論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称	博士(理学)	丘夕	杨 崇立
学位授与の要件	学位規則第4条第①・2項該当	八石	杨 宗立

論 文 題 目

Evolution of magnetic order in the frustrated quasikagome Kondo lattice $CeRh_{1-x}Pd_xSn$ (フラストレートした擬カゴメ近藤格子 $CeRh_{1-x}Pd_xSn$ における磁気秩序の発達)

論文審查担当者

 主
 查
 准
 報
 程
 和
 則

 審查委員
 教
 授
 给
 木
 孝
 至

 審查委員
 教
 授
 鬼
 丸
 孝
 博

審査委員 特任教授 高 畠 敏 郎

〔論文審査の要旨〕

磁性体では、温度の低下に伴って磁気モーメントの熱揺らぎが抑えられると、磁気相互作用が熱揺らぎよりも優勢になるために、磁気モーメントが周期的に整列する。一方、絶対零度における磁気秩序の生成消滅は、量子揺らぎが原因となるので量子相転移と呼ばれるが、その本質は未解明である。希土類の Ce や Yb を含む 4f 電子系金属間化合物における量子相転移の研究は、磁気モーメントを見かけ上消失させる近藤効果と、磁気秩序を安定化する RKKY 相互作用の競合によって説明されてきた。一方で、幾何学的にフラストレートした結晶構造や低次元構造をもつ絶縁体の量子スピン系の特異な磁性の研究も進んできた。しかし、磁気相互作用が長距離に及ぶ希土類金属間化合物において、磁気フラストレーションが量子相転移近傍の臨界現象に及ぼす影響については、統一的に理解されていない。最近、幾何学的にフラストレートした結晶構造をもつ希土類近藤化合物の量子臨界現象の研究が注目されている。その例として、セリウム原子が擬カゴメ格子を組む化合物の CePdAl や CeRhSn がある。CePdAl は、2.7 K で磁気秩序を示すが、その磁気構造は Ce の磁気モーメントの 1/3 が秩序を示さない特異な構造である。一方、CeRhSn は近藤温度が 200 K と高いために低温でも磁気秩序しないが、種々の物理量が絶対零度に向けて発散することが見出された。その結果、この系は磁気フラストレーションに起因して量子臨界点近傍に位置すると提案された。

そこで、本論文の著者は、CeRhSn の量子臨界現象における磁気フラストレーションの役割を明らかにするために、Rh サイトを Pd で置換した系を作製し、低温での磁性の変化を調べた。その過程で不純物として見出された $CePd_3Sn_2$ という新化合物について、結晶構造を決定し、低温物性を調べた。

本論文は5章から成る。第1章では、4f電子系化合物の磁性について概説し、近藤効果と RKKY 相互作用の競合に加えて、幾何学的フラストレーションが誘起する量子臨界現象について 紹介したのち、擬カゴメ格子近藤化合物の CeRhSn および Ce が一次元鎖を形成する化合物についての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。 第2章では、CeRhSn の Rh サイトを Pd で置換した CeRh_{1-x} Pd_xSn の多結晶と単結晶試料、および CePd₃Sn₂の多結晶試料の作製方法を述べている。特に、チョコラルスキー法による単結晶の育成方法を詳述している。続いて、そのX線回折、金属組織観測、電子線ミクロ元素分析の手法と分析結果をまとめている。CePd₃Sn₂については、結晶構造が直方晶の空間群 Pnma に属することを X 線回折法によって決定し、Ce 原子がb軸方向に一次元的に配列していることを述べている。

第3章では、前述の試料を用いた磁化率、電気抵抗、比熱の測定方法を詳細に記載している。特に、断熱消磁冷凍機を用いた 0.08 K までの比熱測定について詳述している。

