

Title	Ce化合物のDense Kondo効果(VI. Ce化合物系,価数揺動状態の総合的研究,科研費研究会報告)
Author(s)	大貫, 惇睦; 古川, 保典; 清水, 佳昌; 小松原, 武美
Citation	物性研究 (1984), 42(6): 49-53
Issue Date	1984-09-20
URL	http://hdl.handle.net/2433/91426
Right	
Type	Departmental Bulletin Paper
Textversion	publisher

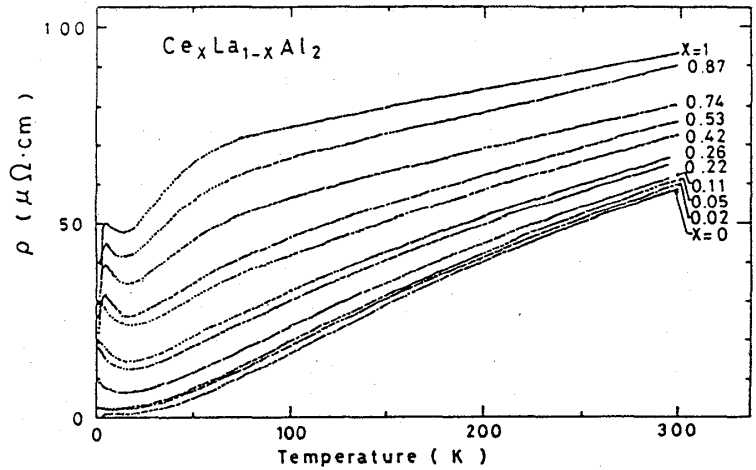
Ce化合物の Dense Kondo 効果

筑波大学物質工学系

大貫博隆・古川保典・清水佳昌・小松原武美

Ce化合物を常磁性状態で大別すると、(1) $CeSm_3$ や $CePd_3$ に代表されるように帯磁率は Curie-Weiss 則に従わず Ce^{3+} でなく、4f 電子は 縮退状態 にある。(2) 4f 電子は Curie-Weiss 則に従う Ce^{3+} で、高温の電気抵抗は 4f スピンによる散乱を受け $\ln T$ の Kondo 効果を示す、となる。(2) の物質群は $T < T_K$ (T_K : Kondo 温度) では磁気秩序(多くは反強磁性状態)や超伝導状態と拮抗し、例えば $CeAl_2$, $CeIn_3$, CeB_6 では反強磁性に、 $CeCu_2Si_2$ では超伝導になる。また $CeAl_3$ は磁気秩序が \parallel にもつかかわらず電気抵抗は急激に減少し、Kondo Lattice の形成と \parallel の新しい物理概念が生ずる。

本研究は Ce 化合物に現れる \parallel わゆる "Dense Kondo 効果" は稀薄合金における Kondo 効果の単なる濃度の延長と考之て良 \parallel のか、ある \parallel は基本的に違 \parallel のかを明らかにする目的で全率固溶系 $Ce_xLa_{1-x}Al_2$ ($x=0\sim 1$) の単結晶を育成した。また新しい Dense Kondo 化合物を探索する目的で Ce_2Pb , $CeCu_2Si_2$, $CeCu_2$, $CeCu_6$ の単結晶を Wulff 法を用 \parallel た引上げ法で育成し、電気抵抗と帯磁率(磁化)を測定した。以下に \parallel の結果を報告する。

