金属反強磁性体における電荷密度波の XAFS 分光研究

XAFS spectroscopic study on metallic antiferromagnets

平賀　晴弘[1)], 松村　大樹[2)]

Haruhiro HIRAKA and Daiju MATSUMURA

[1)]東北大学　[2)]原子力機構

（概要）

低温でスピン・電荷密度波状態を示すと考えられる金属反強磁性体 Mn_3Si に対し、結晶格子と磁気秩序の相関を探るため、XAFS 測定を行った。三次元長距離磁気秩序の有無に関わらず、Mn 周りの局所構造に大きな変化は観られなかった。しかしながら、XANES から EXAFS に亘る広い波数領域にて、その振動振幅が最低温度においてさえも強く抑制されていた。Mn_3Si の磁化率・比熱・電気抵抗に観られる異常との関連解明が今後必要である。

キーワード：

XAFS, 金属反強磁性, Mn_3Si, スピン・電荷密度波

１．目的

スピン密度波・電荷密度波といった電子系の長距離秩序状態の有無が、結晶格子系に及ぼす効果を局所構造と局所電荷状態から明らかにする。試料として、T_N 以下で SDW・CDW を示す Mn_3Si を用いる。

２．方法

２種類の粉末試料 Mn_3Si（T_N = 21 K）と Mn_2FeSi（T_N = 50 K）を用意し、それぞれ 2 mg 程度を BN 粉末 20 mg と良く混ぜ合わせ、プレス成形。冷凍機に取付け、最低温度（約 15 K）から室温まで透過法により XAFS を測定。Mn-K から Fe-K 吸収端に亘るエネルギー（波数）で吸収スペクトルを計測。

３．研究成果

図 1 に、最低温度（< T_N）での $\chi(k)$ のフーリエ変換を示す。Mn-K 吸収端で比較すると、Mn_3Si のフーリエ変換強度（青線）が Fe 置換試料のそれ（赤線）に比べて半分以下に抑制されている。なお、R=2.2 Å 付近のピークは二つの Mn サイトからのピークが重なっているものと考えられる。実際、Fe 置換試料では Mn の一つのサイトのみへ選択的に Fe が置換され、その Fe から見た場合（緑線）、ピーク位置が Mn から見た場合（赤線）と異なっている。

続いて、R=2.2 Å 付近に現れる第一配位及び第二配位ピークを一つのシェルとして解析した。図２に、平均自乗相対変位 C_2 の温度変化（相対変化）を示す。図中、最低温度の C_2 で各データを合わせている。Mn-K 吸収端で比較すると、Mn_3Si（赤線）と Mn_2FeSi（緑線）では Mn_3Si の方が C_2 の温度変化率が大きく、Mn_3Si のデバイワラー因子が大きい（デバイ温度が低い）結果となった。

４．考察・結論

Mn_3Si の大きな負のワイス温度や大きな電子比熱係数[1]、そして磁化率・比熱・電気抵抗の非常に弱い磁場変化[1]など、その物性異常の原因として磁気フラストレーションが候補の一つと考えられる。磁気フラストレーションは磁性絶縁体において数多く報告されているが、T_N 以下で格子を歪ませてフラストレーションを解消するように、磁気系と格子系の結合がしばしば観測されている。しかしながら、Mn_3Si の C_2 の温度変化からは、T_N 前後で局所構造に大きな変化は観られない。金属故に磁気フラストレーション効果が格子系に強く反映されない可能性は否定できず、磁気フラストレーションの有無について、今回の結果だけからは結論を引き出せない。

他方、実験前に予想していなかった興味深いデータを得た。すなわち、Fe 置換試料に比べて Mn_3Si のフーリエ変換強度が極度に弱く、かつ、デバイワラー因子が大きい。これは、Fe 置換が Mn 周りの局所構造を乱す静的 disorder の導入とは逆センスである。絶縁体と異なり、通常の金

属ではフェルミ面をまたぐ電子-ホール励起が熱エネルギーで容易に誘起される。Mn_3Si におけるバンド構造（あるいはフェルミ面形状）の特殊性に起因して、ハーフメタル状態を示唆する理論計算が最近発表された[2]。それに依れば、majority スピンバンドはフェルミ面を持つのに対し、minority スピンバンドにはエネルギーギャップが現れる。したがって、スピン反転を伴わない電子-ホール励起が優勢となり、諸物性の弱い磁場依存性が説明できるとされている。Mn 局在スピン周りに反対向きのスピンを持つ伝導電子（種々の波数を持つ）が多く集まることにより、Mn 吸収端近傍では波の干渉が乱れ、結果として XAFS 信号が弱まる（平坦なスペクトルに近づく）のではないか。Mn_3Si は低温で SDW と CDW が実現しているとされ[3,4,5]、その電子系にやはり特徴が有りそうである。

Fe 置換濃度や測定温度領域をさらに広げ、物性との関連も視野に入れた系統的な調査を現在計画中である。

５．引用(参照)文献等

[1] C. Pfleiderer *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 172404 (2002).
[2] T. Jeong, Physica B **407**, 888 (2012).
[3] S. Tomiyoshi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **39**, 295 (1975).
[4] S. Tomiyoshi *et al.*, Phys. Rev. B **73**, 024416 (2006).
[5] 冨吉等, 日本物理学会 第 63 回年次大会 (2008).

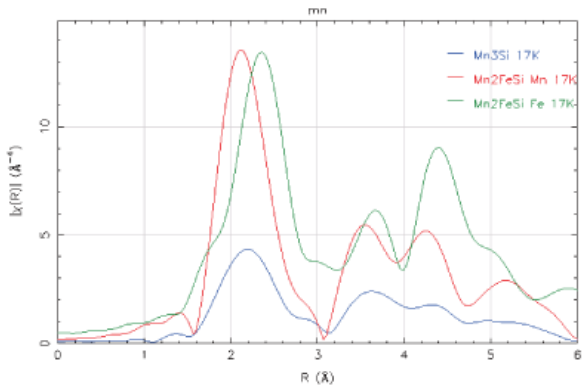

図１．最低温度での$\chi(k)$のフーリエ変換。

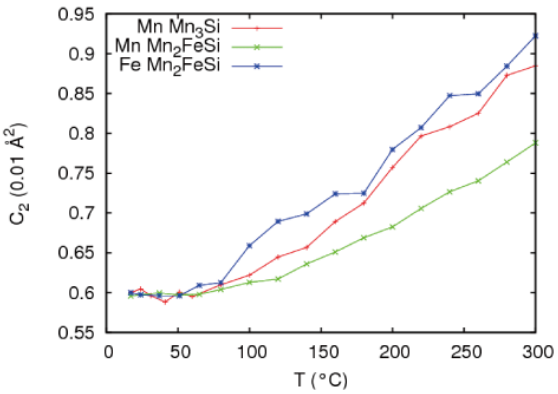

図２.平均自乗相対変位 C_2 の温度変化(相対変化)。最低温度で値を揃えている。