

論文審査の結果の要旨

氏名 室 裕 司

本研究は新しい重い電子系化合物探索の一環として、 $CeTX_3$ ($T=Rh, Ir$; $X=Si, Ge$) の良質試料を作製し、それらについて、帯磁率、比熱、電気抵抗、中性子散乱、光電子分光などの広範かつ系統的な実験的研究を行い、それらの電子物性および磁性を明らかにしたものである。

本論文は全体で5章から成り、まず第1章序論では本研究の背景として、近藤効果と重い電子系の関連性、研究対象である結晶中の Ce^{3+} イオンの持つ4f電子準位の特徴、特に軌道の縮退と結晶場の効果が如何に観測量（帯磁率、比熱、電気抵抗など）に現われるかについて説明してある。そして、近藤効果とRKKY相互作用の競合により実現する量子臨界点近傍で生起する異方的超伝導、メタ磁性と微小モーメント、非フェルミ液体状態等の特異な物性に注目し、いわゆる Doniach 相図上でのこのような臨界点に出来るだけ近い化合物を探索する意義について述べている。

そして、第2章で本研究の目的とその背景を述べている。これまで研究が行われてきた一連の化合物群、 $ThCr_2Si_2$ 型、 $CaBe_2Ge_2$ 型に加えて、本研究で取り上げる正方晶 $BaNiSn_3$ 型結晶構造を持つ Ce 化合物の研究の現状を総括してある。そして、その中で $CeTX_3$ ($T=Rh, Ir$; $X=Si, Ge$) 化合物の出来るだけ良質の試料を作製し、総合的な物性測定により、それらの物性を明らかにするとともに、Doniach 相図上での位置付け、すなわち量子臨界点に如何に近いかを評価し、重い電子系新物質探索の一つのマイルストーンを築くことを目的としている。

第3章の実験方法では、試料作製法と試料の評価（粉末X線回折、金属顕微鏡）、および帯磁率（測定温度領域 $30mK < T < 300K$ ）、比熱（ $0.5K < T < 300K$ ）、電気抵抗（ $0.5K < T < 300K$ ）の測定法を説明するとともに、各種測定に対する較正についても述べてある。さらに、4f 電子の状態を知る有力な手段である共鳴逆光電子分光実験についても記述している。

第4章では作製した各試料についてX線回折で格子定数を決定するとともに、目的の $BaNiSn_3$ 型結晶構造を有していることを確認した後、各試料についての各種物性測定結果を詳述し、それぞれについて考察を行っている。まず、 $CeRhSi_3$ については、粉末および

単結晶試料を用い、帯磁率と比熱の温度・磁場（最大 8T）依存性を測定し、電気抵抗の温度依存性の測定結果とともに、この物質が電子比熱係数 $\gamma = 110 \text{ mJ/mol.K}^2$ 、近藤温度 $T_K = 51\text{K}$ を持つとともに、 $T_N = 1.6\text{K}$ で微小磁気モーメントによる反強磁性転移することを見出し、この化合物は磁気転移が消失する量子臨界点に近いことを明らかにしている。そして、Ce 4f 電子の軌道縮退と結晶場分裂が近藤効果に無視できない影響を及ぼすことから、結晶場状態を決定することを試みている。縮重度の違う 2 準位系モデルを用いて、実験データを良く再現する各エネルギー準位と固有関数を求めている。さらにまた、これらのエネルギー準位を直接観測するため、中性子非弾性散乱実験を行い、予想と良く一致するスペクトルを得ている。次いで CeRhGe₃ についても同様の測定を行い、この物質が $\gamma = 40 \text{ mJ/mol.K}^2$ 、 $T_K \leq 1\text{K}$ を持つとともに、低温 $T_N = 14.6, 10.0, 0.55\text{K}$ で逐次磁気転移を行い、近藤効果が小さい系であることを明らかにしている。一方、CeIrSi₃ ; CeIrGe₃ については、それぞれ $\gamma = 120 \text{ mJ/mol.K}^2$ 、 $T_K = 47\text{K}$ 、 $T_N = 5.0\text{K}$; $\gamma = 80 \text{ mJ/mol.K}^2$ 、 $T_K = 4\text{K}$ 、 $T_N = 8.7, 4.7, 0.7\text{K}$ の実験データを得ており、前者は CeRhSi₃ 同様に重い電子系であるのに対し、後者は近藤効果がほとんど起こっていない RKKY 相互作用が支配的な系であるとしている。そして、これらの低温における物性測定値から見積もった近藤温度の妥当性を確かめるため、4f 電子状態についての直接的な情報を得ることが出来る逆光電子分光実験を行い、その見積もりを追認している。

このように 4 種類の化合物に対して得られたデータは、それらの結晶の単位胞体積 V により良く分類されること ($V \sim 175 \text{ \AA}^3$ の Si 化合物と、 $V \sim 195 \text{ \AA}^3$ の Ge 化合物)、すなわち化学量論的圧力効果により物性が支配されることを見い出している。さらにこれを定量的に議論するため、Si と Ge を系統的に置換した系、CeRhSi _{x} Ge _{$1-x$} と CeIrSi _{x} Ge _{$1-x$} を作製し、純粋系と同様の測定により各種物理量の単位胞体積依存性を求め、さらにこれらの中間点に位置する CePdSi₃ ($V = 181 \text{ \AA}^3$) のデータも考慮して、総合的な見地から物性を議論している。

第 5 章では、以上の実験結果および解析結果をまとめ、今後さらに発展すべき研究の方向を提案している。すなわち、CeRhSi₃ と CeIrSi₃ は近藤効果が優勢で重い電子系としてとらえることが出来る一方、CeRhGe₃ と CeIrGe₃ は RKKY 相互作用が優勢な磁性体である。これらの化合物を Doniach 相図上で模式的に分類すると、磁気相転移が消える寸前の状態にある CeRhSi₃ が最も量子臨界点近くに位置することになり、重い電子系の本質に迫る f 電子の遍歴性と局在性の二重性の研究を発展させる上で、格好の物質であると結論している。

以上、本論文は、論文提出者が作製した良質の CeTX_3 (T=Rh, Ir; X=Si, Ge) 試料を用いた系統的かつ広範な物性測定により、重い電子系化合物の物質探索に大きなインパクトを与えたオリジナルな研究として評価出来る。

なお、本論文の第3、4章の一部は石川征靖、武田直也、辛 埴、金井 要、渡辺正満、巖 斗和、各氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

従って、博士（理学）の学位を授与できると認める。