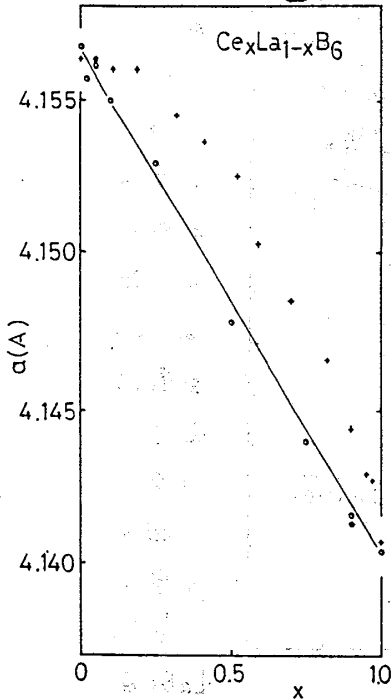


CeB₆のCe-希釈効果

図1.



東北大理、佐藤憲昭、国井暁、糟谷忠雄

北大理、毛利信男

物性研、永野弘、住山昭彦、小黑勇

アルバート大、S. B. Woods

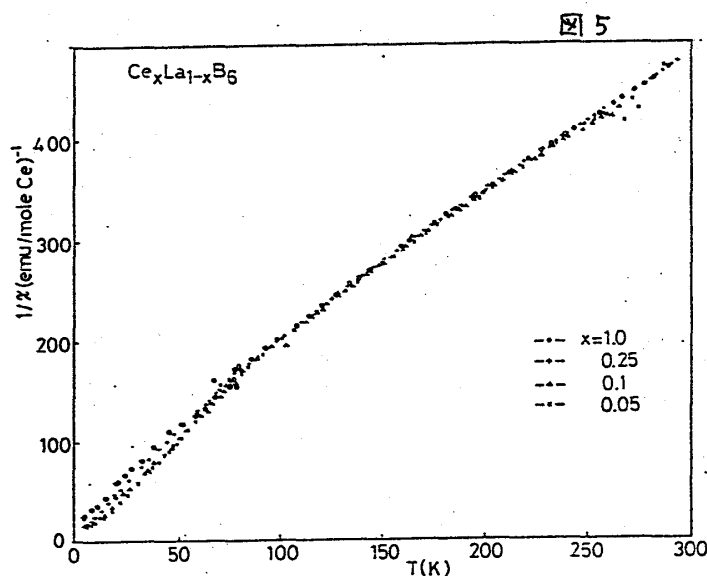
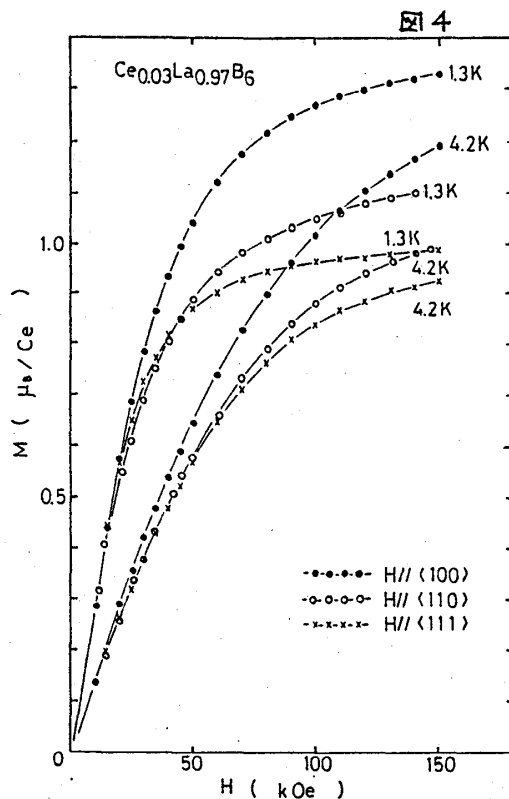
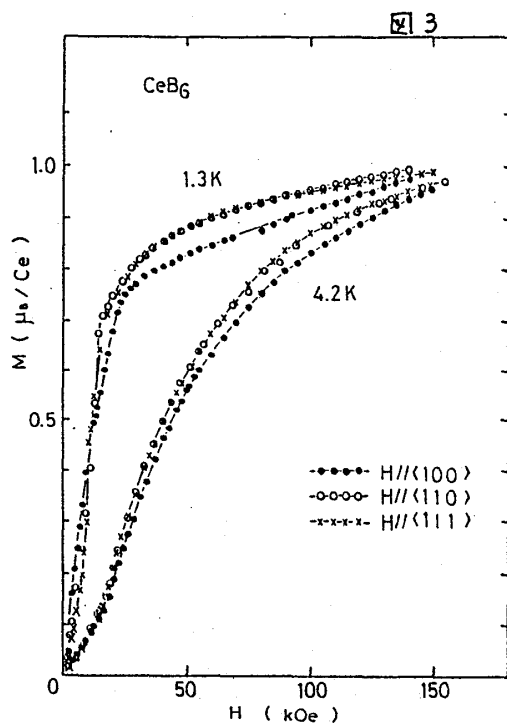
まず始めに、 $Ce_xLa_{1-x}B_6$ の格子定数の x 依存性をみてみたい。図1の丸印が我々のdataで(○は単結晶、●は焼結体)+印はAYVASOVら¹⁾の多結晶によるものであって、このくい違いは、非常に大きなものである。(Ce-La)B₆系では、直線的に変化するの合理的である。また後で示すように、我々の実験結果は、Göttingenグループのものとは本質的に異なるが、 $Ce_{0.03}La_{0.97}B_6$ についてElectron Probe Micro-analyzerで分析した結果、Ceが均一に混合している事が確かめられた。

