

# 磁場に鈍感な重い電子系化合物 $\text{Sm}_x\text{La}_{1-x}\text{Os}_4\text{Sb}_{12}$ で見いだされた $\log T$ 依存する Sm イオン価数

首都大学東京大学院 理工学研究科 物理学専攻 電子物性研究室

希土類イオンを含む化合物の中で、希土類イオンが持つ 4f 電子と伝導電子の間に磁気的な相互作用（近藤効果と呼ばれる量子力学的な効果）が働くと、伝導電子が動きにくくなる現象が現れます。電子の有効質量が通常の 100~1000 倍にも達するため、「重い電子状態」と呼ばれます。この状態に磁場を印加すると、近藤効果が抑制されるため、電子の有効質量が徐々に通常の値に戻っていきます。近年、磁場の影響を受けない（上述の従来の理論では説明できない）重い電子状態が、サマリウム(Sm)イオンを含む幾つかの化合物で見出されていますが、その典型物質が充填スクッテルダイト化合物  $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$  です（結晶構造を図 1 に示す）。電子の有効質量に比例する電子比熱係数は、 $\gamma=800 \text{ mJ/K}^2\text{mol}$  もの大きな値を持ち、数 10 テスラの磁場中でも減少しません。よって、磁場の影響を受けない新しいタイプの有効質量増大の機構が、本物質の中で働いていると考えられます[1]。

私たちは、この現象の究明を目指して、 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$  および Sm イオンを部分的に La で置換した  $\text{Sm}_x\text{La}_{1-x}\text{Os}_4\text{Sb}_{12}$  の単結晶試料を育成しました。これを兵庫県にある放射光施設 SPring-8 に持ち込み、X 線吸収分光法（X-ray absorption spectroscopy: XAS）と呼ばれる手法を用いて、Sm イオンの価数の濃度依存性および温度依存性を測定しました。

低温 10 K で測定した XAS スペクトルを図 2 に示します。図中の矢印が示すように、 $\text{Sm}^{2+}$  と  $\text{Sm}^{3+}$  の価数の異なる 2 種類の Sm イオンがあることがわかります。 $\text{Sm}^{2+}$  に起因する低エネルギー側のピークと、 $\text{Sm}^{3+}$  に起因する高エネルギー側のピークの強度比から、Sm イオン価数を求めることができます。この測定を、試料の温度を変えながら室温から数 K までの温度領域で行ったところ、価数が  $\log T$  的な温度依存を示すことを見出しました[2]。温度を下げると、Sm イオン価数が徐々に下がって行くことはすでに報告されていましたが[3]、

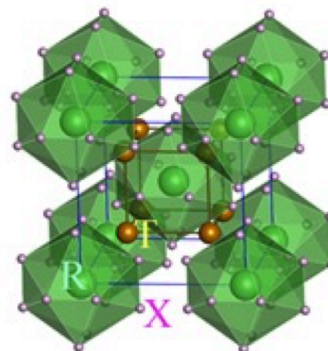


図 1  $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$  の結晶構造

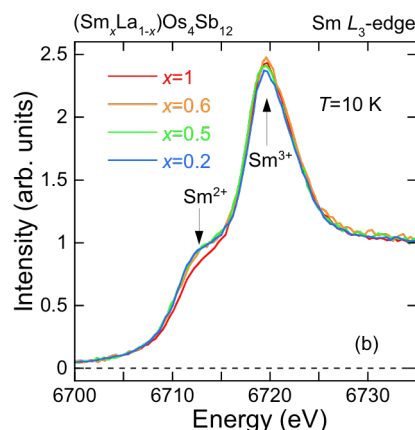


図 2 10K における XAS スペクトル。 $\text{Sm}^{2+}$  と  $\text{Sm}^{3+}$  が混在していることがわかる[2]。

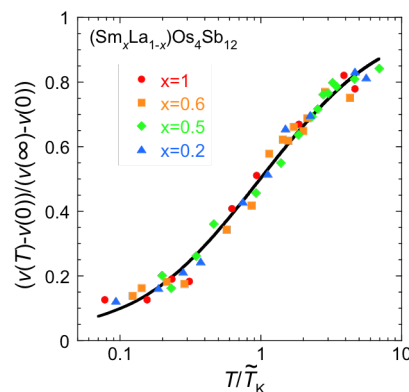


図 3 規格化した Sm イオン価数の温度依存性[2]。

この温度依存性が  $\log T$  で良く記述できることは新たな発見です。Sm イオン濃度  $x$  の異なる  $\text{Sm}_x\text{La}_{1-x}\text{Os}_4\text{Sb}_{12}$  で同じ測定を行いました。が、 $x$  の値が小さい (Sm イオンが La イオンで薄められた) 試料においても、 $\log T$  依存性が同様に見られることがわかりました。このことから、この特徴的振る舞いは、個々の Sm イオンが持つ性質 (単サイト効果) であることがわかります。全ての Sm イオン濃度について、Sm イオン価数の温度依存をスケールし重ねたものが図 3 です。Sm イオン価数の温度依存が、一つのユニバーサル曲線で整理できることがわかります。図 3 に示した実線は、広義の近藤効果 (巨大非調和振動する Sm イオンの電荷揺らぎを伝導電子がシールドする、電荷版の近藤効果) の理論曲線です[4]。特徴的な温度 (広義の近藤温度) は約 60 K であることがわかりました。以上の成果は、 $\text{SmOs}_4\text{Sb}_{12}$  の低温で観測される磁場の影響を受けない非従来型の重い電子状態の形成が、Sm イオンの電荷揺らぎが関与する広義の近藤効果に起因している可能性を示唆しています。

#### 参考文献

- [1] S. Sanada *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 246 (2005).
- [2] K. Fushiya *et al.*, Phys. Rev. B. **92**, 075118 (2015).
- [3] M. Mizumaki *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 053706 (2007).
- [4] S. Tanikawa *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **78**, 034707 (2009).