

Title	中性子散乱でみるCeAgSb ₂ の磁性
Author(s)	荒木, 新吾
Citation	大阪大学低温センターだより. 126 P.7-P.10
Issue Date	2004-04
Text Version	publisher
URL	http://hdl.handle.net/11094/8435
DOI	
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

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

Osaka University

中性子散乱でみる CeAgSb₂の磁性

理学研究科 荒木新吾 (内線 5375)

E-mail: araki@nano.phys.sci.osaka-u.ac.jp

はじめに

磁性の研究において、物質内部の情報を微視的に観測することのできる中性子散乱・NMR・ μ SR などの実験の重要度は大きい。本稿では、中性子散乱による CeAgSb₂の磁性の研究について紹介したい。

CeAgSb₂は約9.5 Kで磁気秩序を示す。秩序状態における磁化過程は図1のようになっており、正方晶の[001]方向では0.4 μ_B /Ceで飽和する強磁性の磁化過程を示している。それに対して[100]方向の磁化は直線的に増加し、約3 Tで飽和する^[1]。この磁化過程は反強磁性のそれとよく似ている。したがって、CeAgSb₂の9.5 K以下の磁気構造は[001]方向の強磁性成分を伴った反強磁性(?)的なものと予想された。

この一見不思議に見える磁化過程の起源を探るために、我々は中性子散乱実験を行い、その結果、「CeAgSb₂がただの強磁性である」ことが明らかになった^[2]。

中性子散乱実験

中性子散乱実験は、茨城県東海村にある日本原子力研究所の研究用原子炉(改造3号炉 JRR-3M)で行った。

はじめに行った実験は、粉末試料の中性子回折パターンの測定である。図2は、その測定結果で、転移温度より低温(4 K)・高温(12 K)の回折パターンと、それらの差分(difference)を示している。差分の回折パターンには磁気秩序に伴う101, 110などの磁気ブラッグ反射が観測されている。それらの反射の強度比は、[001]方向に0.41 μ_B /Ceの磁気モーメントが強磁性的に配列した磁気構造でよく説明することができる。つまり、CeAgSb₂の磁気構造は強磁性であり、(001)面内に反強磁性的な成分は存在していないことがわかる。

