位分裂とその対称性を一意的に決定するのは困難なことが多く、現実の希土類強相関電子系に対しては4f基底状態の決定自身が重要な研究課題となっている。

本学位論文では、角度分解内殻光電子スペクトルの線二色性が外殻不完全殻の4f軌道対称性を反映するという新しく発見した原理に基づいて立方晶YbB_{12}, $CeAl_2$, CeB_6および正方晶$SmCu_2Si_2$の希土類3dおよび4d内殻角度分解光電子線二色性を測定した。得られた線二色性は局所的な結晶場を考慮したイオン模型の理論スペクトル計算によってよく再現され、実空間描像による軌道対称性決定における内殻光電子線二色性の有効性を示した。同時に、上記物質の4f結晶場基底状態における軌道対称性の直接的な決定に成功した。近藤半導体であるYbB_{12}の結晶場基底状態がΓ_8対称性を有する証拠が定量的に示されたほか、低温で反強磁性転移を起こす$CeAl_2$とCeB_6が異なる結晶場基底状態をとり、前者がΓ_7対称性、後者がΓ_8対称性であることを実証した。Ce化合物の内殻光電子スペクトルに生じる混成効果に由来するf^2終状態の影響はこれらの物質では深刻ではないことも明らかとなった。正方晶$SmCu_2Si_2$では実験配置を工夫することにより基底状態がΓ_7^1対称性を有することが明らかになった。これらの知見は、先行した内殻X線吸収では原理的に得る事ができず、内殻光電子線二色性の有用性を示している。一方で、4f電子状態を直接的に観測できる4f光電子スペクトルにおいては、実験により得られた線二色性はイオン模型における計算結果より小さい、あるいは矛盾した傾向が現れ、4f光電子スペクトル線二色性のイオン模型による解析が適切ではないことが示された。

以上のように、本学位論文ではこれまで困難だった立方晶および正方晶希土類化合物における局所的な軌道対称性の決定について重要な知見を与えており、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。