

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 31 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21540346

研究課題名（和文）時間分割中性子散乱測定による磁気秩序形成過程の実時間追跡

研究課題名（英文）Real time observation of magnetic ordering process by means of time resolved neutron scattering technique

研究代表者 元屋 清一郎 (MOTOYA KIYOICHIRO)

東京理科大学・理工学部・教授

研究者番号：60114683

研究成果の概要（和文）：

これまで乱れのない3次元磁性体においては磁気的性質の時間変化過程を直接観測しようとするのは常識に反することと思われてきた。本研究では時間分割中性子散乱測定等によってCeIr₃Si₂において磁気構造の長時間変化を観測した。この変化の詳細を解明すると共に類似の性質を示す数種の物質を見つけ、それらが磁気的フラストレーションに起因する現象であることを示した。

研究成果の概要（英文）：

In a system without randomness or imperfections we have not expected to observe a time variation of magnetic property within an attainable time scale. Contrary to all expectations, we found a long-time variation of magnetic structure in a non-diluted uniform magnet CeIr₃Si₂ by means of time-resolved neutron scattering measurements. We examined other materials and found similar long-time variations of magnetic structure in several materials. In this study we have clarified that the peculiar long-time variation of magnetic structure in these materials is an intrinsic property caused by frustrated magnetic interactions.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：長時間変化、中性子散乱、時間分割測定、磁気秩序

1. 研究開始当初の背景

本研究代表者はスピングラスの特徴的性質であるスローダイナミックスに磁気クラスターが重要な役割を担っていることを推測し、時間分割中性子散乱法をはじめスピングラス研究に用

いて磁気クラスターの時間発展の様子を実時間で追跡する実験を行なってきた。この実験手法によって高濃度スピングラスにおけるスローダイナミックスの機構を解明するという目的を達することが出来た。ところがこの研

究とは全く別の興味で進めていた重い電子系物質 CeIr_3Si_2 の磁気構造に関する研究の過程においてもこれまでの常識では考えられないスロウダイナミクス現象を見つけた。我々のグループでその物性研究を始めた CeIr_3Si_2 は比較的低温において多段階のメタ磁性転移を示すことが解り、その磁気構造を中性子散乱実験により調べていた。試料を磁気転移温度以下に冷却後反強磁性ブラッグ点での中性子磁気反射を観測するとその強度（副格子磁化の大きさ）が10時間以上に渡って増加しつづけることが観測された。これは規則構造をもつ3次元磁性体では極めて異常な現象であり、多段階メタ磁性転移が示唆するように競合する磁気相互作用に起因する現象と考えられる。これまで非平衡、不均一な系特有の現象と考えられてきた長時間緩和現象がこの物質のような3次元規則磁性体においてこのような長い時間スケールで観測されたのは初めてであった。このような現象はこれまでだれも予想せず多くの物質の研究で見落とされてきた場合も多くあると思われた。

2. 研究の目的

最初の段階として重い電子系物質 CeIr_3Si_2 において検出された磁気秩序の長時間変化の全貌を解明し、スピングラスなどの不規則系の特徴と見なされてきた長時間緩和現象が規則系物質においても観測可能な時間スケールで起こり得ることを示す。第二段階として、 CeIr_3Si_2 と同じく競合する磁気相互作用を持つ物質群（新たに合成する物質を含む）の巨視的磁気測定から、候補となる物質を探索し、時間分割中性子散乱測定を行なってこの現象の出現する条件やその物質における時間スケールと物質固有の性質との関連についての知見を得る。このような研究を通じて CeIr_3Si_2 で観測された現象がこれと類似の特徴（フラストレーション）をもつ他の物質でも観測可能な時間スケールで起こる現象であることを検証する。

3. 研究の方法

下記の項目を順次または並行して実施する

- (1) CeIr_3Si_2 等の巨視的測定
- (2) 中性子散乱実験用試料環境の整備
- (3) CeIr_3Si_2 の時間分割中性子散乱実験
- (4) 類似の振舞いを示す物質の探索
- (5) 時間分割中性子散乱実験技術の開発

