

氏名・(本籍)	さ　　とう　のり　あき 佐　藤　憲　昭
学位の種類	理　学　博　士
学位記番号	理博第　　847　　号
学位授与年月日	昭和59年3月27日
学位授与の要件	学位規則第5条第1項該当
研究科専攻	東北大学大学院理学研究科 (博士課程)物理学第二専攻
学位論文題目	CeB ₆ の磁性と伝導
論文審査委員	(主査) 教　授　糟　谷　忠　雄　　教　授　石　川　義　和 助教授　鈴木　孝

論　文　目　次

第1章 序　論

- §1-1 概　　観
- §1-2 dilute Kondo系の物性
- §1-3 dense Kondo系の物性
- §1-4 問題点と本研究の目的

第2章 単結晶作成と分析

- §2-1 概　　論
- §2-2 Floating zone methodによる単結晶の作成
- §2-3 分　　析

第3章 実験方法

- §3-1 電気抵抗, 磁気抵抗, ホール抵抗
- §3-2 磁化測定

第4章 実験結果

- §4-1 電気抵抗

§ 4 - 2 ホール抵抗

§ 4 - 3 磁 化

第 5 章 考 察

§ 5 - 1 概 観

§ 5 - 2 incoherent Kondo state (phase I) について

§ 5 - 3 phase II について

§ 5 - 4 coherent Kondo state (phase III)

第 6 章 結 論

論文内容要旨

第1章では、初めに、dilute Kondo系の性質を(La, Ce)B₆と(La, Ce)Al₂を例にとって説明している。T_Kの決め方やユニタリ極限抵抗の濃度依存性及び結晶場について注目し、それらに対する問題点、疑問点を述べている。次にCeを100%にしたdense Kondo系のCeB₆の本研究以外のdataの紹介を行なっている。CeAl₂のdataと比較する事により、CeB₆のdense Kondo物質群の中での位置、特徴が明らかにされ、さらにdiluteな系と比較する事により、問題点と本研究の目的が示される。

第2章では、floating zone法による単結晶作成の特徴と方法を説明し、分析結果について述べる。分析には、格子定数、蛍光X線分析、プラズマ発光分光分析、Electron Probe Microanalyzerを使用している。これらによりCe_xLa_{1-x}B₆(x=1.0, 0.97, 0.90, 0.75, 0.50, 0.25, 0.10, 0.05, 0.03)については、xとして仕込み量でよく、solid solutionを作り、そのingot中の濃度勾配も小さい事が判ったが、Ce_xY_{1-x}B₆(x=0.991, 0.909)では、solid solutionを形成してはいるものの、その濃度分布には1~2割のムラがある事がわかった。

第3章では、本研究で用いた実験の方法について述べている。

第4章では、実験結果を紹介し、第5章で、それについての考察を行ない、結論として第6章にまとめられている。これらは、次のようなものである。

① (La, Ce)B₆, CeB₆共に結晶場基底状態はQuartet(Γ₈)である。

[Ce_{0.03}La_{0.97}B₆の磁化過程で、H // <100>の磁化が最も大きく、<111>軸が困難軸である。

(図1)

比熱は~0.45(K)以上の温度領域しか測定されていないが、Doublet基底状態の場合に予想される曲線より大きな(2倍程度)比熱を示している。(Ce 3%)

帯磁率の温度変化もQuartet基底状態を支持している。(図2)

CeB₆では、Loewenhauptの非弾性中性子散乱とFujitaの比熱の実験による。]

② (La, Ce)B₆からCeB₆まで、T_Kは±0.5(K)の誤差内で一定不変である。

[高温、特に1/χがT-linearとなる温度領域で(~150(K)以上)帯磁率の温度変化は濃度に依存しない。電気抵抗から結論されるdiluteな場合のT_K≒1(K)という値で、よく説明される。(図2)]

③ 室温よりずっと上まで、Kondo効果が影響を与えている。

[帯磁率には、T_K≒1(K)でも、室温でKondo効果の影響が明りょうに見られている。

室温以上、500°C付近までの電気抵抗は(LaB₆を差し引いてある)20(μΩ-cm)と大きな値を持っている。Kondo効果が存在しない場合には、数(μΩ-cm)と理論的に評価されている。]

④ 帯磁率のθ_pは、反強磁性的交換相互作用によるのではなく、Kondo効果によっている。

⑤ 加圧によって、T_Kは上昇する。

d(lnT_K)/d(lnV)≒-34(30k barで)[任意の温度で、加圧により、抵抗値が増加している。

これを $(\text{La}, \text{Ce})\text{B}_6$ と CeB_6 の格子定数の差に換算すると, CeB_6 の方が, 約 $0.5(\text{K})$, T_k が高くなる。②の帯磁率からは, この程度の小さな違いは, 区別できない。]

