

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 20 日現在

機関番号：15501

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2011～2013

課題番号：23540391

研究課題名(和文)成分分離逐次磁気転移と部分成分磁気秩序相の研究

研究課題名(英文) Study of a successive component-separated magnetic transition and a partial magnetic ordered phase

研究代表者

繁岡 透 (SHIGEOKA, TORU)

山口大学・理工学研究科・教授

研究者番号：50167441

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円、(間接経費) 1,170,000円

研究成果の概要(和文)：正方晶希土類三元化合物 HoRh_2Si_2 は、いわゆる“成分分離逐次磁気転移”(磁気モーメントのc軸成分とab面内成分が異なる温度で独立にそれぞれ秩序化する転移)を示す。この転移の起因解明のために、純良単結晶を育成し、それを用いて、磁氣的測定、比熱測定、弾性定数測定および中性子散乱実験を行った。その結果、この化合物では、フラストレーションが起こっており、四極子相互作用が重要な役割を果たしていることが分かった。

研究成果の概要(英文)：The tetragonal rare earth ternary compound HoRh_2Si_2 shows so-called "a successive component-separated magnetic transition"; that is, independent orderings of the c- and ab-component of magnetic moments occur at different temperatures. In order to elucidate the origin of this transition, measurements of magnetization, magnetic susceptibility, specific heat, elastic constants and neutron diffraction were performed on single crystal compounds with good quality. From the results, it was found that a frustration occurs in this compound and quadrupolar interactions play an important role for the transition.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 ・磁性

キーワード：1-2-2型化合物 成分分離逐次磁気転移 部分成分秩序相 フラストレーション 反強磁性磁気構造 中性子磁気散漫散乱 多段階メタ磁性磁化過程 四極子秩序相

1. 研究開始当初の背景

“成分分離逐次磁気転移”とは、一軸磁気異方性を持つ(六方晶など)化合物磁性体等において、磁気モーメントの c 軸成分と ab 面内成分が異なる温度で独立にそれぞれ秩序化する転移のことである。したがって、中間温度領域で、磁気モーメントの c 軸成分のみが秩序化し、 $a-b$ 面内成分が無秩序である“部分成分磁気秩序相”が現れる。これは、フラストレーションが引き起こす特異な現象の一つであると考えられている(磁性イオンに複数の相互作用が働き、それらが競合し、複数の安定な磁気状態がほとんど同じエネルギーをもって存在できる場合がある。このような時、系は不安定な状態になり“フラストレーション”を起こす)。このような例として、三角格子反強磁性体 CsNiCl_3 [1] や Shastry-Sutherland 格子(正三角形と正方形からなる格子)の DyB_4 [2] などがある。これらの化合物では、磁性イオンの幾何学的配置により磁気的相互作用等(DyB_4 では、四極子相互作用も関与)が競合しフラストレーションが起こり、磁気秩序を抑制するために、不安定な部分的無秩序相が現れると考えられている。いずれにせよこれまで報告されているほとんどの成分分離逐次磁気転移は幾何学的フラストレーションによるものであった。

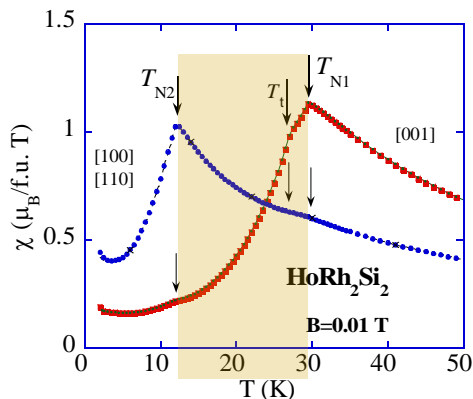


Fig.1 HoRh_2Si_2 単結晶の磁化率の温度依存

幾何学的フラストレーションがありそうにない単純な正方晶 HoRh_2Si_2 単結晶の磁化率の測定を行い、Fig.1 に示しているような結果を得た。(我々は、正方晶 ThCr_2Si_2 型の三元化合物、1-2-2 化合物、の単結晶による系統的な磁性研究を進めてきている。この化合物系は、比較的簡単な結晶構造を持ちながら、多種多様な物性を示すことから、新しい現象を見出せる可能性を秘めた興味深い系であると考えているからである。) この磁化率の振る舞いは、 DyB_4 等の振る舞いと非常によく似ている； c 軸方向と $c(a-b)$ 面内で、別の温度で、磁気転移を示唆する明確なカスプが見られる(これらの転移温度を、 T_{N1} 、 T_{N2} とする)。 HoRh_2Si_2 にも、“成分分離逐次磁気転移”がおこっており、 $T_{N1} > T > T_{N2}$ にお

いて、“部分成分磁気秩序相”が現れている可能性が大であると考えられる。この起源として幾何学的フラストレーションを考えることは難しいので、この振る舞いを理解するためには、これまでになく新たなメカニズムを見出す必要がある。これは大変興味深い、重要な課題であると考えられる。

[1] N. Achiwa *J. Phys. Soc. Jpn.*

27(1969)561.