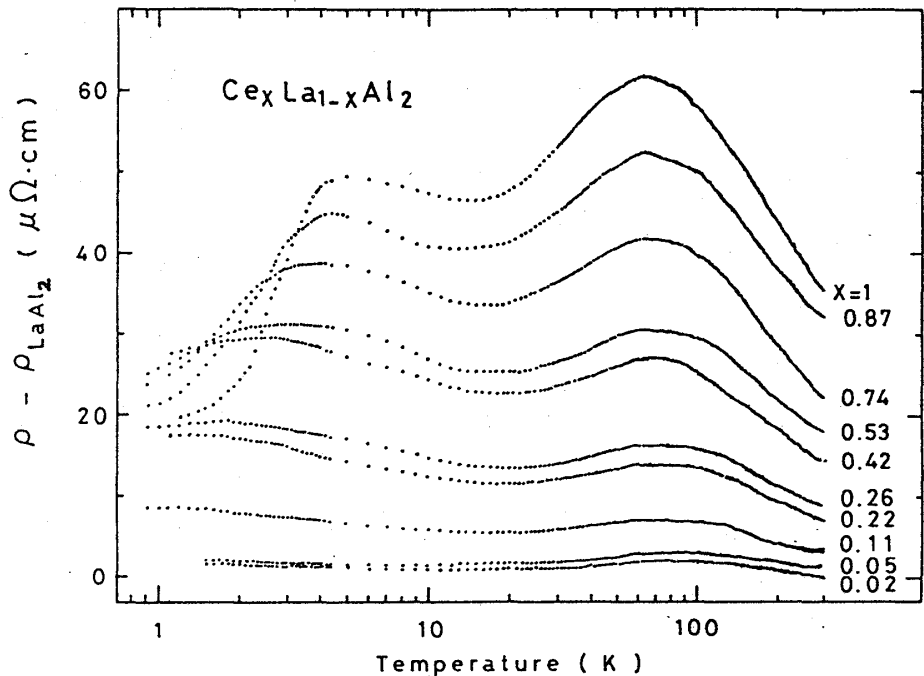


第1図 $Ce_xLa_{1-x}Al_2$ の電気抵抗の温度依存性。

1. $Ce_xLa_{1-x}Al_2$

(1) 電気抵抗

第1図は $Ce_xLa_{1-x}Al_2$ の室温から約1Kまでの電気抵抗の温度依存性である。Kondo 効果を明確にするため、 $Ce_xLa_{1-x}Al_2$ の電気抵抗 ρ を $LaAl_2$ の電気抵抗で差引 \parallel 2、伝導電子の 4f スピンとの散乱による電気抵抗 $\rho - \rho_{LaAl_2}$

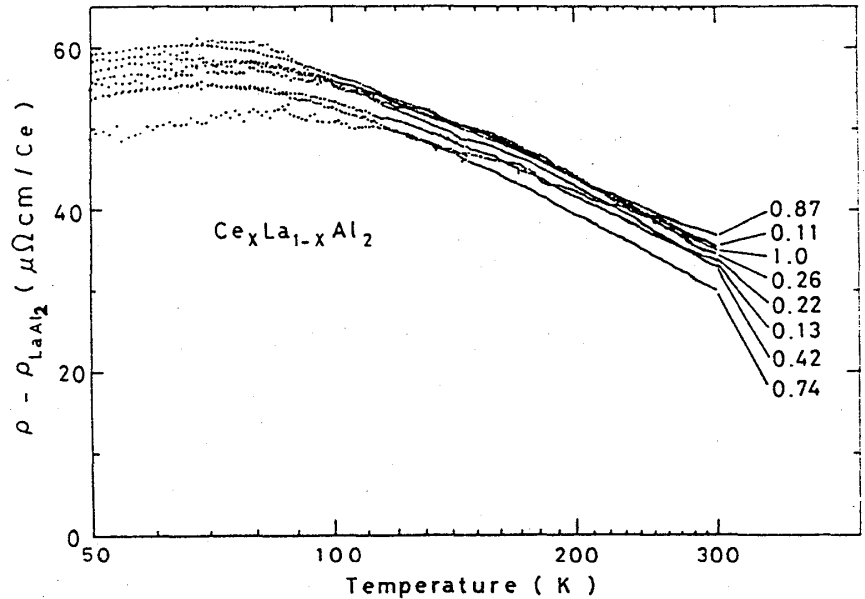


第2図 電気抵抗 $\rho - \rho_{LaAl_2}$ の $\ln T$ 依存性。

を $\ln T$ でプロットしたのが第2図である。CeAl₂の電気抵抗の振舞いは Cornut と Cogblin により 4f 電子の結晶場を考慮して従来の三次の振舞いによる Kondo 効果から説明が与えられ、約 70 K の抵抗の山は doublet Γ_7 (基底状態) と quartet Γ_8 との差 $\Delta = 100$ K に対応している。つまり $T > \Delta$ では 4f 準位は Γ_7 と Γ_8 の両方に占有し、 $T \ll \Delta$ では Γ_7 に占有するとの縮重度の違いにより $\ln T$ の傾きが 35/3 の比になる。また $T < 4$ K の電気抵抗の減少は反強磁性状態 ($T_N = 3.8$ K) への相転移による。Ce_xLa_{1-x}Al₂ の T_N は実験的に Bredl 達により $T_N = x(3.46x + 0.34)$ K で与えられる。

