

# 非球対称な磁気モーメント密度を伴う磁気秩序における 中性子磁気回折の高次反射について

平成 17 年 12 月 29 日

松村 武\*

長周期の磁気構造をもつ系からの中性子磁気回折ピークに高次反射が現れる代表的な場合に、磁気構造が完全な正弦波ではなく矩形波で表される anti-phase domain 構造があるが、ここでは球対称ではない一般的な磁気モーメント密度による磁気秩序でも、基本伝播ベクトル  $\mathbf{q}$  の反射のほかに、 $3\mathbf{q}$ ,  $5\mathbf{q}$ ,  $7\mathbf{q}$  のような奇数次の高次反射が現れることを示す。基本伝播ベクトル  $\mathbf{q}$  の反射強度の leading term は 0 階テンソル、すなわち等方的な磁気モーメント密度であるが、 $3\mathbf{q}$ ,  $5\mathbf{q}$ ,  $7\mathbf{q}$  の反射強度の leading term は、それぞれ 2 階、4 階、6 階のテンソル量となる。

## 1 中性子散乱

物質中の電子との磁氣的相互作用により、波数  $\mathbf{k}$ 、スピン状態  $\chi$  の中性子  $|\mathbf{k}, \chi\rangle$  が波数  $\mathbf{k}'$ 、スピン状態  $\chi'$  の中性子  $|\mathbf{k}', \chi'\rangle$  に散乱されるとき、その中性子磁気散乱断面積の基本式は、

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right)_{\chi \rightarrow \chi'} = r_0^2 \frac{k'}{k} \sum_{\lambda, \lambda'} p_\lambda \langle \lambda | \chi | (\boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{Q}_\perp)^\dagger | \lambda' \chi' \rangle \langle \lambda' \chi' | \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{Q}_\perp | \lambda \chi \rangle \delta(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'}) \quad (1)$$

で表される [1]。ここで、 $r_0 = -0.538 \times 10^{-12}$  cm,  $\lambda$  と  $\lambda'$  はそれぞれ散乱前と散乱後の物質の電子状態を表す。 $\boldsymbol{\sigma}$  は Pauli 行列

$$\sigma_x = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_y = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_z = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2)$$

である。 $\mathbf{Q}_\perp$  は、散乱ベクトルを

$$\boldsymbol{\kappa} = \mathbf{k} - \mathbf{k}' \quad (3)$$

とし、 $i$  番目の電子のスピンと運動量をそれぞれ  $\mathbf{s}_i$  と  $\mathbf{p}_i$  としたとき、

$$\mathbf{Q}(\boldsymbol{\kappa}) = \sum_i e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}_i} \left\{ \mathbf{s}_i + \frac{i}{\hbar\kappa^2} (\mathbf{p}_i \times \boldsymbol{\kappa}) \right\} \quad (4)$$

の散乱ベクトル  $\boldsymbol{\kappa}$  に垂直な成分

$$\mathbf{Q}_\perp = \tilde{\boldsymbol{\kappa}} \times (\mathbf{Q} \times \tilde{\boldsymbol{\kappa}}) \quad (5)$$

である。 $\tilde{\boldsymbol{\kappa}}$  は単位散乱ベクトル  $\tilde{\boldsymbol{\kappa}} = \boldsymbol{\kappa}/\kappa$  を表す。また、 $p_\lambda$  は物質が電子状態  $\lambda$  にいる熱力学的な確率である。

ここで (4) を

$$\mathbf{Q}_S = \sum_i e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}_i} \mathbf{s}_i \quad (6)$$

$$\mathbf{Q}_L = \frac{i}{\hbar\kappa^2} \sum_i e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}_i} (\mathbf{p}_i \times \boldsymbol{\kappa}) \quad (7)$$

のようにスピン部分と軌道部分に分ける。これらはスピン磁気モーメント密度  $\mathbf{M}_S(\mathbf{r})$  および軌道磁気モーメント密度  $\mathbf{M}_L(\mathbf{r})$  と

$$\mathbf{Q}_S = -\frac{1}{2\mu_B} \int \mathbf{M}_S(\mathbf{r}) e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (8)$$

$$\mathbf{Q}_L = -\frac{1}{2\mu_B} \int \mathbf{M}_L(\mathbf{r}) e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (9)$$

\*東北大学大学院理学研究科物理学専攻  
E-mail: tmatsu@iiyo.phys.tohoku.ac.jp

の関係で結びつけられている [1]. 従って,  $-2\mu_B \mathbf{Q}$  は磁気形状因子 (magnetic form factor) であり,  $-2\mu_B \mathbf{Q} (\boldsymbol{\kappa} = 0)$  はイオンの全磁気モーメントとなる.

行列要素の計算において,  $\boldsymbol{\sigma}$  は中性子のスピン状態,  $\mathbf{Q}_\perp$  は電子の状態について作用する演算子であるから,

$$\langle \lambda' \chi' | \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{Q}_\perp | \lambda \chi \rangle = \langle \lambda' | \boldsymbol{\sigma} | \lambda \rangle \cdot \langle \lambda' | \mathbf{Q}_\perp | \lambda \rangle \quad (10)$$

のように分離できる.

$$\langle \lambda' | \mathbf{Q}_\perp | \lambda \rangle = \tilde{\boldsymbol{\kappa}} \times (\langle \lambda' | \mathbf{Q} | \lambda \rangle) \times \tilde{\boldsymbol{\kappa}} \quad (11)$$

であるから,  $\langle \lambda' | \mathbf{Q} | \lambda \rangle$  が計算できれば, 中性子散乱断面積の計算ができる.

