

遍歴電子反強磁性体 Mn_3Si について

Spin density waves in itinerant electron antiferromagnet Mn_3Si

富吉 昇一*

Shoichi Tomiyoshi

Mn_3Si is an itinerant electron antiferromagnet with an incommensurate spin structure of a wave vector Q of $0.425a^*_{111}$ below the Néel temperature of 23K. By neutron diffraction studies 3rd harmonic satellites have been found to exist at low temperatures at the $3Q$ positions expected from the propagation wave vector Q of the fundamental satellite. The magnitude of the magnetic moments of the 3rd harmonics is about 1/40 that of the fundamental. The 3rd harmonic satellites did not follow the usual temperature variation of a magnetization curve but disappeared abruptly above 9K. Associated with this transition the intensity of the fundamental satellites changed slightly and the presence of the 3rd harmonics suppressed the amplitude of the fundamental SDW. This transition was confirmed by specific heat measurements showing a small hump at 8.5K, which persists to high magnetic fields of more than 6T. The existence of the 3rd harmonics satellites suggests that a transverse sinusoidal structure with spins modulating in the (110) or (210) plane is the most probable spin structure of Mn_3Si .

Key words : Mn_3Si , SDW, higher harmonics

1. 序 論

遍歴電子反強磁性体というのは、磁性を担う電子が結晶中を動き廻ることができる金属的な反強磁性体のことで、いろいろなスピン構造のものが存在し、また、そのスピン構造を反映している興味ある磁氣的性質を示すため、これまで多くの研究が行われてきた。そのうちでも最も注目を集めてきたのは金属クロムである。クロムは体心立方格子の単純な結晶構造であるが、その原子磁気モーメントの大きさは各原子位置により異なり、 $\langle 100 \rangle$ 方向に進むサイン波の振幅変調で表される特殊なスピン構造をとる。このような変調構造はスピン密度波(Spin Density Wave, SDW)と言われている。スピンの変調の周期は結晶の周期とは無関係で incommensurate と言われており、クロムの場合は磁気モーメントの変調周期は結晶周期の約 22 倍の長周期構造となっている[1]。

ところで、クロムと同じような SDW を示す物質は非常に少ないが、そのうちで Mn_3Si は多くの点でクロムの SDW と類似な性質があることが明らかになり注目されている。SDW といえば全て単純にクロムと同じ SDW の概念で理解できるわけではなく、 Mn_3Si はいろいろな点でクロムとは異なった

* 愛媛大学工学部 機能材料工学科

* Department of Materials Science and engineering, Ehime University

振る舞いを示すので、SDW というものを理解する上で Mn_3Si の研究は重要であると思われる。ここでは Mn_3Si の磁性について中性子回折の実験結果を中心に、これまで我々が行ってきた実験結果について述べる[2,3]。

Mn_3Si の結晶構造は立方晶構造 DO_3 -type といわれる構造で、 Fe_3Si 、 Fe_3Al 等と同じ構造であり、またホイスラー合金の一種であると考えられる[4]。Fig. 1 に Mn_3Si の結晶構造を示す。この構造で、Mn 原子は MnI と MnII の二つの種類の格子点を占め、ホイスラー合金の表し方では $MnII_2MnISi$ と表される。MnI はその最隣接原子位置を 8 ヶの MnII 原子で取り囲まれているが、MnII 原子は 4 ヶの MnI と 4 ヶの Si 原子によりその最隣接原子位置を取り囲まれているので、Mn 原子の電子状態は MnI と MnII のサイトで異なり、それぞれの磁気モーメントの大きさも異なる。同じことは Fe_3Si で明らかになっており、FeI の鉄は大きな磁気モーメントを持つのに対して、FeII の磁気モーメントの値は小さい。そのような結晶構造上の特徴から Mn_3Si の磁氣的性質はかなり複雑である。Fig. 1 に示すように、この結晶構造では、同種原子層からなる(111)面が [111]方向に積層した構造となる。このような[111]方向への異方性が Mn_3Si の特徴であり、このような結晶の特徴はそのスピン構造にも反映されている。

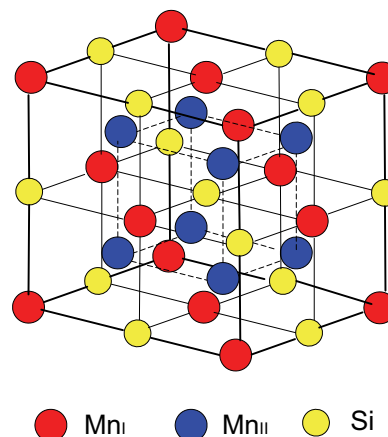


Fig. 1 Crystal structure of Mn_3Si . The layers of MnI, MnII and Si stack along the [111] direction.

