

(論文内容の要旨)

量子相転移とは、絶対零度近傍において温度以外のパラメータ（圧力、化学組成、磁場など）の関数として起る相転移であり、その量子臨界点近傍では、物質中の電子の振舞いは従来の描像と異なり、非フェルミ液体的挙動や異常な超伝導現象などがよく観測され、非常に関心が持たれている。本論文では弱い遍歴電子強磁性体 Ni_3Al (キュリー温度 $T_C = 40 \text{ K}$) を中心的な目的物質として、量子臨界点近傍の物質合成と物性測定の研究を行っている。 Ni_3Al は、立方晶 Cu_3Au 型の結晶構造を持ち、Al 原子が単位格子の立方体の頂点位置を占め、Ni 原子が面心位置を占めている。この構造は、基本的に最密充填構造であるが、体心位置が空になっており、本研究ではこの体心位置に C や Si を導入（ドーピング）するという化学的手法を用いて Ni_3AlC_x および Ni_3AlSi_x を合成し、量子臨界点近傍の新しい物性を明らかにすることを目的として研究を行っている。また、それと比較するために、置換効果によって誘起された量子臨界点近傍の物性（ $\text{Ni}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ 系）も調べている。

その結果として、ドーピング系、置換系のいずれに関しても、磁化測定の結果から、ドーピング量や置換量の増加に伴って、強磁性転移が急速に抑えられ、 Ni_3AlC_x 系では $x \sim 0.02$ 、 Ni_3AlSi_x 系では $x \sim 0.01$ 、 $\text{Ni}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ 系では $x \sim 0.02$ でキュリー温度 T_C が消失し、その組成が量子臨界点であることが明らかになった。弱い強磁性となる試料では、 T_C 近傍で、磁化の Arrott プロットから求めた自発磁化の自乗は $T^{4/3}$ に比例する温度依存性を示し、常磁性状態では T_C 近傍で逆帯磁率 χ^{-1} がキュリーワイス則からずれ、 $T^{4/3}$ に比例する温度依存性ももつことが明らかとなった。量子臨界点近傍の強磁性を示さない試料においても、逆帯磁率 χ^{-1} が高温のキュリーワイス則から温度の低下とともに $T^{4/3}$ 則的溫度依存性を示した。このような非フェルミ液体的な振舞はスピンの揺らぎの自己無撞着繰り込み理論である SCR (Self-Consistent Renormalization) 理論でうまく説明でき、従って、これらの試料において三次元的な強磁性的スピンの揺らぎが支配的で非フェルミ液体的電子状態となっていることが明らかになった。

また、微視的観点からこれらの系に対して ^{27}Al 核磁気共鳴 (NMR) 測定を行い、ミクロな磁化率であるナイトシフト K と動的帯磁率を反映するスピン・格子緩和率 $1/T_1$ を測定している。C, Si ドーピング系ではドーピング量が増大すると K - χ プロットから見積もられる超微細相互作用定数 A_{hf} が大きく変化することから、ドーピングによって電子状態が大きく変化していることが明らかになった。このことは体心位置にドーピングされた原子の p 軌道と Ni の $3d$ 軌道の間で混成軌道を形成するためと考えられる。一方、Si 置換系では A_{hf} が置換によってほとんど変化せず、電子状態があまり変化しないことが明らかになり T_C の急激な減少・消失には混成効果よりも電子ドーピング効果が重要な役割を演じることが明らかになった。また、 $1/T_1$ 測定の結果、ドーピング系、置換系のいずれにおいても全系にわたって、強磁性的なスピンの揺らぎが増強されていることが明らかになった。即ち弱い遍歴強磁性体から常磁性体まで全部動的スケールリング則 $1/T_1 T \sim \chi(T)/T$ に従うことが明らかになった。この関係は 3 次元的な強磁性的スピンの揺らぎに関する SCR 理論から導かれるものであり、 $x > 0.02$ の常磁性領域の試料に対しても強磁性的スピンの揺らぎが支配的であり、強磁性に近い金属状態となっていることを示しており、磁化測定の結果を支持している。

以上の結果から、本遍歴電子強磁性系における量子臨界点近傍の非フェルミ液体的な振舞いが三次元的なスピンの揺らぎの SCR 理論的描像で理解できることが明らかになった。

(論文審査の結果の要旨)

量子相転移およびその量子臨界点近傍では非フェルミ液体的挙動や異常な超伝導現象発現などの観点から、物性分野で現在最も重要な問題の一つである。本論文では弱い遍歴電子強磁性体 Ni_3Al を用い、化学的な手法によって量子臨界点近傍の物質合成を行い、その磁気的な物性を巨視的・微視的両面から詳細に測定し、遍歴電子系の磁性理論との比較を行うことによって、 $3d$ 電子系の遍歴電子強磁性体系での量子臨界点近傍の振る舞いを明らかにすることを目的として行われた研究に関するものである。

本研究において合成された試料は Ni_3Al を中心として、その体心位置に C や Si をドーピングした Ni_3AlC_x 系と Ni_3AlSi_x 系で、これらは化学的に新しい物質系であり、特に Si ドープ系は本研究で初めて合成に成功した系である。また、それらと比較するために、置換効果によって誘起された量子臨界点近傍の物性を調べるため $\text{Ni}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ 系の合成も本論文で新たに行われている。化学的手法を駆使し合成され評価されたそれらの系の試料に対して、詳細に巨視的・微視的物性測定（磁性測定）を行い、その結果を遍歴電子磁性理論と比較検討し議論していることが本研究の特徴である。

その磁化測定の結果として、ドーピング系、置換系のいずれに関しても、ドーピング量や置換量の増加に伴って、強磁性転移が急激に抑えられ、 Ni_3AlC_x では $x \sim 0.02$, Ni_3AlSi_x では $x \sim 0.01$, $\text{Ni}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ 系では $x \sim 0.02$ という非常に少量のドーピング量あるいは置換量でキュリー温度 T_C が消失することが見出され、その組成が量子臨界点であることが明らかにされている。また、 T_C 近傍での自発磁化や逆帯磁率の $T^{4/3}$ 則が明確に観測され、本系の非フェルミ液体的な振舞いの起源が遍歴電子強磁性体に対するスピンの揺らぎの理論でうまく説明できることを明らかにしている。

さらに微視的手段である ^{27}Al 核の核磁気共鳴を行い、ミクロな磁化率であるナイトシフト K と動的帯磁率を反映するスピン・格子緩和率 $1/T_1$ を測定することにより、電子状態の変化やスピンの揺らぎの振舞いを詳細に明らかにし、これら系の T_C 近傍から常磁性状態における全温度領域において動的スケールリング則 ($1/T_1 T \sim \chi(T)/T$) が成り立つことを明らかにしている。それらの結果から、 Ni_3Al を中心とした本遍歴電子強磁性体系における量子臨界点近傍の非フェルミ液体的な振る舞いが、三次元的な強磁性的スピンの揺らぎによって説明できることを明らかにしている。このように量子臨界点近傍の新物質合成とその詳細な物性評価を巨視的・微視的両面から行い、スピンの揺らぎの理論的な計算を用いて遍歴電子強磁性系の量子臨界点近傍の異常物性を解明している点は特筆に値する。

以上より、本論文は博士（理学）の学位論文として十分価値のあるものと判定される。また、申請論文に報告されている研究業績とそれに関連する事項について試問を行った結果、合格と認めた。