第4章の前半では,まず $CeRh_{1-x}Pd_xSn$ の磁化率の温度変化と 1.8 K における磁化曲線の解析から,x の増大とともに近藤温度が急激に低下するとともに,Ce 当たりの磁気モーメントが伸び,x が最大の 0.75 では約 3 K で反強磁性秩序が起こることを見出した。この磁気秩序の発現状況を詳しく調べるために,0.08 K までの比熱と交流磁化率の x 依存性を測定している。x=0.1 の比熱/温度と交流磁化率の温度変化は,それぞれ 0.1 K と 0.15 K に山を示すので,反強磁性的秩序が現れたと解釈した。この転移温度はx の増大とともに急上昇し,x=0.75 で 2.5 K に至る。この磁気秩序の発達は,元素置換による局所的歪による磁気フラストレーションの抑制と,4d電子ドープによる近藤温度の低下の両方によると考察した。

さらに、x=0の磁気フラストレーションの効果を調べるために交流磁化率の磁場変化を測定している。交流磁化率が磁化困難軸方向である $B//a=3.6\,\mathrm{T}$ でピークを示し、その磁場の値が先に報告されている比熱/温度がピークを示す値と一致することを見出した。これらのピークは、カゴメ格子における磁気フラストレーションの緩和によって磁気構造が変化したために発現したと結論した。

第4章の後半では、 $CePd_3Sn_2$ の低温での物性測定から、この新化合物中の Ce の4f電子は良く局在しており、 $T_N=0.6$ K で反強磁性秩序を起こすが、近藤効果は顕著でないことを指摘している。磁気的比熱/温度が T_N 以上で示す大きな裾は、一次元的に配列した Ce の短距離磁気秩序によると結論した。

第5章では、第4章までの結果をまとめている。

著者は、以上の研究により、擬カゴメ近藤格子系 CeRhSn が基底状態において磁化困難軸方向である c 面内に磁場を印加すると、メタ磁性クロスオーバーを示すことを確認した。Rh を Pd で 10%置換すると反強磁性秩序が発現し、置換量の増大とともに転移温度が上昇することを見出した。この磁気秩序の発達は、擬カゴメ格子の乱れによる磁気フラストレーションの抑制と、4d電子ドープによる近藤温度の低下の両方が原因であると結論した。さらに、新化合物 CePd。3Sn。を発見し、比熱の解析から反強磁性転移温度以上で一次元的 Ce 鎖の磁気的短距離秩序が存在することを指摘した。

これらの内容は固体物理学の磁性の分野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。

備考 審査の要旨は、1,500 字程度とする。

試験の結果の要旨

博士の専攻分野の名称	博士(理学)	丘夕	杨 崇立
学位授与の要件	学位規則第4条第①・2項該当	八石	杨 宗立

論 文 題 目

Evolution of magnetic order in the frustrated quasikagome Kondo lattice CeRh_{1-x}Pd_xSn (フラストレートした擬カゴメ近藤格子 CeRh_{1-x}Pd_xSn における磁気秩序の発達)

試験担当者

主 查	准教授	梅尾和則	印
審査委員	教 授	鈴 木 孝 至	印
審查委員	教 授	鬼丸孝博	印
審査委員	特任教授	高畠敏郎	印

[試験の結果の要旨]

判定 合格

学位請求論文の内容及び関連する以下の固体物理学の基礎的項目に関して口述試験を 行った。

- 1. 磁性絶縁体における磁気フラストレーションの指標となる物理量。
- 2. CeRhSn の同型希土類化合物 RRhSn (R=希土類)において、磁気フラストレーションに起因する物性の出現の有無。
- 3. 磁気フラストレーションがない反強磁性体の磁気秩序状態での磁化曲線。
- 4. 近藤化合物の磁気転移温度の変化を, 近藤効果と RKKY 相互作用の競合によって記述した ドニアック相図。

申請者は、いずれの質問に対しても、これまでの研究や学習の成果を基に、正しく解答することができた。以上により、申請者は博士(理学)の学位を授与するに値する学識を有することを、審査員全員の一致によって認めた。

備考 要旨は、400字程度とし、試験の方法も記載すること。