2. 結 晶 の 作 製

中性子回折の実験では高品質の単結晶を用いた測定が必要であるが、 Mn_3Si の場合、二元系合金の相図にも示されているように、この相は包晶反応により生成されるので、液相から直接引き上げるブリッジマン法やチョクラルスキー法では、 Mn_5Si_3 相の混入を避けることは難しく、良質の結晶が得られない[5]。そこで我々は、これまであまり使われていない新しい方法を用いて結晶を作製したので、まず結晶作製法について述べる。

我々が用いた方法はゾーン融解法的一种である Traveling Solvent Zone (TSZ) 法という方法であり、その作製法の概略図を Fig. 2 に示す。まず Mn_3Si の rod と、 Mn_3Si より Mn 組成が少しだけ多い rod を作製し、Mn-rich rod を Mn_3Si rod で上下からサンドイッチし、高周波炉にセットする。そして高周波コイルで棒状試料を溶解するのであるが、最初に Mn-rich rod 部分から溶解を始める。Mn-rich rod の融点は Mn_3Si rod より低いので、まず Mn-rich rod だけが溶ける。サンドイッチした rod を高周波コイルに対して下げていくと、 Mn_3Si 部分は融点が高いので融解しないが、拡散により Mn_3Si 部分が融解ゾーンに浸みだしてくるので、 Mn_3Si 部分も少しずつ解けてくる。そして融解ゾーンの下の部分では、 Mn_3Si が結晶化して単結晶が成長する。

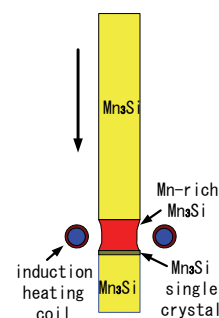


Fig.2 Crystal growth by a traveling solvent zone method.

拡散反応は非常にゆっくり進むので、rod の引き上げスピードを非常に遅くし、2 mm/h のスピードで引き上げるにより、我々は Mn_3Si 結晶を作製することに成功した。

この結晶作製法を用いることにより比較的大きな grain の結晶を作ることができたが、完全に single grain の結晶ではなく、いくつかの grain からなるものが得られた。そのモザイク幅の分布は数十分程度で中性子回折の測定に十分耐えるモザイク幅の結晶であった。

3. 中性子回折による磁気構造の解析

中性子回折の測定はパルス中性子回折の方法と、原子炉による通常中性子回折の方法を用いて行った。最初に行った測定は東北大学核理研の電子ライナックによるパルス法を用いた方法であり、この測定によりはじめて Mn_3Si で、磁気サテライト反射が $[111]$ 方向に現れることが確認された[2]。Fig. 3 に原子炉により測定した (111) ピークと磁気サテライト反射ピークを示す。磁気サテライト反射ピークが現れる位置は逆格子空間で (111) 逆格子点から $0.425a^*_{111}$ ($a^*_{111}=2\pi/a(1,1,1)$ は (111) の逆格子ベクトル) 離れた逆格子空間の位置に現れる。ここで磁気サテライト反射ピーク的位置は伝播ベクトル Q で表され、この場合 $Q=0.425a^*_{111}$ である。これらの関係を Fig. 4 の (h,k,k) 逆格子面に示す。 Mn_3Si では面心立方格子型のブラッグ反射が現れるが、磁気ブラッグ反射はそれらの逆格子点から伝播ベクトル Q だけ離れた位置に現れ、その方向は等価なすべての $\langle 111 \rangle$ 方向である。Fig. 4 の場合 $\pm [111]$ 方向と $\pm [-111]$ 方向が示されている[3]。Fig. 5 にいくつかの測定された $1Q$ の磁気サテライト反射の例を示す。

これらの磁気反射ピークは 23K 以下の温度で観測され、 Mn_3Si がネール温度 23K で反強磁性にオーダーし、そのスピン構造は横波サイン波型か、進行方向に回転するラセン型のいずれかに限定されることが、われわれの中性子回折の実験により明らかになった[2]。我々より前にソ連の E.N.Babanova らによる粉末中性子回折の結果が発表されているが、彼らは結晶周期と同じ周期の commensurate な磁気反射の指数付けを行っており、彼らの提案した構造は正しくない[6]。

