

1. 緒言

阪大強磁場は最近より広く内外の研究者に利用されるようになり、数多くの研究成果が得られつつある。本稿ではこれらの中から科学研究費「金属間化合物の基礎磁性」にふさわしい研究課題をまとめて報告する。登場する物質は希土類、およびウラン化合物であるが、これを3課題にわけ、(1) GdB_6 、 SmB_6 におけるdisordered state (2) YbB_{12} における磁場誘起半導体-金属転移、および(3) 重フェルミオン系 $CeCu_2Si_2$ 、 URu_2Si_2 における強磁場磁化とする。(1)、および(2)は東北大学糟谷グループとの共同研究であり、(3)は西ドイツのSteglichグループおよびオランダのMydoshグループとの共同研究で得られたものである。

2. GdB_6 、 SmB_6 におけるdisordered state

この2つの物質はいずれも B_6 クラスターを1個の負イオンと見た場合にCsCl型の結晶構造をしている(図-1)。ここで GdB_6 は Gd^{3+} が $8S$ を基底状態とする事から磁気異方性は極めて小さく、また最近接交換相互作用 J_0 が次近接 J_1 の4倍以上あってスピン系はいわゆるG-型の単純反強磁性配列をするものと思われる。当然ながらこれに磁場をかけると典型的な反強磁性磁化曲線が期待される。これは帯磁率 dM/dH_0 で見れば $H_c=2H_E$ (H_E は部分格子間交換相互作用磁場)まで一定でそれ以上でゼロになる、という形になるはずである。ところが図-2に示すように大筋はこれでよいものの、その磁化途上で2つの小さなピークが発見された。¹⁾ 試料は単結晶を粉末化したものを用いている。このピークは相転移によるものとするのは無理で、解析の結果図-3のように B_6 クラスター位置にGdが入れ換るdisordered stateが結晶中に1%程度存在するものとして理解された。ここでType-Iは入れ換った B_6 が遠くにある場合、Type-IIはすぐそばにある場合である。このGdはまわりの2部分格子からの分子場を受け、系全体が $2H_E$ に近い磁場で飽和近くになるとこの局所場が外部磁場より弱くなってスピン反転をする。この時に dM/dH_0 に小さなピークが出るというわけである。2つのピークはType I、Type IIの局所場を計算して求めた位置とそれぞれよく一致する。

このdisordered modelを SmB_6 にも導入する事でこれまで全く理解出来なかった数多くのESR シグナルの主要部を一気に理解出来る。²⁾ ポイントはdisordered Sm はそれ自身で電荷中性度を大きく破壊しているので、色々な電子捕獲状態が実現する。これには2通りあり、4f軌道に深く入る型、外側にゆるく結合してSi、Geにおけるドナー型となるものとがある。これらのすべての可能性をまとめると図-4のようになる。例えば2-3状態とは4f軌道に2個、ドナー状態に3個の電子が附加されたものという意味である。これらの中でESR 出来るべきものほとんどが図-5に示すような吸

