スピン梯子系物質における磁気秩序

一 核磁気共鳴による研究 一

産業技術短期大学 電気電子工学科 大杉 茂樹 1

大阪大学大学院 基礎工学研究科 北岡 良雄²

1 はじめに

二本足スピン梯子化合物 SrCu₂O₃(Sr123)は疑一次元(Q1D)の梯子構造を持ち、最近接 Cu 電子スピン S=1/2 が反強磁性相関により一重項対(スピンギャップ)を形成し、非磁性となる [1-7]。この梯子にキャリアを注入するとキャリアも対を作り超伝導が起こることが予測され、 研究が盛んに行われている[4-6]。しかしながら、Cu を低濃度の非磁性不純物(M=Zn, Ni)で置 換した Sr (Cu_{1-x}M_x)₂O₃ (Sr123-Mx%)の低温で反強磁性長距離秩序が起こるが[8,9]、現在のとこ ろ Sr123 へのキャリア注入による超伝導発現は確認されていない。

一方、Sr14 系 Sr_{14-x}Ca_xCu₂₄O₄₁ (Cax)の Sr サイトを Ca 原子で置換すると鎖から梯子へホール キャリアが注入される[10-15]。単結晶の Ca11.5 では、高圧下で超伝導(4.5 GPa で転移温度 T_c =10 K)が確認されているが[16,17]、常圧下では磁気秩序を発生する[18]。銅酸化物高温 超伝導体で見られるような、超伝導と磁気秩序が隣り合わせに存在している。

これらスピン梯子系物質における低温磁気秩序と超伝導が、梯子と鎖の一次元性に由来する ものであるのか、それとも二、三次元のものであるのか、銅酸化物高温超伝導体のような磁気 秩序と超伝導の関わりはどうなのか、非常に興味深い。

本稿では、これらスピン梯子系物質 Sr123[19]、Cax[20]における低温磁気秩序に関する Cu 核磁気/核四重極共鳴(NMR/NQR)による研究結果を紹介する。この両方の系での磁気秩序は、非磁性不純物や局在したホールにより発生した不対スピンによるスタッガード分極(SP)が三次元の梯子および層間相互作用を介して起こす三次元反強磁性長距離秩序であると結論される。だが一方では、NMR/NQR 結果の解析において、その一様ではない弱い梯子間相互作用のため SP をQ1D として取り扱うことが可能である。以下、その詳細について述べる。

¹ E-mail: ohsugi@cit.sangitan.ac.jp

² E-mail: kitaoka@mp.es.osaka-u.ac.jp

2 不純物置換した SrCu₂O₃ (Sr123) における磁気秩序

2.1 NMR測定

図1と2は、Cuを2%, 0.1%のZnで置換したSr123における(3/2⇔1/2)遷移 ⁶⁵Cu NMR スペクトルである。わずか 0.1%の置換においても、4.2Kのスペクトルは明瞭なピークすら見れないほどスペクトル幅が広がる。実曲線は、梯子構造中で非磁性不純物隣に磁場誘起された局在不対電子スピン(S_{c} =1/2)が作る、梯子に沿ったQ1D-SPモデル:

$${}^{4}S_{I} = (-1)^{I} S_{0} \exp\{-I a / \xi_{s}\} + (-1)^{L-1} S_{0} \exp\{-(L-1) a / \xi_{s}\}$$
(1)

$${}^{B}S_{I} = (-1)^{I+1} S_{0} \exp\{-I a / \xi_{s}\} + (-1)^{L-I+1} S_{0} \exp\{-(L-1) a / \xi_{s}\}$$
(2)

を仮定しスペクトルを再現したものである。 ${}^{4}S_{I}$ (${}^{8}S_{I}$)は、I = 0, Lの位置で S_{0} (Zn)を持つ。 また、 ξ_{s}/a は梯子に沿う磁気相関長である。 T_{N} 以上の高温では、Lを奇数にとり S_{0} 間の中央 での SP 値を零とすることでスペクトルを再現できる。0.1%のZn 置換の図2中の破曲線は、 65 Cu の(3/2⇔1/2)遷移以外のNMR スペクトルも計算上含めた再現である。





