

Title	mK温度域の中性子散乱
Author(s)	河原崎, 修三
Citation	大阪大学低温センターだより. 47 P.9-P.11
Issue Date	1984-07
Text Version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/11094/5560
DOI	
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/repo/ouka/all/>

mK温度域の中性子散乱

理学部 河原崎 修 三 (豊中 4152)

$^3\text{He} - ^4\text{He}$ 稀釈冷却法を用いた極低温発生装置といえば、誰しも頑丈な支柱にダンパーといった、ものものしい防振設備を思い浮かべるに違いない。クライオスタットをテーブルの上に乗せて回転させるなどという事は、一見非常識な試みに思えるだろう。しかし、一方、熱の発生は、振動数の増加と共に増加する。だからクライオスタットを静かに回転させることは、もし内部構造さえしっかり作っておけば大して問題にはなるまい — 質者は単純にこう考えて、いつかmK温度域での中性子散乱実験をやってみたい、とその機会の到来を待っていた。幸い1981年に始まった日米科学協力事業でこの課題を採用して頂いた。そこで早速、米国SHE社に協力を依頼したところ、難かしすぎるからと、あっさり断わられてしまった。しかし幸い英国Oxford社で、すでに中性子実験用のクライオスタットの開発が進んでおり、100 μW 型の一号機が完成していた。話を聞いてみると、やはり内部構造をrigidにすることで振動の問題は克服できたとのこと。そこでこれを200 μW 型にpower upし、360°のアルミ窓をもった5 Tesla非対称超伝導磁石を加えたシステムを発注し、1982年から使用を始めている。テストでは、スペクトロメータの上で、クライオスタットに手を触れると、かすかに振動が感じられるような悪条件のもとでも、8 mKの低温を得ることができた。又、クライオスタットを回転しても殆んど温度の上昇は認められなかった。この装置は米国、オークリッジ国立研究所に設置されているが、日本の財産であり、利用は公開されている。

筆者らは、現在この装置を用いて、Enhanced Nuclear Magnetismの研究を行なっている。これは基底一重項状態をもつ電子の系と、超微細相互作用によって結合している核スピンの系が作り出す“複合磁性”でその詳しい解説は他にあるので省くが、¹⁾ 電子間の交換相互作用の強さによって、相転移の主役が、電子系になったり、核スピン系になったりする。あるいは、どちらが主役かわからなくて互いに協力し合って転移が起る場合もある。原子核スピンの秩序化してしまったあとでは、通常のNMRの手段も難かしくなるので、このような核スピン秩序の研究のためには、中性子散乱の方法が殆んど唯一でしかも非常に強力な手段となる。その理由は次に述べるように、この方法によれば電子系のorderと核スピン系のorderを同時に、かつ分離して観測できるからである。

中性子はそのスピンにより、電子磁気モーメントと、双極子-双極子相互作用をして散乱される。その散乱振幅は次の形に表わされる。²⁾

$$p_e = 0.27 \times \mu_B \times f(\vec{k}) \times 10^{-12} \text{ cm}$$

ここで μ_B は μ_B 単位で測った、モーメントの散乱ベクトル \vec{k} に垂直な成分で、これにより「散乱ベクトルに平行なモーメント成分は散乱に寄与しない」というnegative senseでモーメントの向きに関する情報を与える。 $f(\vec{k})$ は磁性電子の形状因子で \vec{k} の大きさに強く依存している。一方中性子は原子核スピンとももちろん磁気相互作用をするがこれは電子の場合に比べて 10^{-3} 程小さい。しかし有難

