

構造不規則型 Ce-Mn 系合金の重い電子系に関する ^{55}Mn NMR による研究

琉球大学大学院 理工学研究科

物質地球科学専攻

岡村耕平

指導教員：二木治雄, 與儀護

Ce や U を中心とした希土類系やアクチナイド系金属化合物において、近藤格子、重い電子、反強磁性、スピン密度波、非フェルミ液体状態など広く多様な性質を示すことがよく知られている。この原因として、Ce や U が持つ f 電子と伝導電子の混成や f 電子同士の相互作用など、強相関 f 電子の存在が重要とされている。また、これらの性質は、Ce 原子の周期的な配列に起因していると考えられており、実験的には一般的に純良な単結晶による研究が行われている。これに対して、最近、並進対象性を持たない非ブロッホタイプの構造不規則型(アモルファス)合金においても重い電子系状態が存在することが明らかにされた。

構造不規則型合金 $\text{Ce}_x\text{Mn}_{100-x}$ は Ce 高濃度側の低温で、(1)熱膨張係数が巨大に増加する。(2)比熱は T に従い、 γ が非常に大きい。 $(\gamma = 150\text{mJ/Ce}\cdot\text{molK}^2)$ (3)電気抵抗は T^2 の温度変化を示す。これらの理由で、Ce 高濃度型 $\text{Ce}_x\text{Mn}_{100-x}$ は低温で重い電子系状態を示し、非ブロッホ短距離秩序型希土類合金と考えられる。

今回、重い電子系状態にある $\text{Ce}_x\text{Mn}_{100-x}$ ($x = 65, 59$)の ^{55}Mn NMR を行い、 ρ^2qQ , 線幅, スピン-格子緩和時間 T_1 の温度依存性を求めた。以下、その結果を示す。

- 1) ^{55}Mn NMR (核スピン $I = 5/2$) は、NQR の影響を受け、5本の信号が観測されるが、広幅な1本のスペクトルのみが観測された。
- 2) 広幅スペクトルは、5本の NQR の共鳴線から成り立っているため、NQR を考慮した粉末パターンによるスペクトル解析を行った。ただし、各 NQR 共鳴線はローレンツ型で同等の線幅を持つとした。Fig.1 の上部に $\text{Ce}_{59}\text{Mn}_{41}$ についての解析結果を示す。黒丸はスピンエコー信号の強度、実線は解析結果を示す。Fig.1 の下部に示されたスペクトルは、各 NQR 線に与えたローレンツ曲線が非常に狭い場合のスペクトルに対応する。
- 3) NQR 線の共鳴線幅の温度依存性を Fig.2 に示す。NQR の共鳴線幅は、低温になるにしたがって線幅が広がり、その変化は Curie-Weiss 則で表せ、 $T_C = -10.5\text{K}$ ($x = 65$), $T_C = -10.7\text{K}$ ($x = 59$)を示した。図中の実線は $x = 59$ についての Curie-Weiss 則による解析結果である。このような Curie-Weiss 則の出現する

原因は、NMR の線幅や磁化率が静的な磁化の乱れにたいへん敏感であるので、構造不規則型合金中の常磁性モーメントの振る舞いを反映していると考えられる。

- 4) 線幅が低温で急激に広がるため、ナイトシフトの値を求めることは非常に困難を極めた。しかし、NMR スペクトルの中心点は大きく変化しておらず、誤差範囲でほぼ一定であったので、ナイトシフトはほぼ一定の温度依存性を示すと考えられる。
- 5) $\text{Ce}_{65}\text{Mn}_{35}$ と $\text{Ce}_{59}\text{Mn}_{41}$ の ^{55}Mn のスピン - 格子緩和時間 T_1 の温度依存性を測定した。核スピンは $I = 5/2$ なので、NQR の影響を受け、時間に対する緩和式は3つの指数関数で表される。共鳴線の線幅が非常に広いので、 T_1 が分布していることも考慮して、各指数関数にべき乗(pow)を加えた下記の式で解析した。

$$f(t) = y_0 \left[\left(\frac{50}{63} \right) \exp \left\{ - \left(\frac{15t}{T_1} \right)^{\text{pow}} \right\} + \left(\frac{8}{45} \right) \exp \left\{ - \left(\frac{6t}{T_1} \right)^{\text{pow}} \right\} + \left(\frac{1}{35} \right) \exp \left\{ - \left(\frac{t}{T_1} \right)^{\text{pow}} \right\} \right]$$