(6) 広い時間領域での磁気緩和現象の観測

4. 研究成果

本課題では CeIr_3Si_2 での磁気秩序形成過程を精査すると共に類似の現象を示す物質を探索し時間を含む磁気相転移の研究を展開することを目指した。平成 21-22 年度は CeIr_3Si_2 について詳細な中性子散乱実験と巨視的測定を行ない磁気構造の時間変化の詳細を明らかにした。図 1 はゼロ磁場下において 30K（常磁性相）から 1.9K（低温相）へ急冷した後、(a) 逆格子点 $(0, 1.375, 0.64)$ に観測される中間温度相の磁気ブラッグ散乱と (b) $(0, 1.333, 0.667)$ に観測される低温相の磁気ブラッグ散乱それぞれの散乱パターンの時間変化を示す。

図 1

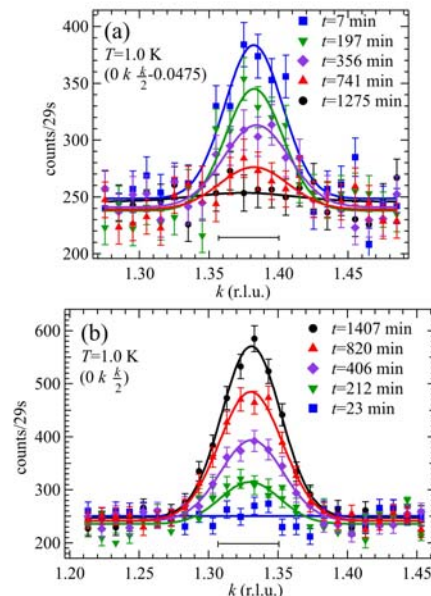


図 2 はいろいろな温度での (a), (b) それぞれの信号強度の時間変化を示す。

これらの結果は急冷の過程で中間温度相を通過する時に形成された中間相の磁気構造が低温相の磁気構造へと長時間にわたって変化することを示している。それぞれの強度の時間変化は指数関数で表わされ、これから求めた特性時間 (t^*) の温度依存性は図 3 に示すようにアレニウス則にあてはまり、中間温度相の構造から低温相の構造への変化は $E_a/k_B=4\text{K}$ のエネルギー障壁を越える熱活性型の変化であることが解った。

