

氏名・(本籍)	いとう たかひろ 伊 藤 孝 寛
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	理博第1914号
学位授与年月日	平成14年3月25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)物理学専攻
学位論文題目	高分解光電子分光によるウラン化合物の電子構造の研究
論文審査委員	(主査) 教授 青木 晴 善 教授 倉本 義 夫, 笠谷 光 男, 山口 泰 男 教授 高橋 隆

## 論 文 目 次

第1章 序論	
1.1 概要	5
1.2 研究背景	9
1.3 重い電子系化合物の物性	9
1.3.1 重い電子系化合物の電子状態	14
1.4 研究背景と論文の構成	24
第2章 光電子分光法	
2.1 光電子分光の原理	25
2.2 角度分解光電子分光	27
第3章 光電子分光装置の概要	
3.1 光電子分光装置の高分解能化	33
3.2 極低温・高分解能光電子分光装置	35
3.2.1 極低温・高分解能光電子分光装置の概要	35
3.2.2 極低温・高分解能光電子分光装置における光電子スペクトルの測定方法	39
3.2.3 極低温・高分解能光電子分光装置の性能評価	39
3.3 超高分解能角度分解光電子分光装置	41
3.4 極低温測定	44
第4章 UPt <sub>3</sub> 、UC及びUPd <sub>3</sub> の高分解能角度分解光電子分光	
4.1 重い電子系U化合物の研究背景	47
4.2 UPt <sub>3</sub> の高分解能角度分解光電子分光	50
4.2.1 UPt <sub>3</sub> の物性と実験目的	50
4.2.2 UPt <sub>3</sub> の角度分解光電子分光の実験方法	56
4.2.3 UPt <sub>3</sub> の実験結果と考察	57
4.2.4 UPt <sub>3</sub> の角度分解光電子分光のまとめ	73

4.3 UCの高分解能角度分解光電子分光	
4.3.1 UCの物性と実験目的	74
4.3.2 UCの角度分解光電子分光の実験方法	78
4.3.3 UCの実験結果と考察	79
4.3.4 UCの角度分解光電子分光のまとめ	90
4.4 UPd <sub>3</sub> の極低温・超高分解能角度分解光電子分光	
4.4.1 UPd <sub>3</sub> の物性と実験目的	91
4.4.2 UPd <sub>3</sub> の角度分解光電子分光の実験方法	99
4.4.3 UPd <sub>3</sub> の実験結果と考察	100
4.4.4 UPd <sub>3</sub> の角度分解光電子分光のまとめ	113
4.5 UPt <sub>3</sub> 、UC及びUPd <sub>3</sub> の角度分解光電子分光の統括	115
第5章 USb <sub>2</sub> の超高分解能角度分解光電子分光	
5.1 USb <sub>2</sub> の物性と実験目的	117
5.2 USb <sub>2</sub> の角度分解光電子分光の実験方法	119
5.3 USb <sub>2</sub> の実験結果と考察	123
5.4 USb <sub>2</sub> の角度分解光電子分光のまとめ	139
第6章 重い電子系U金属強磁性体の超高分解能光電子分光	
6.1 重い電子系U金属強磁性体の研究背景	140
6.2 局在強磁性モデルと遍歴強磁性モデル	141
6.3 UXc(Xc=S、Se、Te)の超高分解能光電子分光	146
6.3.1 UXc(Xc=S、Se、Te)の物性と実験目的	146
6.3.2 UXc(Xc=S、Se、Te)の角度分岐光電子分光の実験方法	151
6.3.3 強磁性相UXc(Xc=S、Se、Te)の実験結果と考察	151
6.3.4 強磁性転移前後におけるUXc(Xc=S、Se、Te)の角度積分光電子分光の実験結果と考察	159
6.3.5 UXc(Xc=S、Se、Te)の角度分解光電子分光のまとめ	171
6.4 UGe <sub>2</sub> の超高分解能光電子分光	
6.4.1 UGe <sub>2</sub> の物性と実験目的	173
6.4.2 UGe <sub>2</sub> の光電子分光の実験方法	175
6.4.3 UGe <sub>2</sub> の超高分解能光電子分光測定結果と考察	176
6.4.4 UGe <sub>2</sub> の光電子分光のまとめ	184
6.4.5 U系金属強磁性体の超高分解能光電子分光の総括	185
第7章 全体のまとめ	187
Appendix 電子相関の強い系におけるスペクトル関数	189
References	194
発表論文	204
学会発表	206
謝辞	208

