

氏名	福井啓二
授与した学位	博士
専攻分野の名称	理学
学位授与番号	博甲第2038号
学位授与の日付	平成12年 3月25日
学位授与の要件	自然科学研究科物質科学専攻 (学位規則第4条第1項該当)
学位論文の題目	希土類化合物のL端吸収・発光における磁気円二色性の理論
論文審査委員	教授 原田 勲 教授 山崎比登志 教授 町田一成

学位論文内容の要旨

本論文では、希土類 $L_{2,3}$ 吸収端における磁気円二色性 (MCD) のスペクトルについて、理論的な解析を行い、実験結果と比較する。特に、 $2p \rightarrow 5d$ 電気双極子遷移については、松山他による電気双極子遷移行列要素の増大効果を考慮し、 $2p \rightarrow 4f$ 電気四重極遷移や発光の $3d \rightarrow 2p$ 遷移では、原子内多重項を考慮する。吸収スペクトルと共鳴発光スペクトルは、スペクトル関数に基き、電気双極子遷移と電気四重極遷移について、相対論的 Hartree-Fock 近似により決定される相対的なエネルギーを用いて足しあわせることで求める。

吸収の MCD では、不一致な場合がみられた MCD の積分強度が小さい場合について、その化合物の特徴を考慮しながら理論解析を試み、(1) CeRu_2Ge_2 や $\text{Ce}_3\text{Al}_{11}$ では、 $4f$ 電子状態として Hund 則基底状態を単純に仮定するだけでは不十分で、結晶場とスピン軌道相互作用を考慮することにより、実験結果とよく一致する結果を得た。(2) 重希土類の絶縁体化合物では、 L_2 の MCD の強度に多少問題を残す。(3) $(\text{RE})_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ のような $3d$ 遷移金属を含む化合物では、これまで十分に認識されていなかった、遷移金属の $3d$ 電子との交換相互作用による影響を見出し、その補正により実験との一致はより一層満足出来るものとなった。なお、吸収端前部における $2p \rightarrow 4f$ 電気四重極遷移の MCD に関しては、その相対的位置や角度変化について新しい知見を得、今後の実験に対する指針を与えた。

共鳴発光では、これまで希土類 $L_{2,3}$ 吸収端における MCD の数値計算は全く行われていなかったが、本論文において世界で初めて実験結果と定量的に比較可能な数値計算が実行され、特定の入射エネルギーで現れる蛍光、共鳴ラマン散乱、電気四重極励起などの特徴的な構造が全て数値計算により良く再現され、サテライト構造が $3d-4f$ 電子間相互作用によることを確認した。また、特に MCD において、前述の遷移強度の増大効果による影響が重要であることを確認した。

論文審査結果の要旨

最近著しい進歩を見せるシンクロトロン放射光技術は、広い意味の光による磁性体の研究に新しい側面を拓き、実験及び理論両面から活発に研究されている。本論文では、希土類イオンにおける L 端吸収・発光の磁気円二色性(MCD)を理論的に研究し、実験で得られたスペクトルと定量的な比較を行っている。

希土類化合物における L 端吸収の MCD スペクトルは、通常考えられる $4f$ - $5d$ 交換相互作用による $5d$ 軌道の分極に基づいた計算では正しく再現されない。本論文では、松山などにより提唱されている交換相互作用のもう 1 つの役割、 $5d$ 軌道の収縮およびそのことから生じる遷移強度の増大効果を考慮し、さらに低エネルギー側に小さい電気四重極遷移による寄与を加え、実験での MCD スペクトルと定量的な比較を行っている。その結果、全希土類にわたり満足のいく結果を得、 $4f$ - $5d$ 電子の交換相互作用の新しい役割を確認した。

さらに、一致が不十分な場合について、各々の化合物の特徴を考慮して理論解析を試み、次のことを明らかにした：(1) Ce 化合物では、 $4f$ 電子状態のより詳細な情報が MCD スペクトルに現れる。(2) $3d$ 遷移金属を含む化合物では、希土類 $5d$ 電子に対する遷移金属 $3d$ 電子の影響がスペクトルに現れることが有る。なお、電気四重極遷移の MCD に関しては、その相対的位置や角度変化について新しい知見を得、今後の実験に対する指針を与えた。

L 吸収過程に続くコヒーレントな $3d$ - $2p$ 発光過程、およびその MCD スペクトルについて、実験結果と定量的に比較可能な数値計算を世界で初めて実行し、これまで実験で見いだされた様々な特徴が良く再現されることを確認すると共に、MCD スペクトルにおいて、前述の遷移強度の増大効果が重要であることを確認した。

以上のような、新しい機構の検証や共鳴発光の MCD のような新しい実験手段に対する定量的計算手法の確立は、この分野の研究者に強いインパクトを与え、実験技術の発展と共に更なる実験を促し、二次過程の実験にも重要な指針を与えるであろう。このように、本研究はこの研究分野に重要な寄与をしたと認められる。

本論文の内容、論文発表会、参考論文を総合的に審査した結果、本論文は博士学位論文に値するものと認定する。