- ⑥ ホール抵抗には, Kondo 効果は, 影響を及ぼさない。

[低磁場 ($\sim 15\text{kOe}$ 以下) では, ホール抵抗は H-linear で室温と $4.2(\text{K})$ で 1 割程度の温度変化しか示さない。もし, これが Kondo 効果のためであると考えれば, $100(\text{kOe})$ 以上の強磁場を印加し Kondo 状態を壊したなら, 磁場変化, 温度変化は, 低磁場のものとは, 違ってくるはずであるが, 実験では, $12\sim 53(\text{K})$ の範囲で, $\sim 150(\text{kOe})$ まで殆んど H-linear である。]

- ⑦ 低温 (phase III) の抵抗において, Kondo 状態の相互作用効果の Ce 濃度依存性が評価された。Ce が 3% 以下では零 (即ち散乱は独立) であるのが 10% になる所で急激に立ち上がるが, それ以上の濃度では, あまり大きな濃度依存性は見られない。

[$\text{Ce}_{0.25}\text{La}_{0.75}\text{B}_6$ の磁気抵抗の data と高磁場側で抵抗値を一致させ, 低磁場で $\text{Ce}_{0.25}\text{La}_{0.75}\text{B}_6$ と同じ磁場依存性を示すと考え, $H \rightarrow 0$ に外そうした抵抗値を以て, ordering のない場合の抵抗とみなした。この時, Kondo 状態の相互作用のない場合の残留抵抗の濃度依存性は, 通常のそれと同じと考えられるから, この計算値と上述の ordering 効果を補正した残留抵抗値の差が求めたい Kondo 状態の相互作用効果による減少分と考えられる。これを計算値で割ったものが, 考察に使われた。]

- ⑧ $0.037\sim 0.4(\text{K})$ で $\rho = \rho_0 + AT^2$ の温度変化を示す。(図 3) この係数 A と比熱の係数 γ ($C = \gamma T$) との関係が考察された。低温で order する CeB_6 でも, order しない CeAl_3 や CeCu_2Si_2 と同じような相関, 即ち γ が減少すると A/ρ_0 (ρ_0 はユニタリー極限抵抗) も大きく減少するという関係がある事がわかった。しかし厳密に $(A/\rho_0) = B\gamma^2$ (B は universal const.) の関係があるかどうかまでは明らかではない。

- ⑦ $0.6\sim 1.5(\text{K})$ の温度領域の散乱は, Kondo 状態の fluctuation を伴った反強磁性マグノン励起による散乱と考えられる。

[CeB_6 の電気抵抗は, この温度領域で $\rho = \rho_{0H} + B(\frac{T}{T_N})^4$ あるいは $\rho = \rho_0 + AT^2 + B(\frac{T}{T_N})^{4.5}$ と書けるが, La で Ce を希釈して行くとベキは 4 (あるいは 4.5) から徐々に減少して 3 に近づいてくる。また同じ温度領域で比熱は T^3 を示す。その抵抗の増加の仕方 (低温から温度を上げる時) は急激で, spin の fluctuation によって Kondo 状態に (phase III は coherent Kondo 状態と反強磁性的な秩序状態の共存相と考えられる。) incoherence が生じるために, 散乱が enhance されていると考えられる。]

- ⑩ CeB_6 , $\text{Ce}_{0.75}\text{La}_{0.25}\text{B}_6$, $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ では $150(\text{kOe})$ の高磁場でも phase II は存在する。

[前 2 者については, 磁化や抵抗の折れ曲りが $\sim 150(\text{kOe})$ の高磁場まで観測されている。 $\text{Ce}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{B}_6$ でも, 高磁場において phase II の特徴である $\langle 100 \rangle$ 方向の磁化の suppression が存在している。]

- ⑪ CeB_6 の磁化過程に見られる異方性は, phase II の存在による。

[CeB₆の1.3(K), 150(kOe)以下の磁化過程では<100>軸の磁化が他の2軸よりも小さく, 150(kOe)以上では<100>軸が容易軸, <111>軸が困難軸となる。しかし, 500(kOe)の高磁場でも異方性は十数%程度で小さい。これに対し, phase IIの存在しない, (La, Ce)B₆では<100>軸が容易軸, <111>軸が困難軸となり, その異方性の大きさは, 150(kOe)で約30%である。]

- ⑫ CeをLa, あるいはYで希釈すると, phase I-IIの境界は, 低温側へシフトする。
 Ce_{0.75}La_{0.25}B₆では, 零磁場では, phase IIは存在しない。
- ⑬ 加圧するとT₁(I-II)は上昇し(ΔT₁=0.024(K), T₂(=T_N, II-III)は下降する。
 (ΔT₂=-0.073(K) at 5 kbar)

