

TbNiC₂ の共鳴軟 X 線散乱 Soft X-ray Resonant Scattering on TbNiC₂

田端千紘^{1,*}, 中尾裕則¹, 下村晋²

¹物質構造科学研究所 放射光科学研究施設, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

²京都産業大理, 〒603-8555 京都市北区上賀茂本山

Chihiro Tabata^{1,*}, Hironori Nakao¹, and Susumu Shimomura²

¹Institute of Materials Structure Science, Photon Factory, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

²Department of Physics, Kyoto Sangyo University, Kyoto, 603-8555, Japan

1 はじめに

RNiC₂ 化合物群 (R: 希土類元素) は、電荷密度波 (CDW) と磁性が強い相関を示す系として、最近注目されている物質である。図 1 に示すように Ni 原子と C 原子が反転中心を破る配置をとる珍しい結晶構造を持ち、空間反転対称性の破れがもたらす電子系の新奇な物性発現の可能性の観点からも興味を集めつつある。R = Tb の系はその中でも最も高い CDW および反強磁性転移温度を示す ($T_{CDW} \sim 250$ K, $T_N \sim 26$ K)。最近の非共鳴 X 線回折実験において、2 種類の CDW 秩序波数 $q_1 = (\sim 0.5, 0.5, 0)$ 、 $q_2 = (0.5, 0.5, 0.5)$ による多段の相転移が存在し、 q_1 は T_N での反強磁性秩序と共存する一方、 q_2 は反強磁性秩序の出現とともに消失する振る舞いが観測された[1]。CDW と反強磁性の共存と競合の両方を示す系は RNiC₂ の中では現在のところ Tb の系だけであり、本系は CDW と磁性の相関を研究する上で重要な位置を占めていると言える。

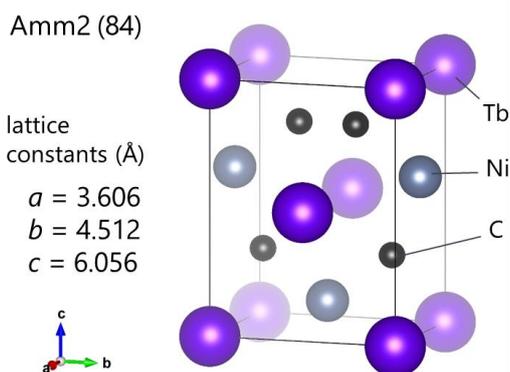


図 1: TbNiC₂ の結晶構造

CDW に関しては上記の研究で詳細に調べられているが、磁性の側面からはまだ謎が多く残されている。反強磁性相内で c 軸磁化に弱い強磁性成分が見られ、中性子回折からは磁気モーメントがキャントしていることが示唆されているが、詳細な磁気構造は確定していない。また、R イオンが磁性を、Ni イオンが CDW を担っていると言われているが、両者

の微視的な関わりについてはほとんど実験的な情報が無い。そこで本研究では、Tb の M 吸収端における共鳴 X 線散乱を行い、Tb の 4f 電子の秩序状態を選択的に調べることで、磁性と CDW への 4f 電子の関与について明らかにすることを目指した。

2 実験

試料は CZ 法で育成した単結晶試料から $\sim 2 \times 2 \times 0.5$ mm³ のサイズに切り出したものを使用した。測定は BL-16A にて、軟 X 線用高真空チャンバー内に設置された 2 軸回折計を使用して行った。⁴He フロー式のクライオスタットに bc 面が散乱面に一致するように試料を設置し、 $q_1 = (0.5, 0.5, 0)$ 反射を測定した。使用 X 線エネルギーは Tb の M 端付近の 1190 ~ 1290 eV、測定温度範囲は 12 K ~ 300 K である。

3 結果および考察

Tb の M5 吸収端で CDW および反強磁性秩序に起因した回折ピークを、秩序波数 q_1 にて観測した。温度変化をプロットすると図 2 のようになり、 T_N 以下で明瞭な強度の増大が見取れ、非常に強い磁気反射が生じていることがわかる。また、興味深いことに、 T_N よりも高温側でも強度が降温に伴い増大する振る舞いを示しており、150 K から T_N 直上に至るまでの間におよそ 1 桁もの強度の増大が生じている。一方、ピーク幅はほとんど温度変化していないことから、この強度の増大を磁氣的短距離秩序ではうまく説明できない。

