

氏名・(本籍)	たけ 武	だ 田	なお 直	や 也
学位の種類	博士(理学)			
学位記番号	理博第1246号			
学位授与年月日	平成4年3月27日			
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当			
研究科専攻	東北大学大学院理学研究科 (博士課程)物理学第二専攻			
学位論文題目	重い電子系のフェルミ面の研究			
論文審査委員	(主査)			
	教	授	立	木
	昌	教	授	小松原
		武	美	孝
		助	教	授
		鈴木		

## 論 文 目 次

### 第1章 序論

#### §1-1 重い電子系

#### §1-2 dHvA 効果

##### §1-2-1 dHvA 効果の原理

##### §1-2-2 測定方法

##### §1-2-3 解析方法

#### §1-3 重い電子系の dHvA 効果

### 第2章 希土類モノプニクタイト及び $U_3P_4$ の物性

#### §2-1 希土類モノプニクタイト

##### §2-1-1 La, Lu モノプニクタイトのバンド構造

##### §2-1-2 p-f 混成

##### §2-1-3 YbAs の物性

##### §2-1-4 CeAs の物性

§2-2	$U_3P_4$ の物性
§2-3	本研究の目的
第3章	試料及び実験装置
§3-1	試料の育成
§3-2	測定装置
§3-2-1	測定装置の配置
§3-2-2	希釈冷凍機
§3-2-3	$^4He$ クライオスタット
§3-3	測定例
第4章	実験結果
§4-1	YbAs
§4-2	CeAs
§4-3	$U_3P_4$
第5章	考察
§5-1	YbAs
§5-2	CeAs
§5-3	$U_3P_4$
第6章	結論
	参考文献
	謝辞

# 論文内容要旨

## 第1章 序論

4f 電子系の Ce と Yb, あるいは 5f 電子系の U を含む金属, 半金属化合物で, 伝導電子の有効質量が非常に大きくなる場合があり, 重い電子系と呼ばれている。重い電子状態は, 伝導電子と f 電子との混成効果によって形成されると考えられている。混成効果は個々のフェルミ面上の電子との相互作用により異なる可能性がある。従って, 混成効果の詳細な研究には個々のフェルミ面について研究する必要がある。dHvA 効果はフェルミ面を研究する最も一般的な方法であり, 個々のフェルミ面の極値断面積, 有効質量, ディングル温度等が求められる利点がある。

重い電子系の金属化合物については, dHvA 効果によるフェルミ面の研究が数多く行われているが, 半金属化合物についての研究は少ない。筆者は重い電子系の半金属化合物 YbAs, CeAs,  $U_3P_4$  について dHvA 効果によるフェルミ面の研究を行った。

## 第2章 希土類モノプニクタイト及び $U_3P_4$ の物性

YbAs はネール点が 0.5K の反強磁性体である。反強磁性状態の磁気モーメントは  $0.6\mu_B$  で, 結晶場の基底状態  $\Gamma_6$  から期待される  $1.3\mu_B$  の約半分である。ネール点でのエントロピーは,  $\Gamma_6$  二重項から期待される  $R\ln 2$  の 10% しかなく, 近藤効果によってエントロピーが減少したためと考えられる。C/T は  $200\text{mJ/mole}\cdot\text{K}^2$  と見積られ, 重い電子状態が形成していると予想される。YbAs はネール点が低いので, 常磁性, 反強磁性の両状態で dHvA 効果が観測されると期待される。ネール点上下での dHvA 効果の研究はこれまで殆ど行われていないため, dHvA 効果に対する基礎的な問題を提起すると考えられる。

CeAs はネール点が 7.7K の反強磁性体である。反強磁性状態の磁気モーメントは結晶場の基底状態  $\Gamma_7$  から期待される値とほぼ一致し, ネール点におけるエントロピーは  $\Gamma_7$  二重項から期待される  $R\ln 2$  に達している。これらの結果には重い電子系の特徴は現れていないが, 電気抵抗には  $-1\text{lnT}$  の温度依存性が観測され, 近藤効果が起こっていると考えられる。0K に外押した C/T は零磁場で  $30\text{mJ/mole}\cdot\text{K}^2$  で, 磁場とともに減少する結果が報告されている。

$U_3P_4$  は  $T_c=140\text{K}$  の強磁性体で, C/T は約  $30\text{mJ/moleU}\cdot\text{K}^2$  である。dHvA 効果による研究は Henkie 等によって初めて行われ, 殆ど角度変化のない 2 つのフェルミ面が観測されている。この結果に対し, 大きな球形の電子面 1 個と小さな球形のホール面 8 個からなる, 半金属のフェルミ面のモデルが提案されているが, dHvA 信号が狭い角度範囲だけで観測され, また磁気抵抗の研究からは開いた軌道の存在が予想されており, モデルとは矛盾する結果である。従って,  $U_3P_4$  のフェルミ面は殆ど解明されていないと考えられる。