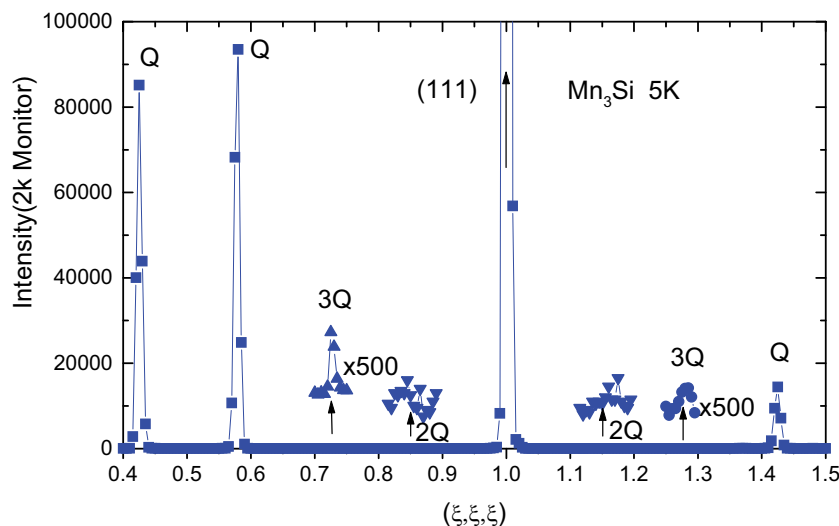


Fig. 3 Diffraction pattern scanned along the $[111]$ direction through the (111) reciprocal lattice point.

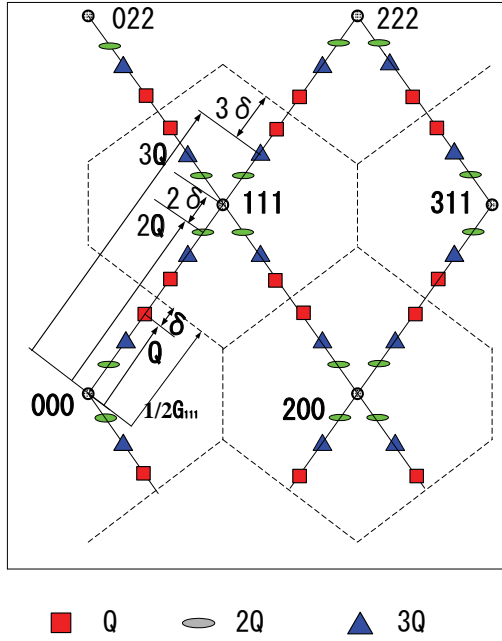


Fig. 4 The (1-10) reciprocal lattice plane of Mn₃Si. Satellite positions of the 1Q,2Q,3Q harmonics are shown as squares, ellipsoids and triangles, respectively. Dotted lines shows first Brillouin zone boundary.

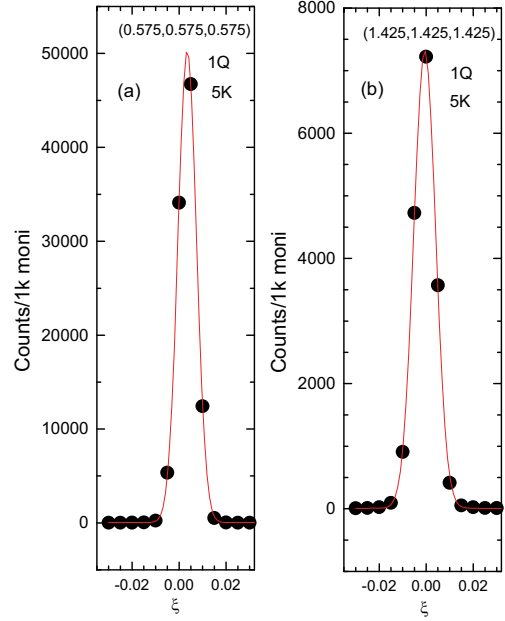


Fig.5 Typical 1Q satellite peaks as a function of reciprocal lattice coordinates measured from respective peak position. The solid lines show Gaussian fitted curve.

Fig.4 では Brillouin Zone が点線で示してある。 Brillouin Zone は逆格子空間の Unit Cell に対応するものであり、それぞれの Brillouin Zone 内のサテライト反射の配列は同じ形で、その中の伝播ベクトル Q の配置もすべて同じである。しかし各 Brillouin Zone 内の磁気反射の強度 I は指数 (hkl) により異なるが、それらの反射強度の測定より、磁気構造因子が決定でき、磁気モーメントの値を求めることができる。横波サイン波構造の場合の磁気構造因子は次のように現される[7]。

$$I(G_{hkl} \pm Q) \propto \left(\frac{e^2 \gamma}{2mc^2}\right)^2 (1 - \varepsilon_x^2) |F(G_{hkl} \pm Q)|^2 \quad (1),$$

$$|F(G_{hkl} \pm Q)|^2 = \left| \sum_i S_i f_i \exp(i(G_{hkl} \pm Q) \cdot r_i \pm i\phi_i) \right|^2. \quad (2).$$

また、 3Q 高調波に対しては

$$|F(G_{hkl} \pm 3Q)|^2 = \left| \sum_i S_i f_i \exp(i(G_{hkl} \pm 3Q) \cdot r_i \pm i\phi_i) \right|^2 \quad (3)$$