中性子が非偏極のときは,  $\chi$  および  $\chi'$  についての和をとることで,

$$\begin{aligned} \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right) &= r_0^2 \frac{k'}{k} \sum_{\lambda, \lambda'} p_\lambda \langle \lambda | \mathbf{Q}_\perp^\dagger | \lambda' \rangle \cdot \langle \lambda' | \mathbf{Q}_\perp | \lambda \rangle \delta(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'}) \\ &= r_0^2 \frac{k'}{k} \sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha\beta} - \tilde{\kappa}_\alpha \tilde{\kappa}_\beta) \sum_{\lambda, \lambda'} p_\lambda \langle \lambda | Q_\alpha^\dagger | \lambda' \rangle \langle \lambda' | Q_\beta | \lambda \rangle \delta(\hbar\omega + E_\lambda - E_{\lambda'}) \\ &= r_0^2 \frac{k'}{k} S(\boldsymbol{\kappa}, \omega) \end{aligned} \quad (12)$$

と表される.

## 2 磁気モーメント密度

### 2.1 一般的な表式

Balcar & Lovesey の本 [2] では, 複数の電子からなる局在軌道について, 全角運動量  $\mathbf{J} = \mathbf{S} + \mathbf{L}$  で表される電子状態間の行列要素  $\langle JM | \mathbf{Q} | J'M' \rangle$  を計算する表式が与えられている. ここでは  $J = J'$  を仮定し, その表式を以下に示す<sup>1</sup>.

$$\langle JM | \mathbf{Q}_S | JM' \rangle = \sqrt{4\pi} \sum_{KQK'Q'} Y_{KQ}(\tilde{\boldsymbol{\kappa}}) c(K, K') \langle j_K \rangle (KQK'Q' | 1q) (K'Q'J'M' | JM) \quad (13)$$

$$\begin{aligned} \langle JM | \mathbf{Q}_L | JM' \rangle &= \sqrt{4\pi} \sum_{KQK'} Y_{KQ}(\tilde{\boldsymbol{\kappa}}) \frac{2K+3}{K+2} \{ \langle j_K \rangle + \langle j_{K+2} \rangle \} a(K, K+1) \\ &\quad \times (KQK+1Q' | 1q) (K+1Q'J'M' | JM) \end{aligned} \quad (14)$$

ここで,  $Y_{KQ}$  は球面調和関数,  $(j_1 m_1 j_2 m_2 | j m)$  は Clebsch-Gordan 係数である.  $(KQK'Q' | 1q)$  の  $|1q\rangle$  というのは,  $\mathbf{Q}$  はここでは  $x, y, z$  成分をもつベクトルではなく,  $Q_1^{(1)}, Q_0^{(1)}, Q_{-1}^{(1)}$  の 3 成分をもつ 1 階の球テンソルとして表されていることに対応している.  $q$  はその成分 1, 0, -1 のことである.  $x, y, z$  成分との関係は,

$$\begin{aligned} Q_1^{(1)} &= -(Q_x + iQ_y)/\sqrt{2} & Q_x &= (Q_1^{(1)} - Q_{-1}^{(1)})/\sqrt{2} \\ Q_0^{(1)} &= Q_z & Q_y &= i(Q_1^{(1)} + Q_{-1}^{(1)})/\sqrt{2} \\ Q_{-1}^{(1)} &= (Q_x - iQ_y)/\sqrt{2} & Q_z &= Q_0^{(1)} \end{aligned} \quad (15)$$

で与えられる. また,  $\langle j_K \rangle$  はベッセル関数  $j_K(\kappa r)$  の動径方向の平均値

$$\langle j_K(\kappa) \rangle = \int_0^\infty j_K(\kappa r) |R(r)|^2 r^2 dr \quad (16)$$

である,  $R(r)$  は局在軌道の波動関数の動径部分である. これらに係数  $c(K, K')$  や  $a(K, K')$  がかかってくる. 一般に, 1 電子軌道角運動量が  $l$  のとき,  $K$  は  $0 \leq K \leq 2l$  の偶数,  $K'$  は  $K' = K \pm 1$  の奇数で,  $a(K, K')$  で

<sup>1</sup>文献 [2] では,  $\langle JM | \mathbf{Q}_S | JM' \rangle$  は (3.6.14) 式,  $\langle JM | \mathbf{Q}_L | JM' \rangle$  は (3.7.9) 式,  $c(K, K')$  は (3.6.13) 式,  $a(K, K')$  は (3.6.9) 式. 一般に波動関数は複数の異なる  $M$  の状態  $|JM\rangle$  の重ね合わせで書かれるが, そのような状態間での  $\mathbf{Q}$  の行列要素も, (13) と (14) を使えば計算可能である.

は  $0 \leq K' \leq 2l - 1$ ,  $c(K, K')$  では  $0 \leq K' \leq 2l + 1$  という制限がつく<sup>2</sup>. 具体的な係数の値は文献 [2] の表や, Mathematica プログラム<sup>3</sup> で計算可能であり, 中身の数値はさして重要ではないので, これ以上ここでは取り上げない. 結局, スピン部分からは,

$$c(0, 1)\langle j_0 \rangle, c(2, 1)\langle j_2 \rangle, c(2, 3)\langle j_2 \rangle, c(4, 3)\langle j_4 \rangle, c(4, 5)\langle j_4 \rangle, c(6, 5)\langle j_6 \rangle, c(6, 7)\langle j_6 \rangle$$

軌道部分からは

$$a(0, 1)(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle), a(2, 3)(\langle j_2 \rangle + \langle j_4 \rangle), a(4, 5)(\langle j_4 \rangle + \langle j_6 \rangle)$$

の項が発生する<sup>4</sup>.

