

MCDでみた局所帯磁率の温度依存性とバルク帯磁率との比較

宮原恒昱 東京都立大学 大学院理学研究科

1. 研究目的および方法

内殻励起MCDの特徴である原子選択性を利用すると、有効温度パラメータを導入することにより、その原子の磁気モーメントを見積もることができる。局在原子モデルでは100%偏極したときのスペクトルは比較的容易に計算でき、特に吸収にたいしてどの程度の大きさのMCDが観測されるかも推定できる。したがって、外部磁場が既知であれば原子に局在した「局所帯磁率」を評価することは比較的容易にできる。

この研究では、このようにして求められる帯磁率と、通常のバルク帯磁率を、特にその温度依存性に着目して比較した。バルク帯磁率の逆数を温度にたいしてプロットすると、その磁性体が低温でどのような磁気秩序を持ちうるか（または持ち得ないか）についての重要な情報が得られる。

このプロットがいわゆる Curie-Weiss の直線にしたがい、有限な正の温度でゼロになるならば、その温度以下で強磁性的秩序が発生することを意味する。また、この直線の延長が負の温度を横切る場合は、大雑把に言って3通りの可能性がある。まず、帯磁率の逆数が正のある温度で急激にゼロになるならその温度以下でフェリ磁性が発生することを示唆する。さらに、高温でほぼこの直線にのるが、ある温度以下で（微分が不連続に）上昇に転ずるならば、その温度（ネール温度）以下で反強磁性秩序が発生することを示唆する。さらに、ある温度以下で次第に直線から上方にはずれてほぼ一定値に近づくなれば、これはこの物質が低温で希薄近藤物質であることを示唆する。

特別な場合として、帯磁率がほとんど温度に依存しない場合がある。金属のパウリ常磁性がこれに相当し、磁気モーメントを担う電子が非常に遍歴的である（局在磁気モーメントが消えている）ことを示唆する。実は、希薄近藤物質の帯磁率が低温で一定になるのも、局在磁気モーメントの消失を示しているものと解釈することができる。

われわれは、バルクの磁性がそれぞれ異なるいくつかの試料について、磁気モーメントをもつ（MCD信号が観測できる）原子の内殻吸収MCDの温度依存性を測定した。この測定は、磁気秩序を持たない高温の測定を含むから一般には極めて高感度の測定が要求される。光源の高輝度化によってこのような測定が可能になったが、それでも偽のMCD信号を排除するには、入射する円偏光の反転と磁場の反転をふくめた4通りの測定が必要であった。

2. 結果と議論

強磁性秩序をもつことが知られている $\text{NdFe}_4\text{P}_{12}$ では、逆帯磁率は T_c より高温で Curie-Weiss の直線によくしたがう。しかしこの傾きから求めた磁気モーメントはバルク

帯磁率から求めたものと若干の差異がある。

CeSn₃, CePd₃, および CeNi はいわゆる「コヒーレント近藤」物質といわれているものである。MCDで計測したCe原子に局在した帯磁率は、これらの物質について別に測定されたバルク帯磁率の振る舞いとかなり異なっていることが明らかになった。むしろわれわれの結果は、NMRで測定された希薄近藤合金の振る舞いと似ているといえる。バルク帯磁率の特徴は、全体に温度依存性が緩やかでCurie-Weiss則にしたがう部分が少ないということである。われわれはSn, Pd およびNiサイトのMCDをも測定したが、ノイズによる検出限界以下であった。したがって、Ceに起源をもつ磁気特性を計測しているという点では、MCDもバルク帯磁率も同様である。

ではなぜ、このような差異をもたらしたのだろうか。近藤効果とはそもそも局所的なシングル・サイトの現象であるとわれわれは考える。この立場では「コヒーレント近藤」物質といえども希薄近藤物質と同様の振る舞いがMCDで見えたのは不思議なことではない。ところが、バルクの帯磁率測定では4f電子のみならず5d電子を含めたすべての電子の磁気モーメントが寄与する。また隣接する4f電子同士に反強磁性的相互作用が働く可能性も否定できない。その結果、バルク帯磁率測定は単純に4f電子のモーメントのみを見ているとはいえず、異なった振る舞いを引き起こしたと推測することができる。

一方、4f電子の遍歴性が大きいと思われるCeRu₄Sb₁₂ではMCDで見た帯磁率もCurie-Weissの法則に従わない。このような系は(高温で局在磁気モーメントの存在を仮定する)「コヒーレント近藤」物質とよぶのはあまり適切ではないともいえる。

PrFe₄P₁₂は、バルク帯磁率の振る舞い自身が異様であり、また低温での磁気秩序について諸説があるが、150K近傍で「近藤的」振る舞いがあるという有力な報告もある。しかしMCDでみると、部分的には希薄近藤的振る舞いを示すが近藤温度はおよそ50Kと低いように見える。

以上のように、MCDで見た局所帯磁率をバルク帯磁率と比較すると、振る舞いが似ている場合と異なる場合があり、今後、多数の磁性体について、磁気秩序のない高温を含めてその温度依存性を測る実験的研究の重要性が飛躍的に増してくると思われる。