である。ここで $e^2 \gamma / 2mc^2 = 0.54 \times 10^{-12} \text{cm}$ 、 $\varepsilon_x (= \sin \theta \cos \varphi)$ は単位散乱ベクトルの x -成分 (θ と φ は極座標系の角度)、 $F(hkl)$ は磁気構造因子、 G_{hkl} はブラッグピーク (hkl) を表す逆格子ベクトル、そして S_i, f_i, r_i, ϕ_i はそれぞれ サイト i のスピンの値、磁気形状因子、原子位置位相因子である。

また、磁気形状因子は各 (hkl) ゾーンに含まれるサテライト反射に対して

$$F(hkl)^2 = 16 f^2 S_I^2 \quad \text{for } h,k,l \text{ all odd} \quad (4)$$

$$F(hkl)^2 = 16 f^2 (S_I - 2S_{II})^2 \quad \text{for } h,k,l \text{ even and } 1/2(h+k+l) \text{ even,} \quad (5)$$

$$F(hkl)^2 = 16 f^2 (S_I + 2S_{II})^2 \quad \text{for } h,k,l \text{ even and } 1/2(h+k+l) \text{ odd.} \quad (6)$$

となる。

この式を用いて Mn 原子の磁気モーメントを求めると、

横波サイン波の場合

$$\text{MnI} = 2.4 \mu_B \quad \text{MnII} = 0.3 \mu_B$$

ラセン構造の場合

$$\text{MnI} = 1.7 \mu_B \quad \text{MnII} = 0.21 \mu_B$$

の磁気モーメントの値が得られる。後に述べるが、 Mn_3Si では横波サイン波構造の可能性が高い。横波サイン波では最大振幅がラセン構造の値の $\sqrt{2}$ であるが、これは振幅が変調しているためであり、その平均を取った値が root mean square であり、ラセン構造の場合の値に当たる。 Mn_3Si では磁気モーメントの値は MnI の方が MnII より大きいという結果が得られたが、これは Fe_3Si などでも同じ傾向が見られる。 Mn_3Si ではほとんどの磁気モーメントを MnI が担っており、MnII の持つ磁気モーメントは殆んど無視できる程度の小さな値である。

次に磁気モーメントの温度変化であるが、基本波である $(0.425, 0.425, 0.425)$ と $(0.575, 0.575, 0.575)$ の二つの逆格子点の磁気ブラッグ反射の温度変化を測定した。その結果を Fig.6 に示す。この二つの磁気反射は Brillouin Zone の境界を挟んでペアで出現している反射であり、積分強度の大きさも同じ程度であるので比較しやすいピークの組み合わせである。温度を低温から上昇させると 8K まで殆んどピークの積分強度は温度変化しないが、10K 付近で少し増加し、さらに温度を上げると徐々に減少し、ネール温度に近づくと急激に減少する。23K 以上ではほぼ一定となる。これは 23K がネール温度で、これ以上の温度では磁気的なオーダーが無くなり、磁気反射が消えるためである。10K からネール温度まではいわゆるブリュアン曲線といわれる磁化の温度変化と類似な温度変化を示し、この図の場合は、スピン量子数 $S=1/2$ のブリュアン曲線の 1.5 乗に沿っていることがわかる。一般には、中性子回折の磁気反射強度はブリュアン曲線の 2 乗にそうべきであるが、反射強度を決めるいろいろな因子があるために 2 乗則からずれることが多い。ところでこの温度変化の一番の問題点は 10K 付近より低温側で強度が減少し、さらに低温側ではほぼ一定の変化をすることである。これは後の磁気サテライトの高次反射の存在と密接に関係しており、8K まで 3Q の SDW の高調波が存在し、それ以上の温度では消滅することと密接に関連している。

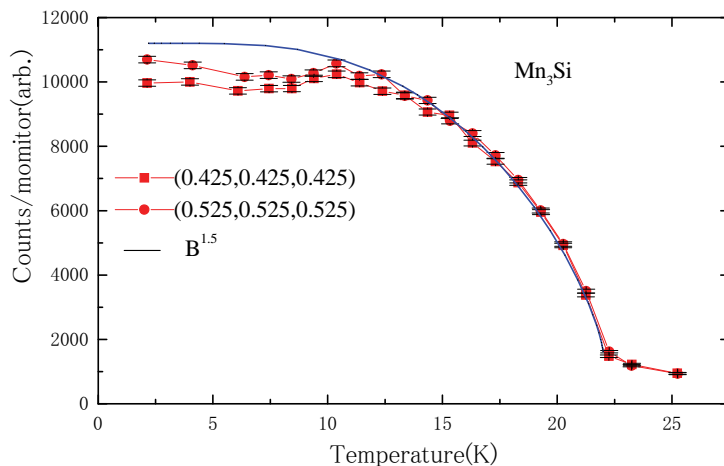


Fig.6 Peak intensity of 1Q satellites as a function of temperature obtained for a pair of satellites, $0.425(111)$ and $0.575(111)$. A Brillouin curve B of $S=1/2$ with its 1.5th power is plotted.