## 2.2 双極子近似

$K = 0$  の部分だけ考慮すると, いわゆる双極子近似 (dipole approximation) となる.  $M' = M$  の行列要素を計算してみると,

$$\begin{aligned} \langle JM | \mathbf{Q}_S | JM \rangle &= c(0, 1)\langle j_0 \rangle(0010|10)(10JM|JM) \\ &= -c(0, 1)\langle j_0 \rangle M / \sqrt{J(J+1)} \end{aligned} \quad (17)$$

$$\begin{aligned} \langle JM | \mathbf{Q}_L | JM \rangle &= \frac{3}{2}a(0, 1)(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle)(001q|1q)(10JM|JM) \\ &= -\frac{3}{2}a(0, 1)(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle)M / \sqrt{J(J+1)} \end{aligned} \quad (18)$$

したがって,

$$\begin{aligned} \langle JM | \mathbf{Q} | JM \rangle &= -\frac{M}{\sqrt{J(J+1)}} \{c(0, 1)\langle j_0 \rangle + \frac{3}{2}a(0, 1)(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle)\} \\ &= \frac{g_S}{2}M\langle j_0 \rangle + \frac{g_L}{2}M(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle) \\ &= \frac{g_S + g_L}{2}M \left\{ \frac{g_S}{g_S + g_L}\langle j_0 \rangle + \frac{g_L}{g_S + g_L}(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle) \right\} \\ &= \frac{g}{2}M \left\{ \langle j_0 \rangle + \frac{g_L}{g}\langle j_2 \rangle \right\} \\ &= \frac{g}{2}M \left\{ \langle j_0 \rangle + \left(\frac{g}{2} - 1\right)\langle j_2 \rangle \right\} \end{aligned} \quad (19)$$

ここで,

$$g = g_S + g_L \quad (20)$$

$$g_S = -2\frac{c(0, 1)}{\sqrt{J(J+1)}} = 1 + \frac{S(S+1) - L(L+1)}{J(J+1)} = 2(g-1) \quad (21)$$

$$g_L = -\frac{3a(0, 1)}{\sqrt{J(J+1)}} = \frac{1}{2} + \frac{-S(S+1) + L(L+1)}{2J(J+1)} = -(g-2) \quad (22)$$

の関係がある. また,  $\mathbf{S}$  と  $\mathbf{L}$  の行列要素は, それぞれ  $\frac{g_S}{2}\mathbf{J}$  と  $g_L\mathbf{J}$  の行列要素に等しい (等価演算子) という意味で,

$$g_S\mathbf{J} = 2\mathbf{S} \quad (23)$$

$$g_L\mathbf{J} = \mathbf{L} \quad (24)$$

<sup>2</sup> 正確には,  $a(K, K')$  では  $1 \leq K' \leq \min(2l-1, 2J, 2L)$  かつ  $K = K' \pm 1$ ,  $c(K, K')$  では  $0 \leq K \leq \min(2l, 2L)$  かつ  $0 \leq K' \leq 2J$  かつ  $K = K' \pm 1$  である.

<sup>3</sup> 「Mathematica による局在 3d, 4f 電子系の波動関数と物理量の計算」 (<http://sheat.phys.tohoku.ac.jp/~tmatsu/>)

<sup>4</sup>  $f^7$  で  $L = 0$  の場合は  $c(0, 1)\langle j_0 \rangle$  のみ.

の関係があり、(19)で  $M$  は  $\mathbf{J}$  の  $z$  成分を表す量子数であることから、双極子近似では、

$$\begin{aligned}\mathbf{Q} &= \frac{g}{2}\mathbf{J}\{\langle j_0 \rangle + (\frac{g}{2} - 1)\langle j_2 \rangle\} \\ &= \frac{gS}{2}\mathbf{J}\langle j_0 \rangle + \frac{gL}{2}\mathbf{J}(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle) \\ &= \mathbf{S}\langle j_0 \rangle + \frac{1}{2}\mathbf{L}(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle)\end{aligned}\quad (25)$$

と書ける。従って、 $\langle j_0 \rangle + (\frac{g}{2} - 1)\langle j_2 \rangle$  は双極子近似での磁気形状因子である。 $\langle JM|\mathbf{Q}|JM \rangle$  の式に  $\tilde{\kappa}$  が含まれないことからわかるように、 $K = 0$  の部分は  $\tilde{\kappa}$  の方向によらない、等方的な部分であるといえる。

### 2.3 もう少し具体的な関数形

少し具体的な例として、 $M' = M$  の場合で、量子化軸を  $z$  軸にとった場合を考える。 $c(K, K \pm 1)$  や  $a(K, K + 1)$  にかかってくる Clebsch-Gordan 係数などの数値をすべて含めて、それぞれ  $C^{(K)}$  や  $A^{(K)}$  のように大文字で表記することにし、 $\langle j_K \rangle$  と  $Y_{KQ}$  の部分だけ残して、どんな項が現れるかということだけに着目して表すと、それぞれ  $x, y, z$  成分について、

$$\begin{aligned}\langle JM|Q_x|JM \rangle &= [C_{xy}^{(2)}\langle j_2 \rangle + A_{xy}^{(2)}(\langle j_2 \rangle + \langle j_4 \rangle)](Y_{21}(\tilde{\kappa}) - Y_{2-1}(\tilde{\kappa})) \\ &\quad + [C_{xy}^{(4)}\langle j_4 \rangle + A_{xy}^{(4)}(\langle j_4 \rangle + \langle j_6 \rangle)](Y_{41}(\tilde{\kappa}) - Y_{4-1}(\tilde{\kappa})) \\ &\quad + [C_{xy}^{(6)}\langle j_6 \rangle](Y_{61}(\tilde{\kappa}) - Y_{6-1}(\tilde{\kappa}))\end{aligned}\quad (26)$$

