

論文審査の結果の要旨

氏名 大島 俊

本学位論文の研究対象は反強磁性体 CeRh_2Ge_2 と非磁性の重い電子系化合物 CeNi_2Ge_2 との混晶系 $\text{Ce}(\text{Rh}_{1-x}\text{Ni}_x)_2\text{Ge}_2$ であり、組成変化を通して反強磁性から重い電子状態への遷移を詳細に調べるのが研究目的である。

本論文は6章から構成されている。第1章は序章で、Ce系を中心とする近藤効果や重い電子系の形成、量子相転移相図、結晶場効果、非フェルミ液体的振舞い等についての物理的背景、および ThCr_2Si_2 型構造を有する Ce 化合物における磁気相図の特徴について簡潔に述べられている。第2章では試料作成法を中心とする実験方法が述べられている。第3章では本論文の対象物質である CeRh_2Ge_2 および CeNi_2Ge_2 について、各々の物性の特徴がまとめられている。

第4章が実験結果についての記述である。本研究では $0 \leq x \leq 1$ の計19個にも及ぶ試料を作成しその物性評価を行っている。まず各試料が単一相であるかどうかは重要な点であるが、論文提出者は熱処理時間の工夫等により全ての試料についてX線回折から判断する限り単一相であることを確認している。この際、通常は格子定数の組成変化が $x=0$ から $x=1$ までほぼ直線的に変化 (Vegard 則) するのに対して、意外にも $x=0.1$ 、 0.6 において正方晶 a, c 軸がともに不連続を示し結晶体積が $0.1 \leq x \leq 0.6$ の間で Vegard 則の予測と比べ顕著に減少する異常を見出している。一方磁化率、比熱および電気抵抗の測定結果より申請者は $\text{Ce}(\text{Rh}_{1-x}\text{Ni}_x)_2\text{Ge}_2$ の磁気相図が4つの異なる領域に分けられることを示した。通常、 cf 混成強度を変化させた場合の反強磁性から非磁性の重い電子状態への遷移では量子臨界点が1つ存在するのが普通であるが、本研究から $\text{Ce}(\text{Rh}_{1-x}\text{Ni}_x)_2\text{Ge}_2$ 系では x の増加とともに基底状態が反強磁性→非磁性重い電子状態→反強磁性→非磁性重い電子状態のように複雑に変化することが明らかにされた。このような組成変化を示す混晶系はかなり例外的であり、その原因はこれまであまり理解されていない。論文提出者はさらに中間領域で出現する非磁性重い電子状態の組成範囲が格子定数の異常が見られる領域 ($0.1 \leq x \leq 0.6$) と一致している

点を見出した。非磁性基底状態への転移と格子の異常との関係を明らかにしたのは本研究が初めてであり、興味深い実験結果であると言える。

これらの実験結果に対する考察が第5章である。反強磁性から非磁性重い電子状態への遷移について、論文提出者は Doniach の相図としてよく知られている近藤効果と RKKY 相互作用の競合の図式に基づいて説明を試みている。CeRh₂Ge₂ の Rh に対する Ni 置換は基本的には結晶体積を減少させる効果 (chemical pressure) であると考え、Ni 濃度増加 (体積減少) に伴う cf 混成強度の増大による近藤温度 T_K の上昇が反強磁性を抑制すると推論している。このことを検証するために論文提出者は磁化率・比熱の測定結果をもとに T_K の組成依存性を評価し、非磁性状態において T_K が実際に上昇していることを確認した。混晶系における T_K の推定はランダムネスに伴う分布の問題があり必ずしも容易ではないが、評価の結果は概ね妥当であると思われる。ところで Doniach のモデルでは反強磁性基底状態から非磁性状態への転移の次数は通常2次であり、本研究の $x=0.1$ で見られた1次転移を説明しない。そこで論文提出者は1次転移の機構として Kondo volume collapse の可能性を考察している。この現象は金属 Ce などで見られ、加圧によって低い T_K を持つ状態から高い T_K の状態へと1次転移を示すもので、近藤1重項凝縮エネルギー (T_K) の強い体積依存性と格子の弾性エネルギーとのバランスによって説明される。論文提出者は組成変化による chemical pressure に対してこのモデルを初めて適用し、その結果は定性的には1次転移による反強磁性の消失を説明することに成功しているように思われる。ただし Ni 置換効果を chemical pressure だけと考えると $x=0.6$ 付近で再び反強磁性が出現することを説明できない。この点について論文提出者は Ni 置換がもたらす伝導電子数の変化によりフェルミ準位状態密度が変化し、cf 混成強度の非単調な変化を生じる可能性を指摘している。同様な状態密度の効果は Ce(Rh_{1-x}Ru_x)₂Si₂ 系でも考察されており、妥当な解釈と思われる。これらの考察は定量的には T_K の変化を大きく評価しすぎる事、有限温度の効果を考慮していないこと、さらに何らかの格子系の異常が先に起こっていて基底状態が変化している可能性があるなどやや不完全な点もあるが、これらの点は実験的研究としての本論文の範囲を超えるものであり今後の理論的課題と言うべきであろう。6章では以上の結果が要約されている。

本研究は非常に多くの測定結果に基づいて混晶系 $\text{Ce}(\text{Rh}_{1-x}\text{Ni}_x)_2\text{Ge}_2$ の磁気相図を初めて明らかにし、基底状態が格子の異常と関連して特異な組成依存性を示すことを見出したこと、さらにその機構として Kondo volume collapse のモデルを組成変化に対して初めて適用するなど興味深い可能性を提案しており、学位論文として評価に値するものであることが審査員全員によって認められた。

なお、本論文の4章における単結晶を用いた中性子回折の実験は試料提供者など数名との共同研究であるが、論文提出者が主体となって計画を立案し分析したものであり、論文提出者の寄与が十分であったものと認められる。

従って、博士（理学）の学位を授与できると認める。