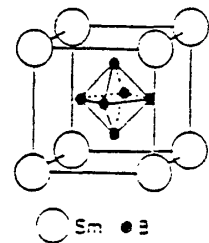


図-1
 SmB_6 の結晶構造

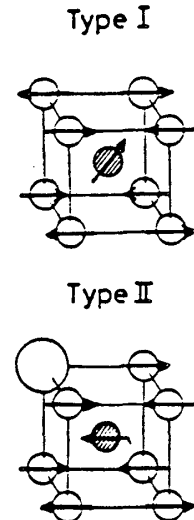


図-3 2種のdisordered states

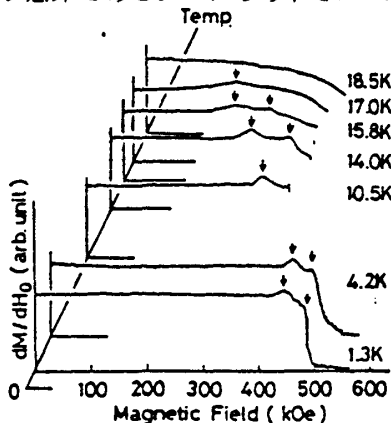


図-2 GdB_6 の dM/dH_0

		Trapped Electron Number						
4f Trapped Electron Number	0	Sm^{3+}	0-1	0-2	0-3	0-4	0-5	0-6
	1		$Sm^{2+} (f^7)$	1-1	1-2	1-3	1-4	1-5
	2			$Sm^{1+} (f^6)$	2-1	2-2	2-3	2-4
	3				$Sm^0 (f^5)$	3-1	3-2	3-3
	4					$Sm^{-1} (f^4)$	4-1	4-2
	5						$Sm^{2-} (f^3)$	5-1
	6							$Sm^{3-} (f^2)$
		Total Charge						
		-3	-2	-1	0	-1	-2	-3

図-4 附加された電子状態

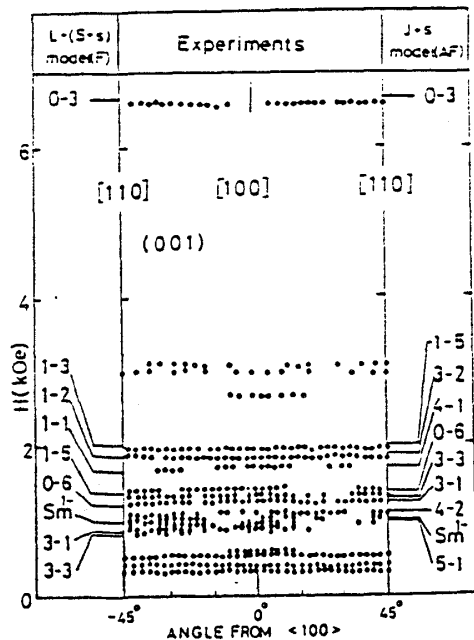


図-5 SmB_6 のESR、磁場は(001)面

収として確認されている。ただしドナー電子の結合モデルにまだ若干不明な点がある。左側に $L + (S + s)$ とあるのはラッセル・サンダース型結合、つまりドナーの s が $4f$ の s と結合し、更に L と結合するというもので、右側は $4f$ の J を破る事なく $J + s$ となるモデルである。後者が自然であり、実験も大体これを支持しているが逆の方がよい部分もある。

3. YbB_{12} における磁場誘起半導体-金属転移

この物質は槽谷グループで発見されたユニークな化合物の代表例である。結晶構造は図-6のように B_{12} = クラスタを1個の負イオンと見ればNaCl型構造と同じである。これが示す重要な物性はフェルミ面上にバンドギャップをもつ半導体で、この種の化合物では SmB_6 でのみ知られている例外的なものである。電気的測定ではギャップエネルギーが $\Delta_1 \sim 50\text{K}$ 、 $\Delta_2 \sim 100\text{K}$ と2つあるようなデータが得られているがその詳細は不明であった。

これに強磁場をかけるとその電気抵抗 $\rho(T, H)$ は著しい負の磁気抵抗を示し、30~40T (テスラ) 付近ではほとんど金属化してしまうことが見出された。図-7に $\rho(T, H)$ を磁場ゼロでの値 $\rho(T, 0)$ で割った量が示されている。また磁化測定では図-8に見られるように50T 以上で急にメタ磁性的な磁化が現われる。³⁾

これらを統一的に説明するのに図-9のようなバンドモデルが有益である。磁場ゼロでは約50K のバンドギャップをもつ構造に加えてフェルミ準位から約100Kのギャップをもつ $4f$ 軌道 (g 値から見て Γ_7 が適当である) のDOSの大きなバンドがある。磁場を加えることで Γ_7 は分裂を始め、先ず Δ_1 を押しつぶして系を金属化し、ついで Γ_7 の分裂した一方のバンドがフェルミ準位より高くなる事で系が磁化して行く。なおこのようなモデルは SmB_6 でも用いられると思われるが効果は非常に小さく、50T で20% 程度の負磁気抵抗が見られるのみであった。