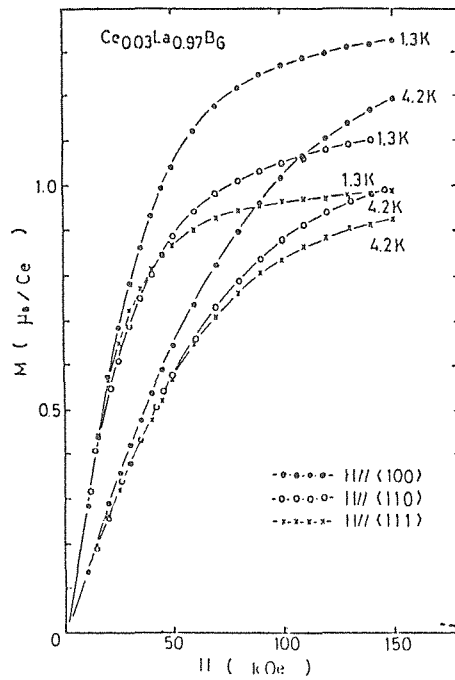


図1 Ce_{0.03}La_{0.97}B₆の磁化過程

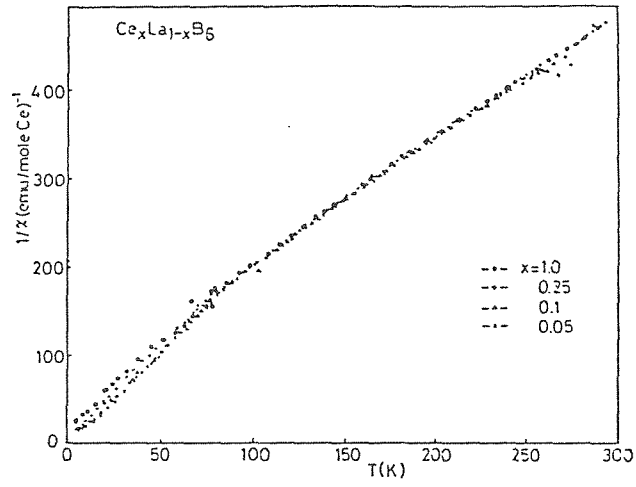


図2. $Ce_xLa_{1-x}B_6$ の逆帯磁率の温度変化

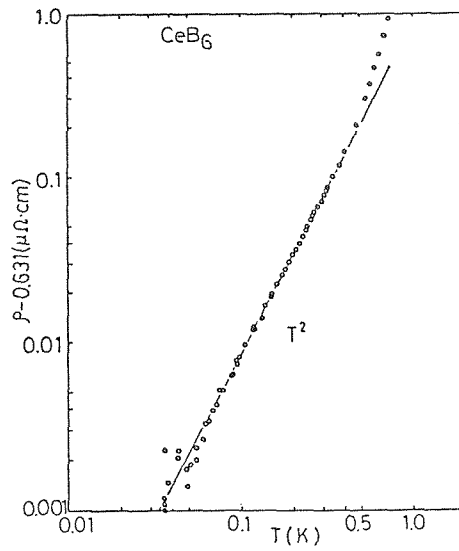


図3 CeB_6 の低温における電気抵抗

論文審査の結果の要旨

CeB₆ は最も典型的な高濃度近藤物質として大きな関心を集めているが未だに多くの未解決の問題を抱えている。先づ常磁性領域(領域Ⅰ)に於ける磁性の振舞いに付いての近藤効果の利き方,特に結晶場基底状態の不確定さ,中間温度領域(領域Ⅱ)が何のオーダーかの不明確さ,特に NMR と中性子散乱実験の矛盾,更に低温領域(領域Ⅲ)に於ける磁気整列と近藤状態の共存の実態等である。更にLaB₆中Ceを薄く(5%以内)入れた典型的稀薄近藤系とのつながり具合の問題がある。佐藤はこれらの問題を解決すべくCe_{1-x}La_xB₆の合金系の全組成範囲にわたって始めて純良大型単結晶試料の作成に成功し,これらについて詳細且つ,総合的,系統的的研究を行い,これらの問題の多くを解決したものである。

先づ懸案の結晶場基底状態に関しては全組成範囲に付いての純良単結晶の系統的研究により,従来最も典型的例と信じられてきた稀薄領域の磁気測定 of 重大な誤りを正すと共に従来のモデルとは逆に全組成を通じてΓ₈四重項が基底状態であること,近藤温度 T_kも略一定値 1~1.5Kをとること及び高温領域の帯磁率を支配しているのは一貫して近藤効果であることを示した。それに関連してΓ₇基底状態を示していると考えられてきた領域Ⅱの磁化過程の稀薄系との相違が正に領域Ⅱに特有のオーダー状態によるものであったことを示した。領域Ⅲに於ては極低温領域に達する精密測定によって,極低温に於いてはスピン整列と共存している近藤状態特有の性質が明確に現われていることを初めて明らかにすると共に,通常のスピン波励起に於いてもそれが近藤状態へのはね返りを保って現われることを明らかにした。

以上佐藤は Ce_{1-x}La_xB₆合金系の系統的精密測定により高濃度近藤系に関する幾多の重要な新たな知見を得ることを成功しこの方面の研究に重要な貢献をなした。これは佐藤が自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。よって佐藤提出の論文は理学博士の学位論文として合格と認める。