図1: CuをZn 2%で置換したSr123の ⁶⁵Cu NMR スペクトル

図2: CuをZn 0.1%で置換したSr123の ⁶⁵Cu NMR スペクトル

この Q1D-SP モデルにより少なくとも測定を行った Zn 2%置換のスペクトルまで再現可能で ある。よって、低濃度の Zn 置換に対しては、S₆(Zn)付近で最大をとる弱い梯子間相互作用は起 こるものの、梯子間での 90° Cu-O-Cu 結合によるフラストレーションはかなり保たれるために、 SP の空間分布は Q1D として取り扱うことが出来ると考えられる。

Ni, La 置換した試料の NMR スペクトルについて同様のフィッティングを行い、得られた SP の ξ_s/a を平均不純物間格子距離 D_{AV} を横軸にプロットしたものが図 3 である。破線で示され るように、 ξ_s/a は温度依存せず、 D_{AV} にスケールし、0.1-2% Zn 置換の範囲で $\xi_s/a=A+$ B D_{AV} (A=2.5, B=0.1)の関係にある。Ni 2%置換の場合、Zn 2%置換と等しい $\xi_s/a=$ 4.5 が得られている。Zn や Ni が非磁性不純物として Cu と置換されるのに対し, La は Sr と置 換され電子を梯子に供給する。Sr の La 置換においては、図 4 で示すように Sr 層の上下に位置 する梯子に電子を供給するため、 $S_0=1/4$ と仮定している。 D_{AV} は、Zn, Ni 置換に対しては $D_{AV}=1/(2x)$ 、La 置換に対しては $D_{AV}=1/x$ である。見積もった La 置換の ξ_s/a の D_{AV} 依存 性は、Zn, Ni 置換のものとほぼ一致する。



図3: Cu を Zn, Ni, La 置換した Sr123 における SP の磁気相関長 ξ_s/a 。 横軸は平均不純物間格子距離 D_{AV} である。

- 493 -

驚くべきことは、 $\xi_0/a=3-8$ 格子程度の相関を持つスピン一重項対を形成する Sr123 を [21-26]、わずか 0.1%不純物置換することにより $\xi_s/a=50$ 格子もの相関を持つ SP が発生する ことである。シングレットの $\xi_0/a=3-8$ より一桁も長い。



図 4: Zn, Ni, La 置換による梯子構造のモデル図。 黒丸はスピン S=1/2 を持つ銅原子を表す。

2.2 NQR測定

図5は、SrをLaで3%まで置換したSr123のCu NQR スペクトルである。磁気秩序による内部磁場を考慮に入れることなく、電場勾配の分布のみ考慮に入れた曲線でよく再現できる。一方、Zn 置換の場合は、図6中で示すようにスペクトル線幅が大きく広がる。La 置換の場合とは異なり磁気秩序による内部磁場を考慮に入れなければ Zn 置換のスペクトル形状を再現できない。Zn 付近のCu のみがモーメントを持つ場合にはLa 置換の場合とさほど変わりのないスペクトル変化が予測される。しかしながら、2%のZn 置換スペクトルでは、11MHz 付近にピークは存在せず、よって、全てのCu 位置に自発磁化が起こっていると結論される。S₀(Zn) 間の中央付近は同程度のモーメントの大きさを持つと考えられるため、均一な内部磁場分布を仮定し、内部磁場はc軸方向であるとすると、それぞれ ⁶³Cu(⁶⁵Cu) NQR スペクトルは図6中の実線(破

線) で示すように4つのラインに分離する。実曲線はそれらの総計で、よくスペクトルを再現 している。分離幅から内部磁場が求まる [1%-(H_a =1.76 KOe, H_b =0.48 KOe, H_c =0.49 KOe), 2%-(H_a =2.34 KOe, H_b =0.66 KOe, H_c =0.67 KOe)]。Sr123 の超微細磁場定数(A_{ab} =48kOe/ μ_B , A_c =-120kOe/ μ_B) [2]を使いモーメントの平均の大きさを求めると、0.05 μ_B 未満の小 さな値であった [1%-($\langle \mu \rangle_a$ =0.037 μ_B , $\langle \mu \rangle_b$ =0.010 μ_B , $\langle \mu \rangle_c$ =0.0041 μ_B), 2%-($\langle \mu \rangle_a$ =0.049 μ_B , $\langle \mu \rangle_b$ =0.014 μ_B , $\langle \mu \rangle_c$ =0.0055 μ_B)]。東らは、帯磁率測定から、 $\langle \mu \rangle$ の方向が с軸に垂直方向(ab面内)であると報告している。