いことに核力による散乱は、散乱時の核スピン、中性子スピンの全合成角運動量に依存し、その結果、核散乱振幅は次の形に書かれる。

$$b = \bar{b} + \frac{b^+ - b^-}{2I+1} \langle I \rangle$$

b^+ , b^- は全合成スピンの $I+1/2$ 及び $I-1/2$ の時の核散乱振幅で核種によって決まる。従って中性子は核スピンの分極に比例した散乱を受けることになり、その強度は時として数 μ_B の電子磁気モーメントによる散乱に匹敵する。しかもこの散乱は電子の場合と違って \vec{k} の向きにも大きさにも依存しない。この \vec{k} 依存性をうまく利用すると電子系、核系の両方が分極している場合でもその両者を分離して観測できるのである。その典型的な例を次の Pr Sn_3 の実験に見ることができる。³⁾ この物質は $\text{Cu}_3 \text{Au}$ 型の超格子合金で 8.6 K で電子系は自らモーメントを誘起して反強磁性転移を起こす。磁気波数ベクトル \vec{Q} は $\vec{Q} = \{1/2 \ 0 \ 0\}$ で磁気モーメントの向きはこの \vec{Q} に平行である。磁気 Bragg 散乱は $\vec{k} = \vec{G} \pm \vec{Q}$ (\vec{G} : 逆格子ベクトル) で起るから $\langle 1 \ 0 \ 0 \rangle$ 逆格子軸に沿った $\{h+1/2 \ 0 \ 0\}$ 点では $\mu_{\perp} = 0$ となる。つまり、これらの点では、電子モーメントによる散乱は消えて、もし Bragg ピークが現れればそれは全て核スピンの分極によるものである。一方これ以外の $\{h+1/2 \ k \ l\}$ 点では両系からの寄与があるから $(h+1/2 \ 0 \ 0)$ のデータと合わせて解析すると両系の振舞と分離できるという訳である。

図 1 は $(3/2 \ 0 \ 0)$ 位置に 4 K 以下で現われるピークの温度変化でこれは $\langle I \rangle^2$ に比例している筈である。実際、核スピンの分極を、電子系からの超微細磁場によるものと考えてブリュアン関数を使って $\langle I \rangle / I = B_I / (A \cdot \mu_0 \cdot I / g_J \cdot kT)$ とし Pr^{3+} の超微細相互作用係数 A 及び Pr Sn_3 の飽和電子磁気モーメント μ_0 を使うとこの温度変化は図の実線のように大変よく再現される。一方電子系は誘起系だから、充分低温でも、Staggered 磁場を何等かの方法で増してやればモーメントはさらに大きくなる筈である。この余分の Staggered 磁場は、核スピンの分極によって超微細相互作用を通じて加えられる。これを観測するため

には例えば $(1 \ 1/2 \ 0)$ ピークの温度変化を詳しく測ってやればよい。10 mK あたりでは核スピン系は完全に飽和しているので $(3/2 \ 0 \ 0)$ ピークの強度から Pr の $b^+ - b^-$ の値を正確に決めることができる。従って $(1 \ 1/2 \ 0)$ ピークの温度変化のうち核スピンからの寄与は正確に決まるのでそれ以上の変化は電子モーメントの変化に帰せられるという訳である。図 2 にそのようにして求めた電子磁気モーメントの変化分を核分極に対して示してある。モーメントの小さな変化を精度よく測定できることが