$Ce_xLa_{1-x}B_6$ 系の磁気相図は、前回の研究会でも報告した。

(図2参照) $Ce_{0.75}La_{0.25}B_6$ において、零磁場ではphase IIは存在しない。 $Ce_{0.5}La_{0.5}B_6$ では、磁化及び磁気抵抗で見ると図のようなphase I-IIの境界しか見つかっていないが、低温では、phase IIも存在しているかも知れない。(零磁場の電気抵抗には、1.8 K付近に山がある)中間相のphase IIは、今だにはっきりとしないが、現在までに、2つのモデルが提唱されており、それらは、結晶場のレベル・スキームを全く逆に考えている。 CeB_6 のphase I-IIの境界には、低温側から $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ の順で、小さな異方性がある事がわかった。

CeB_6 で以前から大きな問題となっていたのは、結晶場の基底状態は何か、という事である。 LaB_6 中にCeをdiluteに入れた系では、Felschによると²⁾Doublet(Γ_7)

が基底状態で、370 K上にQuartet(Γ_8)が存在するとされていた。しかし、我々は次に示すように、これとは全く逆の立場をとる。 CeB_6 の磁化過程は、図3にみられるように、1.3 Kの高磁場において(phase II)、小さな異方性しか示さない。CeをLaで希釈していくにつれて、磁場が $\langle 111 \rangle$ 方向では、あまり変化がないのに対して、 $\langle 100 \rangle$ 方向では磁化はどんどん伸びていき、最もCeの薄い $Ce_{0.03}La_{0.97}B_6$ では、図4のように、非常に異方的である。1.3 K, 150 kOeで $\langle 100 \rangle$ 方向で約1.3 μ_B/Ce , $\langle 111 \rangle$ 方向で約1 μ_B/Ce である。ここでもDoubletが基底状態であるとする $\langle 111 \rangle$ 方向が容易軸で $\langle 100 \rangle$ が困難軸となり実験と矛盾する。Quartetを基底状態としsplittingの大きさ Δ を $\Delta \sim 500$ Kとし、結晶場とZeeman項のみを考えて計算すると、定性的には一致するが、定量的には、約3割計算結果の方が大きくなる。この違いを、今の計算で



