

多極子秩序を示すカゴ状希土類化合物

Ce₃Pd₂₀(Si_{1-x}Ge_x)₆の結晶場励起に関する研究

Study of Crystalline Field Effects on Rare-Earth Clathrate Compounds

Ce₃Pd₂₀(Si_{1-x}Ge_x)₆ with Multipolar Orderings

利用者 北澤 英明¹⁾、寺田 典樹¹⁾、土屋 佳則¹⁾、河村 幸彦¹⁾、吉川 明子¹⁾、
Hideaki KITAZAWA, Noriki TERADA, Yoshinori TSUCHIYA, Yukihiko KAWAMURA, Akiko KIKKAWA,
デニ アンドレアス¹⁾、酒井 治¹⁾、松田 雅昌^{2),3)}、加倉井 和久²⁾、
Andreas DÖNNI, Osamu SAKAI, Masaaki MATSUDA, Kazuhisa KAKURAI,
阿野 元貴⁴⁾、赤津 光洋⁴⁾、根本 祐一⁴⁾、後藤 輝孝⁴⁾
Genki ANO, Mitsuhiro AKATSU, Yuichi NEMOTO, Terutaka GOTO,

所属 1)物質・材料研究機構、2)日本原子力研究開発機構、3)ORNL、4)新潟大学院自然

キーワード カゴ状希土類化合物、Ce₃Pd₂₀Si₆、Ce₃Pd₂₀Ge₆、結晶場励起、中性子非弾性散乱

1. 目的

カゴ構造をもつ立方晶系R₃Pd₂₀X₆ (R=希土類元素; X=Ge, Si) は、図1に示すように磁性を担う希土類イオンのサイトとして、2つの結晶学的に異なるサイト4a (fcc副格子) と8c (単純立方格子) が存在する。ごく最近、Ce₃Pd₂₀Si₆において、四極子秩序(T_Q = 0.52 K)と反強磁性(T_N = 0.33 K)が競合していることが明らかとなり、近藤効果と四極子秩序の競合している系として興味を持たれている¹⁾。これまで、混晶系Ce₃Pd₂₀(Si_{1-x}Ge_x)₆に対して、中性子非弾性散乱 (INS) 実験を系統的に行い、2つのサイトの結晶場準位が置換とともにどのように変化するかを系統的に調べてきた²⁾。図2に示すように6KにおいてGe量の変化にかかわらず、8cサイトに由来するピークAの強度の相対強度は変化せず、4aサイトに由来するピークBの相対強度が、Ge量に減少とともに急速に弱まることわかった。この原因を探るために、今回は、2つのサイトからの結晶場励起が観測されているCe₃Pd₂₀Ge₆にスポットを当て、TAS2を用いて結晶場励起スペクトルの温度変化を調べることにした。

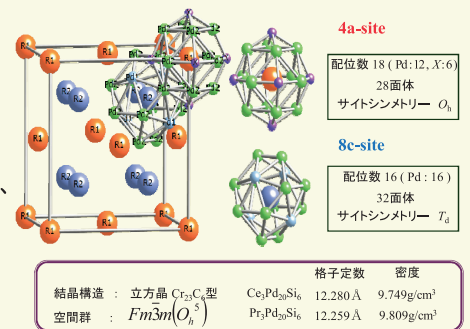


図1. 立方晶系R₃Pd₂₀X₆ (R=希土類元素; X=Ge, Si) の結晶構造

2. 方法

3軸分光器TAS-2を用いてCe₃Pd₂₀Ge₆のINS実験を行った。Ce₃Pd₂₀Ge₆粉末試料(15 g)をバナジウムセルに入れ、クローズドサイクルのヘリウム冷凍機で温度を6.5K~120Kまで変化させた。波数Qを一定に保ち(Q = 1.3 Å⁻¹)で、E_f = 8 meVに固定した状態で入射エネルギーを変化させて、-1 meVから10 meVまでの励起エネルギーΔEを変えてINSスペクトルを測定した。

3. 実験結果

図3にCe₃Pd₂₀Ge₆のINSスペクトルの温度変化を示す。最低温度の6.5Kでは、L.Kellerらの結果³⁾と同じように4meVと5.5meVに2つのピーク構造を持ったスペクトルが観測された。これらのスペクトルを2つのガウシアンと直線のバックグラウンドでフィッティングすると、ほぼ、2つのピークの積分強度が2:1であることがわかった。すなわち、サイト数の比より、ピークAが8cサイト、ピークBが4aサイトからの結晶場励起と考えられる。温度が上昇するに従い、両方のピーク強度は小さくなった。これらのスペクトルを積分強度が2:1になるようにフィッティングした時の最低温で積分強度の大きさを図4に示した。ピークAは温度の上昇とともに急速に減少するが、ピークBは温度の上昇とともにピークAに比べて減少する割合は小さい。

4. まとめ

TAS-2を用いたINS実験よりカゴ状化合物Ce₃Pd₂₀Ge₆の結晶場励起スペクトルの温度変化を観測した。4aサイトの励起スペクトル強度に比べて、8cサイトの励起スペクトル強度が温度の上昇とともに急速に減少することがわかった。6.5K~75Kの温度変化は、単純な結晶場モデル(図4実線)で説明できるようにも見える。つまり、8cサイトと4aサイトがそれぞれ、Γ₇基底状態、Γ₈基底状態を取っているという状態に対応するが、磁気エントロピーの結果からはどちらもΓ₈基底状態を有していると考えた方が良かったため、今回のINS実験の温度変化の原因をさらに詳細に検討する必要があることがわかった。

5. 引用(参照)文献等

- (1) T. Goto *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 78 (2009) 024716.
- (2) 北澤英明他、日本物理学会2010年秋季大会(25aWJ-5)
- (3) L. Keller *et al.*, Physica B 259-261 (1999) 336.

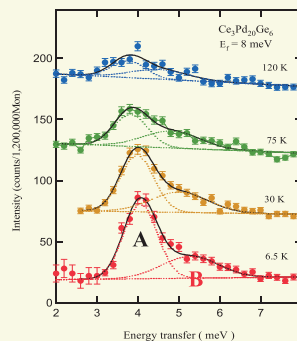


図3. Ce₃Pd₂₀Ge₆のINSスペクトルの温度変化

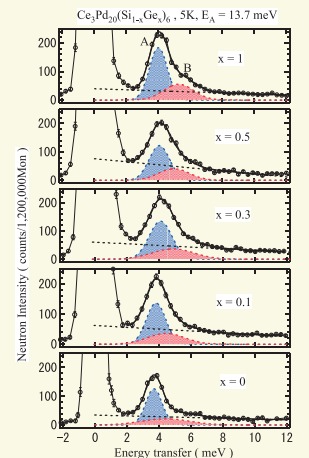


図2. 6KにおけるCe₃Pd₂₀(Si_{1-x}Ge_x)₆のINSスペクトル

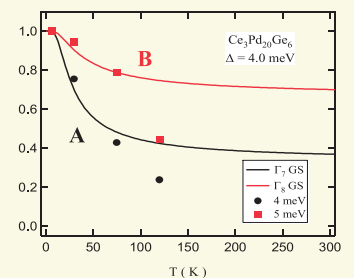


図4. Ce₃Pd₂₀Ge₆のINSスペクトル強度の温度変化。実線(黒)は基底状態をΓ₇に、実線(赤)は基底状態Γ₈と仮定した時の相対強度の温度依存性。

謝辞: 本研究は、科研費(特別推進研究)(18002008)の助成を受けたものである。