

利用課題名 CeT₂Al₁₀(T=鉄族元素)および R₃Al₁₁(R=Pr,Nd)の結晶・磁気構造解析

英文利用課題名 crystal and magnetic structure determination for
CeT₂Al₁₀ and R₃Al₁₁

加藤治一¹⁾ 小林理気¹⁾ 西岡孝¹⁾ 金子耕士²⁾ 目時直人²⁾

Harukazu KATO, Riki KOBAYASHI, Takashi NISHIOKA, Koji KANEKO, Naoto METOKI

¹⁾高知大学 ²⁾原子力機構

(要約 2～3 行) 転移温度を $T_0=27, 29\text{K}$ にもつ CeT₂Al₁₀ (T=Ru, Os) について、単結晶試料を使い弾性中性子散乱実験を行った。CeRu₂Al₁₀、CeOs₂Al₁₀ とともに秩序相で Propagation vector $K = (010)$ で記述される磁気構造を示すことを明らかにした。

キーワード : CeRu₂Al₁₀, CeOs₂Al₁₀, 希薄セリウム系、磁気構造決定

1. 目的

CeT₂Al₁₀ (T=Ru, Os) は転移温度 $T_0=27, 29\text{K}$ で特異な転移を示す [1]。この系では Ce の原子間距離が大きく ($\sim 5 \text{ \AA}$)、それに伴い Ce モーメント間に働く RKKY 相互作用は弱いと予想される。一方 μSR 実験からは T_0 以下で弱い内部磁場の存在が示唆され磁気秩序が存在することが明らかになってきた [2, 3, 4]。磁気秩序の driving force は何かという疑問はあるものの、ひとまず秩序相における磁気状態を実験的に確定させるべく、いくつかのグループが粉末試料を用いて中性子散乱実験を行ってきた。まず CeRu₂Al₁₀ についてはすでに超格子磁気ブラッグピークが見いだされ、Khalyavin らにより Ce モーメントが一様反強磁性秩序した磁気構造が提案されている [3, 5]。なお、Khalyavin らは磁気ピークの温度変化も測定している。 $\sim 12\text{K}$ 付近で何らかの異常がみられるようでもあり、彼らは μSR 実験の結果とあわせ第 2 の相転移が存在しているのではないかと提案している [3]。しかしながら秩序モーメントが小さい ($\sim 0.34 \mu_B$) ことを反映してここで観測された磁気ピークは極弱く、 $\sim 12\text{K}$ における異常が本質的なものかどうかにはやや疑いが残る。また CeOs₂Al₁₀ については Adroja らが中性子散乱測定を試みていたものの、(おそらく秩序モーメントが小さいために) 磁気ブラッグピークは観測されてなかった [4]。

本研究では秩序相における磁気状態をより詳細に調べるべく CeRu₂Al₁₀・CeOs₂Al₁₀ の単結晶試料を用いて中性子散乱実験を行った。単結晶試料を使うことでより強い磁気ピークの観測が期待される。①CeRu₂Al₁₀ について提案された磁気構造は正しいものか検証し、② $\sim 12\text{K}$ で相転移が存在するか確かめ、さらに③CeOs₂Al₁₀ について磁気ピークの検出を通じて磁気構造を決定することを目指した。

2. 方法

自己フラックス法を用いて CeRu₂Al₁₀・CeOs₂Al₁₀ の単結晶試料を得た。中性子実験に用いた試料の大きさは前者について $\sim 3 \times 3 \times 2 \text{ mm}^3$ 、後者について $\sim 1 \times 1 \times 1 \text{ mm}^3$ 程度であった。アルミ製のセルに入れ、試料の (0kl) 面が散乱の水平面になるようにセットして測定に供した。なお (0kl) 面の測定後、CeOs₂Al₁₀ については試料の (h0l) 面が水平面になるようにセットし直して追加で測定を行った。全ての中性子実験は JRR-3 ガイドホールで行い、CeRu₂Al₁₀ については高分解能三軸型中性子分光器 TAS-2 (T2-4) を使用し、CeOs₂Al₁₀ については多目的単色熱中性子実験ポート MUSASI (T2-3-1) を使用した。前者では中性子波長 $\lambda = 2.359 \text{ \AA}$ の弾性条件に固定して測定し、後者では PG-filter を用いて単色化された $\lambda = 2.44 \text{ \AA}$ の中性子を利用し、 $80^\circ - S - 80^\circ$ なるコリメーターで弾性散乱測定を行った。冷凍機を用いて $\sim 3\text{K}$ 程度まで温度を下げて測定を行った。

3. 研究成果

高温相 ($T > T_0$) における核反射は、CeRu₂Al₁₀・CeOs₂Al₁₀ について報告されていた結晶構造や格子定数から予想されるものとよく一致した。秩序相 ($K < T_0$) で詳細なスキャンを行った

結果、 $CeRu_2Al_{10}$ について(010), (011), (030), (031), (032), (033)の位置に、 $CeOs_2Al_{10}$ について(010), (011), (030), (033), (120)の位置にそれぞれ超格子ピークを観測した。散乱ベクトル Q が大きくなるとともに超格子反射強度は顕著に弱くなり、これらが磁気反射によるものであることがはっきりと示される。秩序相での磁気構造を決定するために、Geが秩序モーメントをもち、それらが propagation vector = 010 で表される一様反強磁性的の磁気構造(図1の内挿図)を持つと仮定し散乱強度の計算を行い、実験で得られた面反射の強度と比較した。図1のように計算値と実験値はよい一致を見せ、仮定した磁気構造が妥当であることを示している。なお、この磁気構造は粉末中性子実験により Khalyavin が提唱したものと本質的に同じである。見積もられたモーメントの大きさは $0.42 \mu_B$ (Ru)、 $0.29 \mu_B$ (Os) であった。