$$\begin{aligned}\langle JM|Q_y|JM \rangle &= i[C_{xy}^{(2)}\langle j_2 \rangle + A_{xy}^{(2)}(\langle j_2 \rangle + \langle j_4 \rangle)](Y_{21}(\tilde{\kappa}) + Y_{2-1}(\tilde{\kappa})) \\ &\quad + i[C_{xy}^{(4)}\langle j_4 \rangle + A_{xy}^{(4)}(\langle j_4 \rangle + \langle j_6 \rangle)](Y_{41}(\tilde{\kappa}) + Y_{4-1}(\tilde{\kappa})) \\ &\quad + i[C_{xy}^{(6)}\langle j_6 \rangle](Y_{61}(\tilde{\kappa}) + Y_{6-1}(\tilde{\kappa}))\end{aligned}\quad (27)$$

$$\begin{aligned}\langle JM|Q_z|JM \rangle &= [C_z^{(0)}\langle j_0 \rangle + A_z^{(0)}(\langle j_0 \rangle + \langle j_2 \rangle)]Y_{00}(\tilde{\kappa}) \\ &\quad + [C_z^{(2)}\langle j_2 \rangle + A_z^{(2)}(\langle j_2 \rangle + \langle j_4 \rangle)]Y_{20}(\tilde{\kappa}) \\ &\quad + [C_z^{(4)}\langle j_4 \rangle + A_z^{(4)}(\langle j_4 \rangle + \langle j_6 \rangle)]Y_{40}(\tilde{\kappa}) \\ &\quad + [C_z^{(6)}\langle j_6 \rangle]Y_{60}(\tilde{\kappa})\end{aligned}\quad (28)$$

となる。 $C_{xy}^{(K)}$  と  $A_{xy}^{(K)}$  は  $Q_x$  と  $Q_y$  で共通である。球面調和関数を具体的な多項式に書き下すと、

$$\begin{aligned}Y_{21}(\tilde{\kappa}) - Y_{2-1}(\tilde{\kappa}) &\propto \tilde{\kappa}_x \tilde{\kappa}_z \\ Y_{41}(\tilde{\kappa}) - Y_{4-1}(\tilde{\kappa}) &\propto \tilde{\kappa}_x \tilde{\kappa}_z (-3 + 7\tilde{\kappa}_z^2) \\ Y_{61}(\tilde{\kappa}) - Y_{6-1}(\tilde{\kappa}) &\propto \tilde{\kappa}_x \tilde{\kappa}_z (5 - 30\tilde{\kappa}_z^2 + 33\tilde{\kappa}_z^4) \\ i(Y_{21}(\tilde{\kappa}) + Y_{2-1}(\tilde{\kappa})) &\propto \tilde{\kappa}_y \tilde{\kappa}_z \\ i(Y_{41}(\tilde{\kappa}) + Y_{4-1}(\tilde{\kappa})) &\propto \tilde{\kappa}_y \tilde{\kappa}_z (-3 + 7\tilde{\kappa}_z^2) \\ i(Y_{61}(\tilde{\kappa}) + Y_{6-1}(\tilde{\kappa})) &\propto \tilde{\kappa}_y \tilde{\kappa}_z (5 - 30\tilde{\kappa}_z^2 + 33\tilde{\kappa}_z^4) \\ Y_{00} &\propto 1 \\ Y_{20} &\propto -1 + 3\tilde{\kappa}_z^2 \\ Y_{40} &\propto 3 - 30\tilde{\kappa}_z^2 + 35\tilde{\kappa}_z^4 \\ Y_{60} &\propto -5 + 105\tilde{\kappa}_z^2 - 315\tilde{\kappa}_z^4 + 231\tilde{\kappa}_z^6\end{aligned}\quad (29)$$

ここで、係数  $C(K, K')$  や  $A(K, K')$  には、 $K$  が大きくなるほど小さくなるというような性質はなく、 $K$  が違ってても大きさに極端な差はない。球面調和関数もそうである。従って、すべての次数が同程度に寄与すると考えておく必要がある。 $K$  による違いがでるのはベッセル関数  $\langle J_K(\kappa) \rangle$  である。上の式から導かれる明らかな結果を2点だけ挙げておくと、

1.  $\boldsymbol{\kappa} \parallel z$  で  $\tilde{\kappa}_x = \tilde{\kappa}_y = 0, \tilde{\kappa}_z = 1$  のとき,  $\langle Q_x \rangle = \langle Q_y \rangle = 0$  であり,  $\langle Q_z \rangle$  だけがゼロではないが,  $\langle Q_z \rangle$  による散乱断面積は, 次の (33) にあるように,  $\boldsymbol{\kappa}$  と垂直な成分を取り出してくる  $(\delta_{\alpha\beta} - \tilde{\kappa}_\alpha \tilde{\kappa}_\beta)$  の因子のためにゼロになる. つまり,  $|JM\rangle$  という波動関数では, 磁気モーメントは量子化軸である  $z$  軸方向を向いているため,  $\boldsymbol{\kappa}$  と垂直な成分がゼロになって散乱断面積が消失するという通常の法則がここでも成立する.
2.  $\boldsymbol{\kappa} \perp z$  で  $\tilde{\kappa}_z = 0$  のとき, やはり  $\langle Q_x \rangle = \langle Q_y \rangle = 0$  となり,  $\langle Q_z \rangle$  による散乱しか起こらない.