図 5: Sr を La で 3%まで置換した Sr123 の Cu 四重極共鳴 (NQR) スペクトル

図 6: Cu を Zn で 2%まで置換した Sr123 の Cu 四重極共鳴(NQR)スペクトル

1,2% Ni 置換の場合も Zn 置換と同様にスペクトル分裂が確認されている。また、Zn 置換よ りも置換による電場勾配の分布が小さいことにより、スペクトル分裂ピークが明瞭に観測でき る[19]。

長距離秩序発生の証拠は、スピンエコー減衰率 T_{2G}^{-1} にも顕著に現れる。図7に示すように、 1.4 K での 0.5 と 1% Zn 置換の間で T_{2G}^{-1} が大きく変化する。よって、明らかに 1.4 K で Zn, Ni の 1, 2%置換された Sr123 は長距離秩序状態にあることを示している。





図7: Zn, Ni, La 置換した Sr123 のスピンエコー減衰率 T_{2G}⁻¹。

図8はSr123-Zn1%に関し、NQRより見積もった S_0 (Zn)間の中央付近のモーメントの大きさ、 およびその占有率、NMRより見積もった $\xi_s/a=8$ の結果から推測する二不純物原子間でのスタ ッガードモーメントの空間分布である。







図9: スタッガードモーメントの理論計算[26]。Zn 1.4%置換に相当する。

図 9 は、Laukamp らにより理論計算された Zn 1.4%置換に相当する Sr123 のスタッガードモ ーメントの空間分布である[26]。 $J_{rung}/J_{leg}=0.5$ ($\xi_0/a=8$)[27,28]を用いた計算結果は、 図 8 に示した Zn 1%置換の Sr123 のものと非常に良く一致する。しかしながら、ここで彼等の 理論計算についての問題は、シングレットの ξ_0/a を用いていることである。これまで報告さ れてきた理論計算においては、スタッガードモーメントの磁気相関長も ξ_0/a を基に取り扱わ れてきた[21-26]。しかしながら、NMR 結果の前章でも記述したように、 ξ_s は ξ_0 とは異なる。 Zn 0.1%置換で $\xi_s/a=50$ の結果は、とても説明がつかない。SP の磁気相関長は一次元鎖での ように無限大に長くなろうとすることが Zn 0.1%置換で $\xi_s/a=50$ の結果から予想される。し かしながら、Zn 2%置換で $\xi_s/a=4.5 \ge \xi_0/a=8$ よりも短くなることから、 ξ_s は無限大に長 くなるわけではなく Zn 間で制限を受けると考えられる。結果として、 $\xi_s/a=A+BD_{AV}$ (A =2.5, B=0.1)のような D_{AV} 依存性に至る。このような ξ_s と ξ_0 との異りを理論計算におい て考慮する必要があるであろう。



図10: 帯磁率[8]、μSR[30]の実験結果、および理論計算 による Zn 置換した Sr123 の T_N。

梯子間の相互作用が弱結合(WC)であるため、スタッガードモーメントの空間分布はQ1Dとし て取り扱えることは前で述べた。それならば、*T*_Nは今田らが報告するように*S*₀間の有効交換

相互作用 T_{N} (WC-Q1D) = $J \exp\{-D_{AV}/(\xi_{s}/a)\}$ [29], (J=2000 K [27,28])として計算出 来るはずである。図3に示す NMR から見積もれる ξ_{s}/a を用いて計算した結果を図10にプロ ットした。帯磁率[8]、 μ SR[30]の実験結果と定量的にかなり良く一致する。梯子間相互作用が 十分であれば Zn 0.5%以下の置換においても磁気秩序が発生する可能性を暗示している。非磁 性不純物置換による Sr123 における低温磁気秩序は三次元ではあるが、梯子間相互作用が弱い ために Q1D の性質を NMR 結果は色濃く反映している。

3 Sr_{14-x}Ca_xCu₂₄0₄₁ (Cax) における磁気秩序

我々は、Sr14 の Sr サイトを Ca 原子で置換した単結晶 Cax の NMR/NQR 測定を行った。図11 は梯子サイトの Cu NMR スペクトルの半値幅(FWHM)の温度依存性を示す。Ca0 では低温でさほ ど NMR 線幅の増加は観測されないが、Ca9、Ca11.5 と Ca 置換が多くなると $T_L = 60$ K 付近から NMR 線幅が急激に広がり始め、その温度付近から T_2^{-1} が増加する。また、電気抵抗も T_L 付近 から急激に上昇する[15,17]。これらの結果は、梯子内でホールの局在化が起こっていることを 示している。



