

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 $N^{\text{I}}/N^{\text{II}} = 4$ 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} を持って 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。試料はアーク溶融したインゴットを 900°C で 2 日間真空中でアニーリングしたのを用いた。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 $1/\chi$ vs. T plot の傾きから求めた μ_{eff} は $2.38 \mu_B$ であり, これは free Ce³⁺ の値に近い。又 θ は 50 K である。100 K 以下で $1/\chi$ はこの直線から下にそれて曲り, 30 K から 10 K の傾きから得られる μ_{eff} は $1.75 \mu_B$ 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 $1/\chi$ は 10 K 付近で折れ曲りを示し, T は 4~5 K で broad peak 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 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 $0.25 \text{ J/K}^2 \text{ mole-Ce}$ と La₅Si₃ のそれに比べて約 40 倍大きいこと, および (v) Ce の 4f 電子に起因すると考えられるエントロピー: $\Delta S = S(\text{Ce}_5\text{Si}_3) - S(\text{La}_5\text{Si}_3)$ は 10, 20 K でそれぞれ 0.7, $0.9 \times R \ln 2$ 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 は doublet であることを示している。又 (iv) は (ii) とともに Ce₅Si₃ は heavy-ferron 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 は折れ曲りをするところと, 電気抵抗は 10 K 以下で急に減少すること

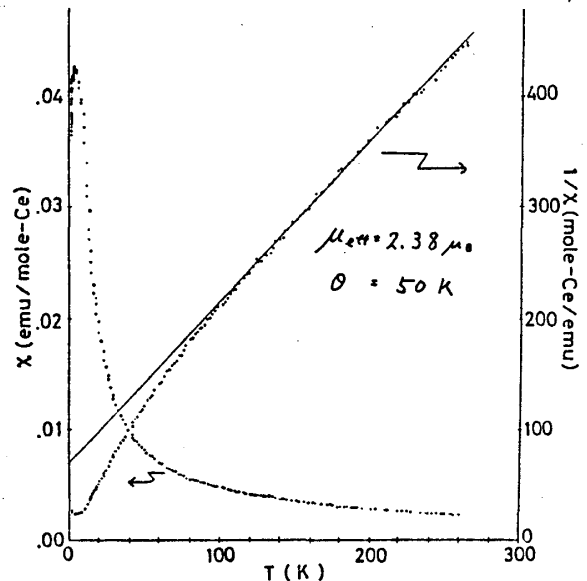


図 1. Ce₅Si₃ の帯磁率の測定結果

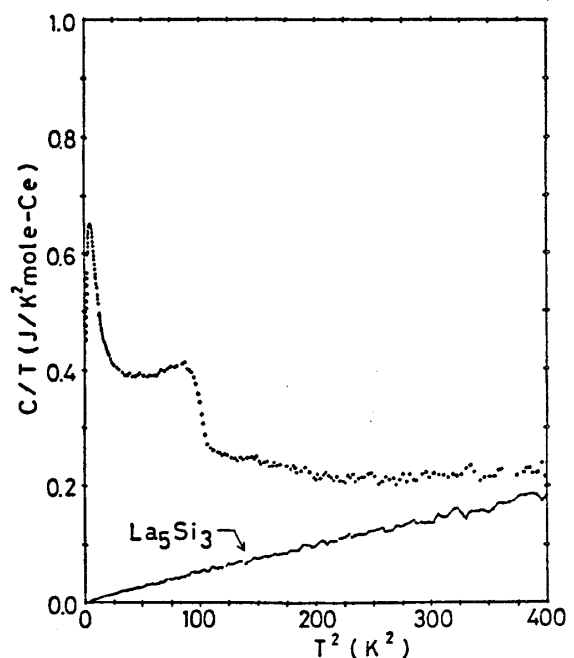


図 2. Ce₅Si₃ および La₅Si₃ の比熱の結果

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γ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。γのピークは4~5Kにある。これに関連して70K付近の Ce_5Si_3 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付近のこれら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 を作ってその間の反強磁性交換相互作用により ground singlet, excited triplet (energy 差 $\Delta = 2|J|$) 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、このモデルから比熱は $T^C \equiv 0.35\Delta/k$ にピークを持つ Shottky 型、γは $T^X \equiv 0.62\Delta/k$ でピークを示し、また $T \ll \Delta/k$ の低温において磁化は $HM \equiv \Delta/8H_B$ で急激に立ち上がることを導かれる。 $T^C = 2.5K$ とすると $\Delta = 7K$, $T^X = 4.4K$, $HM = 52kG$ ($g=2$ と仮定) となる。また Ce_5Si_3 の C および γ のピークの実験値はこのモデルの計算値の半分である。以上の結果はこのモデルの粗工を考へれば実験結果と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, 異方性交換相互作用や Kondo 効果の影響などを考へる必要があるが、これは excited triplet state の中を流れる効果や分子場効果などともたらずことになる。これらのことを考慮して、 Ce_5Si_3 の2.5K付近の異常はこの 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 の) 反強磁性転移は site I の Ce に起因すると考えられるが、これは Ce^{II} と Ce^{III} 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、 Ce_5Si_3 および La_5Si_3 の電気抵抗の温度依存性の結果

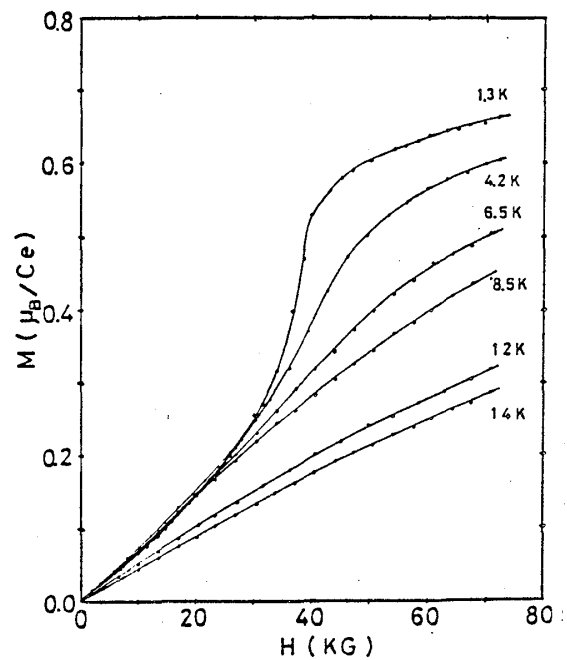


図3. Ce_5Si_3 の磁化測定の結果。

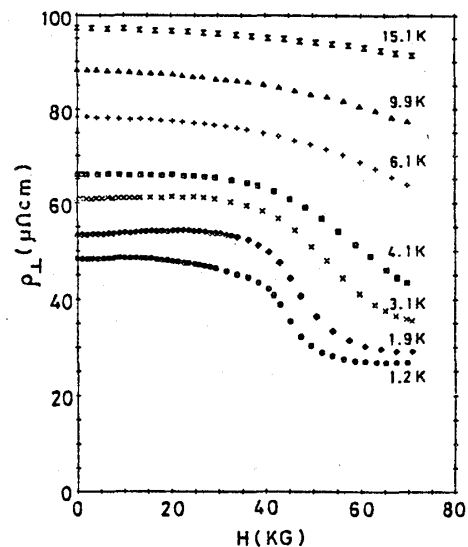


図4. Ce_5Si_3 の磁気抵抗の結果。