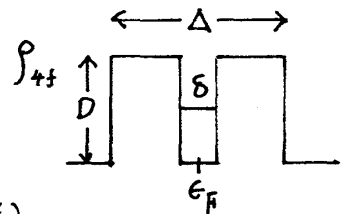


§1 SmB_6

我々は、Floating Zone法で作った単結晶試料を用いて、 ^{11}B 核の核磁気緩和率 ($1/T_1$) の測定を通して、典型的な価数揺動物質である SmB_6 における $4f$ 電子の動的な性質を調べてきた。¹⁾ (図1, 2) $1/T_1$ の温度依存性の特徴は、15 K付近で minimum を持ち高温で activation 型の温度変化を示しながら一定値に近づき、低温ではゆるやかな増加の後やはり一定値をとる。minimum より高温の温度変化は、右図のような中 Δ , gap δ を持った $4f$ バンドの状態密度を仮定すると説明できる。この場合 $1/T_1$ は、

$$1/T_1 = 4\pi \gamma_n^2 A_{hf}^2 \chi \int d\epsilon \{ \rho_{4f}(\epsilon) \}^2 f(\epsilon) \{ 1 - f(\epsilon) \}$$

で与えられ、(A_{hf} : hyperfine field, $f(\epsilon)$: フェルミ分布関数)



$\Delta = 500$ K, $\delta = 50$ K 程度にとると実験結果をよく再現できる。minimum より低温域で緩和を支配している機構については、 Sm の defect 等によって生じた一体の impurity state を考えたのでは温度変化が説明つかず、低温では新たに低いエネルギーの集団的な励起が生じているのではないかと考えていたが、この点を明らかにするために、異なる方法で作成したいくつかの試料について、 $1/T_1$ の温度変化を測定した。(図1) 低温での電気抵抗の値はそれぞれ $66 \Omega \text{cm}$

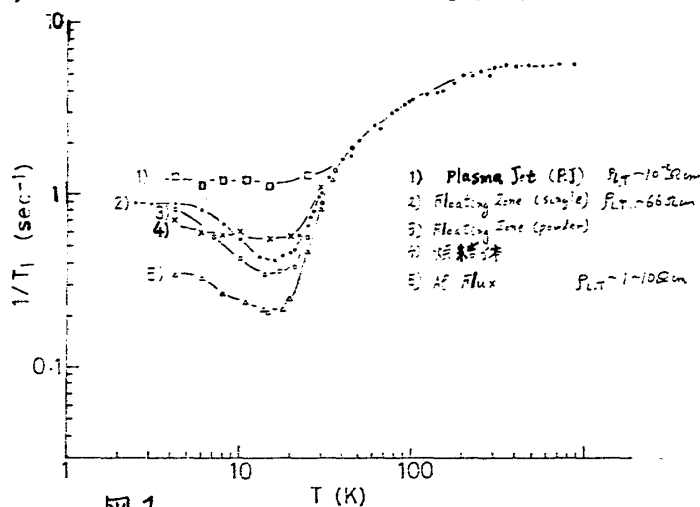


図1

異なる方法で作成した試料における ^{11}B 核の緩和率 (SmB_6)

(Floating Zone²⁾, $\sim 10 \Omega \text{cm}$ (Al Flux⁵⁾)

$\sim 0.01 \Omega \text{cm}$ (P.J.¹⁾) であり、このうち

P.J. 法のは、Hall 係数が正である。

高温ではどの試料も同じような振舞を示すが、低温ではかなりの相異が見られる。抵抗の最も小さい1)では $1/T_1$ は最も大きく minimum を持たない。

5)では $1/T_1$ の値は最も小さいが、minimumはそれほど顕著でなく、2)ではminimumがよりはっきりする。電気抵抗、Hall係数の値から考えて、1)の試料では S_m のdefectが最も多くその回りに S_m^{2+} ができやすくなっており、低温ではこのようなdefectに付随したparamagneticな局在状態が不均一に分布している、これが周囲の ^{13}B 核に温度に依存しない T_1 を与えていると考えられる。実際この試料の $1/T_1$ の振舞は、後で述べるようにYbをdopeした系のそれと類似している。電気抵抗の大きい(defectの少ない)試料ほど、 $1/T_1$ のminimumが顕著になり、低温の値は一度減少した後再び増加するが、このことは、2)の試料で観測されている緩和は、上記のようなdefectに付随したparamagnetic stateによるのではなく、pureな系に固有のhomogeneousな励起によっていることを示唆すると考えられる。核磁化の時間変化の振舞から見て、2)の試料では、1)に比べて $1/T_1$ の空間的な不均一さがずっと小さくなっていることも、この考えを支持すると思われる。

5.2 $(Sm_{1-x}La_x)B_6$ 系

SmB_6 にLaをdopeすると、 S_m の平均価数は2価に近づき、²⁾電気抵抗は、低温までmetallicになる。この系での ^{13}B の $1/T_1$ の温度変化を図2,3に示す。