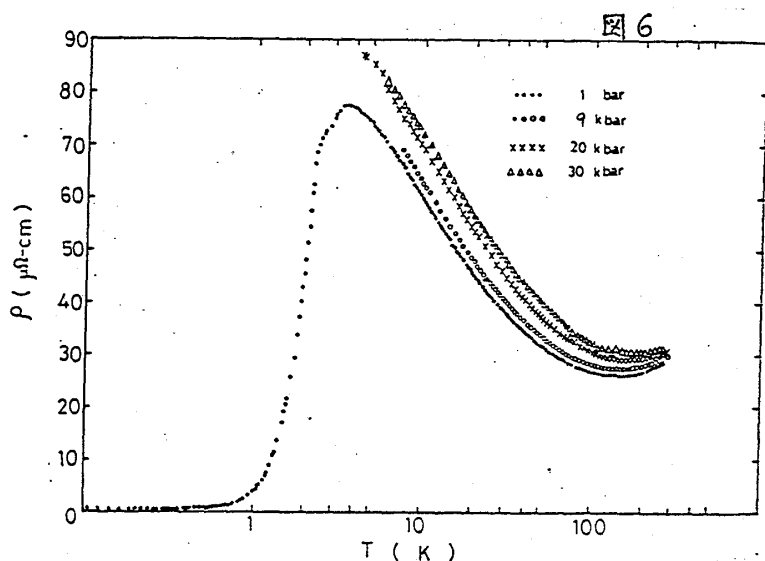
無視している Kondo 効果に帰着するには $T_K \sim 1$ K とした時、無理があるように思われる。しかし、定性的には Quartet 基底状態と考えてよいであろう。

図5に逆帯磁率の温度変化を示した。LaB6反磁性が

補正されている。Ceが25%以上において、CeB6と全く同じである事は、以前に報告したが、これはCe5%の dilute な系でも同様であって、非常に興味深い。(但し、低温側で濃度依存性が存在する。) CeB6の大きな常磁性キュリー温度($\theta_p \sim 60$ K)は、Ce間の交換相互作用によるのではなく Kondo 効果によると考えられるが、定量的に説明するには致っていない。また Felsch の data には、Doublet を基底状態とした時に特徴的である 100 K 付近

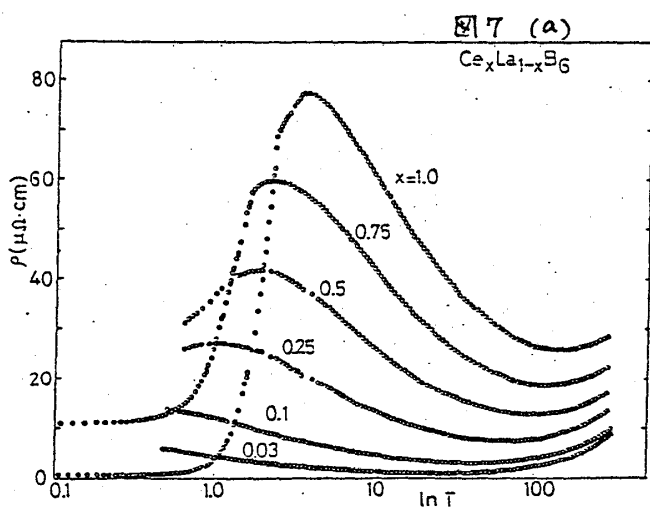
のふくらみ(勿論、 Δ の大きさに依存するが)があったが、我々の data には見られない。

次に CeB6 の電気抵抗の圧力効果について言及したい。図6は、4.2 K から室温までの電気抵抗の常圧、9 kb, 19.5 kb, 30 kb における温度変化である。T_Kが増加しているのがみられる。Ceに対しては、 $g_J = 6/7$ であるから $M = -(g_J - 1)J\vec{S} \cdot \vec{e}$ とした時、 $J > 0$ 、つまり原子内フーロン交換相互作用でも Kondo 効果は起こり得ると考えられるが、実験から、CeB6でも3dの dilute Kondo 効果と同じく、mixing によって引き起こされていると考えの方が自然であろう。(勿論、理論的に各々のメカニズムについて圧力効果を評価しなければ断定的には言えないが、実際上不可能であろう。) また、5 kb の加圧によって phase I-II の転移点は約 0.02 K 上昇し、逆に phase II-III の転移点は約 0.07 K 下降する。これは、phase I, II は、各々 mixing interaction が

