

Ce₅Si₃ の磁性

名大理 安達健五, 千田正勝, 中野雅仁, 細谷雅昭

Ce₅Si₃ および La₅Si₃ は正方晶 Cr₅B₃ 型の結晶構造を持つことが知られているが¹⁾ 特に低温における性質はほとんど調べられていない。Ce₅Si₃ 結晶において Ce は二種類の site を持ち、各 site の Ce 原子数の比は N^I/N^{II} = 4 である。特に site II の Ce 原子, Ce^{II}, は 3.06 Å のさかめて近い距離に 1 個の最隣接 Ce^{II} を持つ dimer を形成している。

Ce₅Si₃ の磁性を明らかにするために我々は、Ce₅Si₃, La₅Si₃ の両者について帯磁率, 磁化, 電気抵抗, 磁気抵抗および低温比熱の測定を行った。試料は T₁-T₂ 溶解法 (T₁ = ジット E 900°C) で 2 日間真空中でアニールしたものをを用いた。Cr₅B₃ 型結晶構造は X 線回折により確認された。

図 1 に Ce₅Si₃ の帯磁率の測定結果を示す。100 K 以上の 1/χ vs. T plot の傾きから求めた μ_{eff} は 2.38 μ_B であり、これは free Ce³⁺ の値に近い。θ は 50 K である。100 K 以下で 1/χ はこの直線から下にそれてゆき、30 K から 10 K の傾きから得られる μ_{eff} は 1.75 μ_B である。これは結晶場効果によるものと推定される。さらに温度低下とともに 1/χ は 10 K 付近で折れ曲がりを示し、それは 4~5 K で broadening を持つことがわかる。

Ce₅Si₃ および La₅Si₃ の低温比熱の測定結果を図 2 に示す。Ce₅Si₃ の比熱の結果の特徴を要約すると: (i) 10 K 以下では La₅Si₃ のそれと比べて 1~2 倍大きく、(ii) 2.5 K および (iii) 10 K でそれぞれピークを示すこと、(iv) T = 0 に外挿した電子比熱係数 γ の値は 0.25 J/K² mole-Ce と La₅Si₃ のそれと比べて約 40 倍大きいこと、および (v) Ce の 4f 電子に起因すると思われるエントロピー: ΔS = S(Ce₅Si₃) - S(La₅Si₃) は 10, 20 K でそれぞれ 0.7, 0.9 × R ln 2 であることである。(v) の結果は Ce₅Si₃ の 4f 電子の結晶場分裂の ground state が doublet であることを示している。又 (iv) は (ii) とともに Ce₅Si₃ は heavy-fermion 系に属することを示唆している。(iii) の 10 K における比熱の異常は、10 K で χ は折れ曲がり示すこと、電気抵抗は 10 K 以下で急に減少すること