図11: Caxの梯子サイトのCuNMRスペクトルの半値幅(FWHM)の温度依存性。

- 498 -

挿入図は、異なる結晶軸方向に磁場を与えた Call.5の Cu NMR スペクトルの FWHM を示す。FWHM の異方性は、超微細結合定数の異方性[14]と一致する FWHM_b/FWHM_{a,c}=(A_b-3B)/(A_{a,c}-3B) = 2.8。つまりこの T_L 付近から NMR 線幅が急激に増加するという事実は、高温で対を形成してい たホールが T_L 付近以下の低温で対破壊を起こし、その結果、単一となったホールの局在化が 起こることにより発生した Cu の不対スピンによる SP の存在を物語る。光伝導度測定で観測さ れる電荷密度波 (CDW) のような振舞は、これに起因される[31]。第二章の Sr123 の不純物効果 と同様に、すでに T_N よりも高温の梯子位置において SP が存在しているということである。低 温で磁気秩序を起こすに十分な梯子および層間相互作用が存在すれば、鎖中の局在した Cu 電子 スピンと結合し、三次元秩序状態に陥っても不思議でないことを予感させる。実際、Call.5の 梯子と鎖位置の Cu について NQR 測定を行ったところ、明らかに両方の Cu が T_N =2.2 K [18] 以下で秩序化されていることを示している。以下、その結果について述べる。



図12: 梯子サイトのCu NQR スペクトル。

図13: 鎖中の Zhang-Rice (ZR) サイトの Cu NQR スペクトル。

図12と13は、それぞれ Call.5の梯子、鎖中の Zhang-Rice (ZR) サイトの Cu NQR スペクトルである。梯子、ZR サイトの両方のスペクトルが 4.2 K のものよりも 1.4 K で多少スペクトル幅が広がる。図12中の梯子サイトに関して、19.8 MHz でスペクトル強度 $I \times T$ 、T₂₆⁻¹

を測定したところ図14中で見られるように T_N =2.2 K以下で値の減少が観測された。Ca9の 18.5 MHz での $I \times T$ 、 T_{2G}^{-1} は、1.4 Kまで特に変化は見られない。すなわち、Ca11.5 の梯 子位置の T_N =2.2 K以下での磁気秩序発生を意味する。1.4、4.2 K でのスペクトル積分強度 $I I \times T$ 測定から、1.4 K で幅の広がったスペクトルは4.2 K のスペクトルで観測している総 原子数とほぼ同数(90%程度は観測している)であることがわかる。よって、梯子上のモーメ ントの大きさがかなり一様で小さいことを示している。実際、図12中1.4 K のスペクトルは 4.2 K でのスペクトルに均一な内部磁場によるスペクトル分離を考慮して、実曲線のように良 く再現できる。中性子実験[18]でモーメントは a 軸方向を向いていると解析されていることか ら、同方向の内部磁場 [H_a (L)=1.06 KOe]を考慮したものである。Sr123 の A_a =48 KOe/ μ_B [2] を使用し、自発磁化の大きさを求めると M_a (L)=0.022 μ_B であった。



図14 Call.5 (Ca9)の19.8 MHz (18.5 MHz)でのスペクトル強度 $I \times T$ 、 T_{2G}^{-1} の温度依存性、および1.4、4.2 K でのスペクトル積分強度 $I I \times T_{c}$

図13中の1.4 K でのZR サイトのCu NQR スペクトルから結晶軸方向に依存しない内部磁場 $H_n^{ZR}(C) = 0.532$ KOe が見積もれる。 CaO において ZR シングレットを形成するホール (n = 0.5) は、Ca11.5 では梯子に半分程度移動する (n = 0.25) [14]。そのため、CaO でダイマー間 に存在した ZR サイトは、Ca11.5 ではホールを失い磁気サイトとなる。残り半分の ZR サイトは ダイマー中に存在する。ZR サイトは勿論、非磁性である。よって、図13のダイマー中のZR サイトのスペクトルで観測される内部磁場は、両隣のダイマーサイトからの遷移内部磁場であ ると考えられる。上記の証拠は、スピン格子緩和時間 T_1 測定から見積もれるダイマーギャッ プの大きさが、 $\Delta = 100$ K [20] と Ca0 の $\Delta = 125$ K [32–34] からさほど大きくは減少していない という事実である。Ca0 の $A_a = -14.8$ KOe/ μ_B [32]を使用し、ダイマーサイトの自発磁化の大 きさを見積もると M_a^{dimer} (C) =0.018 μ_B である。中性子実験から鎖中の平均のモーメントの大き さは、 $\langle \mu \rangle_a = 0.15 \mu_B$ と報告されている[18]。これを用いて磁気サイトのモーメントの大きさ を見積もると M_a^{mag} (C) =0.56 μ_B を得る。梯子中で SP が発生し、三次元相互作用を通じた鎖上 の磁気モーメントとの結合が、この系における磁気秩序発生の原因と考えられる。