- 6) 上記解析で求められた結果を $1/(T_1T)$ の温度依存性として Fig.3 に示す。

$1/(T_1T)$ は、電子系の状態を直接反映するので、その振る舞いを明らかにすることができる。 $x=65, 59$ の $1/(T_1T)$ は、温度が減少するに従って急激に増大し、ほぼ $1/(T^{4/5})$ 程度で変化している。しかし、約 10K 以下の低温になるとその変化はほぼ一定となる。前者は局在モーメントの揺らぎに関連し $1/T$ に近い振る舞いをしている。後者はフェルミ液体状態に対応して通常の金属で現れるコリン八則を示していると考えられる。この温度変化は多くの重い電子系物質で観測される $1/(T_1T)$ の温度依存性の振る舞いと類似しており、まさに重い電子系的な特徴を示していると考えられる。

次に、 $\text{Ce}_x\text{Mn}_{100-x}$ における Ce の 4f 電子の影響を明らかにするために、Y で置換した試料 $\text{Ce}_x\text{Y}_{80-x}\text{Mn}_{20}$ についての研究を行う必要がある。先ず $\text{Ce}_{62}\text{Y}_{19}\text{Mn}_{19}$ の試料を作製し、上記と同様の研究を行い、以下の結果を得た。

- 1) スペクトルは $\text{Ce}_x\text{Mn}_{100-x}$ と同様に、5本の NQR の共鳴線を含む広幅な1本のスペクトルのみ観測された。
- 2) 線幅の温度依存性は Curie-Weiss 則で表わされ、 $T_C = -15.4\text{K}$ を示した。
- 3) $1/(T_1T)$ は、温度が減少するに従って、ほぼ $1/(T^{1/2})$ で増大するが、4.2K 以下でほぼ一定になった。このことから、 $\text{Ce}_{62}\text{Y}_{19}\text{Mn}_{19}$ の場合も重い電子系的な特徴を示していると考えられる。

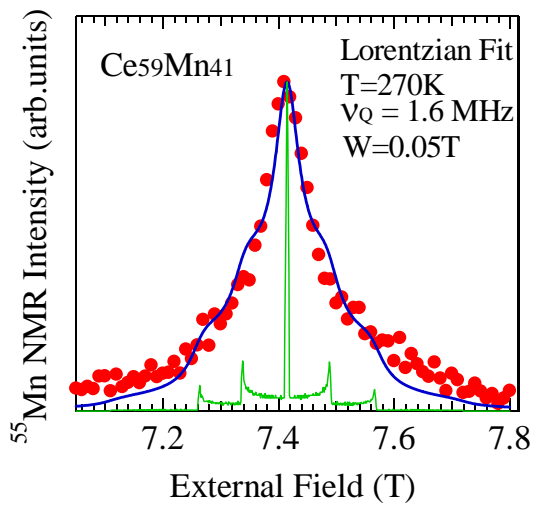


Fig.1. Powder-pattern spectrum of ^{55}Mn NMR in $\text{Ce}_{65}\text{Mn}_{41}$ at 270K.

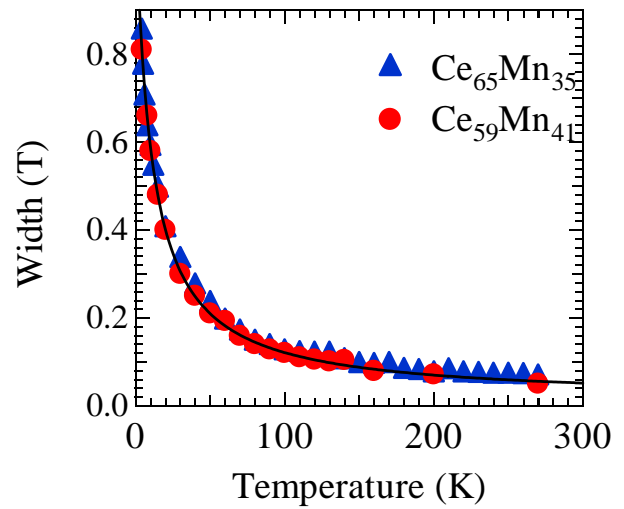


Fig.2. Temperature dependence of line width of ^{55}Mn NMR in $\text{Ce}_x\text{Mn}_{100-x}$ ($x = 65, 59$).