重い電子状態の dHvA 効果は極低温でのみ観測されるので,  $^3\text{He}$  クライオスタットや希釈冷凍機を用いる必要がある。希釈冷凍機を用いた極低温領域の dHvA 効果の研究は, 我が国では未開発の分野である。本研究は, 極低温領域で dHvA 効果を観測する測定技術を開発し, 重い

電子系の半金属化合物 YbAs と CeAs, 及び  $U_3P_4$  の dHvA 効果を観測し, フェルミ面を研究する目的で行われた。

### 第 3 章 試料及び実験装置

測定に用いられた試料は, すべて磁気物理研究室・鈴木孝助教授によって提供された。

dHvA 効果は,  $^3\text{He}$  クライオスタットと希釈冷凍機を用い, 磁場変調法で測定された。フェルミ面の形を決定するために, 試料回転装置を開発する必要がある。 $^3\text{He}$  クライオスタットやトップ・ローディング方式の希釈冷凍機では, 回転装置の一部を室温まで延長し, 室温で回転操作を行うことが可能であるが, 既存の希釈冷凍機では不可能である。筆者は希釈冷凍機内にステッピング・モーターを設置し, スパイラル・ギアを用いた試料回転装置を開発し, 狭い試料空間で試料回転を行うことを可能にした。更に, dHvA 信号の検出感度を上げるために, ボビンを使用しない検出コイルを開発した。

### 第 4 章 実験結果

YbAs では 3 個の回転楕円体電子面 (長径  $0.32 \text{ \AA}^{-1}$ , 短径  $0.096 \text{ \AA}^{-1}$ ) と 1 個の球形ホール面 (半径  $0.12 \text{ \AA}^{-1}$ ) が観測された。dHvA 信号は反強磁性状態と常磁性状態で観測され, フェルミ面の形と大きさはネール点の上下で変化しない結果が得られた。有効質量は電子面について求められた。常磁性状態では信号強度の温度変化から通常の方法で有効質量が求められ,  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  方向でそれぞれ  $0.18$ ,  $0.19 m_0$  である。反強磁性状態では, 信号強度の温度変化が測定精度より小さく, 通常の方法では有効質量が求められない。著者は新しい解析方法を考案し, 有効質量が常磁性状態と殆ど変わらない結果が得られた。ホール面の信号強度は小さいが,  $2\text{K}$  以上でも観測され, 温度変化も小さいので軽い状態と考えられる。フェルミ面の形と大きさはネール点の上下で変化しないが, dHvA 効果の信号強度はネール点で不連続な変化をする異常現象が観測された。この異常現象は, 有効質量とディンクル温度がネール点の上下で僅かに変化した結果として説明された。

CeAs では, 3 個の回転楕円体電子面 (長径  $0.20 \text{ \AA}^{-1}$ , 短径  $0.045 \text{ \AA}^{-1}$ ) と 1 個の球形ホール面 (半径  $0.068 \text{ \AA}^{-1}$ ) が観測された。 $5.6\text{T}$  の磁場における有効質量は,  $\langle 100 \rangle$  方向で, 電子面が  $0.35 m_0$ , ホール面が  $0.47 m_0$  と求められた。ホール面の有効質量は磁場依存性が観測され,  $0.55 m_0$  ( $4.5\text{T}$ ) から  $0.4 m_0$  ( $7\text{T}$ ) に減少する結果が得られた。

$U_3P_4$  では 4 個のフェルミ面が観測された。この内, 2 個は Henkie 等によって観測されたフェルミ面と同様であるが, より広い角度範囲で観測され, 殆ど角度変化が無く, 球形のフェルミ面である。他の 2 個は本研究によって初めて観測されたフェルミ面で, 観測されない角度領域が存在する。3 個のフェルミ面について, 有効質量が  $7.4$ ,  $6.6$ ,  $12.5 m_0$  と求められ, いずれも重い電子状態である。

## 第5章 考察

YbAsのフェルミ面の大きさから求められたキャリア数は、電子数、ホール数がそれぞれ0.014, 0.0027個/1分子である。YbAsは半金属で、電子数とホール数が等しいと考えられるので、観測されていない大きなホール面が存在する必要がある。観測されていないホール面の有効質量を電子比熱係数から見積ると、 $10^3 m_0$ 程度の大きさになり、現状の到達温度と磁場では観測不可能である。電子面の有効質量はLaSbと殆ど同じで、混成効果は小さいと考えられる。ネール点の上下で有効質量やディングル温度が変化する現象は、重い電子状態を形成しないSmSbでも観測され、重い電子系に特有の現象ではないと考えられる。

