

希薄系（インコヒーレント）近藤効果で有効なエネルギー尺度であった近藤温度 T_K 、すなわち局在スピンの消失する温度は、Ce 化合物の場合、結晶場効果により 4f 準位は分裂しているので T_K は温度とともに変化し、低温でスピンの基底状態に落ちついた時には、局在スピンを担う Ce の結晶構造の周期性に伴うコヒーレンス効果によって新しい状態に至るため、 T_K はエネルギー尺度ではあるが物性を明確に特徴付ける特性温度でなくなってしまう。新しいコヒーレント状態が開始する特性温度を T_{coh} と呼ぶことにし、コヒーレント状態における物性の現状を、最近我々が発見した $CeCu_6$ を中心にして報告する。

1)

§ 1 Ce 化合物の分類と結晶場効果

Ce (4f¹) の 4f スピンの局在度、言い替えれば 4f 電子と伝導電子の混成の度合により表 1 に示すように Ce 化合物は分類される。この中で (1) と (2) の物質群では混成の度合が強いため、4f 準位の結晶場分裂はない。(3) 以上は明瞭となるが、 $CeCu_6$ の場合は帯磁率の異方性、ショットキー比熱の存在から、二重縮退が三つに分裂した準位間隔、 Δ_1 と Δ_2 はそれぞれ 70 K と 150 K 程度と予想していた。²⁾ 最近、非弾性中性子散乱の実験が吉沢氏ら³⁾ によって行われ、6.5 meV と 12 meV 付近にゆるやかなピークが見いだされたが、 $CeCu_2Si_2$ と比較すると、その強度は極めて小さい。吉沢氏らは更に $CeCu_6$ の低温比熱係数が磁場で著しく減少する実験結果をふまえて、磁場を印加する実験を行った。その結果、中性子散乱のセントラルピークが磁場で著しく減衰することを見だし、セントラルピークが、比熱係数と関連していることを実証した。

表 1 Ce 化合物の分類

性質	物質名	γ (mJ/mol.K ²)
1) 過渡	CeRu ₂ , CeRh ₂	10
2) 過渡と局在	CeSn ₃ , CePd ₃	40
3) コヒーレント近藤系	CeCu ₆ , CeAl ₃ CeCu ₂ Si ₂	1000~2000
4) インコヒーレント近藤 と磁気秩序	CePb ₃ CeIn ₃ , CeAl ₂ CeB ₆	100~200
5) その他		

§ 2 コヒーレンス効果

(1) 電気抵抗

表 1 に掲げた Ce 化合物の混成効果の様子は、 $CeRu_2 \rightarrow (CeSn_3, CePd_3) \rightarrow (CeCu_6, CeCu_2Si_2) \rightarrow (CePb_3, CeIn_3, CeAl_2)$ と見てゆくと理解しやすい。図 1 に Ce 化合物の電気抵抗の温度依存性を示す。

さて、以前我々は $Ce_xLa_{1-x}B_6$ や $Ce_xLa_{1-x}Al_2$ 系の x の全濃度で近藤効果が起きていて、 $Ce_xLa_{1-x}Al_2$ では 100 K から 300 K の高温領域での電気抵抗の $-\ln T$ の傾きや帯磁率の θ_p が x によらずほとんど同じであることを報告した。この実験結果は Ce 化合物の場合、 x の全濃度で Kondo サイト間の相互作用は弱く、独立して振舞っていると考えて良いことを明らかにした。これは、山田、半沢、芳田氏⁴⁾によって、Ce 化合物の場合、6 重の大きな縮重度によって T_K が大きくなり、RKKY 相互作用を抑制することから理論的な説明が与えられた。しかし、 $Ce_xLa_{1-x}Al_2$ 系などでは、やはり低温になると RKKY 相互作用が打ち勝ってしまい、反強磁性相になるため、低温での近藤状態の性質を抽出することが困難であった。最近発見された $CeCu_6$ は磁気秩序がなく、そのうえ大型良質単結晶が育成できるため、実験を極めて容易にした。図 2 は住山、小田、永野氏と共に行った $Ce_xLa_{1-x}Cu_6$ の電気抵抗の濃度依存性であり、(b) 図はフォノン部分を差し引いた磁気的な電気抵抗 $\rho_m = \rho_{Ce_xLa_{1-x}Cu_6} - \rho_{LaCu_6}$ を (c) 図は Ce 当りの磁気的電気抵抗をしめす。