### 3 磁気回折

実空間での磁気モーメント密度が  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  であるとき,

$$\mathbf{Q}(\boldsymbol{\kappa}) = -\frac{1}{2\mu_B} \int \mathbf{M}(\mathbf{r}) e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \quad (30)$$

の関係がある. ただし,  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  は結晶全体にわたる関数であり, 周期性や密度の異方性など, 磁気構造のすべての情報を含んでいるとする. ここで,  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  を各原子ごとの磁気モーメント密度に帰属させ, 次のように表す.

$$\mathbf{M}(\mathbf{r}) = \sum_{l,d} \boldsymbol{\mu}_{ld}(\mathbf{r} - \mathbf{l} - \mathbf{d}) \quad (31)$$

$\mathbf{l}$  と  $\mathbf{d}$  はそれぞれ単位格子の位置とその中の原子位置を表すベクトルである. こうすると,

$$\begin{aligned} \mathbf{Q}(\boldsymbol{\kappa}) &= -\frac{1}{2\mu_B} \sum_{l,d} \int \boldsymbol{\mu}_{ld}(\mathbf{r} - \mathbf{l} - \mathbf{d}) e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \\ &= -\frac{1}{2\mu_B} \sum_{l,d} e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{l} + \mathbf{d})} \int \boldsymbol{\mu}_{ld}(\mathbf{r}) e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{r}} d\mathbf{r} \\ &= \sum_{l,d} e^{-i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{l} + \mathbf{d})} \mathbf{Q}_{ld}(\boldsymbol{\kappa}) \end{aligned} \quad (32)$$

となる.  $\mathbf{Q}_{ld}(\boldsymbol{\kappa})$  は位置  $\mathbf{l} + \mathbf{d}$  にある原子の磁気形状因子演算子である.

弾性散乱について考えよう. 式 (12) で  $\lambda = \lambda'$  であるとし, また, 1つの状態  $\lambda$  だけについて考えると,

$$\left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right) = r_0^2 \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \tilde{\kappa}_\alpha \tilde{\kappa}_\beta) \langle \lambda | Q_\alpha^\dagger | \lambda \rangle \langle \lambda | Q_\beta | \lambda \rangle \delta(\hbar\omega) \quad (33)$$

これに (32) を代入すると,

$$\begin{aligned} \left( \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE'} \right) &= r_0^2 \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \tilde{\kappa}_\alpha \tilde{\kappa}_\beta) \sum_{l,d,l',d'} e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{l} - \mathbf{l}')} e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{d} - \mathbf{d}')} \langle Q_{ld}^{\alpha\dagger} \rangle \langle Q_{l'd'}^\beta \rangle \delta(\hbar\omega) \\ &= r_0^2 N \sum_{\alpha,\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \tilde{\kappa}_\alpha \tilde{\kappa}_\beta) \sum_l \sum_{d,d'} e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot \mathbf{l}} e^{i\boldsymbol{\kappa} \cdot (\mathbf{d} - \mathbf{d}')} \langle Q_{ld}^{\alpha\dagger} \rangle \langle Q_{0d'}^\beta \rangle \delta(\hbar\omega) \end{aligned} \quad (34)$$

となる<sup>5</sup>. 1行目の式で  $l'$  についての和は  $l' = 0$  に固定して全体を単位格子の数  $N$  倍するのと同じである.  $\langle Q_{ld} \rangle = \frac{q_0}{2} F_d(\boldsymbol{\kappa}) \langle \mathbf{J}_{ld} \rangle$  に置き換えると, 双極子近似での式になる. (34) の  $\langle Q_{ld} \rangle$  に具体的な磁気構造に基づいた形を代入して計算すると, 散乱断面積が得られる.

## 4 らせん磁気構造の場合

### 4.1 計算すべき式の導出

具体的な磁気構造の例として, 図1に示すようならせん構造について考えてみる. 磁気モーメントの向きは  $ab$  面内では平行にそろっており,  $c$  軸方向に格子面を移動していくと少しずつ角度がずれていく. 伝播ベクトル  $\mathbf{q}$  は

<sup>5</sup>正確にはさらにこれに Debye-Waller 因子が付け加わる.

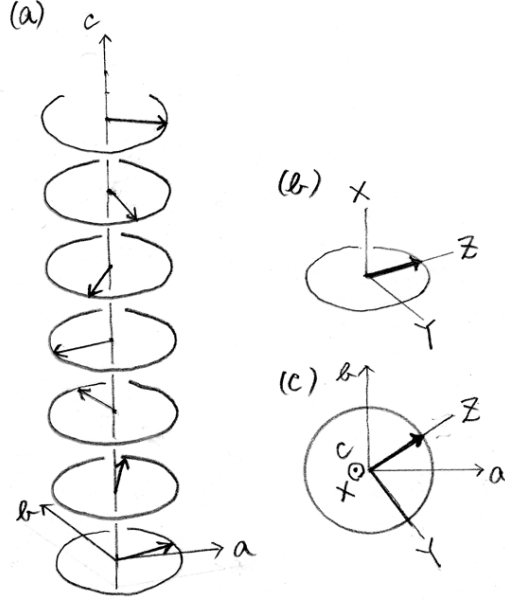


図 1: (a)  $ab$  面内で磁気モーメントが回転し,  $c$  軸方向に伝播するらせん構造. (b) 磁気モーメントの向きをそのイオンでの  $Z$  軸, 結晶の  $c$  軸をイオンでの  $X$  軸にとる. (c)  $c$  軸方向からみた図.