中性子回折実験では、試料の基底状態に関する情報(基底状態における磁気構造)を得ることがで

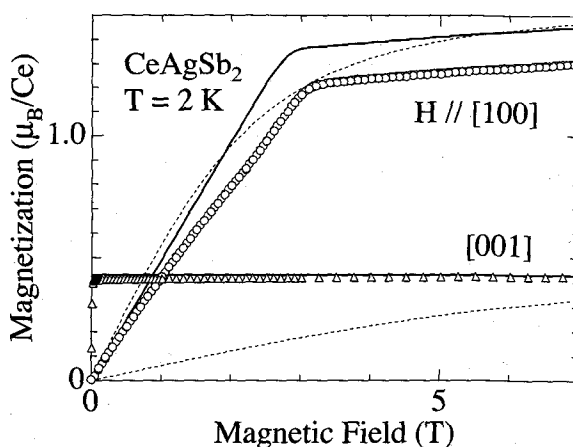


図1 CeAgSb₂の2 Kにおける磁化過程。破線は結晶場を考慮した計算の結果、実線は結晶場・相互作用を考慮した計算の結果である。

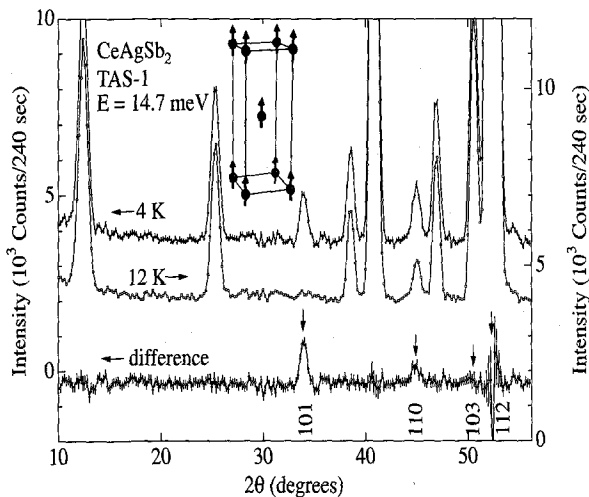


図2 CeAgSb₂の中性子回折パターン。

この励起は結晶場効果により分裂した準位間の遷移に対応していると考えられる。なお、図3では強度が弱く確認できないが、12.5meVにも結晶場励起が観測されている。

セリウムの1個の局在f電子の基底状態は、(スピン軌道相互作用を考えると)全角運動量 $J=5/2$ で6重に縮退している。この縮退は結晶場効果により解かれ、正方対称の結晶場においては3つの2重項に分裂する。中性子非弾性散乱の実験から得られた2つの結晶場励起は、図3の挿入図に示すように、結晶場基底状態 $|J_z = \pm 1/2\rangle$ から第一・第二励起状態への励起に対応づけられる。

さて、転移温度以下の温度では、 $|J_z = \pm 1/2\rangle$ は2つの1重項に分裂する。この分裂した準位間の励起(スピン波励起)は、波数依存性を示し、単結晶を用いた中性子非弾性散乱実験で実際に観測することができる。図4はスピン波の分散関係の測定結果である。図中の実線は、局在f電子間の(異方性を考慮した)強磁性的な相互作用を考慮したスピン波分散関係の計算結果で、これは実験結果をよく説明していることがわかる。計算に用いたパラメータからf電子間には異方的な(磁気モーメントの[001]方向成分の間の相互作用が、(001)面内成分の間の相互作用よりも一桁大きい)交換相互作用が働いていることが明らかになった。

以上の中性子散乱の実験から、(1)CeAgSb₂のf電子状態は、結晶場効果により3つの2重項に分裂し、(2)結晶場基底状態には異方的な強磁性的相互作用が働いていることがわかった。結晶場効果が無視できる場合には、f電子の磁気モーメントの大きさは $g_f \mu_B J = \frac{6}{7} \cdot \frac{5}{2} \mu_B = 2.14 \mu_B$ で等方的である。しかし、結晶場効果によってJ多重項が分裂した場合、それぞれの準位の持つ磁気モーメントの大きさは $2.14 \mu_B$ とは異なり、さらに異方性を持つようになる。 $|J_z = \pm 1/2\rangle$ の場合には、磁気モーメントの大きさは、図5に示すように[001]

きた。一方、中性子非弾性散乱実験からは、試料の励起状態に関する情報を得ることができる。図3は、粉末試料における非弾性散乱スペクトルである。転移温度よりも低温の4 Kでは約2 meVと約6 meVに磁気励起の存在が確認できる。約2 meVの励起は転移温度よりも高温(12 Kや60 K)では消失しており、これは磁気秩序状態におけるスピン波(磁気モーメントの集団)励起であると考えられる。それに対して、約6 meVの励起は12 K、60 Kの常磁性状態において、その強度は弱まっているものの、消失していない。従って、

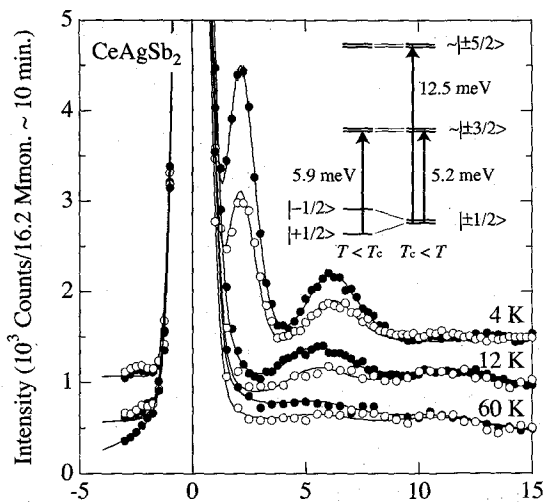


図3 CeAgSb₂粉末試料の中性子非弾性散乱スペクトル。●は $q=1.227 \text{ \AA}^{-1}$ 、○は $q=3.899 \text{ \AA}^{-1}$ で得られた測定結果である。なお、見やすいように12 K、4 Kのスペクトルは500カウント分ずつ上方に移動させている。