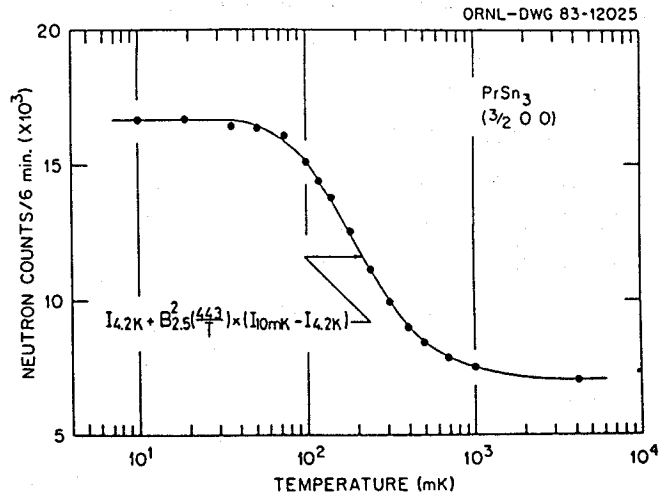


図 1. 核スピン整列による磁気 Bragg ピークの温度変化

わかる。

以上の実験は中性子散乱による核スピン秩序の観測の大変よい演習問題といえるもので、これは一応うまくパスできたと考えて、現在は PrCu_2 の相転移を調べている。この物質では電子系の交換相互作用は自ら分極するには若干弱く核スピン系の協力を得て相転移が可能になっているがその主役はどちらともわからない。このような系の磁化過程や臨界現象はどうなっているのかというのが目下の課題であるが、筆者にはもう一つ興味をひかれる問題がある。それはこの物質では磁気的なソフト化の現象が見えるのではないかということである。構造相転移の場合のフォノンのソフト化と違って、磁性体の場合、高温相は通常、常磁性であり、中性子の磁気散乱は全 $\omega-k$ 空間に広がっていて特定の分散関係をもたない。そのため高温相を“見る”ことが困難である。一方 PrCu_2 では高温相は一重項状態で通常の常磁性散乱は存在しないが、結晶場レベルの中の双極子遷移の中にいわば“誘起常磁性散乱”が存在する。これははっきりした分散関係をもっているのも、もしこれがソフト化すれば観測は可能な筈である。これまでこの物質では、帯磁率、比熱の実験が行なわれていて 5.4 mK に反強磁性的な遷移が予想されていたが、筆者等の実験で基本波数ベクトル $\frac{1}{4}\vec{a}^* + \frac{2}{3}\vec{b}^*$ のスクリー構造をもつことがわかった。調べるべき k 空間の位置が知れたので、あとは非弾性散乱の実験を実行するのみである。目下そのための単結晶の作製に追われている。

最後に低温関係者のために試料冷却について一言。 PrSn_3 , PrCu_2 では $^3\text{He}-^4\text{He}$ 混合室との結合に、超音波ハンダゴテ⁴⁾を用いた。通常のハンダ付けは全く効かないがこの方法は大変有効で、多分殆んど全ての金属、合金に使えるのではないかと思っている。試料の表面を充分平らにしてハンダの層をうすくしておけば、ハンダの超伝導による熱伝導の劣化も(少なくとも $\sim 10\text{mK}$ までは)問題にならない。試料の表面は完全にクリーンであるよりは少し酸化させる方がよい場合もある。 H_2VO_4 のような酸化物にも有効だが、潮解性があつたり結晶水を含む結晶には有効でないのでこの場合には Stycast 1266 をなるべく量をひかえて使っている。

参 考 文 献

- 1) 高柳 滋, 佐藤幸三; 固体物理 **13** (1978) 437.
- 2) W. Marshall and S.W. Lovesey; *Theory of Thermal Neutron Scattering*, Oxford, Clarendon Press. (1971).
- 3) S. Kawarazaki, N. Kunitomi, Y. Morii, H. Suzuki, R.M. Moon and R.M. Nicklow; *Solid State Comm.* **49** (1984) 1147.
- 4) 旭硝子製, 商品名サンボンダー — セラソルザ。

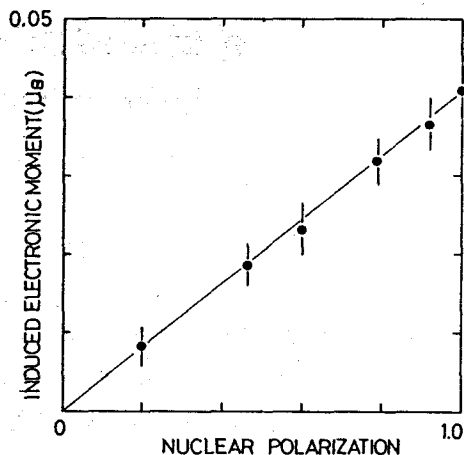


図 2. 核スピン整列によって誘起された電子磁気モーメント