

フラストレーション効果の研究

プロジェクト代表者：小坂 昌史（理工学研究科・准教授）

1 研究目的

結晶中の磁性原子により形成される、ネットワークが三角形やカゴメ型の構造を持つ場合、磁気相互作用を起源とする、幾何学的なフラストレーション効果が顕著に現れる物質が多く報告されている。近年、そのようなフラストレーション格子の一種である、三角形と正方形の組み合わせによって構成されるシャストリー・サザーランド格子を持つ、希土類金属間化合物において興味深い現象が発見された。短距離相関の発達を示唆するエントロピーの凍結が、磁気秩序に至る手前に現れることや、結晶学的には同一サイトに位置する磁性原子にもかかわらず、秩序に参加する原子とそうでない原子に分離するなどの提案がそれである。本研究では、シャストリー・サザーランド格子を初め、幾何学的フラストレーション効果を内包する格子系を持つ希土類金属間化合物の新規開拓を行い、 $4f$ 電子が磁性を担う希土類系でのフラストレーション効果が果たす役割を探っていく。

2 研究方法

研究対象物質として、 Yb_2MgSi_2 を選定した。 Yb_2MgSi_2 は空間群 $P4/mbm$ に属する正方晶希土類化合物である。磁性を担う Yb 原子がシャストリー・サザーランド格子と等価なネットワークを組んでいる。 Yb_2MgSi_2 に関する物性報告例はこれまでに1件あり、 $T_N = 9.5 \text{ K}$ の反強磁性体であり、 T_N 近傍で磁気格子相互作用の増大がメスバウアー効果測定により観測されている。¹⁾

Yb_2MgSi_2 を構成する Yb, Mg は高温で蒸発が激しく、アーク溶解などの方法を用いて試料作成を行うことができない。そこで、今回は 2600°C という高融点をもつモリブデンで試料作成用のるつぼを自作し、試料原料をアルゴン雰囲気中で密閉する手法を取った。密閉したるつぼを更に、石英管で真空封入し、 1200°C までの熱処理を行うことで単相試料を得ることができた。得られた試料に対して、磁化、比熱、熱膨張などの測定を室温から極低温まで行い、その温度依存性を調べた。

3 結果とまとめ

図1にデバイ模型より見積もった、格子からの比熱の寄与を差し引いた結果（磁気比熱）を赤点で示す。右側の縦軸は磁気比熱より見積もったエントロピーであり、両者とも横軸を温度の対数でプロットしている。 8.2 K 付近に観測されている λ 型のピークが、報告例より若干低温であるが反強磁性転移に対応している。さらに、高温側には約 40 K を中心にしてショルダー型の異常が観測され、これは結晶場効果による Yb 原子の $4f$ 電子準位分裂により現れた比熱異常であることが伺える。エントロピー変化を見てみると、 T_N 近傍で $R\ln 2$ の約68%と

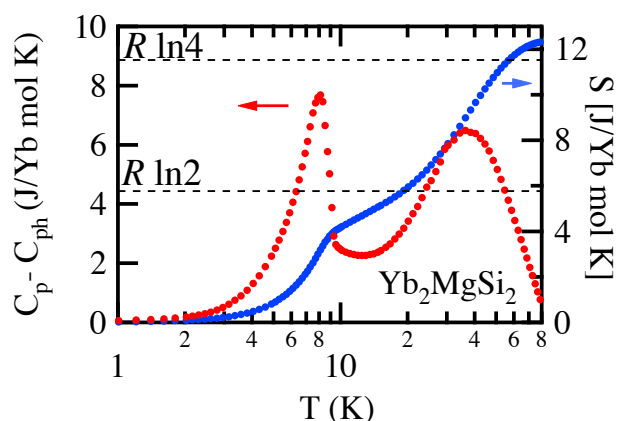


図1. Yb_2MgSi_2 の磁気比熱とエントロピーの温度変化.

