Bussei Kenkyu

Ce_5Si_3 の磁性

名大理　安達健五，千田正勝，中野雅仁，紺谷雅昭

Ce_5Si_3 および La_5Si_3 は正方晶 Cr_5B_3 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殆んど調べられていない。Ce_5Si_3 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 $N^{II}/N^{I}=4$ である。特に site II の Ce 原子，Ce^{II}，は 3.06 A のきわめて近い距離に1個の最隣接 Ce^{II} を持って dimer を形成している。

Ce_5Si_3 の磁性を明らかにするために我々は，Ce_5Si_3，La_5Si_3 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。試料はアーク溶解したインゴットを 900°C で2日間真空中でアニールしたものを用いた。Cr_5B_3 型結晶構造は X 線回折により確認された。

図1に Ce_5Si_3 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 μ_B であり，これは free Ce^{3+} の値に近い。χ 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 まで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考えられる。さらに温度低下とともに $1/\chi$ は 10 K 附近で折れ曲りを示し，χ は 4～5 K で broad なピークを持つことがわかる。

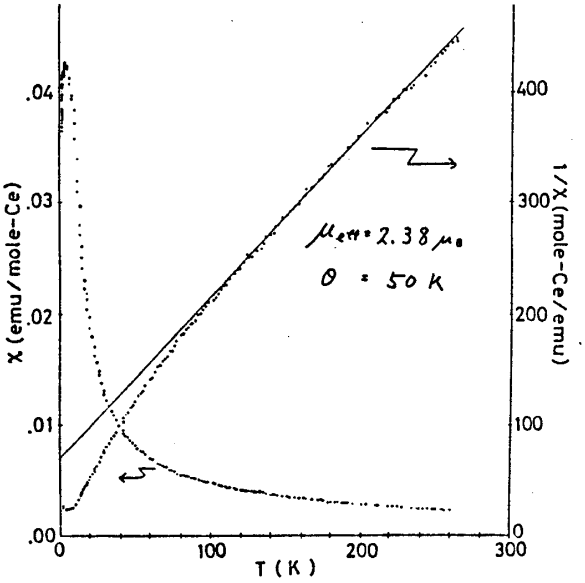

図1. Ce_5Si_3 の帯磁率の測定結果

Ce_5Si_3 および La_5Si_3 の低温比熱の測定結果を図2に示す。Ce_5Si_3 の比熱の結果の特徴を要約すると：(i) 10 K 以下では La_5Si_3 のそれに比べて1～2ケタ大きく，(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 La_5Si_3 のそれに比べて約40倍大きいこと，および (v) Ce の 4f 電子に起因するとみなされるエントロピー：$\Delta S = S(Ce_5Si_3) - S(La_5Si_3)$ は 10, 20 K でそれぞれ 0.7, 0.9 x R ln 2 であることである。(v) の結果は Ce_5Si_3 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 (i) とともに Ce_5Si_3 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 は折れ曲がりを示すこと，電気抵抗は 10 K 以下で急に減少すること

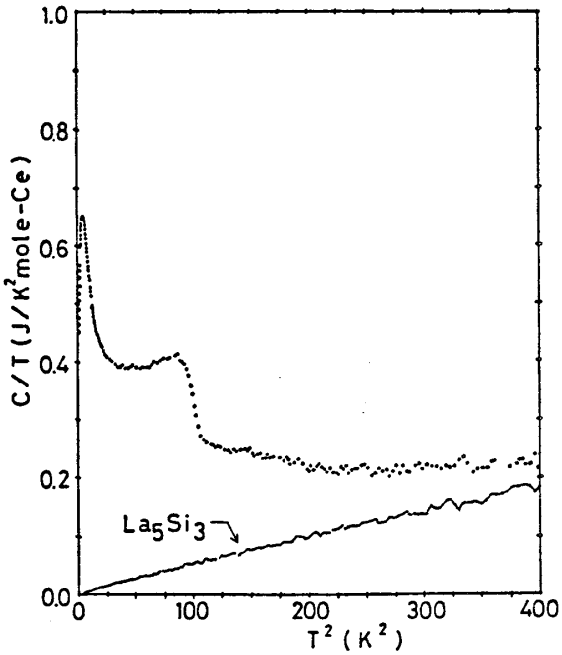

図2. Ce_5Si_3 および La_5Si_3 の比熱の結果

NII-Electronic Library Service

Bussei Kenkyu

と考え合せて，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附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では電気抵抗およびχには異常が見られず，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70kGまでの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40kG附近において，温度低下とともに(6.5K以下)上ぞりを示すようになり，1.3Kでは～40kGで磁化の急激な立ち上りが見られる。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附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ケの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える。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，χは$T^\chi \equiv 0.62\Delta/k$でピークを示し，また$T \ll \Delta/k$の低温において磁化は$H^M \equiv \Delta/g\mu_B$で急激に立ち上がることが導かれる。$T^C = 2.5K$とすると$\Delta = 7K$，$T^\chi = 4.4K$，$H^M = 52kG$ ($g=2$と仮定)となる。またCe_5Si_3のCおよびχ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さを考えれば実験結果との一致はかなり良いといえよう。現実の系ではCe^{II} dimer間の相互作用，Ce^I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える必要があるが，これらは excited triplet state の巾を広げる効果や分子場の効果などをもたらすことになろう。これらのことを考慮して，Ce_5Si_3の2.5K附近の異常はこの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，このことは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。

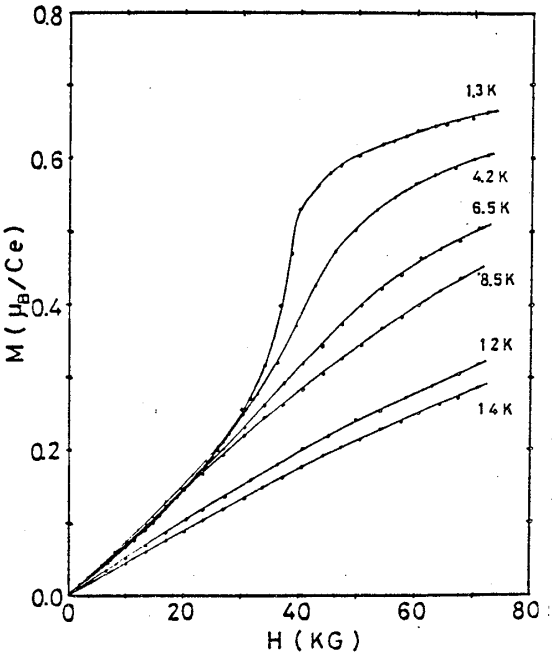

図3. Ce_5Si_3の磁化測定の結果.

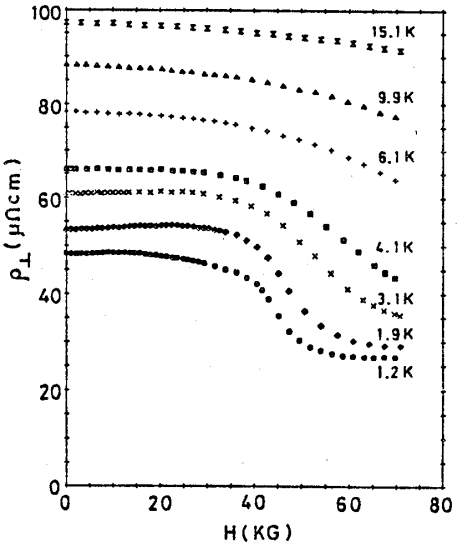

図4. Ce_5Si_3の磁気抵抗の結果.

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

NII-Electronic Library Service