図 2 (c) を見ると、Ce の濃度 x の増大と共に希薄系での $320 \mu\Omega \text{ cm}$ の残留抵抗値を示さずに、Ce 濃度 x にほぼ比例して減少するのは近藤サイトに新しい相互作用が生まれ、あたかも、二つの近藤サイトが一つに、三つが一つに見なされるようなコヒーレンス効果が x の増大と共に働き、結晶全体にコヒーレンス効果が波及したのが $CeCu_6$ であると理解される。コヒーレンス効果の微視的描像は今後の理論の発展をまたねばならないが、残留抵抗値が図 3 (a) に実線で示した Nordheim の法則 ($\alpha x(1-x)$): ただし $\alpha = 320 \mu\Omega \text{ cm}$ は希薄系のユニタリティリミットから決定された。) の曲線に良く一致することに注目しなければならない。つまり、 $x(1-x)$ は格子点に Ce と La の両原子がばらまかれる不規則度を表し、互いに異なるイオンの作る周期性からの偏差に電子散乱が比例していると思なされる。つまり、 $CeCu_6$ のコヒーレント状態は f 電子が完全に遍歴状態となったことを意味するかもしれない。

なお、 $CeCu_6$ は約 0.15 K 以下で電気抵抗に T^2 依存性が見いだされ、その時の $\rho = \rho_m + AT^2$ の係数 A は電流方向により異方的であるが平均すると $87 \mu\Omega \text{ cm} / K^2$ であり、これを通常の Cu や Al の $10^{-8} \sim 10^{-7} \mu\Omega \text{ cm} / K^2$ と比較すると極めて大きく、いわゆるヘビーフェルミオンを形成していることが分かる。ここで注目したいのは、 ρ_m や A が orthorhombic の結晶に流す電流 J の方向によって異方性があるが、 A / ρ_m は $J // a, b, c$ 軸に対し 143/18, 41.6/5.7, 76.3/11 で約 7.5 の一定値を示すことである。

