

Title	希土類化合物の超音波測定(VII. 格子系および電子-フォノン相互作用, 価数揺動状態の総合的研究, 科研費研究会報告)
Author(s)	後藤, 輝孝; 田巻, 明; 神田, 栄三郎; 国井, 暁; 鈴木, 孝; 世良, 正文; 藤村, 忠雄; 糟谷, 忠雄
Citation	物性研究 (1984), 42(6): 80-81
Issue Date	1984-09-20
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2433/91419">http://hdl.handle.net/2433/91419</a>
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	publisher

# 希土類化合物の超音波測定

東北大学・理学部\* 後藤輝彦, 田巻明, 神田栄三郎, 国井 暁\*, 鈴木 孝\*, 世良正文\*, 藤村忠雄, 糟谷忠雄\*

超音波により測定される弾性定数および吸収係数は、希土類化合物の4f電子状態に敏感であり異常な温度変化を示すことが多い。固体中に入射された超音波は、内部に弾性歪を発生させる。この歪は、4f電子状態のもっている電氣的四重極モーメントと相互作用とする。この歪-四重極相互作用は *magneto-elastic interaction* と呼ばれ、Fulde 等により理論が作られている<sup>(1)</sup>。弾性定数や超音波吸収係数は、4f電子の四重極モーメントの応答関数であり、帯磁率が磁気モーメントに対する応答であることと類似的に理解できよう。4f電子が局在しており結晶場の描像が良く成立する場合には、弾性定数の温度変化から結晶場のパラメータを決めることが可能であり、以下で述べる  $\text{PrB}_6$ ,  $\text{NdB}_6$  はその例であるといえる。他方、価数揺動を示す  $\text{SmB}_6$ ,  $\text{Sm}_3\text{Se}_4$  などでは、実験的に見出された弾性定数の温度変化は、結晶場効果としては説明できない<sup>(2)</sup>。高濃度近藤物質である  $\text{CeB}_6$  の弾性定数には結晶場効果と思われる異常があるが、 $\Gamma_7$  (基底) -  $\Gamma_8$  (10K) という単純な描像ではやはり無理があるようで、 $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{B}_6$  の超音波により詳しい実験が必要であろう<sup>(3)</sup>。今回の報告には、筆者等が最近おこなった、 $\text{PrB}_6$ ,  $\text{NdB}_6$ ,  $\text{CeIn}_3$  の実験結果について述べることにする。

$\text{PrB}_6$  は中性子回折の実験により、 $T_{c1} = 6.9\text{K}$  で *Incommensurate* な反強磁性相に移り、 $T_{c2} = 4.2\text{K}$  で *commensurate* 相へ転移することが知られている。超音波の実験により、 $(c_{11}-c_{12})/2$ ,  $C_{44}$  に結晶場効果によるソフト化が見られた。図1に示すように、 $\Gamma_7^+$ の対称性をもつ  $C_{44}$  mode では約30%のソフト化があった。この結果は、 $\text{PrB}_6$ の低温での磁氣的秩序の発生とともに、 $\Gamma_7^+$ の対称性をもつ4f電子の四重極モーメント  $O_{22}$ ,  $O_{22}$ ,  $O_{2x}$  の秩序化も起きていると考えられる。つまり  $C_{44}$  mode のソフト化は協力的 Jahn-Teller として理解される。 $T_{c1}$  以下の秩序相では、結晶構造が立方体から低下しているものと期待される。パラ相 ( $T > T_{c1}$ ) での  $C_{44}$  の温度変化を四重極モーメントに対する応答 - strain susceptibility - により fit した結果を図1の実線を示してある。得られた  $\text{Pr}^{3+}$

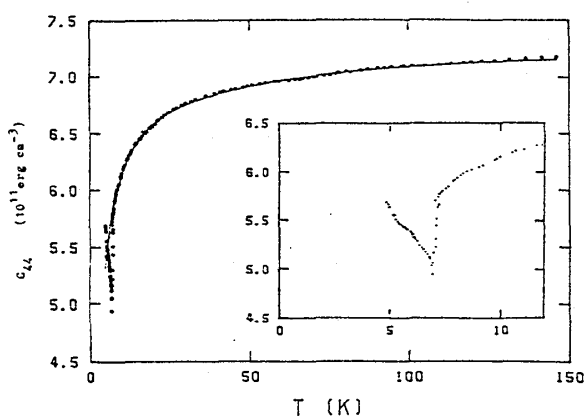


図1.  $\text{PrB}_6$  の  $C_{44}$  の温度変化

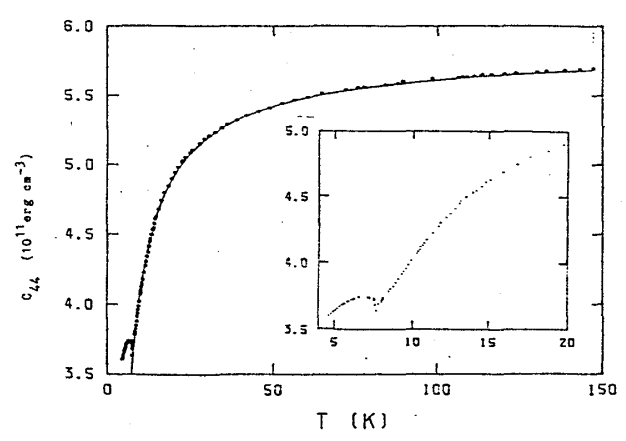


図2.  $\text{NdB}_6$  の  $C_{44}$  の温度変化

( $J=4$ ) の結晶場準位は,  $\Gamma_4^+$ (基底) -  $\Gamma_5^+$ (7K) -  $\Gamma_6^+$ (117K) -  $\Gamma_3^+$ (200K) であつた。一重項  $\Gamma_4^+$  が基底となつてゐるが,  $\Gamma_5^+$  が直ぐ上にあるために  $C_{4v}$  mode に Jahn-Teller 不安定が起きている。