## 論文内容要旨

本研究では高分解能光電子分光法を用い、重い電子系U化合物の電子状態、特にフェルミ準位微細電子構造を実験的に直接観測することで、局在と遍歴の二面性を持つU 5f電子によって担われる様々な異常物性に関して知見を得ることを目的とした。以下に、本研究の内容を簡単にまとめる。

### (1) UPt<sub>3</sub>, UC, UPd<sub>3</sub>の高分解能角度分解光電子分光

重い電子系U化合物におけるフェルミ準位近傍微細電子構造、特にフェルミ面における電子相関の効果について調べるために、U 5f電子の性質および電子相関の強さが大きく異なるUPt<sub>3</sub>, UCおよびUPd<sub>3</sub>について、高分解能角度分解光電子分光を行った。その結果、全ての化合物において、価電子帯 s, p, dバンド構造を実験的に決定することに成功した。バンド計算との比較により、計算はこれらの荷電したバンド構造を定性的に良く再現していることを見いだした。フェルミ準位近傍における詳細測定により、遍歴U 5f電子系化合物UCにおいては、フェルミ面を形成するバンド幅50 meV程度のU 5f-C 2p混成バンドを、局在U 5f電子系化合物UPd<sub>3</sub>においては、フェルミ準位から離れて局在したU 5f多重項構造とPd 4dおよびU 6d電子により形成されるフェルミ面を見いだした。一方、重い電子系化合物UPt<sub>3</sub>においては、フェルミ準位直下でエネルギー分解能の範囲内でほとんど分散を示さないU 5fバンドと、高結合エネルギー側のブロードなインコヒーレントU 5f状態を見いだした。以上の結果から、重い電子系U化合物における二面性を有するU 5fバンドと電子によるバンド構造は、U 5f電子の遍歴性を反映するフェルミ準位直下のU 5fバンドと局在性に由来する高結合エネルギー側のU 5f多重項構造（インコヒーレント構造）により形成され则认为られる。実験と計算の比較から、実験におけるU 5fバンドはバンド計算に比べて幅が狭くなっていること、およびフェルミ準位から離れたU 5f多重項構造（インコヒーレントU 5f状態）ではバンド計算では予測されないことを明らかにした。更に、実験と計算のフェルミ準位直下におけるU 5fバンド幅の違いから見積もられるU 5f準粒子の質量増強因子は電子比熱およびdHvA測定の結果と矛盾しないことを示した。この事から、重い電子系におけるU 5fバンドは、強い電子相関によるrenormalizationの効果を受けて幅が狭くなっていると結論した。

### (2) USb<sub>2</sub>の超高分解能角度分解光電子分光

遍歴的なU 5f電子に起因するフェルミ準位近傍における電子構造の形成機構を明らかにするために、層状重い電子系U化合物USb<sub>2</sub>について、超高分解能角度分解光電子分光法を用いて、バンド構造およびフェルミ面の直接決定を行った。その結果、USb<sub>2</sub>におけるU 5f電子はフェルミ準位直下で非常に幅の狭い（～25 meV）バンドを形成し、価電子帯Sb 5pバンドと混成することにより複雑なバンド構造を形成していることを見いだした。観測されたフェルミ準位近傍におけるU 5f-Sb 5p混成バンドの分散形状は、f電子間の周期性を考慮したアンダーソンc-f構成バンドものと類似していると考えられる。更に、U 5f-Sb 5p混成バンドにより形成されるフェルミ面の有効質量は、他の重い電子系U化合物に比べて小さいことを見いだした。この事は、USb<sub>2</sub>のフェルミ面におけるU 5f電子間の電子相関の効果が比較的弱いことを示唆すると結論した。