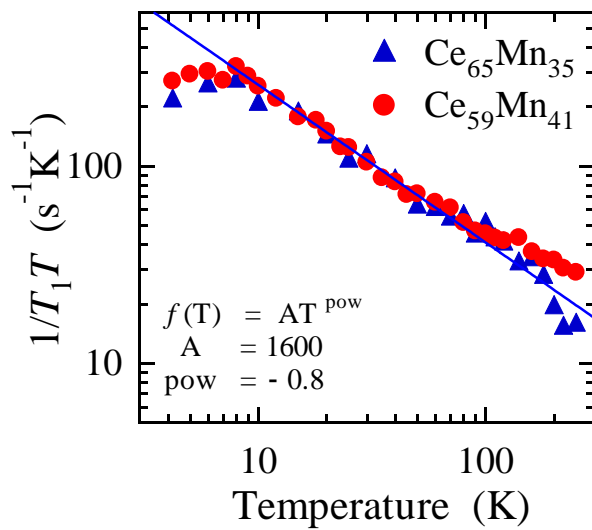


Fig.3. Temperature dependence of $1/(T_1T)$ of ^{55}Mn NMR in $\text{Ce}_x\text{Mn}_{100-x}$ ($x = 65, 59$).

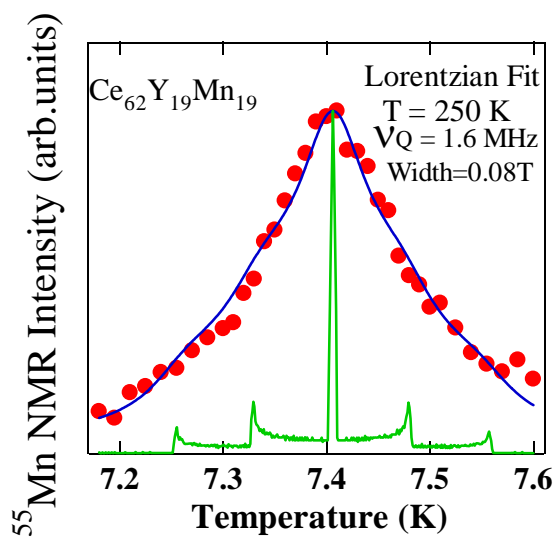


Fig.4. Powder-pattern spectrum of ^{55}Mn NMR in $\text{Ce}_{62}\text{Y}_{19}\text{Mn}_{19}$ at 250K.

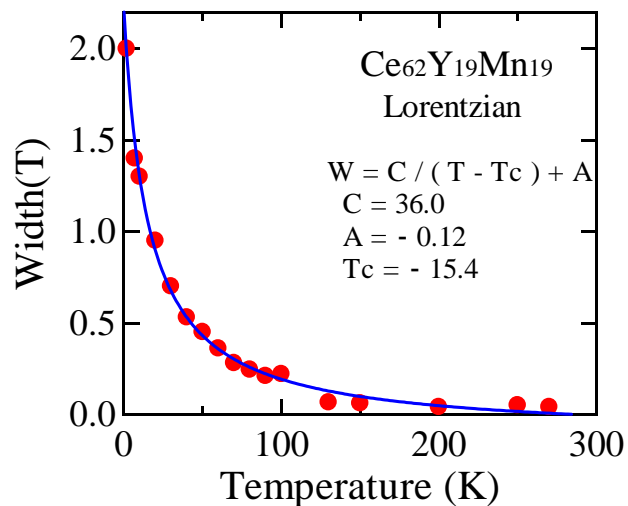


Fig.5. Temperature dependence of line width of ^{55}Mn NMR in $\text{Ce}_{62}\text{Y}_{19}\text{Mn}_{19}$.

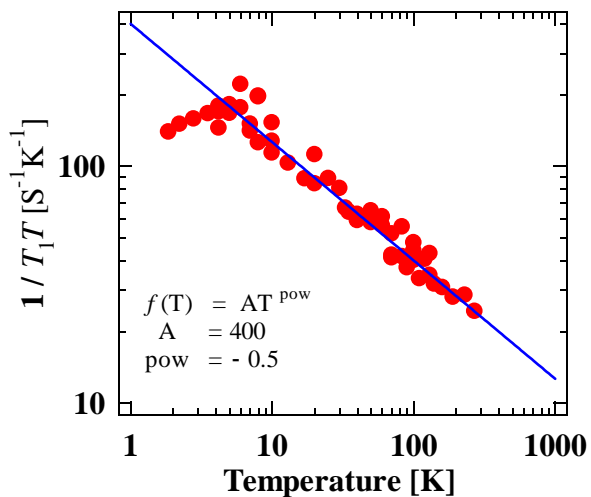


Fig.6. Temperature dependence of $1/(T_1T)$ of ^{55}Mn NMR in $\text{Ce}_{62}\text{Y}_{19}\text{Mn}_{19}$.