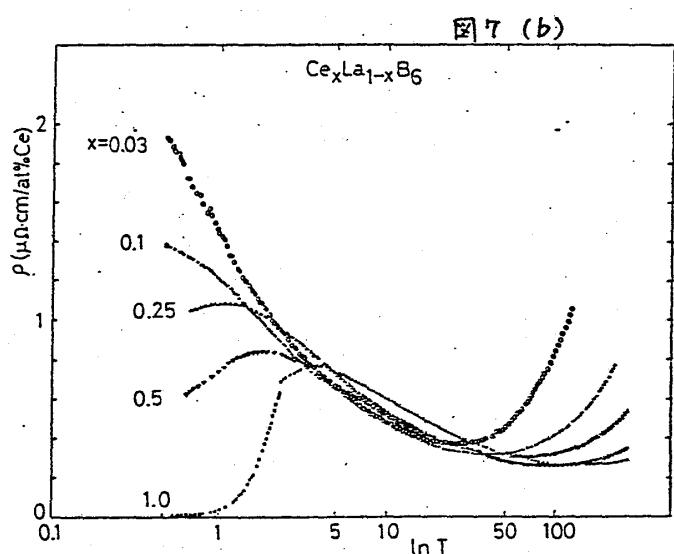


dominantで、phase IIIでは、原子内
フーロン交換相互作用が dominant
であり、さらに mixing inter-
action の方が、圧力に対して、よ
り敏感であると考えれば、少なく
とも、定性的には、理解できるよ
うに思われる。

さて次に、dilute Kondo系から
dense Kondo系への、つながりを見
てみたい。(図7(a)及び(b)を
参照。) 図7(a)において、 $\text{Ce}_{0.03}$
 $\text{La}_{0.97}\text{B}_6$ の $T_K \sim 1\text{K}$ から CeB_6 の $T_K \sim 10\text{K}$

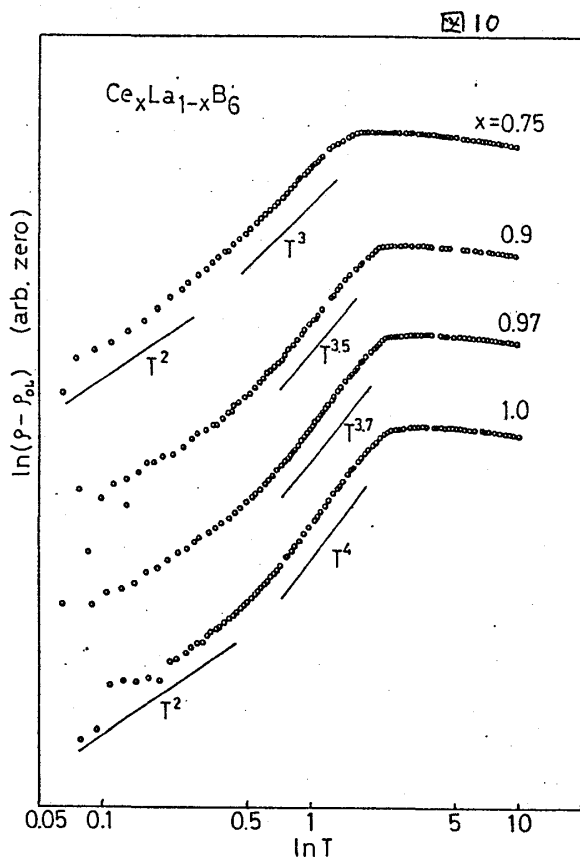
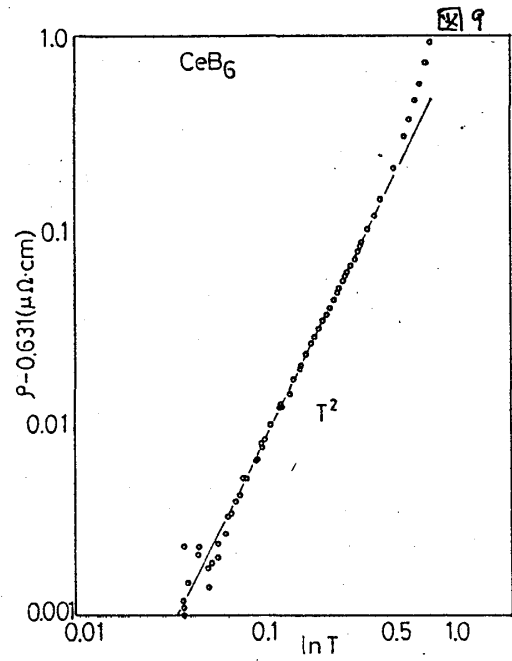
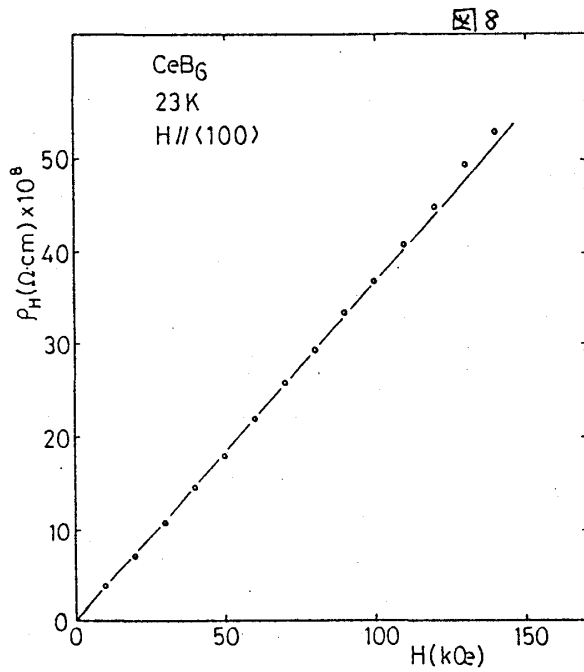