$c$  軸に平行である. 今, 単位格子に 1 個だけ磁性イオンがあるとすると, 位置  $l$  にあるイオンの磁気モーメント  $\mu_l$  の向きは次のように書ける.

$$\begin{aligned}\mu_l^x &= \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} = \frac{1}{2}(e^{iq \cdot l} + e^{-iq \cdot l}) \\ \mu_l^y &= \sin \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} = \frac{-i}{2}(e^{iq \cdot l} - e^{-iq \cdot l}) \\ \mu_l^z &= 0\end{aligned}\quad (35)$$

$$\mu_l^z = 0 \quad (36)$$

(34) より, 計算すべき式は

$$\left( \frac{d^2 \sigma}{d\Omega dE'} \right) = r_0^2 N \sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha\beta} - \tilde{\kappa}_\alpha \tilde{\kappa}_\beta) \sum_l e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{l}} \langle Q_l^{\alpha \dagger} \rangle \langle Q_0^\beta \rangle \delta(\hbar\omega) \quad (37)$$

である. この  $\langle Q_l^\alpha \rangle$  ( $\alpha = x, y, z$ ) を計算するために, 図 1(b) に示すように, 各イオンでの磁気モーメントの向きを量子化軸  $Z$ , 伝播ベクトル  $\mathbf{q}$  の方向 (結晶の  $c$  軸) をイオンの  $X$  軸にとることとする. すると,

$$\langle Q_l^x \rangle = \langle Q_Z \rangle \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} + \langle Q_Y \rangle \sin \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} \quad (38)$$

$$\langle Q_l^y \rangle = \langle Q_Z \rangle \sin \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} - \langle Q_Y \rangle \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} \quad (39)$$

$$\langle Q_l^z \rangle = \langle Q_X \rangle \quad (40)$$

のような変換関係が成り立つ. ここで  $\langle Q_X \rangle, \langle Q_Y \rangle, \langle Q_Z \rangle$  は磁気モーメントの向きを量子化軸  $Z$  にとったときの  $\langle \mathbf{Q} \rangle$  であり, 波動関数が単独の  $|JM\rangle$  で書けるとすると, (26)-(28) で記述されるものである. 次に注意することは, (26)-(28) で表される  $\langle \mathbf{Q} \rangle$  は  $\tilde{\kappa}$  の関数となっていて, この  $\tilde{\kappa}$  は  $\mathbf{Q}$  を記述する軸  $XYZ$  に対して定義されたものであるということである.  $\tilde{\kappa}$  は結晶軸  $abc \equiv xyz$  に対して定義するのが普通であるから, こちらも変換しなければならない. つぎのような関係になる.

$$\tilde{\kappa}_X = \tilde{\kappa}_z \quad (41)$$

$$\tilde{\kappa}_Y = \tilde{\kappa}_x \sin \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} - \tilde{\kappa}_y \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} \quad (42)$$

$$\tilde{\kappa}_Z = \tilde{\kappa}_x \cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} + \tilde{\kappa}_y \sin \mathbf{q} \cdot \mathbf{l} \quad (43)$$

また, (26)-(28) より,  $\langle Q_\alpha \rangle$  ( $\alpha = X, Y, Z$ ) は次のような形をしている.

$$\begin{aligned} \langle Q_\alpha \rangle &= \sum_K \{C_\alpha^{(K)} \langle J_K \rangle + A_\alpha^{(K)} (\langle J_K \rangle + \langle J_{K+2} \rangle)\} f_\alpha^{(K)}(\tilde{\kappa}) \\ &\equiv \sum_K B_\alpha^{(K)} f_\alpha^{(K)}(\tilde{\kappa}) \end{aligned} \quad (44)$$

ここで  $f_\alpha^{(K)}(\tilde{\kappa})$  は (29) で表される多項式<sup>6</sup>である.

以下, 簡単のため  $\tilde{\kappa}_y = 0$  としよう. つまり, (41)-(43) で右辺の  $\tilde{\kappa}_y$  はゼロである. まず, (38)-(40) に出てくる  $\langle Q_X \rangle, \langle Q_Y \rangle, \langle Q_Z \rangle$  を  $B_{XY}^{(K)}, B_Z^{(K)}$  と  $\tilde{\kappa}_x, \tilde{\kappa}_z$  を用いて表すと<sup>7</sup>,

$$\begin{aligned} \langle Q_X \rangle &= B_{XY}^{(2)} \frac{\tilde{\kappa}_z \tilde{\kappa}_x}{2} (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}}) \\ &\quad + B_{XY}^{(4)} \frac{\tilde{\kappa}_z \tilde{\kappa}_x}{2} (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}}) \left\{ -3 + 7 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^2 \right\} \\ &\quad + B_{XY}^{(6)} \frac{\tilde{\kappa}_z \tilde{\kappa}_x}{2} (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}}) \left\{ 5 - 30 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^2 + 33 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^4 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^4 \right\} \end{aligned} \quad (45)$$

$$\begin{aligned} \langle Q_Y \rangle &= -i B_{XY}^{(2)} \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i2\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} - e^{-i2\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}}) \\ &\quad - i B_{XY}^{(4)} \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i2\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} - e^{-i2\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}}) \left\{ -3 + 7 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^2 \right\} \\ &\quad - i B_{XY}^{(6)} \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i2\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} - e^{-i2\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}}) \left\{ 5 - 30 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^2 + 33 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^4 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^4 \right\} \end{aligned} \quad (46)$$

$$\begin{aligned} \langle Q_Z \rangle &= B_Z^{(0)} + B_Z^{(2)} \left\{ -1 + 3 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^2 \right\} \\ &\quad + B_Z^{(4)} \left\{ 3 - 30 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^2 + 35 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^4 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^4 \right\} \\ &\quad + B_Z^{(6)} \left\{ -5 + 105 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^2 - 315 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^4 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^4 \right. \\ &\quad \left. + 231 \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^6 (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})^6 \right\} \end{aligned} \quad (47)$$

となる. これで (37) を計算する準備が整った. (37) に (38)-(40) を代入し,  $\langle Q_X \rangle, \langle Q_Y \rangle, \langle Q_Z \rangle$  には (45)-(47) を代入すればよい.