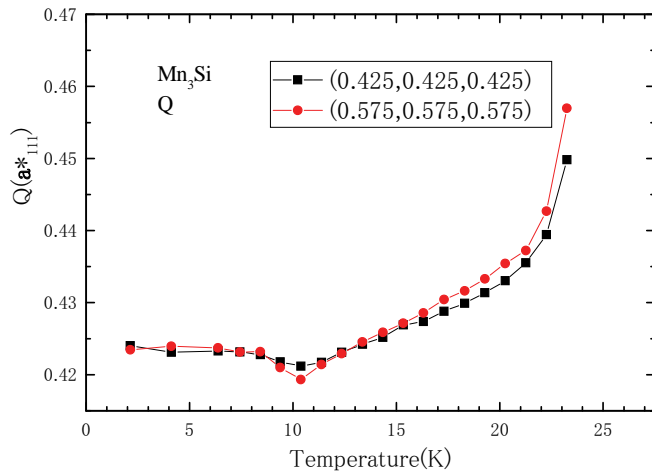


Fig.7 Temperature dependence of the wave vector Q obtained for 1Q satellites of 0.425(111) and 0.575(111) by a Gaussian fitting.

磁気反射の強度と共に磁気反射の伝播ベクトル Q がどのような温度変化をするかも興味ある問題である。Fig. 7に(0.425,0.425,0.425)と(0.575,0.575,0.575)の二つの逆格子点のサテライトピークの位置から求めた Q の値を温度の関数として示す。 Q は[111]軸上にあり、8K以下ではほぼ一定の $0.425a^*_{111}$ であるが、10K付近で最低値に達した後、徐々に増加し、その後急激に(1/2,1/2,1/2)の commensurate 値に近づく。ネール温度以上では常磁性中性子散乱は(1/2,1/2,1/2)を中心とするピークとなるので、その点に向かって近づくことを示している[8]。このようにネール温度に近づくに従い commensurate 値に接近する現象はクロムでも測定されており、同じような傾向が見られるのは大変興味深いことである。ところで Mn_3Si の Q の温度変化の特徴は 8K 付近で一度極小値を取ることであり、10K 以上では上昇に転ずるが、この極小の温度は、3Q 高調波が消失する温度に対応しており、高次高調波が発現することと密接に関連しているものと思われる。

4. 高次反射の測定

SDW では基本波の他に高次高調波も発生する可能性がある。クロムの場合は基本波の他に、2Q の高調波と 3Q および 5Q の高調波の存在が確認されている。一般に SDW の発生に伴う高調波は奇数次反射 1Q、3Q、5Q、、、が磁気反射で、偶数次反射 2Q、4Q、、、は電荷密度波 (Charge Density Wave, CDW) 及び格子歪波 (Strain Wave) によると考えられている[9]。クロムではネール温度以下の全温度領域において 2Q および 3Q の高調波が存在することが明らかにされている[10,11]。また、5Q の高調波の存在も確認されている[12]。しかしクロム以外の 3d-電子系磁性体では、このような SDW 発生に伴う高調波はこれまでに報告されていない。

Mn_3Si の高調波の中性子回折による測定は米国 BNL 国立研究所の HFBR 原子炉の 3 軸中性子分光器を用いて行った。HFBR 原子炉は中性子ビーム強度が強く、SDW の高調波のような反射強度が弱い測定に適した最も優れた原子炉である。Fig.8 に TSZ 法で作成した単結晶試料を用いて測定した 3Q 高調波の中性子回折パターンを示す。図に示すピークは各逆格子点を通して[111]方向にスキャンした場合と[-111]方向にスキャンした場合を示している。それらの位置はすべて逆格子点から $0.275a^*_{111}$ だけ離れており、3Q の出現が期待される位置が丁度そのピーク位置となり、期待される位置と測定されたピーク位置は一致している。その他の逆格子点でも 3Q ピークの出現が期待される位置にピークが観測されており、 Mn_3Si に於いて 3Q 高調波が存在することは、これらの事実からほぼ確定的である。

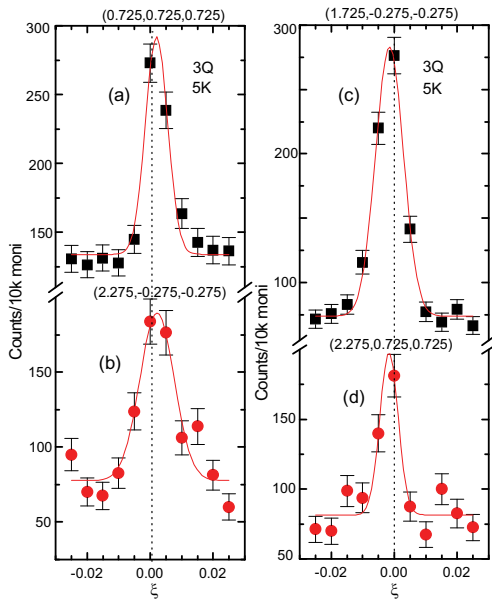


Fig.8 Typical 3Q satellites at 5K as a function of reciprocal lattice coordinate ξ which is measured from expected position for respective 3Q harmonics.