### (3) U系金属強磁性帯の超高分解能光電子分光

強相関U 5f電子系化合物における遍歴と局在の二面性を持つU 5f電子状態の磁気相転移前後の変化を直接観測するために、U系金属強磁性体であるUXc(Xc=S, Se, Te)およびUGe<sub>2</sub>について超高分解能光電子分光法を用いた温度変化観測を行った。その結果、全ての化合物において、明確な温度変化を示すフェ

ルミ準位直下の鋭い遍歴U 5f 構造とほとんど温度変化を示さないフェルミ準位直下から離れて存在するブロードな局在U 5f電子構造からなるU 5f 準粒子構造を見いだした。常磁性相においてフェルミ準位にあるU 5f 状態密度が強磁性相において高結合エネルギー側にシフトすることから、これらの化合物における強磁性相転移は、交換エネルギー分裂の温度変化を伴うストーナー的な遍歴強磁性モデルにより良く説明されることを明らかにした。更に、実験から見積もられる交換エネルギー分裂はキュリー温度に大体スケールするものの、バンド計算に比べて大きいことを明らかにした。実験と計算の交換エネルギー分裂の比は、物性測定から予測される準粒子質量増強因子と定性的に一致することから、実験と計算の食い違いは、遍歴的な、U 5f 電子間の電子相関の効果によって、U 5fバンドの幅がrenormalize されて狭くなっていることに起因すると結論した。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は種々のウラン化合物について、光電子分光による電子構造についての系統的な実験を行い、電子構造とこれら化合物の特異な物性の関係を明らかにしたものである。

ウランの5 f 電子は遍歴と局在の2面性を持つと考えられている。この観点から5 f 電子の局在的な性格が強いと考えられているUPd<sub>3</sub>、遍歴的な性格が強いと考えられているUC、およびそれらの中間的な性格を持つUPT<sub>3</sub>において光電子分光によるバンド構造の測定を行い、それぞれの5 f 電子の性格に対応する特徴的な電子構造を明らかにした。すなわち、UPd<sub>3</sub>ではフェルミレベル以下0.3-0.9eVに分散がない局在的性格を持つ5 f 電子による多重項によるバンドが存在し、フェルミ面はPd4dおよびU6dバンドから形成されており、ほとんどU5f電子の影響を受けていないことを明らかにした。一方、UCにおいてはフェルミ面がU5f-C2p混成バンドによって形成されえていることを見出した。また、UPT<sub>3</sub>においてはフェルミレベル以下0.2-0.4eVのほとんど分散のないバンド構造とフェルミレベル近傍で幅の狭い遍歴的性格を示す5 f 電子のバンドを明らかにした。

また、2次元的性格をもつUSb<sub>2</sub>についてはフェルミ面近傍での詳細な測定を行い、幅の狭いfバンドと大きな分散を示すSb 5 pバンドが混成を起し、フェルミ面を形成していることを明らかにした。

さらに、磁性化合物US, USe, UTeにおいてはそれぞれに局在的な性格に起因する0.5-1eVのブロードなピークとU 5 f バンドに起因するフェルミレベル順位直下の鋭いピークが存在すること、それらが上記の3つの化合物において系統的に変化することを明らかにした。また、温度変化の測定を行い、磁気転移温度を境にしてフェルミレベル直下のピークが分裂すること、その分裂と分裂幅が遍歴磁性モデルにより説明できることを明らかにした。さらに、UGe<sub>2</sub>についても磁性とバンド構造およびその温度変化の関連を明らかにしている。

本研究での実験結果は極めて質が高く、また、Uにおける5 f 電子について、明確かつ生き生きとした物理的描象を与えるものである。本研究はウラン化合物およびその物性と電子構造の理解の進展に大きな貢献をしており、高く評価できる。

これらの研究成果は、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していることを示している。したがって、伊藤孝寛提出の論文は、博士（理学）の学位論文として合格と認める。