4 終りに

Cax は、梯子のみならず鎖も存在しホールドープ系ではあるが、NQR/NMR で見る限り、 $T_{\rm L}$ = 60 K 付近から SP が発達し、低温で長距離秩序が発生するという振舞は、Sr123 の不純物置換効 果に類似している。Call.5 ($T_{\rm N}$ =2.2 K) の Cu NQR スペクトル解析より、梯子位置での平均 のモーメントの大きさは、 $M_{\rm a}({\rm L})$ =0.02 $\mu_{\rm B}$ (1.4 K) 程度と見積もれ、非常に小さい。わずか ーホールあたり数%が局在していることが、この系での磁気秩序発生の原因であると考えられ る。よって、圧力下でホールは再度対を形成し、遍歴することで超伝導が出現するという可能 性が予想される。ただしその際、一次元性が保たれているかどうかについては疑問が残る。今 後の課題である。これら Q1D 梯子化合物においては、非磁性不純物置換やホールドープに関係 なく、不対スピンによる SP が発生すると、その分極したスピン同士が梯子および層間相互作用 により三次元長距離秩序を起こすようである。一様ではなく S₀ 付近から減少する弱い三次元相 互作用のために、不純物置換した Sr123 の NMR スペクトル再現や $T_{\rm N}$ (WC-Q1D) の見積もりの際 には、SP を Q1D で取り扱って差し支えなかった。一次元から二、三次元への磁性、超伝導研究 に大変有効な物質であることは、この結果からも汲み取れる。

謝辞

本研究は、徳島大学総合科学部の真岸孝一氏、京都大学化学研究所の東正樹氏、藤城芳江氏、 高野幹夫氏、青山学院大学理工学部の永田貴志氏、藤野裕一氏、秋光純氏との共同研究である。 本研究における研究費の一部は、科学技術振興事業団より助成を受けている。