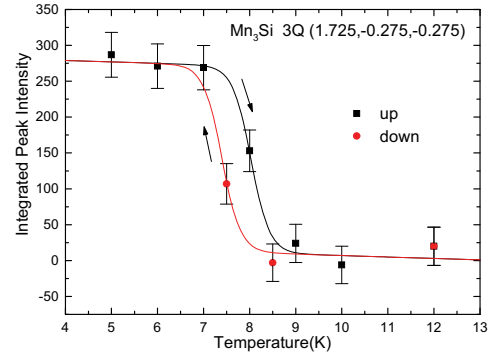


Fig.9 Integrated peak intensity of 3Q of satellites at a position of (1.725, -0.275, -0.275) as a function of temperature for raising and decreasing temperatures.

これらの 3Q のピーク強度はそれぞれが属しているブリルアンゾーンにより異なっており、それらの強度 $I(hkl)$ は磁気構造因子 $F(hkl)$ により上式(1)~(6)により表される。(111),(200),(222)ゾーンの 3Q ピークの測定データの解析より、3Q の磁気モーメントの振幅として次のような値が得られた。

$$\mu(\text{MnI}) = 0.061 \mu_B$$

$$\mu(\text{MnII}) = 0.002 \mu_B.$$

MnI の 3Q の振幅は 1Q に比較しておおよそ 1/40 ほどの小さな値であり、高調波の振幅は非常に小さい。しかし、このような小さな振幅でも中性子のブラッグ反射としてはっきりとしたピークとして現れるのである。磁気モーメントの値はピークの積分強度が強くないため誤差がかなり大きい。MnI と MnII の相対的な振幅の比を 1Q と 3Q で比較すると、3Q では MnII の値が大きくなっている点が目立つ。

次に非常に興味ある点は 3Q の積分強度の温度変化である。温度変化は(2.25,0.25,0.25)について測定した。Fig.9 に示すように、まず温度を上昇させると、7K から急激に減少し 8K でほぼ消滅する。1Q サテライトが消滅するネール温度が 23K であるから、それよりはるかに低い温度で 3Q は消滅することになる。次に 12K から温度を下げていくと、7K からピークが現れ、強度が増加し、6K でほぼ飽和する。温度上昇過程と降下過程では 1K 近くの温度ヒステリシスがあり、しかも転移点における反射強度の温度変化が非常に急激であるのでこれは通常の二次の相変態ではなく、一次の相転移であると考えられる。

次に偶数次の 2Q の高次反射についてであるが、3Q の磁気反射の測定がこの実験の主要な目的であったため、2Q についてのスキャンは行っているが、精度の高い測定を行わなかったために測定誤差の大きいデータしか得ていない。しかし測定した 4 々のピークのうち、1 つのピークではピークらしき

ものが観測され、その位置も期待される位置にほぼ一致する。しかし他の 1 つのピークについては位置がずれており、また他の 2 つのピークはバックグラウンドと区別できなかった。従って 2Q が本当に中性子回折で観測できたかどうかについてはこの測定でははっきりした結果は得られなかった。期待された位置に現れた 2Q ピークはバックグラウンドの揺らぎがピークとなっていたのかもしれない。現在までのところ中性子回折の測定から 2Q 高調波が存在する確証は得られなかった。ところが、後に簡単に述べるように spring-8 の強力 X-線を用いた測定を行った結果、2Q の charge density wave が存在することが明らかになった[13]。X-線では charge density そのものの測定が可能であるが、中性子回折では SDW が出現したことによる格子の歪だけを測定することになるので、中性子と X-線では同じものを見ているわけではない。しかしいずれにしても Mn_3Si では、1Q の他に 3Q の高次反射が実際に存在することが確定し、また、 Mn_3Si の SDW はユニークで物性的にも面白いことが分かってきた。

