

(東工大院理工, 名大院工[†], 名大院理[‡]) ○稻熊正康, 加藤治人[†], 篠原久典[‡], 榎敏明

【はじめに】セリウム金属内包フラーレン $\text{Ce}@\text{C}_{82}$ は、内包された磁気異方性をもつ Ce イオンの 4f スピンと C_{82} ケージ (π 電子) のスピンが組み合わさった磁性体である。我々はこれまでに、 $\text{Ce}@\text{C}_{82}$ の分子間では C_{82} 裂のスピン (π 電子) が反強磁性的 $\pi-\pi$ スピン間相互作用をもち、そして分子内では内包された f スピン (Ce^{3+}) と C_{82} 裂のスピンの間に弱い反強磁性的 $\pi-f$ スピン間相互作用があることを明らかにしてきた。¹ 今回、アルカリ金属 (Rb) を $\text{Ce}@\text{C}_{82}$ 粉末にドープすることによって、分子間に π 電子を介した $f-\pi-f$ スピン間相互作用を発現する新しい磁性体の作成を試みた。静磁化率、交流磁化率測定を行い、ドープによって発現した $\text{Ce}@\text{C}_{82}$ の磁性について解析および考察を行った。

【実験】石英セルの中に 4.5 mg の $\text{Ce}@\text{C}_{82}$ 粉末と Rb アンプルを入れ、真空加熱処理 (300°C) を行うことで $\text{Ce}@\text{C}_{82}$ 結晶中に含まれる溶媒分子を取り除いた。ドーピングを行う前に、SQUID を用いてセル中の $\text{Ce}@\text{C}_{82}$ 粉末の磁化過程 (-5.5–5.5 T) および磁化の温度依存性 (2–300 K) の測定を行った。その後、Rb アンプルを破り 2 ゾーン法 ($\text{Ce}@\text{C}_{82}$: 250°C, Rb: 170°C) を用いてドーピング処理を行った。作製した $\text{Rb}_x\text{Ce}@\text{C}_{82}$ について、磁化過程および磁化の温度依存性の測定を行った。また周波数 (0.1, 1, 10, 100, 1000 Hz) および温度 (2–10 K) を変化させて、交流磁化率測定を行った。

【結果と考察】2 K における $\text{Rb}_x\text{Ce}@\text{C}_{82}$ の磁化過程を測定した結果、ドープする前の $\text{Ce}@\text{C}_{82}$ と比べて全般的に磁化が増加し、1 T 以上の領域でヒステリシスが見られた (Fig.1)。また磁化過程測定における印可磁場の変化を遅くした場合、ヒステリシスの大きさが減少した。さらに、このヒステリシスの温度依存性を調べた結果、およそ 5 K でほぼヒステリシスが消失した (Fig.2)。この時間緩和を詳しく調べるために、2 K において最大印可磁場から急速に磁場を減少させ、その磁場における $\text{Rb}_x\text{Ce}@\text{C}_{82}$ の磁化の時間変化を測定した (Fig.3)。その結果、緩和過程はほぼ指數関数で表されるが同時に振動的な成分の存在も見いだされた。実験結果から見積もられた緩和時間は、およそ数百秒程度になり、測定磁場の減少に伴って緩和時間も減少することがわかった。これまでの結果から、 $\text{Rb}_x\text{Ce}@\text{C}_{82}$ には温度と磁場に依存する時間緩和が存在している。また緩和過程の活性化エネルギーは 8–10 K と見積もられた。これらの

結果はスピングラス的挙動を示唆しているが、磁化率の温度変化では、2 K 以上でスピングラス転移に特徴的なカスプは確認できなかった。また 2–10 K の温度範囲での交流磁化率測定では、0.1 Hz 以上の周波数領域で磁化の周波数依存性は見られなかつた。我々は以上の結果を、 π 電子を介した長距離的な f スピン間相互作用によるスピングラスが形成されているためと考えた。ドーピングにより π 電子が伝導電子となり、それと反強磁的に結びついた局在 f スピンの間に間接相互作用が生まれることによってスピングラス状態が発現したと考えられる。さらに詳しい解析を進め、その結果を発表する予定である。