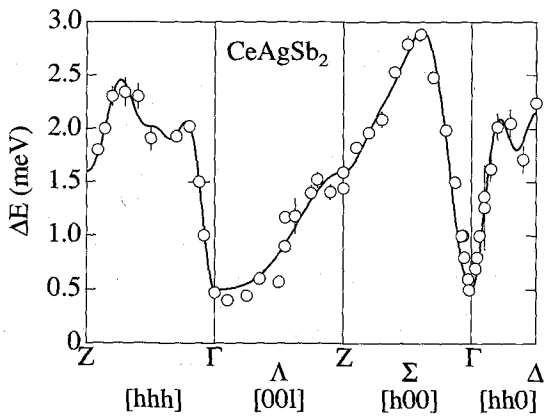


図4 CeAgSb₂のスピนว波分散。

方向には $0.428 \mu_B$ 、(001)面内には $1.28 \mu_B$ となり、(001)面内の方が3倍大きな値を持つ。結晶場効果を考慮した磁化の計算結果(図1の破線)は、ほぼ実験結果を再現しており、(001)面内の磁化が強磁性秩序モーメント($0.41 \mu_B$)よりも大きな値になることは説明できる。さらにスピนว波の分散関係の測定から、CeAgSb₂のf電子には異方的な強磁性相互作用が働いていることがわかっている。そのために、転移温度以下では磁気モーメントは[001]方向に揃うようになる(図5下の左端)。中性子回折(図2)から得られた[001]方向の秩序モーメント(最低温度において $0.41 \mu_B$)は、 $|J_z = \pm 1/2\rangle$ の[001]方向の磁気モーメントの大きさと矛盾しない。この状態から、(001)面内に磁場を印可すると、図5下のように、磁気モーメントは、[001]方向から(001)面内方向へと回転する。図5下の右端のように磁気モーメントが完全に(001)面内方向に倒れた場合、磁気モーメントの大きさは $1.28 \mu_B$ になることが期待されるが、この値は磁化の折れ曲がり時の磁化の値とよく一致している。この相互作用と結晶場効果を取り入れた磁化の計算結果(図1の実線)は磁化曲線の特徴をよく再現していることがわかる。

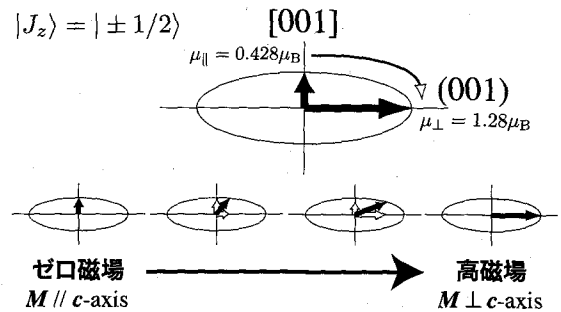


図5 結晶場基底状態の磁気モーメント。

おわりに

CeAgSb₂に見られた磁化の異常は、強磁性相互作用と結晶場効果によってうまく説明できることがわかった。これは、磁化測定をはじめとしたバルク測定の結果からでも、詳細な解析を重ねればたどり着くことができる結論であろう。しかし、本実験のような試料の微視的情報が観測可能な実験を行うことにより、「物質中でどのようなことが起きているのか？」をより直接的に知ることができ、本質に迫ることが(優れた洞察力に欠けていても)できるのである。

謝辞

本研究は目時直人氏(日本原子力研究所先端基礎研究センター)、Arumugam Thamizhavel氏(理学研究科)、大貫惇睦教授(理学研究科)との共同研究です。CeAgSb₂の結晶場効果については、竹内徹也氏(低温センター)と有意義な議論をさせていただきました。この場を借りて感謝申し上げます。

参考文献

- [1] K.D. Myers, S.L. Bud'ko, I.R. Fisher, Z. Islam, H. Kleinke, A.H. Lacerda, and P.C. Canfield, *J. Magn. Magn. Mater.* **205**, 27 (1999).
- [2] S. Araki, N. Metoki, A. Galatanu, E. Yamamoto, A. Thamizhavel, and Y. Onuki, *Phys. Rev. B* **68**, 024408 (2003).
- [3] T. Takeuchi, A. Thamizhavel, T. Okubo, M. Yamada, N. Nakamura, T. Yamamoto, Y. Inada, K. Sugiyama, A. Galatanu, E. Yamamoto, K. Kindo, T. Ebihara, and Y. Onuki, *Phys. Rev. B* **67**, 064403 (2003).