

多極子秩序を示すカゴ状希土類化合物 $Ce_3Pd_{20}(Si_{1-x}Ge_x)_6$ の 結晶場励起に関する研究

Study of Crystalline Field Effects on Rare-Earth Clathrate Compounds
 $Ce_3Pd_{20}(Si_{1-x}Ge_x)_6$ with Multipolar Orderings

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

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

(概要)

3軸分光器 TAS2 による中性子非弾性散乱実験により、カゴ状構造をもつ立方晶系 $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ の結晶場励起スペクトルの温度変化を測定した。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。

キーワード : カゴ状希土類化合物、 $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ 、結晶場励起、中性子非弾性散乱

1. 目的

カゴ状構造をもつ立方晶系 $R_3Pd_{20}X_6$ (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、 $Ce_3Pd_{20}Si_6$ において、四極子秩序 ($T_0 = 0.52$ 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 $Ce_3Pd_{20}(Si_{1-x}Ge_x)_6$ 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がわかった。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 $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ 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。

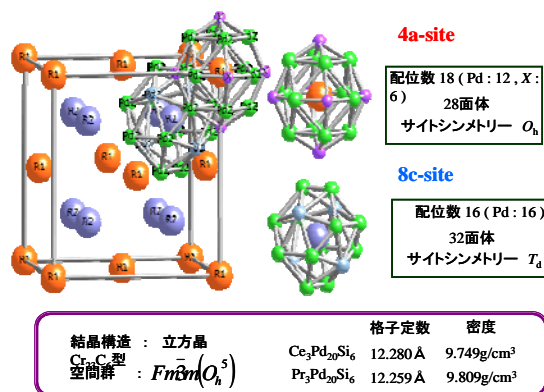


図 1. 立方晶系 $R_3Pd_{20}X_6$ (R=希土類元素; X=Ge, Si) の結晶構造

2. 方法

3軸分光器 TAS-2 を用いて $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ の INS 実験を行った。 $Ce_3Pd_{20}Ge_6$ 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 ($Q = 1.3 \text{ \AA}^{-1}$) で、 $E_f = 8 \text{ meV}$ 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 DE を変えて INS スペクトルを測定した。

3. 研究成果

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個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. 結論・考察

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、 Γ_7 基底状態、 Γ_8 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 Γ_8 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.

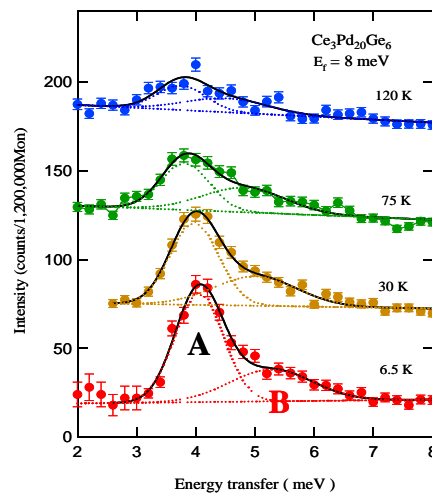


図3. Ce₃Pd₂₀Ge₆のINSスペクトルの温度変化

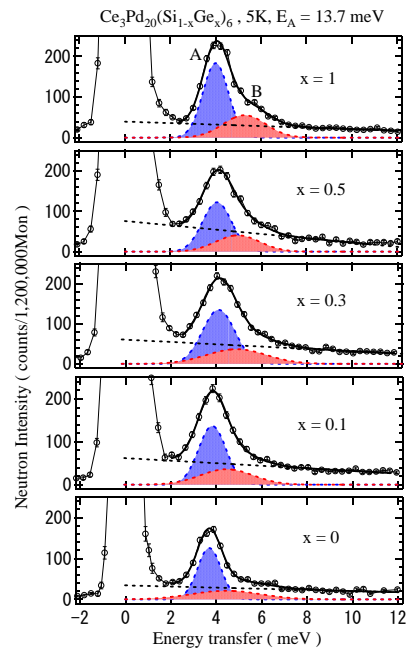


図2. 6KにおけるCe₃Pd₂₀(Si_{1-x}Ge_x)₆のINSスペクトル

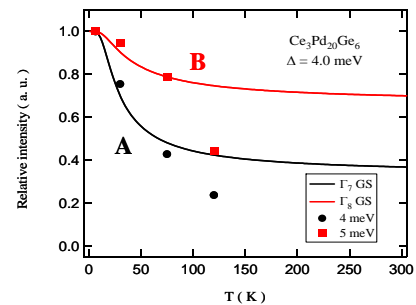


図4. Ce₃Pd₂₀Ge₆のINSスペクトル強度の温度変化。実線(黒)は基底状態を Γ_7 に、実線(赤)は基底状態 Γ_8 と仮定した時の相対強度の温度依存性。