つぎに、上記超格子面反射のいくつかについてその強度の

温度変化を測定した(図2)。

$CeRu_2Al_{10}$ ・ $CeOs_2Al_{10}$ いずれにおいてもその超格子反射の強度は T_0 以下で単調な変化を見せる。このことは秩序モーメントが T_0 以下で単調に成長し、磁気構造は変化しないことと対応していると見るのが自然であろう。また、 $CeRu_2Al_{10}$ の NQR 実験において Al サイトの NQR 信号は T_0 で分裂する[6]。分裂幅の二乗(これはアルミサイトにおける内部磁場の二乗に対応し、ひいては磁気モーメントの二乗および中性子の磁気ピーク強度に対応している)を図2(a)に併せてのせたが、磁気ピークの強度変化と見事に同じ温度変化を示し、この点からもモーメントの単調温度変化が示唆される。

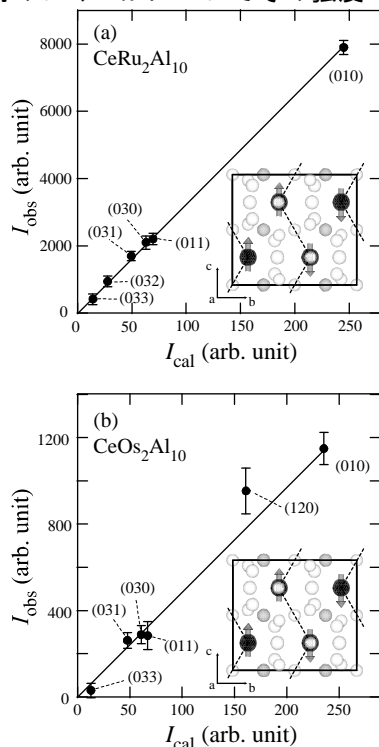


図1 散乱強度の実験値と計算値の比較

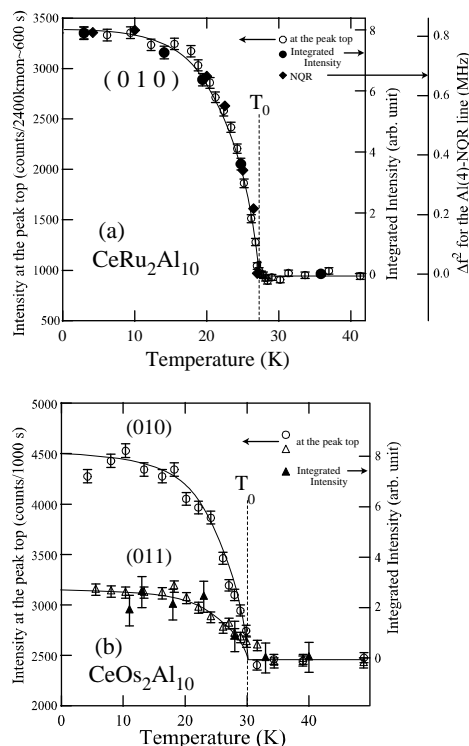


図2 散乱強度の温度変化

4. 結論・考察

転移温度を $T_0=27, 29K$ にもつ CeT_2Al_{10} ($T=Ru, Os$) について、単結晶試料を使い弾性中性子散乱実験を行った。 $CeRu_2Al_{10}$ 、 $CeOs_2Al_{10}$ ともに秩序相で共通の磁気構造を示すことを明らかにした。磁気構造は Propagation vector $K = (010)$ で記述される一様反強磁性構造である。 $CeOs_2Al_{10}$ の磁気構造決定は本研究が初めてなしたものである。また、 $CeRu_2Al_{10}$ 、 $CeOs_2Al_{10}$ ともに磁気ピーク強度の温度変化は T_0 以下で単調増加する。Khalyavin, Adroja らのグループは μSR の実験等から $12K$ ($CeRu_2Al_{10}$)、 $15K$ ($CeOs_2Al_{10}$) で第2の相転移が起こる可能性を示唆している[3, 4]が、本研究の結果からは第2の相転移が存在することに肯定的な証拠は得られない。秩序相で第2の相転移が起こっていることに肯定的な証拠は得られない。

以上の結果は Letter 論文としてまとめ、J. Phys. Soc. Jpn. に掲載が決定している。

なお、多段相転移を起こす R_3Al_{11} ($R=Pr, Nd$) の磁気構造を決定するために中性子回折測定を行っている。マシンタイムの関係上本年度は十分な測定ができず、また紙面の都合もあるためここでは詳細は述べない。

5. 引用(参照)文献等

- [1]T. Nishioka, et al, J. Phys. Soc. Jpn, 78(2009)123705 [2]S. Kambe, et al, J. Phys. Soc. Jpn., 79 (2010) 053708 [3]D. D. Khalyavin, et al, Phys. Rev. B, 82 (2010) 100405(R) [4]D. D. Adroja, et al, Phys. Rev. B, 82 (2010) 104405 [5]J. Robert, et al, Phys. Rev. B 82 (2010) 100404(R), J. M. Mignot, to be published in J. Phys. Soc. Jpn., suppl. A [6] M. Matsumura, et al, J. Phys. Soc. Jpn., 78 (2009) 123713