[2] R. Watanuki *et al. J. Phys. Soc. Jpn.*

74(2005)2169.

2. 研究の目的

本研究の目的は、希土類化合物が示す奇妙な磁気的振舞いのひとつである“逐次成分分離磁気転移”およびこの転移に伴って現れる“部分成分磁気秩序相”の詳細および起因を明らかにすることである。

3. 研究の方法

基礎的な物性(磁気的、熱的、電気的(輸送特性)等の振舞い)を測定し、その詳細を明らかにし、以下に関する知見を得る；

(1) 結晶場基底状態は？

磁化率、比熱および中性子非弾性散乱の結果より決定できる。

(2) 磁気的(スピン間)相互作用の役割は？

非磁性の Y 置換による擬三元系 $(\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x)\text{Rh}_2\text{Si}_2$ の研究から

(3) 軌道間(おもに四極子、さらに多極子)相互作用の役割は？

四極子のない Gd 置換による擬三元系 $(\text{Ho}_{1-x}\text{Gd}_x)\text{Rh}_2\text{Si}_2$ の研究から

(4) 軌道およびスピン自由度の関与は？

比熱、弾性定数および中性子回折等から

(5) 各磁気相の磁気構造？

中性子回折から決定；部分成分秩序相における無秩序の存在を確認

(6) フラストレーションが起こっているか(上記の結果からわかる)？

4. 研究成果

(1) 比熱測定より、磁気転移の存在確認および転移の詳細を明らかにした；

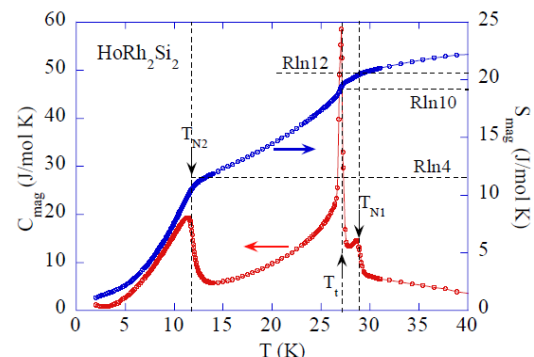


Fig.2 HoRh_2Si_2 単結晶の磁気比熱とエントロピーの温度依存

$T_{N1} = 29.5$ K, $T_{N2} = 12.1$ K において比熱に

型の異常を観測した。したがって、これらの転移は2次転移である。また、 $T_i=27.2$ Kに非常に鋭い一次転移を示唆する異常を見出した。磁気エントロピーは T_{N2} で、 $R \ln 4$ のリリースが見られた、したがって、基底状態は擬4重項であり、縮退が確認された。

(2) 様々な温度で磁化過程の測定を行い以下のことを明らかにした。例として、Fig.3に2Kにおける磁化曲線を示している。すべての方向において、明確な階段状のメタ磁性転移が見られる。磁化容易方向は[001]方向で、転移直後の磁化は $8.5\mu_B$ で磁気モーメントが c 軸から傾いている (30° 程度)。 $T_{N2}>T$ では、 c 面内方向の磁化過程のメタ磁性転移は消え、磁化過程は常磁性的になる。この結果は、中間温度相では磁気モーメントの ab 面内成分が無秩序である可能性を示唆している。これらの結果から、 $B_{100}-T$ 磁気相図を作った低磁場では、三相、高磁場側には二相の磁気層の存在を見出した。

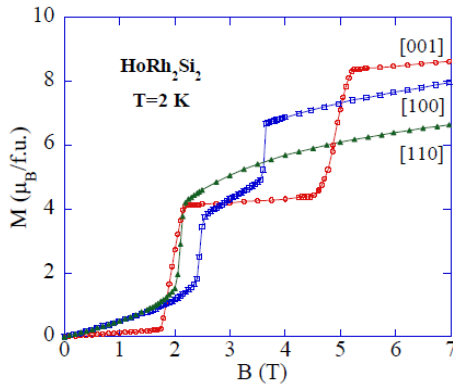


Fig.3 HoRh₂Si₂ 単結晶の 2K ($T_{N2}>T$) における正方晶の主軸方向の磁化曲線

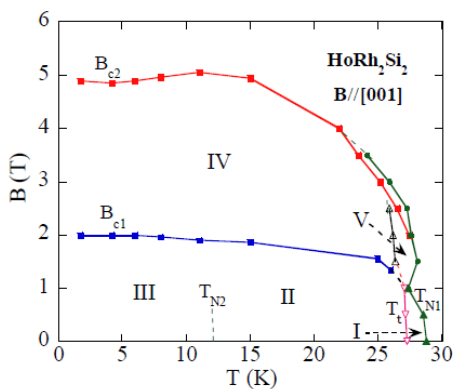


Fig.4 $B_{100}-T$ 磁気相図

(3) 高磁場磁化過程を測定し、 c 面内の [100] 方向および [110] 方向の磁気相図を作った。高磁場でさらなる転移を見出した (東京大学物性研究所金道研究室と共同)