5. 比熱の測定

3Q の高次反射がネール温度よりはるかに低い 8K 付近で一次転移的に消滅する奇妙な温度変化を示すことが明らかになったが、これが、比熱でどのように観測されるのかは非常に興味ある問題である。そこで TSZ 単結晶を用いて比熱の測定を行った。用いた装置は Quantum Design 社の PPMS 比熱測定装置で、比較的少量の試料でも十分な精度で測定が出来る高性能測定装置である。Fig.10 に比熱の温度変化を示す。比熱は T_N の磁気転移点に大きな λ -タイプの比熱のピークを持つ。ところで強磁場を加えても比熱のピークシフトは起こらず磁場効果は全くない。Fig. 10 には磁場 $H=0\text{Oe}$ と 60kOe での結果を示しているが、我々が以前に行った 150kOe の強磁場を加えた測定でも、比熱のピーク位置は磁場を加えない場合と比較して殆どシフトしていなかった。一般に磁気転移点の低い磁性体すなわち弱磁性体は磁場効果が大きく、 23K に磁気転移温度を持つ Mn_3Si はこのような弱磁性体に属すると考えられるが、このように比熱の磁気ピークが殆んど動かないのは異常であり、そのような例は珍しい。そのような点から Mn_3Si は磁場に敏感ではない磁性体であるといえる。フェルミ液体(Fermi Liquid)といわれるカテゴリーの弱磁性体では磁場効果が大きいことが期待されるが、 Mn_3Si は磁場効果が非常に少ないことから、non-Fermi Liquid と考えられ、そのような観点から、 Mn_3Si のユニークな磁気的性質の解明が進められている[14]。

次に 8K 付近における比熱のふくらみの部分を分かりやすく示したのが Fig.11 である。この図では

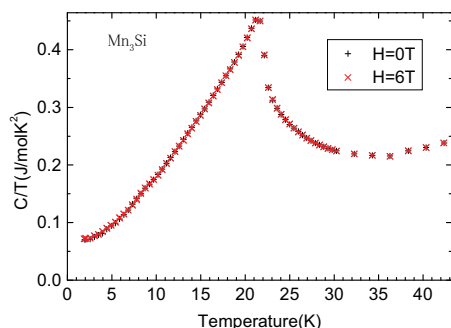


Fig.10 Specific heat divided by temperature (C/T) as a function of temperature at magnetic fields of $H=0$ and 60kOe .

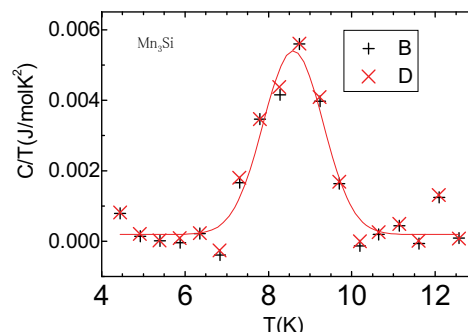


Fig. 11 Expansion of a small peak of the C/T curve in Fig.10 around 8K at magnetic field of $H=0$ and 60kOe .

スムーズに変化している部分をバックグラウンドとして差っぴいている。この図で明らかなように、8.5Kにピークがあり、3Q 高調波の一次転移的消失の温度と一致している。また、60kOe の磁場下でもこのピークは存在しているので、強磁場下でもスピン構造は変わっていない可能性がある。

6. 議 論

中性子回折の実験により Mn_3Si ではネール温度 $T_N=23\text{K}$ で SDW が発生し、さらに 3Q 高調波が 8K で生じることが明らかになった。 Mn_3Si のスピン構造はラセン構造か横波サイン波構造かのいずれかであることが以前に行われた中性子回折で示されているが[2]、どちらであるかはまだ決まっていない。ところで、磁気異方性が非常に小さい立方晶の Mn_3Si の場合、奇数次の高調波の存在が許されるのは横波サイン波構造だけであると考えられる。というのはラセン構造の場合、同じ大きさの磁気モーメントが同じ回転角で進んでいくスピン配列であるので、高調波が発生すると、回転ピッチ角が等しくなくなり、隣の磁気モーメントとなす角度が等しくなくなる。このように隣接スピン間のランダムな角度のずれが発生すると、スピン間の交換相互作用エネルギーを大きく損することになり、ラセン構造での高調波の発生はエネルギー的に不利になる。一方、横波サイン波構造の場合は、サイン波の振幅が純サイン波から少し角ばるか、または、尖ったりする形になるが、各隣接スピン間はお互いに平行または反平行であるので、サイン波からのずれによる交換相互作用エネルギーの増加は磁気モーメントのわずかな増減によるものだけであり、ラセンに比較して小さいと考えられる。このような理由により、3Q 高調波が発生できるのは横波サイン波構造に限られると思われるので、 Mn_3Si のスピン構造としては横波サイン波構造の可能性が最も高い。

ところで、 Mn_3Si の横波サイン波構造は、伝播ベクトル $\mathbf{Q}=0.425\mathbf{a}^*_{111}$ であるので、原子位置 \mathbf{r}_i での位相は $\phi_i = \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{Q}$ と表されるので、そのスピン構造は Fig.12 に示すようになる。ここでサイン波は [111] 方向に進み、スピンは(112)または(110)面内にあるものとする。この図で MnI は磁気モーメントの大きな振幅変調を示し、MnII は小さいモーメントの振幅変調を表す。ここでは MnI と MnII はそれぞれ別々の包絡線で表されることに注意してほしい。また、MnII は二つの別々の包絡線で表される。これは primitive cell 中に Mn 原子が異なった位置を占めるために起こることであり、クロムの場合には primitive cell の中に一つのクロム原子しかないのですのようなことは起こらない。