x が増加すると共に低温の $1/T_1$ は減少し、activation型で増大する温度域が

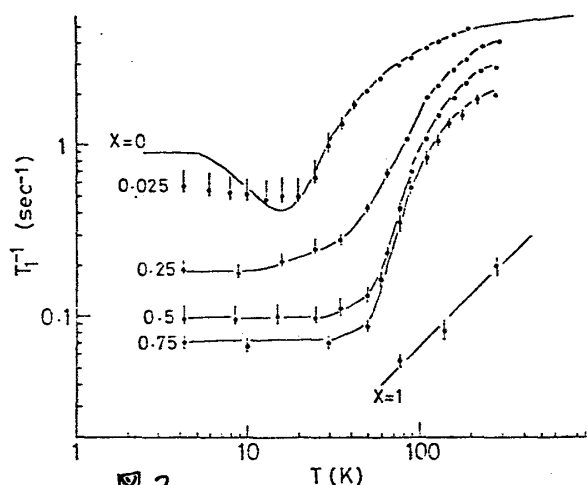


図2

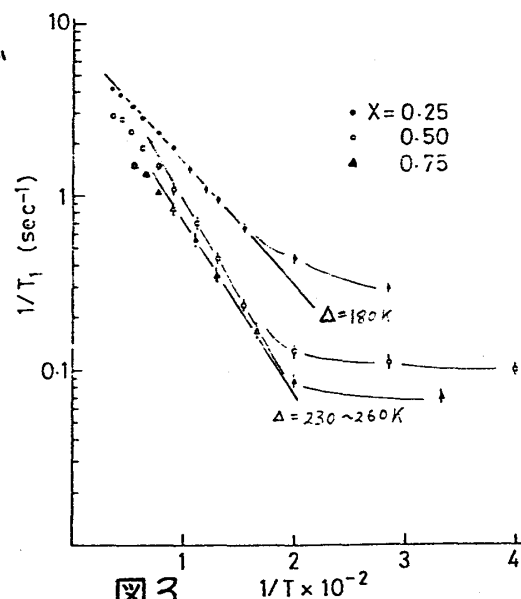


図3

$(Sm_{1-x}La_x)B_6$ 系における ^{13}B の核磁気緩和率

高温側に移る。(図3) La核の $1/T_1$ は La 50%以上で $T_1 T = \text{const}$ の関係を満たし、抵抗も metallic であることから、観測された activation energy は、バンド gap よりむしろ S_m^{2+} の $J=1$ の励起状態に対応すると思われる。La 50%以上での activation energy ($\sim 250\text{K}$) は atomic な L-S coupling の大きさ ($400\sim 500\text{K}$) より小さいが、これは S_m^{2+} の $J=1$ レベルが、 $S_m^{2+} \leftrightarrow S_m^{3+}$ の fluctuation による寿命に相当する中を持つためと解釈できる。低温で $1/T_1$ が示す一定値は、系のランダム性に伴ってできる paramagnetic な状態によると思われる。これが、 x と共に減少することは、 S_m^{3+} の数が減り、magnetic な局在状態が、だまにくくなっているためと思われるが、明確な解釈はまだない。

§3 $(S_{m1-x}Yb_x)B_6$ 系

$S_m B_6$ に Yb を dope すると、 S_m は平均として3価に近づき、低温の電気抵抗は小さくなるが、Yb 50% 程度まではまだ gap が残っているように見える。³⁾

この系における B 核の $1/T_1$ の温度変化を図4に示す。 x の増加と共に $1/T_1$ は増加し、 $x=0.75$ では magnetic order に対応すると思われるピークを示す。この組成では、高温で $1/T_1$ がほぼ $1/T$ に比例して減少するが、これはこの組成では、 S_m^{3+} が局在モーメントを持っていてその緩和時間が伝導電子との exchange によって、Korringa 型の温度変化を示すためと考えられる。

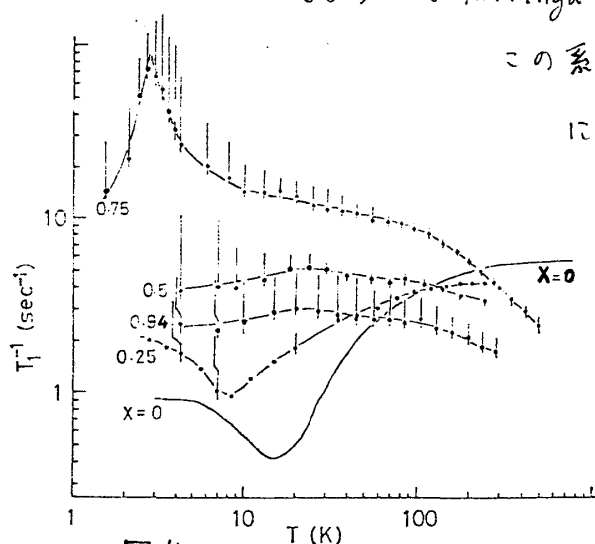


図4
 $(S_{m1-x}Yb_x)B_6$ における "B" の
核磁気緩和率.

この系ではいずれの試料も低温で $1/T_1$ に空間的に大きな不均一性を生じ (図4の縦線はこの分布の目安を示す)、不均一に分布した magnetic な局在状態によって緩和が引き起こされていることを示す。温度を上げると、 $1/T_1$ の分布の中は小さくなるがこれは低温で局在していた4f電子が、動き出すことに対応していると考えられる。

La doped 系を含めて、低温の $1/T_1$ の値は、系のランダムさと強く関係しており、その組成変化の定量的な解析は困難である。

文献

- 1) M. Takigawa, H. Yasuoka, Y. Kitaoka, T. Tanaka, H. Nozaki and Y. Ishizawa : J. Phys. Soc. Jpn. 50 (1981) 2525.
- 2) J. M. Tarascon, Y. Ishikawa, B. Chevalier, J. Etourneau, P. Hagenmuller and M. Kasaya : J. Physique 41 (1980) 1135
- 3) M. Kasaya, H. Kimura, Y. Ishikawa, T. Fujita and T. Kasuya : 'Valence Fluctuations in Solids' ed. L.M. Falicov, W. Hanke and M.B. Maple (North-Holland 1981)