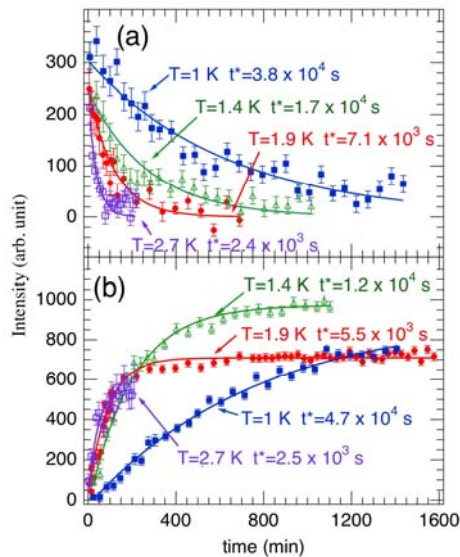


図 2

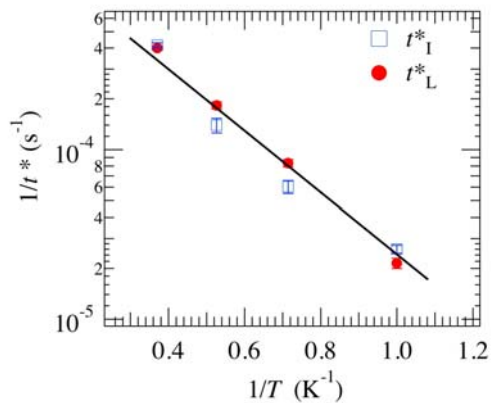


図 3

また、物質探索の結果類似の振舞いを示す数種の物質を発見した。

平成 23 年度には物質探索を継続すると共に時間変化が試料に含まれる不純物や欠陥によるランダムな磁気相互作用に起因するものでないことを明らかにするため磁性原子を非磁性原子で希釈して積極的にランダム性を導入した物質系 (Ce-La)Ir₃Si₂ および Ca₃(Co-Mg)₂O₆ の単結晶試料を作成して磁気構造の長時間変化を測定した。中性子散乱は日米協力事業の一環としてオークリッジ国立研究所で行なった。観測された時間変化の時定数は純物質である CeIr₃Si₂ や Ca₃Co₂O₆ のものと顕著な差異は見られなかった。前年度までに行なった巨視的測定の結果も合わせ本研究で観測してきた磁気構造の長時間変化の現象は予期せぬ不純物や欠陥に起因するランダムな磁気相互作用によるものではなく、これらの物質に本質的な磁気的フラストレーションによるものと結論した。

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 13 件) すべて査読有り

(1) Long-time variation of magnetic structure in multistep metamagnets Ca₃(Co-M)₂O₆,

T. Moyoshi and K. Motoya, J. Phys.

Conference Series (2012) 印刷中

(2) Magnetic Structure and Its Long-time Variation in a Multi-Step Metamagnet

CeIr₃Si₂, T. Moyoshi, K. Motoya, Y. Muro and

T. Takabatake, J. Phys. Soc. Jpn. **81** (2012)

014704-1--7.

(3) Incommensurate Magnetic Structure and Its Long-Time Variation in a Geometrically Frustrated Magnet Ca₃Co₂O₆, T. Moyoshi and

K. Motoya, J. Phys. Soc. Jpn. **80** (2011)

034701-1--9

(4) Long-time variation of magnetic structure in a geometrically frustrated magnet Ca₃Co₂O₆,

T. Moyoshi, R. Takahashi and K. Motoya,

J. Phys. Conference Series **273** (2011)

012125-1--4

(5) Long-time variation of magnetic structure in rare-earth intermetallic compounds ,

K. Motoya, T. Moyoshi and T. Shigeoka,

J. Phys. Conference Series **273** (2011)

012124-1--4

(6) Real-time observation of magnetic structural change in the multistep

metamagnet in CeIr₃Si₂, K. Motoya, Y. Muro

and T. Takabatake, J. Phys. Conference Series

251 (2010) 012019-1--4

(7) Long-time variation of magnetic structure in in CeIr₃Si₂, K. Motoya, Y. Muro and T. Takabatake, J. Phys. Conference Series **200** (2010) 032048--1-4,

[学会発表] (計 33 件)

(1) K. Motoya, T. Moyoshi, M.Asano,S. Takagia nd T. Shigeoka, Effect of disorder on the long-time variation of magnetic structure in rare-earth compounds, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2011-8-31, Cambridge, England

(2) T. Moyoshi and K. Motoya, Long-time variation of magnetic structure in multistep metamagnets Ca₃(Co-M)₂O₆, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2011-8-31, Cambridge, England

(3) K. Motoya, T. Moyoshi and T. Shigeoka, Long-time variation of magnetic structure in rare-earth intermetallic compounds, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems, 2010-6-28, Santa Fe, U.S.A.

(4) K. Motoya et al., Long-time variation of magnetic structure in CeIr₃Si₂, 2009-7-30, Karlsruhe, Germany

(5) K. Motoya, et al. Real-Time Observation of Magnetic Structural Change in the Multistep Metamagnet CeIr₃Si₂, International conference on Neutron Scattering, 2009-5-4, Knoxville, U. S. A

[図書] なし

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

元屋 清一郎 (MOTOYA KIYOICHIRO)
東京理科大学・理工学部・教授
研究者番号: 60114683

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

茂吉 武人 (MOYOSHI TAKETO)
東京理科大学・理工学部・助教
研究者番号: 50444394