CeAsのフェルミ面の大きさから求められたキャリア数は、電子数、ホール数がそれぞれ0.0024, 0.00058個/1分子である。CeAsが半金属で、電子数とホール数が等しいと考えられるので、観測されていないホール面が存在する必要がある。電子面の有効質量はLaSbの2倍の大きさである。CeBi, CeSb, CeAsと格子定数が小さくなるにつれて有効質量が大きくなるので、混成効果が大きくなった結果と考えられる。観測されたホール面の有効質量の磁場依存性は、電子比熱係数の磁場依存性に対応する。観測されていないホール面の有効質量は、電子比熱係数から5Tで $60 m_0$ 程度と見積られ、非常に重い電子状態になっていると考えられる。

$U_3P_4$ で観測されたフェルミ面はHenkie等のモデルでは説明できない。筆者は参照物質の $Th_3P_4$ のバンド計算をもとに考察し、球形の2個のフェルミ面は電子面、他の2つは磁気抵抗の研究から予想される開いた軌道をもつホール面と解釈された。有効質量はすべて大きく、すべてのフェルミ面で混成効果が大きい結果と考えられる。

## 第6章 結論

試料回転装置と感度の高い検出コイルを開発し、我が国では初めて希釈冷凍機の極低温領域でdHvA効果を観測し、フェルミ面の形を決定することが可能になった。筆者は半金属化合物YbAs, CeAs,  $U_3P_4$ のフェルミ面をdHvA効果によって研究した。YbAsとCeAsでは、特に混成効果の大きいホール面が存在し、重い電子状態を形成している結果を得、 $U_3P_4$ ではすべてのフェルミ面で混成効果が大きく、重い電子状態を形成する結果を得、混成効果に対し新しい知見を得ることができた。

## 論文審査の結果の要旨

希土類やアクチナイド化合物に現われる f 電子と伝導電子の混成効果の研究は、重い電子状態の発生機構を解明する中心課題である。特に、半金属化合物の中には伝導電子の数が非常に少ないにも拘らず、金属的な振る舞いを示す f 電子系化合物と同様な重い電子状態を形成する特異な系である。重い電子状態の dHvA 効果は極低温でのみ観測される特徴的な現象である。

本論文は、極低温で dHvA 効果を観測するために必要な測定技術の開発を行い、重い電子系の半金属化合物である YbAs, CeAs 及び  $U_3P_4$  の混成効果を研究し、重い電子状態を解明する新しい知見を得たものである。

本研究では、希釈冷凍機内にステップング・モーターを設置し、スパイラル・ギヤを用いた新しい回転機構による試料回転装置と高感度の検出コイルを開発し、希釈冷凍機で生成できる極低温領域で、我が国で初めて dHvA 効果を観測し、フェルミ面の形を決定することができた。これらの開発的研究は、今後 dHvA 効果によるフェルミ面の研究を行う上で重要な貢献を与えたものである。YbAs と CeAs では、3 個の回転楕円体電子面と 1 個の球形に近いホール面を観測し、キャリア数を決定した。観測されたホール面はいずれも比較的小さな有効質量をもつものであったが、キャリア数と電子比熱係数を比較し、他に有効質量が大きなホール面が存在する必要があることを示した。更に、YbAs では、反強磁性状態と常磁性状態の両方で dHvA 効果を測定し、ネール点の上下で信号の強度が変化する異常現象を観測し、新しい解析方法を考案して有効質量とデインゲル温度が変化した結果として説明することができた。その変化の起源は説明できなかったが、dHvA 効果の基礎的な問題を提起する重要な結果と考えられる。CeAs では、電子面の有効質量を CeSb や CeBi と比較し、格子定数が小さくなる、即ち混成が大きくなるにつれて有効質量が大きくなる結果を得た。また、ホール面の有効質量の磁場依存性を測定し、その変化は電子比熱係数の磁場依存性に対応することを示した。 $U_3P_4$  では新しいフェルミ面を発見し、従来提唱されているフェルミ面のモデルが正しくないことを示し、全てのフェルミ面が重い電子状態を形成している結果を得た。

上述のように、本研究では重い電子系の半金属化合物、YbAs, CeAs 及び  $U_3P_4$  について dHvA 効果を詳細に研究し、混成効果について重要な知見を与えた。これらの結果は、武田直也が自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。よって、武田直也提出の論文は博士（理学）の学位論文として合格と認める。