$\text{NaB}_6$  においても,  $C_{4v}$  mode に約40%ものソフト化が見られた。結果は図2に示す。 $T_N=7.5\text{K}$  で反強磁性相が出現している。図2の実線は strain susceptibility によつて fit した結果であり,  $\text{Nd}^{3+}$  ( $J=9/2$ ) の結晶場準位は  $\Gamma_6$ (基底) -  $\Gamma_8^{(1)}$ (3K) -  $\Gamma_8^{(2)}$ (290K) であつた。しかし,  $\Gamma_8^{(1)}$ (基底) -  $\Gamma_8^{(2)}$ (290K) -  $\Gamma_6$ (600K) でも fit 可能であり確定的なことは更に実験が必用である。いずれにしても, 四重極モーメントをもつ  $\Gamma_8$  が基底もしくは基底に近いために,  $C_{4v}$  mode が Jahn-Teller 不安定性を起し,  $T_N$  以下の quadrupole ordering が発生していると思われる。以上の結果は,  $\text{NdB}_6$  も  $\text{PrB}_6$  と同様に, 磁気的秩序の発生と同時に, 四重極モーメントの秩序化も起きていることを示している。このような例としては,  $\text{VO}_2$ ,  $\text{TmZn}$ ,  $\text{TmCd}$  など知られてゐる。

$\text{CeIn}_3$  では  $T_N=10.5\text{K}$  で反強磁性相が出現しており, 電気抵抗の測定によると, 高温で高濃度近藤的な振舞を示している。また, 試料依存性の問題点があるものの, 超伝導を示す可能性もある。中性子散乱の実験によれば,  $15\text{meV}$  に中心をもつ  $10\text{meV}$  中の励起状態が観測されている。単結晶を使った超音波による弾性定数の温度変化の結果を図3に示す。 $C_{11}$ ,  $(C_{11}-C_{12})/2$ ,  $C_{44}$  いずれも低温になるに従い単調に増大し,  $T_N=10.5\text{K}$  で異常を示す。注目すべきことは,  $T > T_N$  のパラ相で結晶場効果による弾性定数のソフト化はまったく見られない。 $\text{CeIn}_3$  と同じく  $\text{Cu}_3\text{Au}$  型の結晶構造をもつ  $\text{CeSn}_3$ ,  $\text{CePd}_3$  の弾性定数の温度変化にも結晶場による異常はまったく見られない<sup>(7)</sup>。つまり,  $\text{CeIn}_3$ ,  $\text{CeSn}_3$ ,  $\text{CePd}_3$  においては,  $10\text{MHz}$  の超音波で弾性定数を測定すると, 4f 電子状態の四重極モーメントは死んでいるように見える。この実験結果は,  $\text{CeIn}_3$  の4f 電子は  $\text{CeSn}_3$ ,  $\text{CePd}_3$  の場合と同様にバンドを形成していることを示していると思われる。

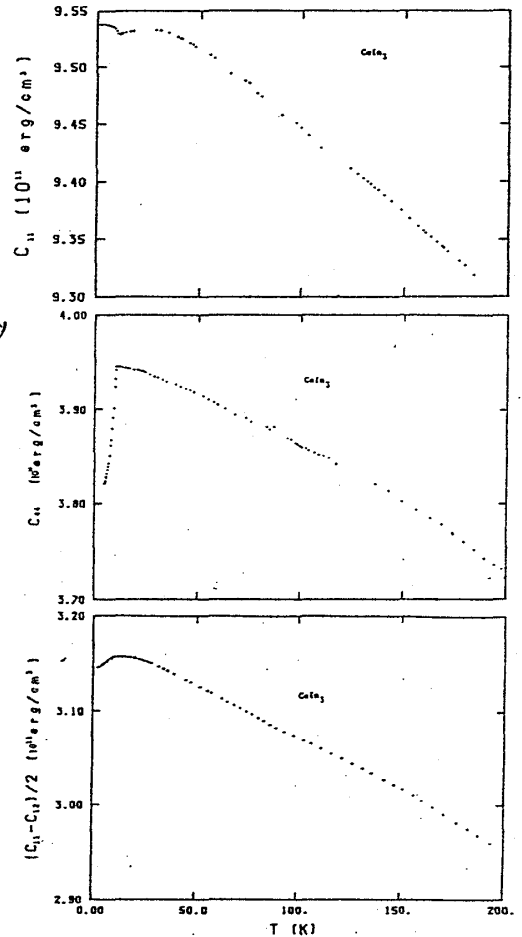


図3  $\text{CeIn}_3$  の弾性定数

(1) V. Dohm and P. Fulde; Z. Physik B21 (1975) 369 (2) 後藤, 田巻, 藤村, 国井, 笠谷, 鈴木, 糟谷; 昨年度研究会報告 P54 (3) T. Goto et al; J. Mag. Mag. Mat. 31-34 (1983) 419  
 (4) G. Solt and P. Erdős; Phys. Rev B22 (1980) 4718 (5) P. Morin et al.; Phys Rev B14 (1976) 2972 (6) B. Lüthi et al.; Phys Rev B8 (1973) 2639 (7) R. Takke et al; Z. Physik B44 (1981) 33