【参考文献】

1. M. Inakuma et al., *J. Phys. Chem. B*, in press.

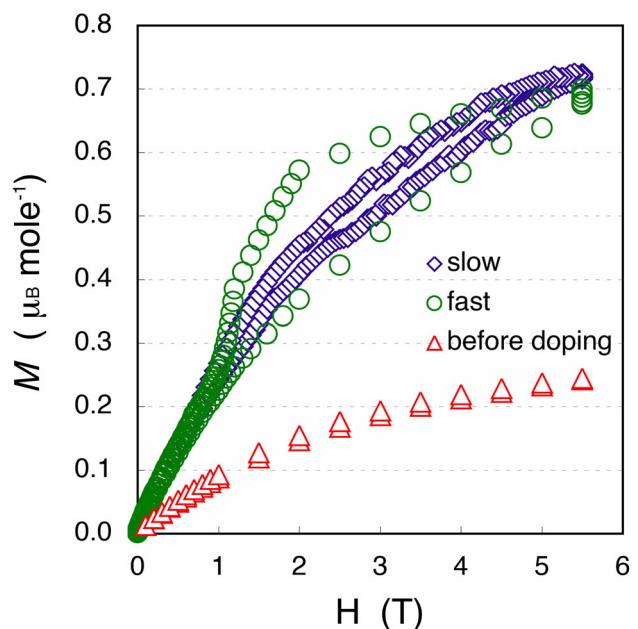


Fig.1 Ce@C₈₂ および Rb_xCe@C₈₂ の 2 K における磁化過程 : 1 T 以上の領域で, slow (0.02T/min), fast (0.2T/min)

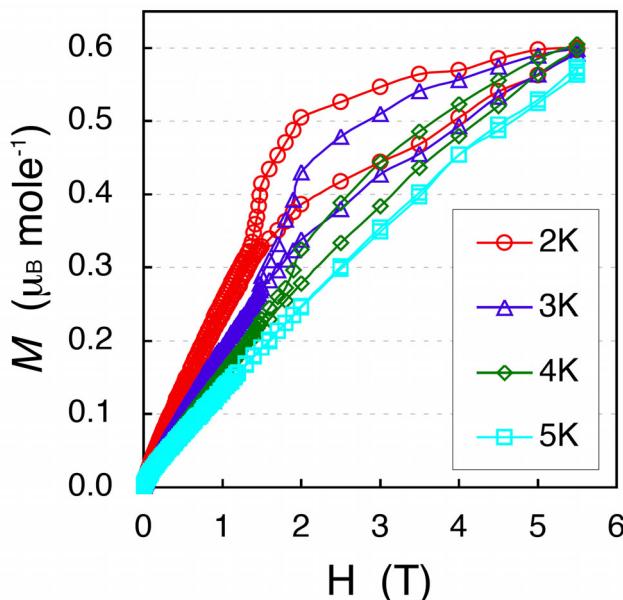


Fig.2 Rb_xCe@C₈₂ の磁化過程の温度変化

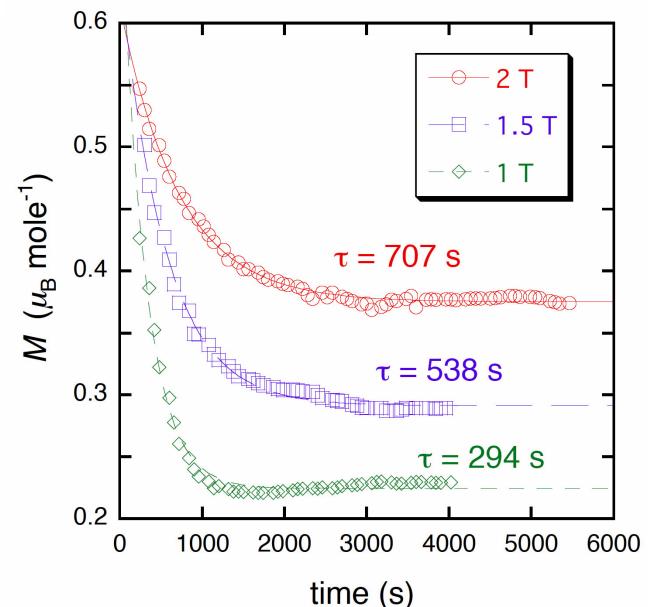


Fig.3 Rb_xCe@C₈₂ の磁化の時間緩和