

非クラマース二重項 Γ_3 基底状態をとる 立方晶Pr化合物の結晶場励起

Crystal field excitation of cubic Pr compounds with non-Kramers doublet G_3 ground state

利用者 鈴木 博之¹⁾、寺田 典樹¹⁾、鬼丸 孝博²⁾、金子 耕士³⁾、長壁 豊隆³⁾
Hiroyuki SUZUKI Noriki TERADA Takahiro ONIMARU Koji KANEKO Toyotaka OSAKABE

所属 1) 物材機構、2) 広島大学、3) 原子力機構

概要

非クラマース希土類イオン化合物では、結晶場の基底状態として、非磁性であるが電気四極子や磁気八極子の自由度を有する非クラマース二重項 Γ_3 をとる系がある。この中でPrPb₃、PrMg₃、PrAg₂In等では、観測された結晶場励起スペクトルに、低温でQ依存性が発達する振舞いが観測されている。本課題では、PrPb₃とPrAg₂Inの単結晶を用いて、低温で発達すると考えられる結晶場励起に見られるQ依存性を測定し、それらの励起と特長な基底状態との関連について明らかにすることを目的としている。今年度の実験では、PrPb₃においても、ダブルピーク構造を示し、明確なQ依存性を示す励起とブロードでQ依存性がほとんどない励起が観測された。

キーワード 非クラマース二重項 Γ_3 基底状態、結晶場励起

1. 目的

非クラマース二重項 Γ_3 を結晶場基底状態にとるPrMg₃において、結晶場のサイトは一つにも関わらず観測された結晶場励起スペクトルが、二つのピークによって構成されており、その一つは分散が大きくシャープで強度が強く、もう一つは分散が小さくブロードで強度が弱いことが観測されている [1]。前者のピークのQ依存性は磁気的な相互作用としたRPA近似で説明できると考えられるが、後者のピークの起源は現在までわかっていない。最近の理論的なアプローチでは、基底状態に縮退があり、多重極子間の相互作用が存在する系において、観測された結晶場励起のダブルピーク構造が説明できることが示唆されている。

本研究の目的は、PrMg₃と同様に非クラマース二重項 Γ_3 を結晶場基底状態にとる系PrAg₂InとPrPb₃の、結晶場励起スペクトルの分散・構造を実験的に明らかにして、更に、波数依存性や磁場依存性から、それらの起源について明らかにすることである。NMRでは、非磁性基底状態にも関わらず、低温で核の緩和率の増大が観測されており、特にPrAg₂Inについては、磁気八極子の揺らぎが起源となっていることが示されている。

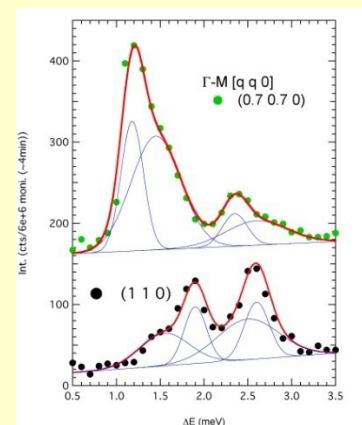
2. 方法

実験は、PrAg₂InとPrPb₃の大型単結晶を用いて、TAS2やLTASにおいて、結晶場励起の分散、及び、その波数依存性と磁場依存性を測定する。PrInAg₂では、多結晶の実験によって励起スペクトルの幅が低温で広くなり、Q依存性の発達を示唆する結果が得られており、単結晶を用いた本研究によって、励起スペクトルの分散及び構造を明らかにする。PrPb₃では、これまでの実験から、 $Q=(Q_x, 0, 0)$ ($0.5 < Q_x < 1$)のゾーンの測定がなされており、Q依存性と同定できていない励起ピークが観測されている。本研究によって、他のゾーンにおいても励起スペクトルの分散・構造を明らかにする。更に、両者の試料に対して、その起源を明らかにする目的として、励起ピークの波数依存性を測定する。

3. 研究成果

PrPb₃については、基底状態と第1励起状態間の Γ_3 - Γ_4 、第2励起状態間の Γ_3 - Γ_5 結晶場励起に対して、それぞれ2つの励起ピークが観測された(右図)。解析段階ではあるが、各励起の2本ピークは、一つはQ依存性が強く比較的シャープなピークであり、もう一つはブロードでQ依存性がほとんどないピークであることがわかった。また、 Γ_3 - Γ_4 の励のQ依存性が強い励起において、最大強度を示すのは、 $q = (-1/5, 1/2, 0)$ $\Delta E = 1.2$ meV程度であることがわかった。

PrAg₂Inにおいては、わずかなQ依存性が観測されたが、明確なダブルピークの構造は確認できなかった。この原因として、Inの吸収も強いために測定精度を上げるだけの強度が得られなかったことが挙げられる。試料について今後工夫をする必要がある。



PrPb₃の結晶場励起スペクトル

4. 結論・考察

今回のPrPb₃の実験結果は、以前に得られたPrMg₃の結果と比較して、基本的な結晶場励起の定性的な特長は類似していることがわかった。つまり、本来一つのピークとなるところが、ダブルピーク構造となり、その二つのピークのうち一つは、Q依存性を示しシャープなピークとなるが、もう片方はブロードでQ依存性がない特長を示す。PrMg₃同様、PrPb₃においてもQ依存性を示すピークはinter-siteの磁気的相互作用を基に理解できるものと考えられ、ブロードなピークの出現については、酒井らが指摘するような基底状態の縮退と多極子の効果によるものか、今後の磁場中実験などから検証していく必要がある。一方で、Q依存性を示すピークで、その強度が最大となり、 ΔE が最小となる q の値については、PrMg₃では $(1/2, 1/2, 1/2)$ であったが、PrPb₃では $(-1/5, 1/2, 0)$ となった。PrMg₃では、同じ結晶構造のNdMg₃の磁気秩序ベクトルと一致するが、PrPb₃のそれは、むしろCePb₃の磁気秩序ベクトルや、あるいはPrPb₃自身の四極子秩序ベクトルに近い。今後は、Q依存性について定量的に解析することにより、この系における磁気、あるいは四極子相互作用について解析を行っていく。

5. 引用(参照)文献等

[1] H.S. Suzuki, et al., *Journal of Physics: Conference Series*, 150 (2009) 042196.