この包絡線から明らかなように MnI の振幅変調の節の部分には少し位相がずれた MnII の振幅が重なっているので、MnI の節の部分で全体の振幅がゼロになることはない。このために Mn_3Si では交換歪ができにくくなる。すなわち SDW の発生に伴い、格子歪が生じにくくなると考えられる。これは

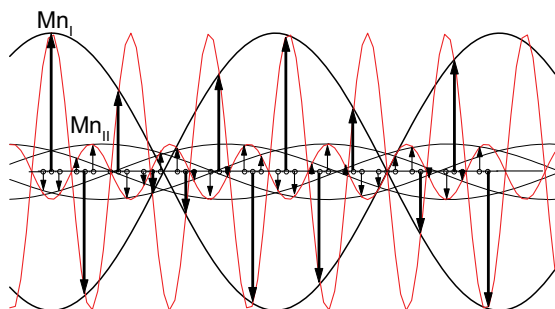


Fig.12 Transversal sinusoidal spin structure of Mn_3Si determined from 1Q harmonic satellites. There are three envelopes of the amplitude corresponding to MnI, MnII moments.

クロムのような単純な場合と比較すると面白い。クロムの場合は節と腹がはっきりしており、節の部

分での交換歪が大きくなり、したがって格子歪の波が発生するのである。クロムでは $2Q$ の高調波が観測されたが、これは格子歪 Strain Wave であると考えられており、Charge Density Wave からの寄与は非常に小さいと考えられている[9]。 Mn_3Si では包絡線に示すように大きい振幅の MnI の節の部分でゼロにならないので Strain Wave は立ちにくく、もし $2Q$ の高調波があるとする純粋な Charge Density Wave の可能性がある。

次に CDW についてであるが、Spring-8 の X-線を用いた研究により $2Q$ の CDW が存在することが明らかになった。この CDW のピークは $2Q$ 高調波のピークの位置で二つに分離しており、 $8K$ で消失する部分と、ネール温度まで存続する部分に分かれている。まだ温度変化の詳細は明らかになっていないが、CDW が存在することは事実である。詳細については今後発表予定である[13]。このように Mn_3Si では高次反射を含めて SDW の振る舞いが非常に面白い。今後これらを含めて問題点を解明して行きたい。

7. ま と め

Mn_3Si では $3Q$ の高調波を伴う SDW が発生する。反強磁性に転移するネール温度は $23K$ であるが、 $3Q$ の高調波が発生する温度は $8K$ であり、ネール温度よりはるかに低い温度である。その転移は一次転移的であり、急激に消失する。強磁場下の比熱で、比熱の磁場による変化は殆んどなく、また、 $60kOe$ の磁場まではスピン構造の変化は無いものと思われる。 Mn_3Si のスピン構造としては横波サイン波構造の可能性が高い。

8. 引 用 文 献

- [1] E. Fawcett, Rev. Mod. Phys. **60**, 209 (1988).
- [2] S. Tomiyoshi, and H. Watanabe, J. Phys. Soc. Jpn., **39**, 295 (1975).
- [3] S. Tomiyoshi, E. R. Cowley and H. Onodera, Phys. Rev. B, **73**, 024416 (2006).
- [4] B. Aronson, Acta Chemical Scandinavica, **14**, 1414 (1960).
- [5] A. B. Gokhale and R. Abbaschian, Bulletin of Alloy Phase Diagram, **11**, 468 (1990).
- [6] E.N.Babanova, F.A.Sidorenk, and P.V. Gel'd, Sov. Phys. Solid State, **17**, 616 (1975)
- [7] E. Ressouche, *Introduction to Physical Techniques in Molecular Magnetism, Part I*, Yesa 1999, ed by F. Palacio, E. Ressouche, J. Schweizer, 192 (1999).
S. W. Lovesey: *Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter*, **2**, Clarendon Press. Oxford (1984)
- [8] Y. Yamaguchi, T. R. Thurston, H. Miki and S. Tomiyoshi, Physica B, **213&214**, 363 (1995).
- [9] K. Hirai, J. Phys. Soc. Jpn., **66**, 560 (1997).
- [10] Y. Tsunoda, M. Mori, N. Kunitomi, Y. Teraoka, and J. Kanamori, Solid State Commun., **14**, 287 (1974).
- [11] R. Pynn, W. Press, and S. M. Shapiro, Phys. Rev. B, **13**, 295 (1976).
- [12] J. P. Hill, G. Helgesen, and D. Gibbs, Phys. Rev. B, **51**, 10336 (1995)
- [13] S. Tomiyoshi and H. Ohosumi, to be published.
- [14] C. Pfleiderer, J. Boeuf and H. v. Löhneysen, Phys. Rev. B, **65**, 172404 (2002).
C. Pfleiderer, J. Mag. Mag. Mater. **226-230**, 23 (2001).