また、図から Ce_xLa_{1-x}Al₂ の常磁性状態での電気抵抗値は Ce の濃度 x の減少に対応して減少し、その形は非常に似ている。つまり、Ce の濃度 2% ($x = 0.02$) でも結晶場が形成されていることがこの電気抵抗の振舞いから理解される。

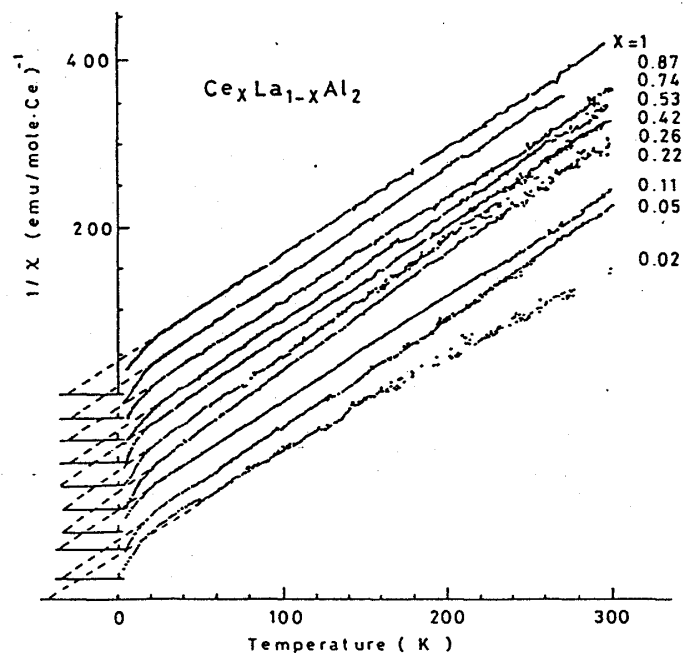
$\ln T$ の傾きをより明確にするため 50 K から室温までの電気抵抗を Ce1 モル当りに換算して第3図に示す。図から実験誤差内で $\ln T$ の傾きは同じで、高温の常磁性状態は dilute 系の延長にあると考えられる。



第3図 Ce1モルに換算した Ce_xLa_{1-x}Al₂ の $\rho - \rho_{LaAl_2}$ の電気抵抗の $\ln T$ 依存性。

(2) 帯磁率

Ce_xLa_{1-x}Al₂ の帯磁率から Pauli 帯磁性の LaAl₂ の帯磁率を差引いた帯磁率の逆数 $1/\chi$ を温度に対してプロットしたのが第4図である。全ての x について、約 50 K 以上の温度領域で Curie-Weiss に従う。 μ_{eff} は free ion の $2.54 \mu_B$ にほとんど近く、 μ_{eff} 及び θ_p (約 -30 K) は x に依らず一定である。以上の実験結果を第5図に整理して示す。この帯磁率の実験結果も Dense Kondo 効果の高温の常磁性状態は dilute 系の延長にあるという実験結果を支持している。



第4図 逆帯磁率の温度依存性。

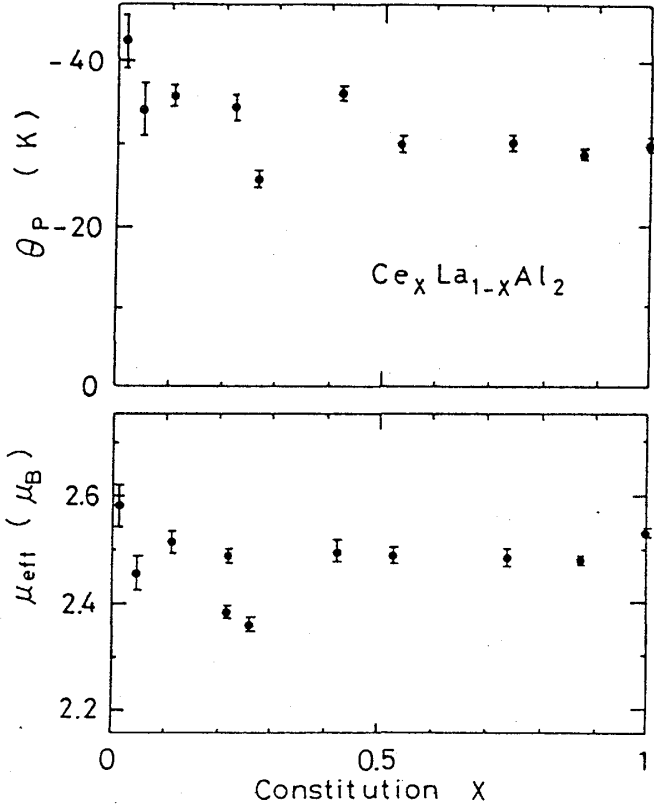
2. Ce_2Pb , $CePb_3$, $CeCu_2Si_2$ と $CeCu_6$