## 4.2 高次の回折ピークの出現

まずは, (37) で  $\alpha = \beta = x$  の項を書き下してみよう.

$$\sum_l e^{i\kappa \cdot \mathbf{l}} \langle Q_l^x \rangle \langle Q_0^x \rangle = \frac{1}{2} \sum_l e^{i\kappa \cdot \mathbf{l}} \{ \langle Q_Z^\dagger \rangle (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}}) - i \langle Q_Y^\dagger \rangle (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} - e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}}) \} \{ \langle Q_Z^{(l=0)} \rangle + \langle Q_Y^{(l=0)} \rangle \} \quad (48)$$

$\langle Q_Z^{(l=0)} \rangle$  と  $\langle Q_Y^{(l=0)} \rangle$  の部分は, それぞれ (47) と (46) で  $l=0$  としたものであるから,  $\mathbf{q}$  とは無関係の定数である.  $\sum_l e^{i\kappa \cdot \mathbf{l}} \langle Q_Z^\dagger \rangle (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})$  の部分について考えると,  $\langle Q_Z^\dagger \rangle$  のうち定数  $B_Z^{(0)}$  の部分からは,

$$\frac{B_Z^{(0)}}{2} \sum_l e^{i\kappa \cdot \mathbf{l}} (e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})$$

<sup>6</sup>座標形は XYZ にとる.

<sup>7</sup> $\kappa$  の座標形は結晶軸の  $xyz$  にとる. (29) に (41)-(43) を代入する.  $\cos \mathbf{q} \cdot \mathbf{l}$  は  $\frac{1}{2}(e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} + e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})$  に,  $\sin \mathbf{q} \cdot \mathbf{l}$  は  $\frac{-i}{2}(e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}} - e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{l}})$  に置き換える.

$$\begin{aligned}
&= \frac{B_Z^{(0)}}{2} \sum_l \{e^{i(\kappa+\mathbf{q})\cdot l} + e^{i(\kappa-\mathbf{q})\cdot l}\} \\
&= \frac{B_Z^{(0)}}{2} \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_\tau \{\delta(\kappa + \mathbf{q} - \tau) + \delta(\kappa - \mathbf{q} - \tau)\} \quad (49)
\end{aligned}$$

が出てくる<sup>8</sup>。ここで  $v_0$  は単位格子の体積、 $\tau$  は逆格子ベクトルである。これは、散乱ベクトルが  $\kappa = \tau \pm \mathbf{q}$  を満たすときに回折ピークが生じることを示している。 $B_Z^{(0)}$  の部分は等方的な磁気モーメント密度に対応する部分なので、この結果は双極子近似による普通の磁気回折の考察結果と同じである。では、 $\langle Q_Z^\dagger \rangle$  のうち  $B_Z^{(2)}$  にかかる部分についてはどうだろうか。この部分は定数  $-B_Z^{(2)}$  による (49) と同様な項のほかに、つぎのような項が現れる。

$$\begin{aligned}
&\frac{3}{2} B_Z^{(2)} \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 \sum_l e^{i\kappa\cdot l} (e^{i\mathbf{q}\cdot l} + e^{-i\mathbf{q}\cdot l})^3 \\
&= \frac{3}{2} B_Z^{(2)} \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 \sum_l e^{i\kappa\cdot l} (e^{i3\mathbf{q}\cdot l} + 3e^{i\mathbf{q}\cdot l} + 3e^{-i\mathbf{q}\cdot l} + e^{-i3\mathbf{q}\cdot l}) \\
&= \frac{3}{2} B_Z^{(2)} \left( \frac{\tilde{\kappa}_x}{2} \right)^2 \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_\tau \{\delta(\kappa + 3\mathbf{q} - \tau) + \delta(\kappa + \mathbf{q} - \tau) + \delta(\kappa - \mathbf{q} - \tau) + \delta(\kappa - 3\mathbf{q} - \tau)\} \quad (50)
\end{aligned}$$

従って、散乱ベクトルが  $\kappa = \tau \pm \mathbf{q}$  あるいは  $\kappa = \tau \pm 3\mathbf{q}$  を満たすときに回折ピークが生じる。これらのピークは  $K=2$  の項から生じているものであり、磁気モーメント密度が異方的であることからくるものである。同様に考えていくと、 $B_Z^{(4)}$  にかかる部分からは、散乱ベクトルが  $\kappa = \tau \pm \mathbf{q}$ ,  $\kappa = \tau \pm 3\mathbf{q}$ , あるいは  $\kappa = \tau \pm 5\mathbf{q}$  を満たすときに回折ピークを生じ、 $B_Z^{(6)}$  にかかる部分からは、 $\kappa = \tau \pm \mathbf{q}$ ,  $\kappa = \tau \pm 3\mathbf{q}$ ,  $\kappa = \tau \pm 5\mathbf{q}$ , あるいは  $\kappa = \tau \pm 7\mathbf{q}$  を満たすときに回折ピークを生じることがわかる。すなわち、 $K=0$  による回折は  $\pm\mathbf{q}$  のみに、 $K=2$  による回折は  $\pm\mathbf{q}$  と  $\pm 3\mathbf{q}$  に、 $K=4$  による回折は  $\pm\mathbf{q}$ ,  $\pm 3\mathbf{q}$ ,  $\pm 5\mathbf{q}$  に、 $K=6$  による回折は  $\pm\mathbf{q}$ ,  $\pm 3\mathbf{q}$ ,  $\pm 5\mathbf{q}$ ,  $\pm 7\mathbf{q}$  に現れる。 $-i \sum_l e^{i\kappa\cdot l} \langle Q_Y^\dagger \rangle (e^{i\mathbf{q}\cdot l} - e^{-i\mathbf{q}\cdot l})$  の部分は  $K=2$  から始まるが、同様の結果になることは (46) を見れば容易に推測が<sup>9</sup>つく。