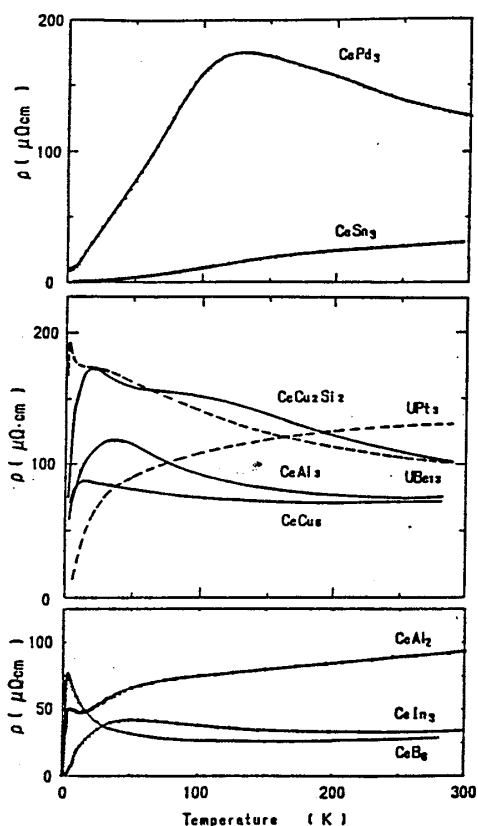


図 1. Ce 化合物の電気抵抗

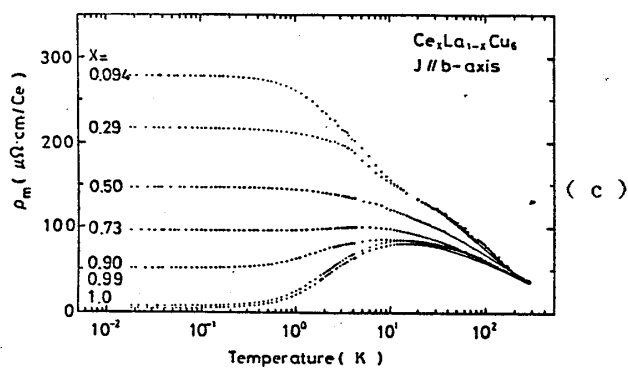
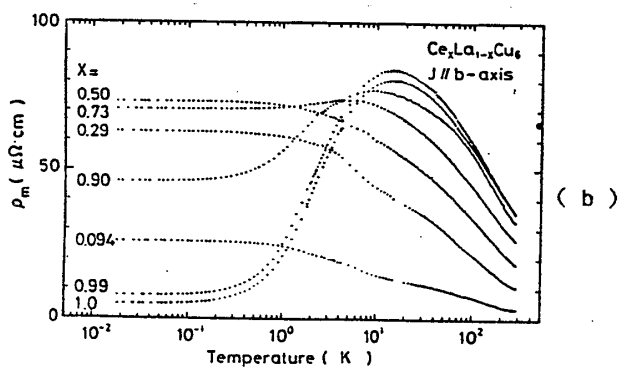
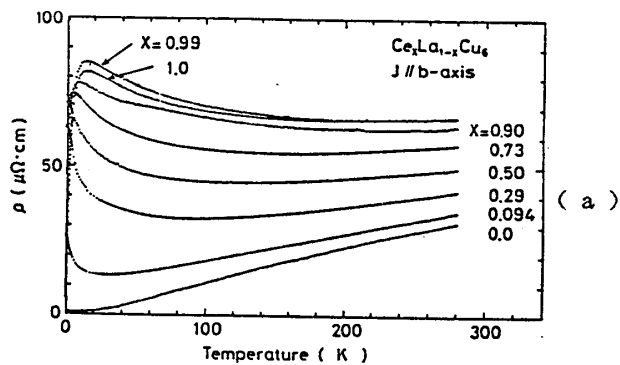
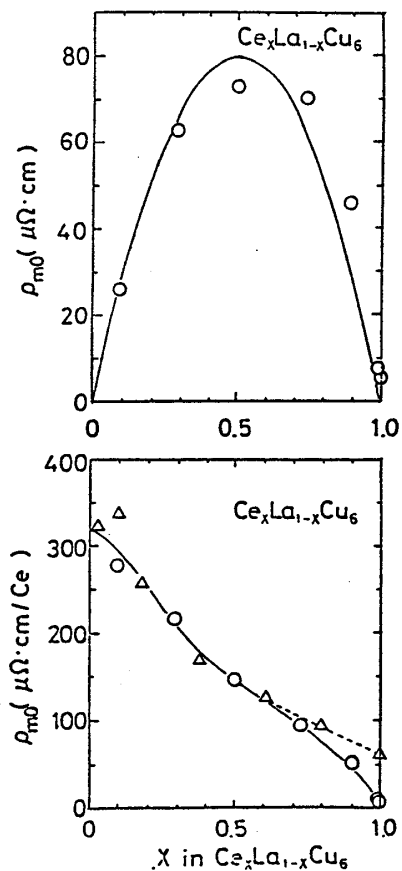


図 2. $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Cu}_6$ の電気抵抗

図 3. $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Cu}_6$ の残留抵抗値

(2) 磁気抵抗

次に磁気抵抗 $\Delta\rho/\rho = \{\rho(H) - \rho(0)\} / \rho(0)$ の温度依存性を図4に示す。近藤効果に特徴的な負の磁気抵抗が数10 Kから出現し、 $\text{Ce}_{0.94}\text{La}_{0.06}\text{Cu}_6$ の $x < 0.7$ では図4(a)に見られるように0.2 K以下では負のまま一定値となる。ところが $x > 0.8$ では約1.5 Kに極小値が現れ、0.15 K以下で正値となる。負から正に変化する温度は印加する磁場によって変わり、 $H < 20 \text{ kOe}$ では0.7 K、 $H > 30 \text{ kOe}$ で0.15 Kとなる。この間の様子を図5に磁気抵抗の磁場依存性で示す。0.07 Kでの磁気抵抗を見ると、20 kOeまで磁気