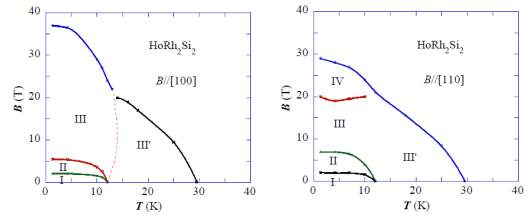


Fig.5 $B_{100}-T$ および $B_{110}-T$ 磁気相図

(4) 超音波による弾性定数の温度依存性の測定を行った (新潟大学後藤グループとの共同研究)。上記3つの転移温度において、すべてのモードにおいて弾性異常を観測した。特に C_{44} が T_{N2} において強大なソフト化を示すことを見出した。この依存性をキュリーワイス型の依存式で解析を行い、この化合物では強制的四極子相互作用が重要な役割を果たしていることを明らかにした。

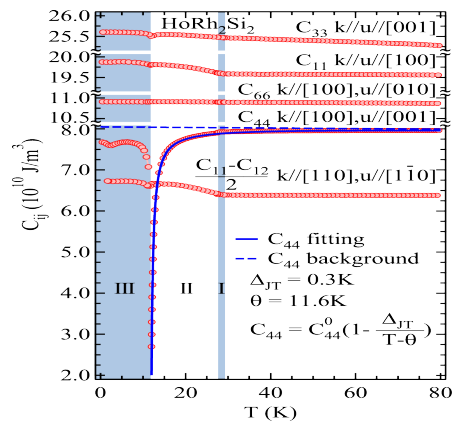


Fig.6 弾性定数の温度変化

(5) 中性子回折実験 (日米協力中性子散乱事業でオークリッジ国立研究所の HFIR において実験) により、以下のように各磁気相の磁気構造を決定した；

相 ($T_{N1}>T>T_i$): $k=(1/2,1/2,1/2)$, $M//c$, $2.3 \mu_B$ at 28 K

相 ($T_i>T>T_{N2}$): $k=(0,0,1)$, $M//c$, $7.5 \mu_B$ at 12 K

相 ($T_{N2}>T$): $k=(0,0,1)$, $M=9.7\mu_B$ は c 軸から $23^\circ a$ 軸方向に傾いている (at 5 K) また、相において明確な磁気散漫散乱を観測した。このことは、磁気モーメントの ab 成分が無秩序になったことを意味しており、この相でフラストレーションが起こっていることを明らかにした。

(6) 擬三元系化合物 (Ho,Gd)Rh₂Si₂ および (Ho,Y)Rh₂Si₂ の転移温度の組成依存より、 T_{N2} の転移には四極子相互作用が重要な役割をしていることを明らかにした。

(7) 中性子非弾性散乱実験を計画しており、この系の磁氣的相互作用等をより明確に評価し、結晶場の評価とともに、フラストレー

ション起源を明らかにしてく。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 編)

Toru Shigeoka, Tetsuya Fujiwara, Shojiro Kimura, Kazuo Watanabe, Metamagnetism of DyPd_2Si_2 single crystal, Journal of the Physical Society of Japan, Conf. Proc. **1** (2014) 012008-1-4. 査読有

DOI:10.7566/JSPSCP.1.012008

Toru Shigeoka, Tetsuya Fujiwara, Akihiro Kondo, Koichi Kindo, Yoshiya Uwatoko, High Field Magnetization Processes of HoRh_2Si_2 Single Crystal;

Journal of the Physical Society of Japan, (accepted)、査読有

Dai Nakamura, Masato Hedo, Kiyoharu Uchima, Yoshinao Takasu, Takao Nakama, Katsuma Yagasaki, Tetsuya Fujiwara, Toru Shigeoka, and Yoshiya Uwatoko, Effects of Pressure and Magnetic Field on Transport Properties of EuCo_2P_2 ;

Journal of the Physical Society of Japan, (accepted)、査読有

Yu Okawara, Jingwei Cui, Tetsuya Fujiwara, Toru Shigeoka, Kazuyuki Matsubayashi, Yoshiya Uwatoko, Shojiro Kimura and Kazuo Watanabe Successive Magnetic Transitions of PrRh_2Ge_2 Single Crystal; Journal of the Korean Physical Society **63**, No.3 (2013) 743-746、査読有
DOI: 10.3938/jkps.63.743