図-9 YbB_{12} のバンド構造模型

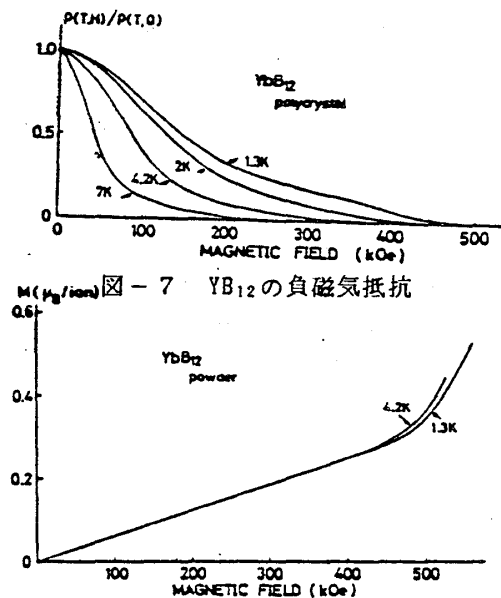


図-7 YbB_{12} の負磁気抵抗

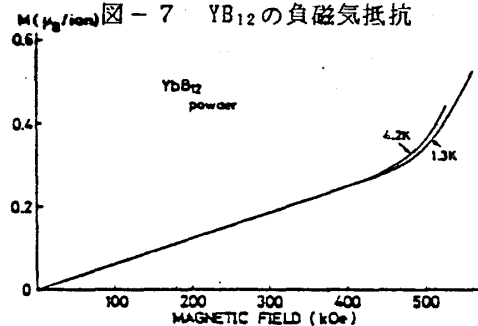


図-8 YbB_{12} の強磁場磁化

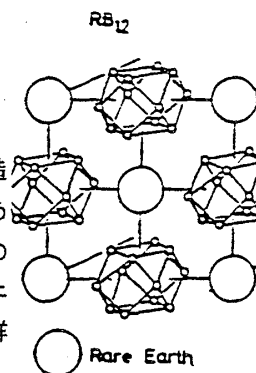
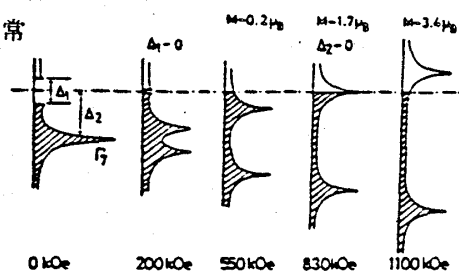


図-6 YbB_{12} の結晶構造



4. 重フェルミオン系 CeCu_2Si_2 、 URu_2Si_2 の強磁場磁化

CeおよびU化合物には低温で電子比熱が通常の金属の100倍以上も大きな物質のことが見出され、近年にわかに注目されている。現象のキーワードは高濃度近藤状態であり、これが何らかの原因によりコヒーレントな結合を生み、有効質量の非常に大きいいわゆる重フェルミオン系が形成されるものと言われている。しかしまだ理論の核心部は構成されていない。これらの物質は1K以下で超伝導になるものもかなりあり、興味を呼んでいる。

これらの物質群の中で典型的な物質の一つである CeCu_2Si_2 について西ドイツのSteglich教授⁴⁾、そして URu_2Si_2 についてオランダのMydosh教授⁵⁾から磁化過程の研究依頼が寄せられたのでこれらの研究を開始した。今回は中間報告の形となるが、早くもきわだった物性が現われており、今後の進展が期待される。 CeCu_2Si_2 、 URu_2Si_2 は同じ結晶構造を有している。CeおよびUのみを書き出すと図-10のような正方対応構造となり、Ceは磁気モーメントをもたないがUの方は T_N (17.5K)以下で1/100ボア磁子と言う異常に小さいモーメントで反強磁性となる。低温での磁気異常はCeで $\sim 10\text{K}$ 以下、Uで $\sim 50\text{K}$ 以下で生じ、これらの温度に対応する相互作用エネルギーがあるものと思われる。