まで連続的に T_K が増加しているように見
える。ここで T_K は、 $\rho - \ln T$ プロットの変
曲点で与えられるとした。このグラフの
たて軸を at%Ce に換算すると図7(b)のよ
うになる。 $\text{Ce}_{0.03}\text{La}_{0.97}\text{B}_6$ のユニタリ一極限
抵抗 ρ_0 は、 $3(\mu\Omega\text{-cm/at\%Ce})$ の程度であるが
Ceが10%になると半分程度に激減する。
さらにCeを濃くしても変化はあまりなく、
Ceが50%以上では殆んど一定である。



$\text{Ce}_{0.03}\text{La}_{0.97}\text{B}_6$ と CeB_6 の磁気抵抗をみると
ほぼ同じ磁場で Kondo 状態が壊されてい
る事から、 T_K が10倍も異なるというのは
考えにくい。(但し、 CeB_6 では phase III, II の領
域であるから単純な比較はできないが)
この事から、 CeB_6 でも Ce 3%と同程度の
 T_K をもち、更に ρ_0 も同じであるが、温度
が T_K に近づくにつれて、相互作用あるい
は、coherenceが発達してきて、(これは、
帯磁率の4.2KにおけるCe濃度依存性から
わかる)、抵抗が上昇しなくなる、と解釈
する事ができる。

図8に、ホール抵抗の磁場依存性を示した。低磁場(15kOe以下)では、既に報告したよう
に、磁場に linear で、4.2Kから室温まで殆んど温度変化しない。140kOeまでの高磁場にお
いても、磁場に対して linear で 約10K~50Kの測定温度範囲で一定である事がわかった。
この事から、電気抵抗や熱起電力には、明らかに Kondo 効果がみられるのに対し、ホール



効果には、Kondo 効果の影響は全く見られない事がわかった。

以上は高温側の *incoherent* Kondo 状態についてであるが、最後に低温の *coherent* Kondo 状態について述べる。図 9 は $\ln(\rho - \rho_0) - \ln T$ プロットであるが、 $\sim 36 \text{ mK}$ から $\sim 0.35 \text{ K}$ の間で T^2 則が成り立つのが見られる。*impurity* (La) を増加していくと、係数 A ($\rho = \rho_0 + AT^2$) は増大していくが、残留抵抗を零に外そうしても A は有限な値に残る事から、完全に *pure* な CeB₆ でも T^2 の項が存在すると期待される。CeAl₃ の $A \sim 35 (\mu\Omega \text{ cm/K}^2)$ に対し、CeB₆ では $A \sim 0.86$ と、だいぶ小さくなっている。さらに高温域では、図 10 にあるように、CeB₆ では T^4 依存性を示し、*impurity* が増加するにつれて T^3 に移行する。同じ温度領域で比熱が T^3 則を示す事を考え合わせると、反強磁性マグネンによる散乱であると解釈される。

references

- 1) Ayvasov et al. Phys. Met. Metall. 48 (174-176) (1980)
- 2) Felisch Z. Physik B29 (211-222) (1978)