

論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博 士 (理 学)	氏名	川端 丈
学位授与の要件	学位規則第4条第①・2項該当		
論 文 題 目			
<p style="text-align: center;">Unusual antiferromagnetic order and <i>c-f</i> hybridization gap in the Kondo semiconductor CeOs₂Al₁₀ (近藤半導体 CeOs₂Al₁₀ の特異な反強磁性秩序と <i>c-f</i> 混成ギャップ)</p>			
論文審査担当者			
主 査	教 授	高 畠 敏 郎	
審査委員	教 授	鈴 木 孝 至	
審査委員	教 授	嶋 原 浩	
審査委員	准教授	梅 尾 和 則	
〔論文審査の要旨〕			
<p>希土類の Ce や Yb を含む金属間化合物では、その4f電子状態と伝導バンドが混成した重い電子の金属的基底状態をもつものがほとんどであるが、半導体的基底状態をもつものも、ごく少数ながら知られている。近藤半導体とよばれるこれらの化合物は、強い <i>c-f</i> 混成によって磁気モーメントが縮小されるため、どれも磁気秩序しなかった。ところが、2009 年に半導体的でありながら、Ce 化合物としては例外的に高い温度(約 28 K)で反強磁性転移する Ce T₂Al₁₀ (T = Ru, Os)が見出され、近藤半導体に関する従来の理解は再検討を迫られた。本論文の著者は、混成ギャップと特異な反強磁性秩序の関係を明らかにすることを目的として、二つの化合物のうち、秩序モーメント μ_{AF} がより小さい(0.3μ_B)にもかかわらず、より高い転移温度 T_N (28.5 K)をもつ CeOs₂Al₁₀ 的を絞り、この物質に異なる元素置換を施した三つの系に対して、電気伝導と磁性の置換効果を調べるとともに、破断接合トンネル分光実験によってギャップ構造の変化を観測した。</p> <p>本論文は5章から成る。第1章では、4f電子系の物理について概説し、従来型の Ce 近藤半導体の磁性と伝導、その置換効果、及び理論モデルを紹介したのち、新しい型の近藤半導体 Ce T₂Al₁₀ (T = Fe, Ru, Os)の結晶構造、磁性、伝導、比熱、及びそれらに対する圧力と元素置換の効果に関する先行研究を概説している。それらを踏まえて、本研究の目的を述べている。</p> <p>第2章では、CeOs₂Al₁₀ に対して異なる元素置換を施した三つの系、すなわち、Ce サイトに La を置換して 4f 正孔をドーブした系、及び Os サイトに Re と Ir を置換してそれぞれ 5d正孔と 5d 電子をドーブした系について、自己フラックス法による単結晶作製と、そのX線回折及び電子線マイクロ元素分析の手法と分析結果をまとめている。</p> <p>第3章では、前章で述べた単結晶試料を用いた磁化、比熱、電気抵抗、熱電能、及びトンネル分光の実験方法を詳細に解説している。</p> <p>第4章では、CeOs₂Al₁₀ の置換系の物性測定結果を列挙し、中性子回折実験の結果を引用した解析から、著者は次のような結果を得ている。まず、全ての置換系での格子定数の変化は 0.3%以下であることから、<i>c-f</i> 混成強度の変化は主に電子・正孔ドーブによると判断</p>			

した。著者は、磁化率の置換効果を詳細に調べることによって、 $Ce_{1-z}La_zOs_2Al_{10}$ では 4f 電子状態は変化していないが、 $Ce(Os_{1-y}Re_y)_2Al_{10}$ では 5d 正孔ドーピングによって、4f 電子状態がより普遍的になることを見出した。一方、 $Ce(Os_{1-x}Ir_x)_2Al_{10}$ では、5d 電子をドーピングすると 4f 電子の局在化が進むことで μ_{AF} は大きくなるが、 T_N が著しく低下するという結果は、通常の局在モーメント系の T_N が μ_{AF} の 2 乗に比例するという関係とは全く異なることを、指摘している。

上記のように、 $CeOs_2Al_{10}$ に対するドーピングに伴う c-f 混成の変化の仕方は三者三様であるが、次のような共通点を著者は見出した。それは、ドーピング量が増加するとともに、電気抵抗の熱活性エネルギーが減少すると、それに逆相関して電子比熱係数 γ が増加することである。この逆相関から、混成ギャップが潰れるとフェルミ準位における準粒子状態密度が増大することを明らかにした。また、ドーピング量が増えると、比熱の T_N における跳びが減少すると同時に、 T_N の値が低下することも見出した。この T_N の低下がギャップの抑制とよく相関しているという事実から、著者は $CeOs_2Al_{10}$ の特異な反強磁性秩序には混成ギャップが必要であると結論した。

次に、破断接合法を用いて CeT_2Al_{10} ($T = Fe, Ru, Os$) の微分コンダクタンス dI/dV スペクトルを初めて観測し、 $T = Fe, Os$ の系では温度低下とともに再現良く 3 段のギャップ V_1, V_{AF}, V_2 が開くことを確認した。 $T = Os$ 系に対する上記の 3 種類のドーピングは、トンネルスペクトルを様々に変化させるが、どの場合においても、ドーピング量の増加とともにギャップ V_1 の減少と相関して T_N と V_{AF} が減少し、これと逆相関してゼロバイアスでの dI/dV の値 (ZBC) が増加することを、著者は見出した。その際、ZBC の増加が 5d 正孔よりも 5d 電子のドーピングによる方が顕著であることは、 γ の増加の仕方と相似であると指摘した。これらの結果から、ドーピングにより生成されたギャップ内状態が、反強磁性転移と三つのギャップを消失させると、著者は結論した。さらに重要な発見は、 V_1 と V_{AF} の共存する置換量領域では、降温とともに ZBC が T_N よりも高い温度で減少し始めることである。つまり、c-f 混成ギャップが存在する状態においてのみ反強磁性転移は起こり、しかも、その転移温度よりも高温からフェルミ準位での状態密度が減少していることを見出した。

第 5 章では、第 4 章までの結果をまとめている。

著者は、以上の研究において、近藤半導体 $CeOs_2Al_{10}$ が高い温度で反強磁性転移する機構を探るために、3 種類の置換系試料を作製し、その磁性、伝導、比熱のバルク測定に加え、トンネル分光の実験も行った。これらの結果の解析から、c-f 混成ギャップが形成された状態から特異な反強磁性秩序が発現することを明らかにした。その際、フェルミ準位での準粒子状態密度が、転移温度より約 8 K 高い温度から減少していることを見出した。これらの内容は固体物理学において学術的価値が高く、博士論文としてふさわしい。よって、本論文の著者は博士 (理学) の学位を受けるのに十分な能力と実績を有するものと認める。