$CeCu_2Si_2$ は前述の²⁾とく超伝導($T_c = \text{約} 0.5$ K)になり, しかも Kondo 効果を通じて重くは, 伝導電子と³⁾の⁴⁾が超伝導になる⁵⁾ことから現在内外で活発な研究が行われて⁶⁾いる. 一方 Ce_2Pb , $CePb_3$, $CeCu_2$, $CeCu_6$ は多結晶の帯磁率の測定があるのみでまだ未開発の物質である.

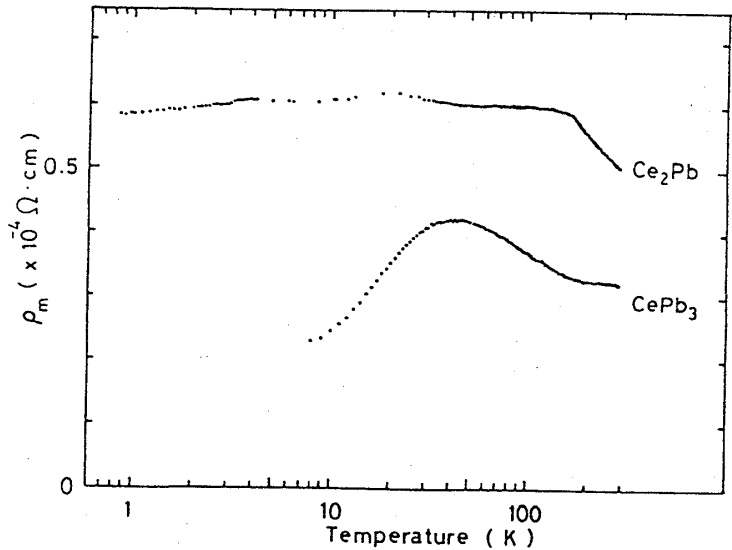
(1) Ce_2Pb (hexagonal), $CePb_3$ (cubic Al_2Cu_3 型, 二つの⁷⁾溶解多結晶)と⁸⁾も帯磁率は Curie-Weiss 則に従⁹⁾ μ_{eff} は free ion の値に近¹⁰⁾い. 第5図は対応する La 化合物の電気抵抗を差引いた¹¹⁾ ρ の電気抵抗の $\ln T$ 依存性である. 高温では $\ln T$ の Kondo 効果が現¹²⁾わ¹³⁾れている. $CePb_3$ でみ¹⁴⁾られる電気抵抗の山は cubic な $CeAl_2$ と同じ結晶場の効果であり, Δ は約 70 K と推定¹⁵⁾される.

(2) $CeCu_2Si_2$ (tetragonal) と $LaCu_2Si_2$ の電気抵抗を第7図に示す. 前述の $CeAl_2$, Ce_2Pb , $CePb_3$ など¹⁶⁾と異¹⁷⁾なり, $CeCu_2Si_2$ の電気抵抗は対応する La 化合物の電気抵抗を差引か¹⁸⁾なくとも, Kondo 効果が起¹⁹⁾きて²⁰⁾いる²¹⁾ことが一²²⁾目²³⁾で分²⁴⁾る. これは $\ln T$ にかかる状態密度 $N(E_F)$ が, 言²⁵⁾い²⁶⁾か²⁷⁾え²⁸⁾ると電子比熱係数 γ が非常に大²⁹⁾き³⁰⁾い³¹⁾ことを意味³²⁾して³³⁾いる. 事実³⁴⁾は約 $1000 \text{ mJ/mole} \cdot \text{K}^2$ であり, $CeAl_2$ の $180 \text{ mJ/mole} \cdot \text{K}^2$ に比³⁵⁾べて約 10 倍大³⁶⁾き³⁷⁾い³⁸⁾. 図³⁹⁾で, 約 100 K