参考文献

- [1] Z. Hiroi, M. Azuma, M. Takano, and Y. Bando, J. Solid State Chem. 95, 230 (1991);
 M. Azuma, Z. Hiroi, M. Takano, K. Ishida and Y. Kitaoka, Phys. Rev. Lett. 73, 3463 (1994).
- [2] K. Ishida, Y. Kitaoka, K. Asayama, M. Azuma, Z. Hiroi, and M. Takano, J. Phys. Soc. Jpn. 63, 3222 (1994); K. Ishida, Y. Kitaoka, Y. Tokunaga, S. Matsumoto, K. Asayama, M. Azuma, Z. Hiroi, and M. Takano, Phys. Rev. B 53, 2827 (1996).
- [3] M. Azuma, M. Takano, and R.S. Eccleston, J. Phys. Soc. Jpn. 67, 740 (1998).
- [4] E. Daggoto, J. Riera, and D. Scalapino, Phys. Rev. B 45, 5744 (1992); T. Barns, E. Dagotto, J. Riera, and E. Swanson, Phys. Rev. B 47, 3169 (1993); A. W. Sandvik, E. Dagotto, and D. J. Scalapino, Phys. Rev. B 53, R2934 (1996); for review, see E. Dagotto, and T. M. Rice, Science 271, 618 (1996); E. Dagotto, Rep. Prog. Phys. 62, 1525 (1999).
- [5] T. M. Rice, S. Gopalan, and M. Sigrist, Europhys. Lett. 23, 445 (1993); *ibid*, Physica B 199 & 200, 378 (1994); S. Gopalan, T. M. Rice, and M. Sigrist, Phys. Rev. B 49, 8901 (1994); M. Sigrist, T. M. Rice, and F. C. Zhang, Phys. Rev. B 49, 12058 (1994).
- [6] R. M. Noack, S. R. White, and D. J. Scalapino, Phys. Rev. Lett. 73, 882 (1994); S. R. White, R. M. Noack, and D. J. Scalapino, *ibid*, 73, 886 (1994); C. A. Hayward, D. Poliblac, R. M. Noack, D. L. Scalapino, and W. Hanke, *ibid*, 75, 926 (1995).
- [7] M. Troyer, H. Tsunetsugu, and D. Wurtz, Phys. Rev. B 50, 13515 (1994).
- [8] M. Azuma, Y. Fujishiro, M. Takano, M. Nohara, and H. Takagi, Phys. Rev. B 55, R8658 (1997); M. Takano *et al.*, Physica C 282-287, 149 (1997).
- [9] M. Nohara, H. Takagi, M. Azuma, Y. Fujishiro, M. Takano, unpublished.
- [10] M. Uehara, M. Ogawa, and J. Akimitsu, Physica C 255, 193 (1996).
- [11] M. Kato, K. Shiota, and Y. Koike, Physica C 255, 284 (1996).
- [12] S.A. Carter et al., Phys. Rev. Lett. 77, 1378 (1996).
- [13] T. Osafune, N. Motoyama, H. Eisaki, and S. Uchida, Phys. Rev. Lett. 78, 1980 (1997).
- [14] K. Magishi, S. Matsumoto, K. Ishida, Y. Kitaoka, K. Asayama, M. Uehara, T. Nagata, and J. Akimitsu, Physica C 282-287, 1115 (1997): K. Magishi, S. Matsumoto, Y. Kitaoka, K. Ishida, K. Asayama, M. Uehara, T. Nagata, and J. Akimitsu, Phys. Rev. B 57, 11533 (1998).
- [15] N. Motoyama et al., Phys. Rev. B 55, R3386 (1997).
- [16] M. Uehara, T. Nagata, J. Akimitsu, H. Takahashi, N. Mori and K. Kinshita, J. Phys. Soc. Jpn. 65 2764 (1996).
- [17] T. Nagata *et al.*, Physica C 282-287, 153 (1997).

-502 -

「低次元量子スピン系(無機系・実験)の最近の展開2」

- [18] T. Nagata et al., J. Phys. Soc. Jpn.; 永田貴志, 秋光純, 固体物理 34, 159 (1999).
- [19] S. Ohsugi et al., Phys. Rev. B 60, 4181 (1999) ; Physica B 281-282, 665 (2000).
- [20] S. Ohsugi et al., Phys. Rev. Lett. 82, 475 (1999); Physica B 284-288, 1591 (2000).
- [21] H. Fukuyama, N. Nagaosa, M. Saito, and T. Tanimoto, J. Phys. Soc. Jpn. 65, 2377 (1996).
- [22] Y. Motome, N. Katoh, N. Furukawa, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 65, 1949 (1996).
- [23] Y. Iino, and M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. 65, 3728 (1996).
- [24] G.B. Martins, M. Laukamp, J. Riera, and E. Dagotto, Phys. Rev. Lett. 78, 3563 (1997).
- [25] H.-J. Mikeska, U. Neugebauer, and U. Schollwock, Phys. Rev. B 55, 2955 (1997).
- [26] M. Laukamp, G. B. Martines, C. Gazza, A. L. Malvezzi, E. Dagotto, P. M. Hansen, A. C. Lopez and J. Riera, Phys. Rev. B 57, 10755 (1998).
- [27] D.C. Johnston, Phys. Rev. B 54, 13009 (1996).
- [28] N. Motoyama, H. Eisaki, and S. Uchida, Phys. Rev. Lett. 76, 3212 (1996).
- [29] M. Imada and Y. Iino, J. Phys. Soc. Jpn. 66, 568 (1997).
- [30] Y. Uemura et al., unpublished.
- [31] T. Osafune *et al.*, unpublished.
- [32] S. Tsuji, K. Kumagai, M. Kato, and Y. Koike, J. Phys. Soc. Jpn. 65, 3474 (1996);
 K. Kumagai, S. Tsuji, M. Kato and Y. Koike, Phys. Rev. Lett. 78, 1992 (1997).
- [33] M. Takigawa et al., Phys. Rev. B 57, 1124 (1998).
- [34] S. Matsumoto et al., unpublished.