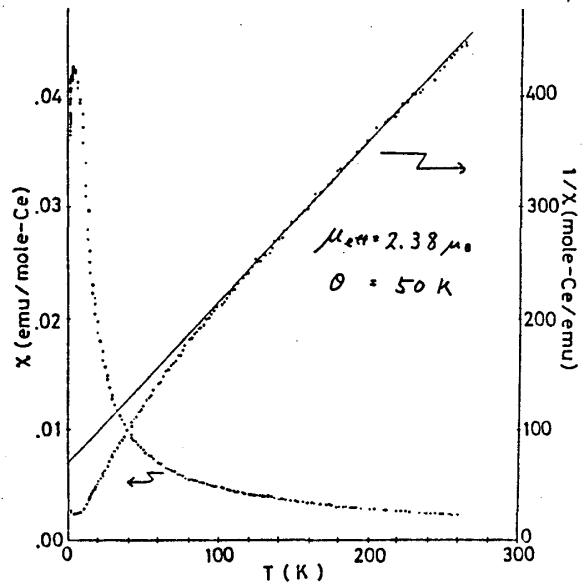


図 1. Ce₅Si₃ の帯磁率の測定結果

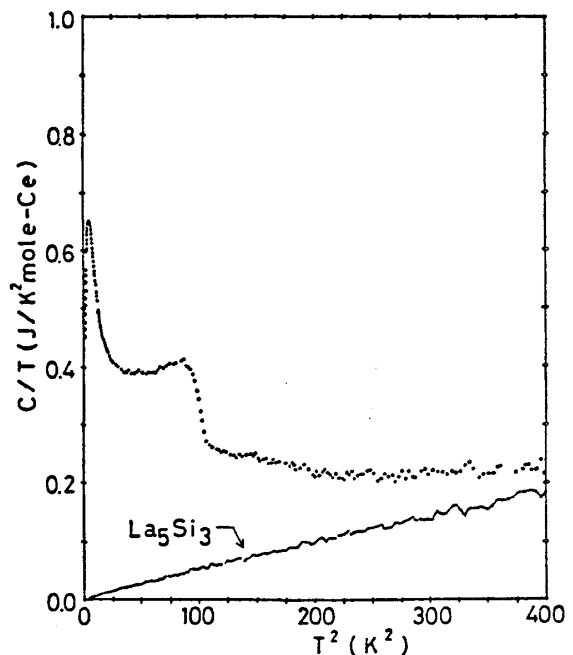


図 2. Ce₅Si₃ および La₅Si₃ の比熱の結果

と考へ合せて、反強磁性転移によるものと考えられる。γが大きいことおよび10K付近の比熱の様子から heavy-fermion の反強磁性の可能性が示唆される。

次に(ii)の2.5Kの比熱の異常の原因について考察する。2.5Kでは電気抵抗が5mΩ以下に異常が見られ、比熱の異常が磁気相転移によるものとは考えにくい。χのピークは4~5Kにある。これに関連して70K付近のCe₅Si₃の磁化および磁気抵抗の測定結果を図3、4に示す。磁化曲線は40K付近において、温度低下とともに(6.5K以下)上向きを示すようになり、1.3Kでは~40kGで磁化の急激な立ち上がりが見られる。電気抵抗は低温の広い温度範囲で負の磁気抵抗を示すが2K以下では~40kGで急激な減少を示すことがわかる。2.5K付近の結果を理解する一つのモデルとして我々は、最隣接の2つのCe^{II}がdimerを形成し、その間の反強磁性交換相互作用によりground singlet, excited triplet (energy差Δ=2|J|)に分裂しているモデルを考へる。dimer間の相互作用を無視すると、2つのモデルから比熱はT^c≃0.35Δ/kにピークを持つShottky型、χはT^x≃0.62Δ/kでピークを示し、またT≪Δ/kの低温において磁化はHM≃Δ/8H_Bで急激に立ち上がることを導かれる。T^c=2.5KとするとΔ=7K、T^x=4.4K、HM=52kG (g=2を仮定)となる。またCe₅Si₃のC₅Si₃のC²⁺の乗数値は2つのモデルの計算値の半分である。以上の結果は2つのモデルの粗工を考へれば実験結果との一致がかなり良いといえる。現実の系ではCe^{II}dimer間の相互作用、Ce^{II}の寄与、g-valueの異方性、異方的交換相互作用やKondo効果の影響などを考へる必要があるが、ここではexcited triplet stateの中を占める効果や分子場効果などをとらえたことを行う。これら二つを考慮して、Ce₅Si₃の2.5K付近の異常は2つのCe^{II}dimerモデルで説明できる可能性が大きいことがわかる。もしそうであれば10Kの(heavy-fermion)反強磁性転移はsite IのCeに起因すると考えられるが、二つはCe^IとCe^{II}との結合が比較的小さいことを示唆している。

最後に近藤効果の問題に関連して、Ce₅Si₃およびLa₅Si₃の電気抵抗の温度依存性の結果

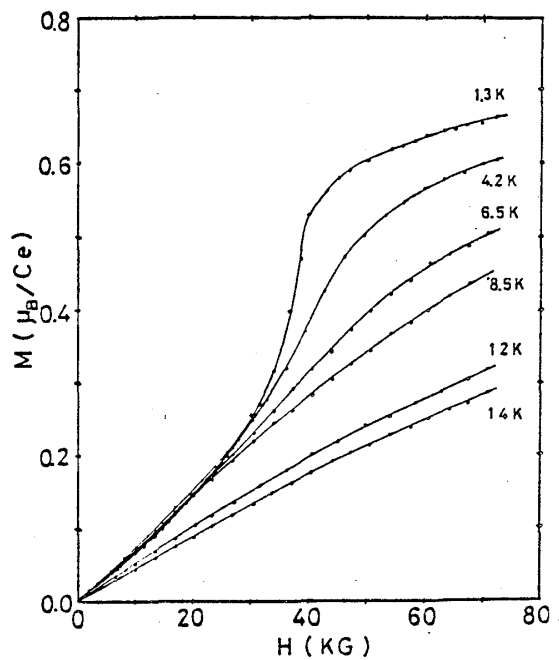


図3. Ce₅Si₃の磁化測定の結果。

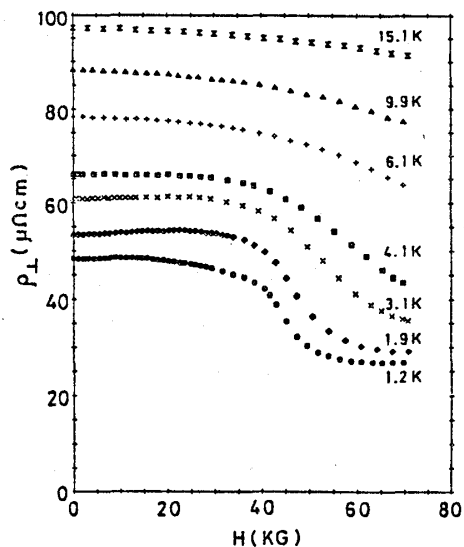


図4. Ce₅Si₃の磁気抵抗の結果。