Toru Shigeoka, Tetsuya Fujiwara, Keiichi Koyama, Shojiro Kimura and Kazuo Watanabe, Multi-step Metamagnetic Processes of PrPd_2Si_2 Single Crystal; Journal of the Korean Physical Society **63**, No.3 (2013) 567-570、査読有
DOI: 10.3938/jkps.63.567

T. Shigeoka, T. Hasegawa, T. Fujiwara, A. Kondo, K. Kindo, Y. Uwatoko, High Field Magnetization of TbPd_2Ge_2 Single Crystal; Journal of Low Temperature Physics **170** (2013) 248-254、査読有
DOI: 10.1007/s10909-012-0667-7..

T. Shigeoka, T. Fujiwara, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, Magnetization processes and phase diagram of HoRh_2Si_2 single crystal having a component-separated magnetic transition; Journal of Physics: Conference Series **391** (2012)012063-6、査読有
DOI: 10.1008/1742-6596/391/1/012063.

Y. Zhang, T. Fujiwara, K. Matsubayashi, A. Kondo, K. Kindo, Y. Uwatoko, and T. Shigeoka, Peculiar magnetic phase diagrams of GdPd_2Si_2 single crystal; Journal of Physics: Conference Series **391** (2012)012082-5、査読有
DOI: 10.1008/1742-6596/391/1/012082.

Y. Zhang, T. Fujiwara, Y. Uwatoko, and T. Shigeoka, Magnetic Properties of TbPd_2Si_2 Single Crystal: Journal of the Physical Society Japan, **81**(2012)

004702-1-5、査読有

DOI: 10.3939/jkps63.0..

Kiyochiro Motoya, Taketo Moyoshi and Toru Shigeoka, Long-time variation of magnetic structure in rare-earth intermetallic compounds: Journal of Physics: Conference Series **273** (2011) 012124-27、査読有

DOI: 10.1008/1742-6596/2731/012124

T. Shigeoka, T. Fujiwara, K. Munakata, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko,

Component-separated magnetic transition in HoRh_2Si_2 single crystal: Journal of Physics: Conference Series **273** (2011) 012127-30、査読有

DOI: 10.1008/1742-6596/273/1/012127

T. Shigeoka, T. Fujiwara, K. Kanto, Y. Zhang, Y. Uwatoko, Novel magnetic behavior of GdPd_2Si_2 single crystal: Journal of Physics: Conference Series **273** (2011) 012121-24、査読有

DOI: 10.1008/1742-6596/273/1/012121.

T. Fujiwara, K. Kanto, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, and T. Shigeoka, Electrical transport properties of ternary phosphides RRu_2P_2 (R=La, Ce, Pr and Eu) with ThCr_2Si_2 type crystal structure: Journal of Physics: Conference Series **273** (2011) 012112-15、査読有
DOI: 10.1008/1742-6596/273/1/012112.

〔学会発表〕(計 3 6 件)

藤井洋, $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{Rh}_2\text{Si}_2$ ($x=0.05$)の磁気転移、日本物理学会講演概要集2013年秋季大会第3分冊, p.381 2013年9月25日、徳島大学、徳島市

T. Shigeoka, High-Field Magnetization Processes of HoRh_2Si_2 Single Crystal, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems2013, 2013年8月7日、東大本郷、東京都

T. Shigeoka, Magnetic structures of HoRh_2Si_2 having successive component-separated magnetic transitions; International Conference on Neutron Scattering 2013, 2013年7月10日、Edinburgh, UK

繁岡透, HoRh_2Si_2 の逐次成分分離磁気転移の中性子回折による研究、第12回日本中性子科学会年会、2012年12月10日、京都大学、京都市

三木啓輔、磁場中超音波計測による HoRh_2Si_2 の四極子効果、日本物理学会2011年秋季大会、2011年9月21日、富山大学、富山市

T. Shigeoka, Magnetization Processes and

Phase Diagram of HoRh_2Si_2 Single Crystal
Having a Component-Separated Magnetic
Transition; 2011 International Conference
on Strongly Correlated Electron Systems,
2011年9月2日、Cambridge, UK
(他 30件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

繁岡 透 (SHIGEOKA Toru)
山口大学・大学院理工学研究科・教授
研究者番号：50167441

(2) 連携研究者

藤原 哲也 (FUIWARA Tetsuya)
山口大学・大学院理工学研究科・助教
研究者番号：10432733

上床 美也 (UWATOKO Yoshiya)
東京大学・物性研究所・教授
研究者番号：40213524