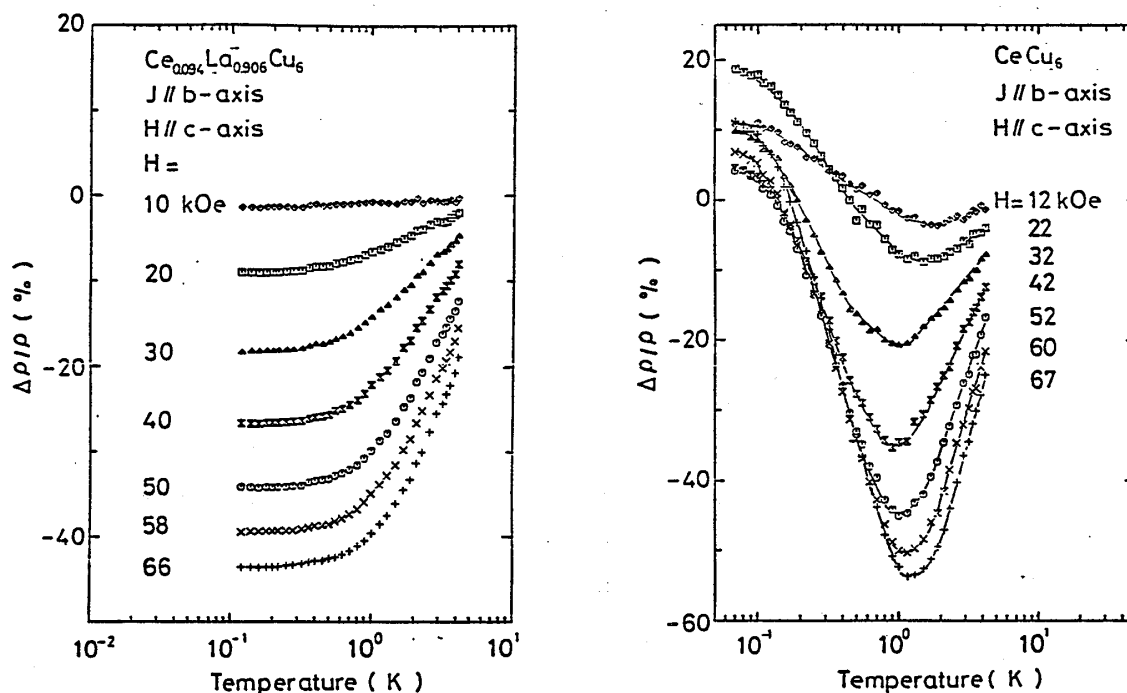


図4. 磁気抵抗の温度依存性

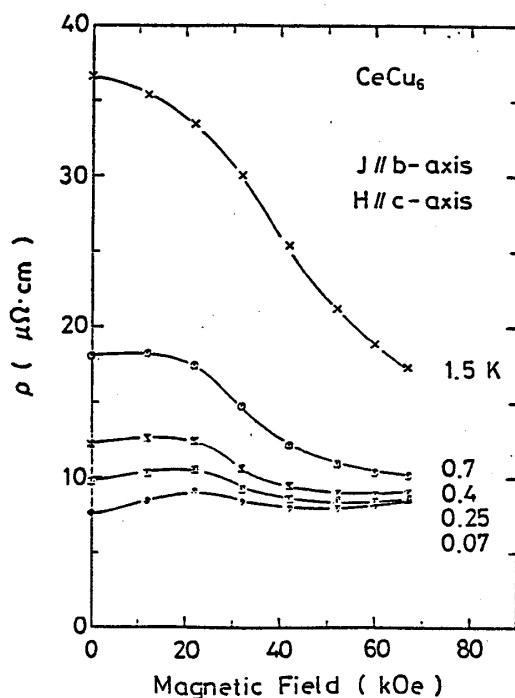


図5. 磁気抵抗

抵抗は増大する。つまり、磁場により抵抗が増すことはコヒーレント状態が磁場で壊されていくことを意味する。更に、20 kOe以上で電気抵抗が減少することは、半ばインコヒーレント状態になったことであろう。実験結果を良く見ると、50 kOe以上で電気抵抗は再び増大している。この増大は、ヘビーフェルミオンのCeCu₆でサイクロtron質量は200~1000 m_eぐらいに分散していて、10 m_e程度のキャリアの磁場によるサイクロtron運動によって通常の磁気抵抗の増加が加算されていると推測している。

(3) 電子比熱係数、帯磁率、PQR、その他

図6と図7にそれぞれ電子比熱係数 C/T と帯磁率の温度依存性を示す。^{1,2)} 1~2 J/mol·K² という極めて大きな値は局在磁気モーメントと伝導電子の結合に起因している。それは、表1の電子比熱係数と対応させることにより理解される。藤田氏らによって測定されたCeCu₆の場合、0.27 Kに電子比熱係数が極大値を持つことに注目したい。図7の帯磁率の温度依存性を見るとキュリー・ワイス則に従って降温とともに増大していた帯磁率は、1 K以下で一定値となるが、磁気不純物のキュリー帯磁率で隠されてしまい、帯磁率にピークがあるかどうかは不明である。

また北岡氏ら³⁾によるPQRの測定でも図8に示すように0.2 K以下で $1/(T_1 \cdot T)$ が一定となり、CeCu₆は上述の電気抵抗、磁気抵抗、電子比熱係数の実験結果を総合すると0.2 K以下でコヒーレント近藤状態になると結論されよう。