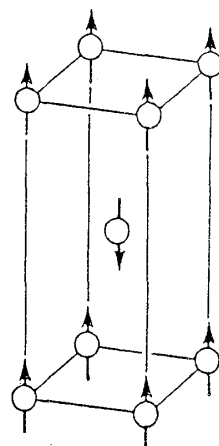


図-10

URu_2Si_2 における
U原子の構造と T_N
以下の磁気構造

CeCu_2Si_2 の磁化曲線を図-11に示す。これは粉末試料であるが60T付近で若干上にそって来るが10Kに対応する磁場で特に大きな異常も見られないのに対し、 URu_2Si_2 では50Kに対応する磁場 $\sim 40\text{T}$ で大きな2段ステップ磁化が生ずる(図-12)。但し後者の物質は単結晶で磁場はc軸に平行な場合である。これに垂直な方向ではほとんど磁気モーメントは生じない。つまり大きな異方性がある。 URu_2Si_2 の異常なメタ磁性はつぎのように理解すべきであろう。50Kに対応するエネルギーで電子系は重フェルミオン系を作り始め、局在f又はd電子は一部がバンド化して動き出す。ごくわずかの局在成分は反強磁性を構成する。しかし磁場がこの電子系を破壊してしまうと局在電子系は大幅に復活し、Uイオンに対応する大きな磁気モーメントを生ずる。このような事は CeCu_2Si_2 でも生じ得るのだがそれはもっと低温で、そして単結晶を用いることではっきりするのかもしれない。これは今後の課題である。また異方性が URu_2Si_2 はIsing的、 CeCu_2Si_2 はXY的であるのにも注意したい。次元の差が強磁場下のモーメントの出方に影響している可能性もある。

文 献

- (1) K.Sugiyama et al., J.Phys.Soc.Jpn. 55(1986)37.
- (2) T.Uemura et al., J.Phys.Soc.Jpn. 55(1986)11月号
- (3) M.Date et al., J.Mag.Mag.Mat. 54-57(1986)627
- (4) 下畑他、日本物理学会 1986年秋分科会講演(29pP1).
- (5) 杉山他、日本物理学会 1986年秋分科会講演(29pP10).

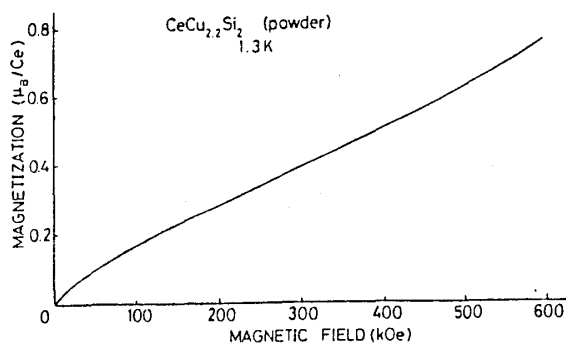


図-11 CeCu_2Si_2 の磁化曲線

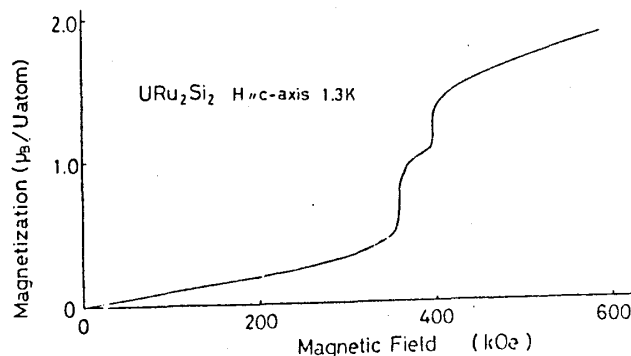


図-12 URu_2Si_2 の磁化曲線