見積もられる。完全な局在系であれば磁気転移温度で $R\ln 2$ のエントロピーの解放が期待されるが、それよりは低い値となっている。これが、フラストレーション効果による抑制、あるいは近藤効果の影響によるものなのかは現時点では、はっきりしていない。80 K 付近でエントロピーが $R\ln 4$ 解放されることは、この物質の結晶場基底状態、励起状態ともクラマース 2 重項であることを示している。

図 2 に熱膨張の温度変化を示す。メスバウアー効果の測定から、 T_N 近傍で格子歪みなどの弾性異常が期待できることから、キャパシタンスメータを用いた手法で測定を行った。高温より単調減少してきた熱膨張は T_N を境に一転、上昇に転じる。 $\Delta L/L$ に 10^{-5} 程度の大きさの変化が見られることから、反強磁性転移に伴い格子系に異常が起きていることが明らかとなった。この変化は磁歪ではなく、本質的な格子変形によるものと推測され、フラストレーション効果を解消するために、磁気秩序と同時に格子変形を生じた可能性が高いと考えている。今後、他の実験方法を行い明らかにしていく必要がある。

今回の測定は単相の多結晶試料を用いて行った。結晶磁気異方性に関する情報を得るためには、単結晶試料が必要である。そこで、 Yb_2MgSi_2 の単結晶試料育成に挑戦した。様々な条件での作成を行い、温度を上げすぎると、不純物が析出しやすい傾向にあることが判明した。つまり、組成比通りの融液状態からの結晶成長が困難ということである。そこで、構成元素の一つである比較的融点の低い Mg を溶媒としたフラックス法を用いることにし、モリブデンルツボを同様に用いて作成を行った。その結果、最大で $0.8 \text{ mm } \phi$ 程度の単結晶試料を育成することに成功した (図 3)。今後、より大きな単結晶の育成とその物性測定を行っていく。

4 参考文献

- 1) K V Shah, P Bonville, P Manfrinetti, F Wrubl and S K Dhar, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 176001 (2009).

5 成果発表

- [1] 今成亜弥 他, Yb_2XSi_2 ($\text{X}=\text{Al}, \text{Mg}$) の磁性, 日本物理学会 2011 年秋季大会.
- [2] 今成亜弥 他, 小坂昌史ほか, 六方晶希土類化合物 RNiP の磁性 II, 日本物理学会 2011 年秋季大会.
- [3] 下村晋 他, X 線回折・散漫散乱による GdNiC_2 の逐次転移の観測, 日本物理学会 2011 年秋季大会.
- [4] 三上和幸 他, 希土類化合物 GdNiC_2 の磁場中相図と変調構造 II, 日本物理学会 2011 年秋季大会.
- [5] 松波雅治 他, YbAl_2 の 3 次元角度分解光電子分光, 日本物理学会 2011 年秋季大会.
- [6] 松波雅治 他, 角度分解光電子分光による YbAl_2 のフェルミ面と混成バンドの観測, 日本物理学会 2012 年春季大会.
- [7] 下村晋 他, RNiC_2 ($\text{R}=\text{Tb}, \text{Gd}$) の放射光 X 線回折, 日本物理学会 2012 年春季大会.

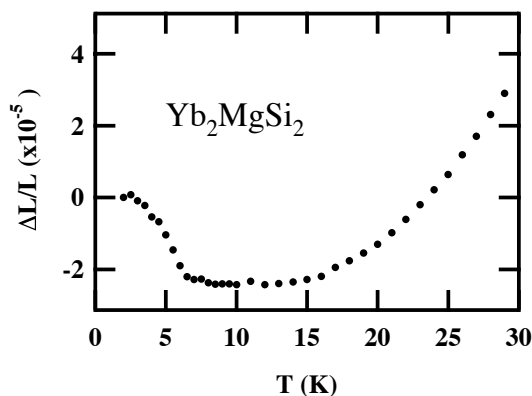


図 2. Yb_2MgSi_2 の熱膨張の温度変化.

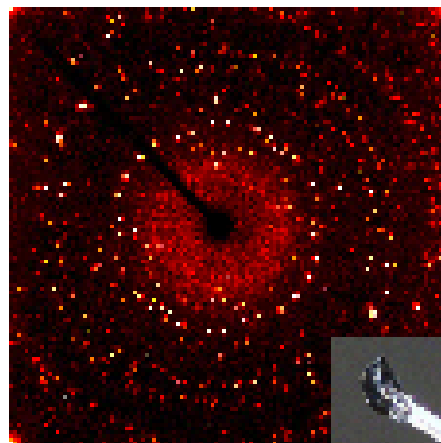


図 3. フラックス法で作成した Yb_2MgSi_2 の単結晶試料の振動写真.