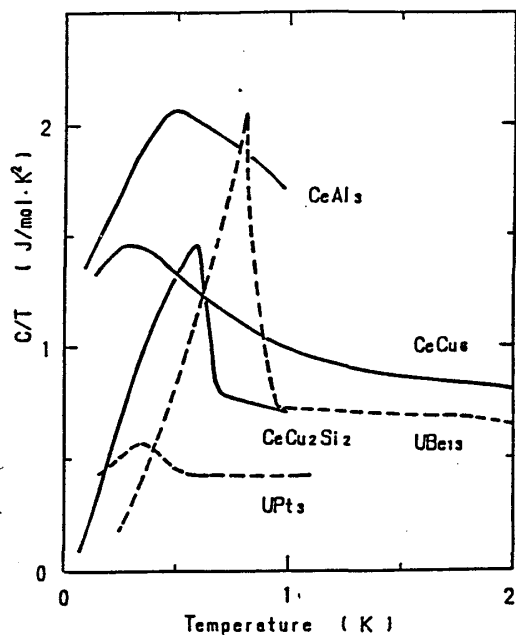


図6. 電子比熱係数

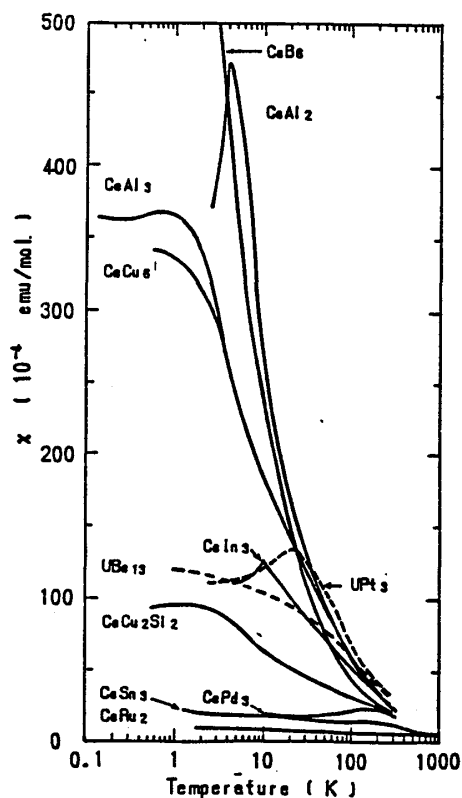


図7. 帯磁率

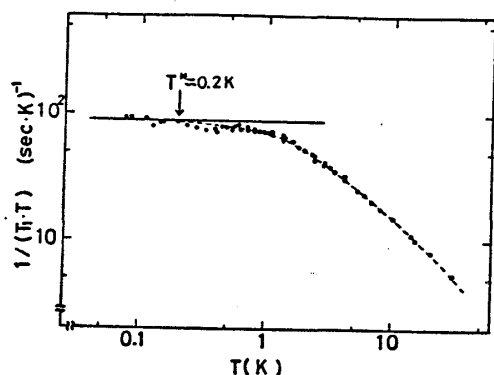


図 8. PQR の $1/T_c T$

なお、 CeCu_6 の熱伝能やホール係数の温度依存性は結晶場による $4f$ 準位の分裂が明瞭な CeCu_2Si_2 や CeAl_2 等と違い、むしろ分裂が明瞭でない。あるいは分裂がないような CePd_3 等の振舞いに良く似ている。また、 $\text{Ce}_x\text{La}_{1-x}\text{Cu}_6$ ($x=0\sim 1$) は orthorhombic 系から monoclinic 系に結晶構造が変わるが、例えば CeCu_6 の場合の構造相転移温度は約 200 K であり、横波の C_{66} モードの 400 K での音速 529 m/sec は、相転移直上で 30 m/sec 以下となり、極めて大きなソフトニングが起きているなど構造相転移の観点からも興味を持たれている。⁷⁾

最後に CeCu_6 の最初の論文を筆者らが昨年の春に発表してから、この一年半の極めて短期間の間にほとんど全ての物性測定を世界に先駆けて行えたのは我国の 15 の研究グループの迅速なご協力と援助の賜であり、深く感謝の意を表します。

参考文献

- 1) Y. Onuki et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 53(1984)1210, 54(1985)304, 1964 and 2804
- 2) T. Fujita et al.: J. Magn. and Magn. Mater. 47 and 48(1985)66.
- 3) H. Yoshizawa et al.: to be published
- 4) K. Yamada et al.: Prog. Theor. Phys. 71(1984)450.
- 5) A. Sumiyama et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 54(1985)877 and submitted to J. Phys. Soc. Jpn.
- 6) Y. Kitaoka et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 54(1985)3686.
- 7) T. Suzuki et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 54(1985)2367.