回折強度のエネルギー依存性 (図 3) を見ると、 T_N よりも高温の 40 K において、吸収端での明瞭なピーク、つまり共鳴信号が存在していることがわかる。しかし、そのスペクトルは T_N 以下 (15 K) でのそれと大きく形が異なっており、このことから、40 K と 15 K では異なる性質の状態が実現していることが示唆される。 q_1 の波数で記述される、4f 電子状態の何らかの変調成分が存在することになるが、これを説明する一つのシナリオとして、次のようなものが考えられる。まず、CDW に伴う格子変調によって 4f 電子の結晶場状態も同じ波数で空間的に変調する。この準位の変調は高々数 10 K のエネルギー

一スケールで起こっていると考えられるため、十分高温（100 K 程度）では実際に占有される準位が熱的にぼやけることにより、変調成分として検出されにくい。ところが低温になると、準位の変調がより鮮明になり、その結果強い共鳴成分が観測されるようになったと考えられる。準位の熱占有率はボルツマン因子に従うので、強度の温度変化は指数関数的になる。このシナリオは、過去に $R\text{Te}_3$ (R : 希土類元素) にて観測された常磁性 CDW 相での指数関数的に増大する共鳴信号を説明するために提案されたものであるが、同じ 4f 電子系化合物である TbNiC_2 にも適用され得ると考えられる。このことは、共鳴 X 線散乱が 4f 電子磁性と CDW の相関の直接的証拠を与えた例であり、今後、磁場中での振る舞いなどを明らかにしていくことにより、本系における磁性と CDW の相関メカニズムの解明につながるものと期待される。

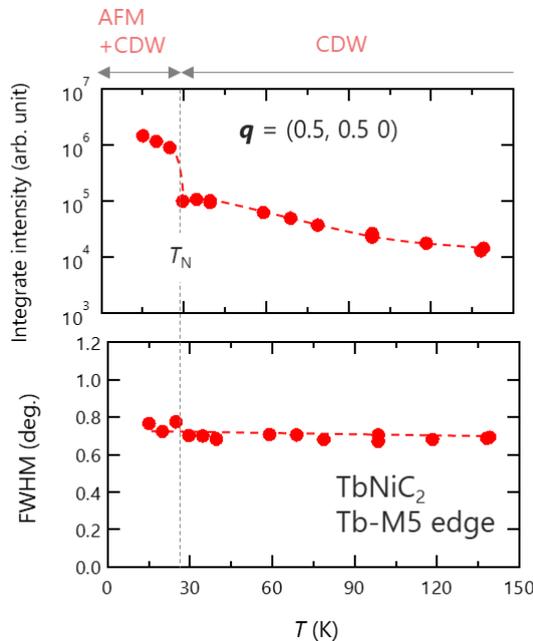


図 2 : $q_1 = (0.5, 0.5, 0)$ における共鳴散乱強度（上段）、およびピーク幅（下段）の温度依存性。

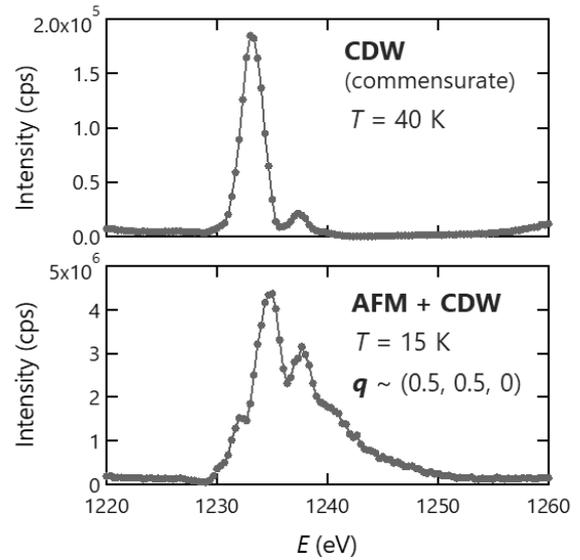


図 3 : 40 K (上) と 15 K (下) における TbNiC_2 の超格子反射強度のエネルギー依存性。

4 まとめ

軟 X 線ビームライン BL-16A にて、 TbNiC_2 の CDW と反強磁性の相関を Tb の 4f 電子の側面から調べるために Tb-M5 端での共鳴 X 線散乱実験を行った。実験の結果、4f 電子による反強磁性秩序を示唆する強い共鳴反射を観測した。また、磁気秩序温度よりも高温側の常磁性相においても共鳴成分が存在する興味深い振る舞いが見られた。今後、アジマス角・偏光依存性や磁場中測定等から、4f 電子秩序状態をさらに詳細に調べていく予定である。

参考文献

- [1] S. Shimomura *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 165108 (2016).
- [2] W. S. Lee *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 155142 (2012).

*ctabata@post.kek.jp