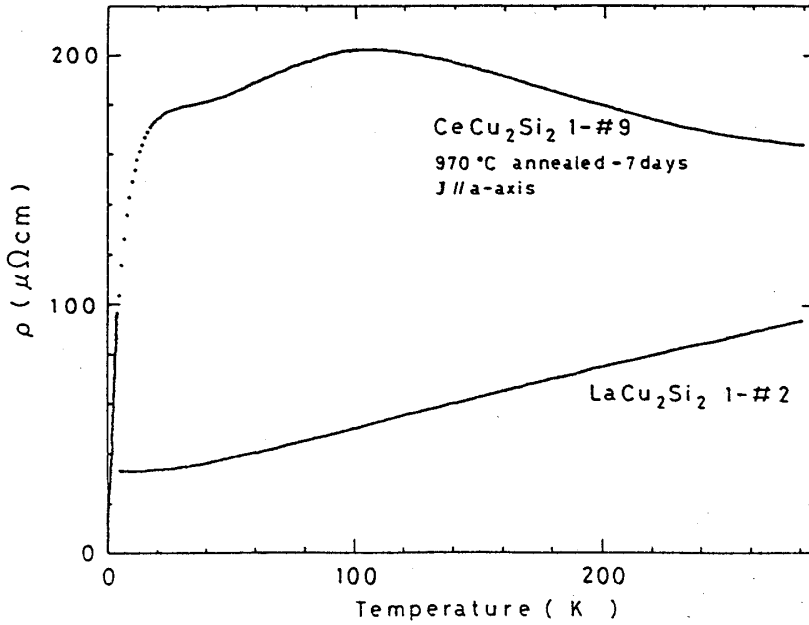
の抵抗の山は結晶場の効果による. 約 20 K から減少⁴⁰⁾し第8図に示⁴¹⁾す⁴²⁾こと⁴³⁾と $T_c = 0.78 \text{ K}$ で超伝導⁴⁴⁾となる. 二⁴⁵⁾つ⁴⁶⁾の⁴⁷⁾結果⁴⁸⁾は Lieke 産⁴⁹⁾の結果とほぼ同⁵⁰⁾い⁵¹⁾である⁵²⁾が, 約 20 K での山の大き⁵³⁾さに違⁵⁴⁾い⁵⁵⁾があり, これは結晶性⁵⁶⁾に関⁵⁷⁾係⁵⁸⁾して⁵⁹⁾いる⁶⁰⁾のかも知⁶¹⁾れ⁶²⁾ない⁶³⁾.



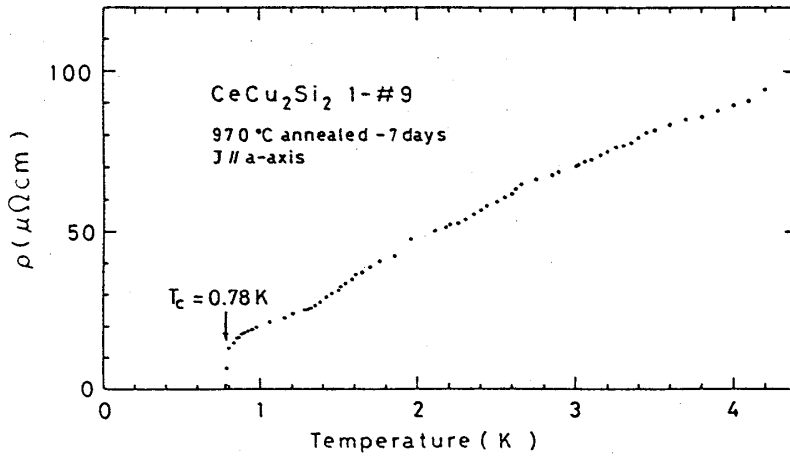
第5図 μ_{eff} と θ_p の Ce 濃度 x 依存性.



第6図 電気抵抗の $\ln T$ 依存性.