$\alpha = \beta = y$  については、

$$\sum_l e^{i\kappa\cdot l} \langle Q_l^y \rangle \langle Q_0^y \rangle = -\frac{1}{2} \sum_l e^{i\kappa\cdot l} \{i \langle Q_Z^\dagger \rangle (e^{i\mathbf{q}\cdot l} - e^{-i\mathbf{q}\cdot l}) + \langle Q_Y^\dagger \rangle (e^{i\mathbf{q}\cdot l} + e^{-i\mathbf{q}\cdot l})\} \{ \langle Q_Z^{(l=0)} \rangle + \langle Q_Y^{(l=0)} \rangle \} \quad (51)$$

であるから、 $\alpha = \beta = x$  のときと同様の結果になる。

$\alpha = \beta = z$  については、

$$\sum_l e^{i\kappa\cdot l} \langle Q_l^z \rangle \langle Q_0^z \rangle = \sum_l e^{i\kappa\cdot l} \langle Q_X^\dagger \rangle \langle Q_X^{(l=0)} \rangle \quad (52)$$

なので、(45) を見ると  $K=2$  の項から始まるのがわかるが、 $\pm 3\mathbf{q}$  の項は出てこず、 $\pm\mathbf{q}$  だけである。 $K=4$  の項では  $\pm\mathbf{q}$  と  $\pm 3\mathbf{q}$  が出てきて、 $K=6$  の項では  $\pm\mathbf{q}$  と  $\pm 3\mathbf{q}$  と  $\pm 5\mathbf{q}$  がでてくる。

その他の  $\alpha, \beta$  の組み合わせについても同様な結果が出てくる。磁気モーメント密度の異方性のために、奇数次の高次反射は出てくるが、どう考えても偶数次の高次反射が出てくることはない。

### 4.3 高次ピークの強度

正確なことはちゃんと計算をしてみなければわからないが、 $\pm\mathbf{q}$  の基本反射と高次反射の強度比は、 $\tilde{\kappa}$  の因子を除くと、主に  $\langle j_K \rangle$  の比になっていると考えられる。 $\kappa$  が小さいときはほとんど  $\langle j_0 \rangle$  の効果しか働かないため、高次反射の強度は極めて弱いが、 $\kappa$  が大きくなるにつれて  $\langle j_0 \rangle$  に対して  $\langle j_2 \rangle$  や  $\langle j_4 \rangle$  の効果が大きくなっていくので、基本反射に対する高次反射の強度比も大きくなっていくと考えられる。高次反射が出る原因としては、anti-phase domain のようなことも考えられるが、その場合、基本反射と高次反射の強度比は  $\kappa$  が大きくなってあまり変わらず、双極子近似の磁気形状因子に従って等しく強度が減少するものと予想される。

<sup>8</sup>格子和  $\sum_l e^{i\kappa\cdot l} = \frac{(2\pi)^3}{v_0} \sum_\tau \delta(\kappa - \tau)$  については Squires の教科書 [1] の Appendix を参照



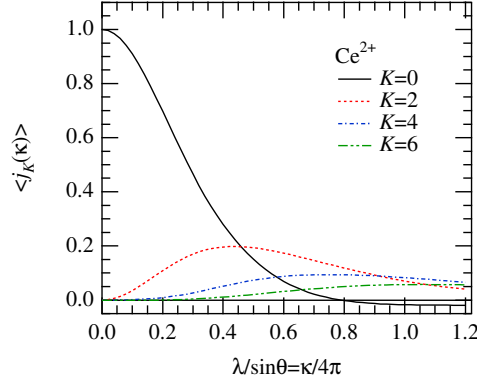


図 2:  $\text{Ce}^{2+}$  イオンについて磁気形状因子の動径部分を表すベッセル関数.

## A ベッセル関数

ベッセル関数  $\langle j_K \rangle$  は図 2 に示すような形をしている,  $s = \sin \theta / \lambda = \kappa / 4\pi$  として,

$$\langle j_0(s) \rangle = Ae^{-as^2} + Be^{-bs^2} + Ce^{-cs^2} + D \quad (l = 0) \quad (53)$$

$$\langle j_l(s) \rangle = As^2e^{-as^2} + Bs^2e^{-bs^2} + Cs^2e^{-cs^2} + Ds^2 \quad (l > 0) \quad (54)$$

のように近似式で展開するときの係数  $\{A, a, B, b, C, c, D\}$  が文献 [3] の §4.4.5 に表になっており, よく使われる.

## 参考文献

- [1] G. L. Squires, *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering*, (Dover, 1996).
- [2] E. Balcar and S. W. Lovesey, *Theory of Magnetic Neutron and Photon Scattering*, (Oxford, 1989).
- [3] *International Tables for Crystallography*, Vol. C, ed. A. J. C. Wilson and E. Prince, (1999).