

論文の要旨

氏名 林 慶介

論文題目 Effects of Si substitution and uniaxial pressure on the unusual antiferromagnetic order in the Kondo semiconductors CeT_2Al_{10} ($T = Ru$ and Os)
(近藤半導体 CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os$)の特異な反強磁性秩序に対する Si 置換と一軸圧力の効果)

セリウム(Ce)金属間化合物では、局在的な $4f$ 電子と伝導電子の近藤効果によってフェルミ準位近傍に準粒子バンドが形成される。伝導電子と $4f$ 電子の c - f 混成が強い系の中で、準粒子バンドに鋭いギャップを形成するものは、近藤半導体と呼ばれている。具体的には、 $CeNiSn$ 、 $CeRh_4Sn_6$ 、および $CeFe_2Al_{10}$ などが知られていたが、強い近藤効果によって局在モーメントが消失しているため、いずれも磁気転移は起こさなかった。

直方晶 $YbFe_2Al_{10}$ 型の構造をとる CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os$)は、電気抵抗が半導体的な温度変化を示す近藤半導体でありながら反強磁性転移を示す。その T_N の値 27 K ($T = Ru$) と 28.5 K ($T = Os$)は、同型化合物の GdT_2Al_{10} の値よりも高く、しかも秩序モーメント μ_{AFM} が常磁性状態での磁化困難軸である c 軸方向を向くことは謎であった。様々な先行研究から、異方的 c - f 混成が磁気秩序の発現に重要であると提案された。一方、 T_N より高い温度で b 軸方向に発達する電荷密度波が磁気秩序を誘起するというモデルも提案された。

前者の提案は $CeRu_2Al_{10}$ の置換系の研究によって導かれた。例えば、 Ru より $4d$ 電子が 1 個多い Rh で置換した $Ce(Ru_{1-x}Rh_x)_2Al_{10}$ の系では、 $4f$ 電子状態がより局在化し、 T_N と熱活性ギャップの大きさが減少した。また、 μ_{AFM} の向きが c 軸から $x = 0.1$ で a 軸方向に再配列することが確認された。一方で、 Al サイトを Si で置換した $CeRu_2Al_{9.9}Si_{0.1}$ の系では電気抵抗の熱活性ギャップは抑制され、磁化率 $\chi(T)$ の値は Rh (置換)の $2x = 0.1$ の値と広い温度範囲で定量的に一致した。この結果から、 $CeRu_2Al_{10}$ の c - f 混成における $4d$ 電子と $3p$ 電子の役割が同等であることが示唆された。しかし特異な反強磁性秩序に対する c - f 混成の役割は十分解明されなかった。

$T = Ru$ と $T = Os$ の両方に対して静水圧(P_h)を印加した研究もなされた。加圧によって c - f 混成強度の目安である $\chi(T)$ が極大となる温度 $T_{\chi m}$ は上昇するとともに、それぞれの T_N は上昇し、 32 K ($T = Ru$)と 29 K ($T = Os$)で極大となった。しかし、等方的に加

圧したため、異方的な c - f 混成と T_N の関係については明確な結論が導かれていなかった。

本研究では、近藤半導体 CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os$) における特異な磁気秩序の機構を調べるため、二種類の実験を行った。一つ目は、Al サイトの $3p$ 電子ドーピング効果を詳しく調べるために $CeRu_2Al_{10-y}Si_y$ の多結晶を作製し、磁性、伝導及び比熱を測定した。二つ目は、異方的 c - f 混成と T_N の関係を明らかにするために、 $T = Fe, Ru, Os$ の単結晶を作製し、それらの三つの主軸方向に一軸圧を印加して、歪み、磁化、比熱を測定した。

(1) $CeRu_2Al_{10-y}Si_y$ の研究のために、 $y = 0.5$ までの多結晶試料を作製した。元素組成分析から Si の固溶限は 0.4 であることが判った。 $0 \leq y \leq 0.4$ における格子定数の変化は 0.2 % 以下であるため、 c - f 混成に対する Si 置換の影響は、体積変化によるものよりも $3p$ 電子ドーピングの方が大きいと予想された。 $CeRu_2Al_{10}$ の T_N 以上での電気抵抗の熱活性型の振る舞いは、置換とともに強く抑制され、 $y = 0.3$ で消失した。また、 $\chi(T)$ の常磁性キュリー温度の絶対値 $|\theta_p|$ と T_N は y の増加によって単調に低下することから、 c - f 混成の抑制と T_N の低下は相関していることが示唆された。さらに、一分子式当たりの電子ドーピング量である $2x$ と y に対する T_N の変化は、Rh 置換系と Si 置換系でほぼ一致した。このことは、 $CeRu_2Al_{10}$ の特異な反強磁性秩序に対する $4d$ 電子と $3p$ 電子の役割が同等であることを示している。そこで、 $CeRu_2Al_{10}$ では $4d$ - $3p$ 混成バンドが形成され、その混成バンドと Ce $4f$ 電子との異方的 c - f 混成が高い T_N を引き起こしていることを提案した。

(2) CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os$) の特異な磁気秩序に対する異方的 c - f 混成と b 軸方向に発達する電荷密度波の役割を調べるために、 $T = Fe, Ru, Os$ の単結晶を育成し、各主軸方向に加圧して、歪み、磁化、比熱を測定した。三つの系において、 $P//a$ と $P//c$ では $T_{\chi m}$ は上昇した。しかし、 $T = Ru$ と $T = Os$ において、 $P//c$ では T_N はほとんど変化しないのに対して、 $P//a$ では $T = Ru$ の T_N は上昇し、 $T = Os$ の T_N は低下した。一方、 $P//b$ では最大圧 0.75 GPa まで $T_{\chi m}$ は変化しないが、 $T = Ru$ と $T = Os$ の T_N は単調に上昇した。

さらに、 $P//a$ と $P//c$ では二つの化合物の T_N は $T_{\chi m}$ の関数として一つの山を示した。このことは、 T_N が c - f 混成強度に依存していることを示唆している。しかし、 $P//a$ と $P//c$ での $T_N(T_{\chi m})$ 曲線よりも $P//b$ と静水圧 P_h での T_N が高い値をとることは、 c - f 混成以外に T_N を上昇させる機構があることを示唆する。そこで、両系の $P//b$ と P_h での T_N の全ての値を b 軸長に対してプロットすると一直線に乗った。この結果は、 CeT_2Al_{10} の b 軸長の収縮が T_N を上昇させていることを意味する。

以上のように、本研究では近藤半導体 CeT_2Al_{10} ($T = Ru, Os$) が高い温度で反強磁性転

移する機構を探るため、 $\text{CeRu}_2\text{Al}_{10-y}\text{Si}_y$ 多結晶の磁性、伝導、比熱を調べるとともに、一軸圧下で $\text{CeT}_2\text{Al}_{10}$ 単結晶の歪み、磁化、比熱を測定した。それらの解析の結果から、特異な反強磁性秩序に対して、 $4d-3p$ 電子の混成バンドが重要であることが判った。さらに b 軸長を縮めるほど T_N が上昇するという事実は b 軸方向の電子状態の不安定性が T_N を高めているというモデルを支持する。