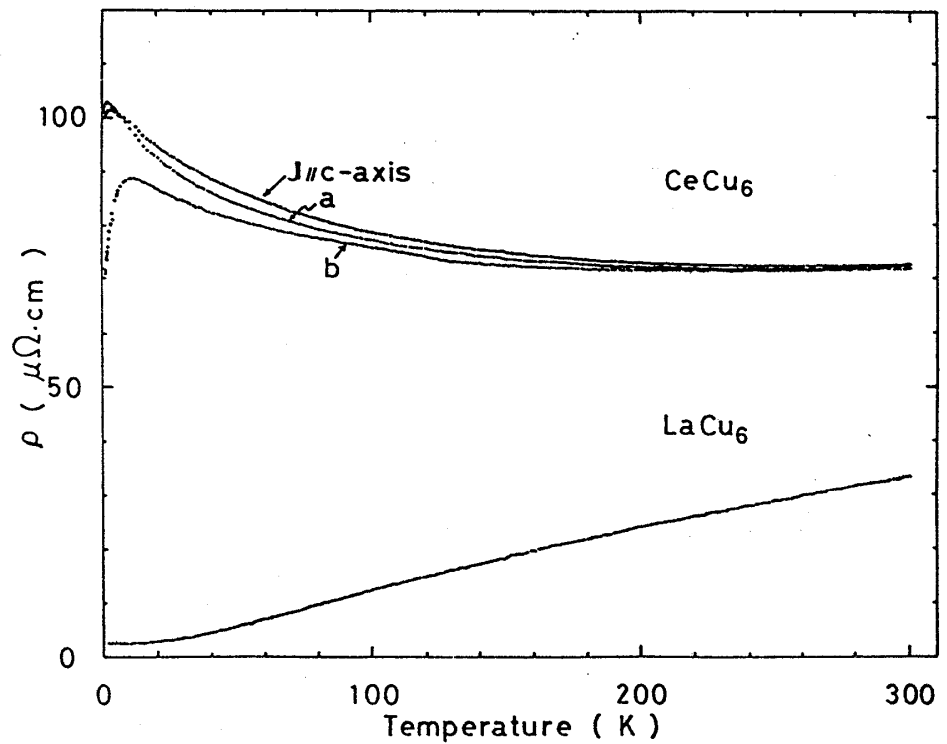
第7図
CeCu₂Si₂ と LaCu₂Si₂ の
電気抵抗の温度依存性



第8図
CeCu₂Si₂ の超伝導遷移

(3) CeCu₆

(orthorhombic) の帯
磁率は Curie-Weiss 則
に従うが異方性があり、
従って ρ_p が異なる。 =
の異方性は電気抵抗に
も反映して 112, 第9
図に示すごとく電流を
流す方向により差異が
現われる。 = の CeCu₆
の電気抵抗も CeCu₂Si₂
と同じく Kondo 効果



第9図 CeCu₆ と LaCu₆ の
電気抵抗の温度依存性。

が起きていることが一見で分り、比熱の γ は $1000 \text{ mJ/mole} \cdot \text{K}^2$ 程度の大至れことが推定される。特に注目し得るのは約 10K 以下の電気抵抗の急激な減少であり、 0.7K まで磁気秩序状態がなれことを帯磁率の測定から確かめられているので CeCu_6 は CeAl_3 で見出された Kondo Lattice の形成が起きたと思われ。電気抵抗の減少する温度、つまり、抵抗の山も異方的である。

以上のことと、Ce化合物の Dense Kondo 効果は高温の常磁性状態では dilute 系に延長にあると考之れられたことが、全率固溶系 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Al}_2$ ($x=0\sim 1$) の電気抵抗と帯磁率の測定から明らかになった。低温では物質により様々で、反強磁性 (CeAl_2) や超伝導 (CeCu_2Si_2) 状態が出現した。特に CeCu_6 で見出された現象は CeAl_3 と全く同じと考之れられたが、 CeAl_3 が多結晶であり、これを考慮すると大型な単結晶が育成される CeCu_6 は Kondo Lattice と同じ物理概念をより明確にする好適な物質と考之られ、今後更に究明される。

参考文献

- 1) B. Cornut and B. Coqblin: Phys. Rev. B 5 (1972) 4541
- 2) C. D. Bredl, F. Steglich and K. D. Schotte: Z. Physik B 29 (1978) 327.
- 3) W. Lieke, U. Rauchschwalbe, C. B. Bredl, F. Steglich, J. Aarts and F. R. de Boer: J. Appl. Phys. 53 (3) (1982) 2111.