

論文内容の要旨

極低温角度分解磁化測定法による 異方的 f 電子化合物の研究

Study of anisotropic f electron compounds by means of
the low-temperature angle-resolved magnetization measurements

佐藤英和

f 電子は局在性が強く、まわりの p 、 d 電子との混成や結晶場の効果が小さいために基底状態付近に軌道縮退が残る場合が多い。その結果、磁気モーメントの向きに対応する磁気自由度の他に電荷分布の異方性に対応する四極子自由度を持つ。 f 電子系化合物においてこれら自由度間の相互作用により引き起こされる相転移現象は、舞台となる格子の種類や次元性及び相互作用の種類により多彩な様相を呈し、物性物理学における中心的研究テーマのひとつとなっている。磁場はこれら相転移現象を調べる上で重要なパラメーターであるが、異方的な秩序状態を反映して磁場に対する応答は磁場方向によって異なる。したがって、磁場方向を連続的に変えながら系の応答を詳細に検出すれば秩序変数に対する深い知見を得ることができる。磁化は最も基本的な物理量のひとつであり、その磁場方向依存性を調べることにより磁気転移だけでなく四極子転移に対しても秩序変数を調べるのに有用である。一方 f 電子系は、周りの f 電子との相互作用が弱いために相転移温度は一般に低く、 ^3He 冷凍機や希釈冷凍機を用いた実験が必要となることが多い。これら理由により、極低温において磁場方向を連続的に変化させながら行なう磁化測定は異方的な f 電子物性を解明する上で有力な実験手段となり得る。しかし、1 K 以下の極低温で用いることができるこのような装置が開発されたという報告はほとんどない。そこで、本研究では ^3He 冷凍機を用いた極低温角度分解磁化測定装置の開発を行い、この装置を用いてパイロクロア酸化物 $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ と充填スクッテルダイト化合物 $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ の二つの希土類化合物の研究を行った。

【磁化測定法】

磁化測定法は極低温領域の測定に適したキャパシタンス式ファラデー法を用いた。これは不均一磁場中で試料に働く磁化に比例した力を検出する方法で、測定中に試料を動かす

必要がないため発熱の心配がなく極低温の測定に適している。超伝導スプリットペアマグネットを用いて磁場を水平方向に発生させ、PC制御できる回転機構を用いて冷凍機を鉛直軸の周りに回転させることにより試料にかかる磁場方向を連続的に変えることができるようにした。磁場勾配は試料位置を磁場中心から鉛直方向にずらした位置にできる自然勾配を利用しているが、精度良く磁化を測定するためには試料位置の精密な調節が必要となる。そこで冷凍機を鉛直方向に精度よく移動することができるPC制御可能な上下機構を用い磁場勾配の再現性を高めた。

【パイロクロア酸化物 $Dy_2Ti_2O_7$ 】

パイロクロア酸化物 $Dy_2Ti_2O_7$ はスピン間の相互作用が ~ 1 K の強磁性的であるにもかかわらず、長距離秩序を示さない幾何学的フラストレーション系である。磁性を担う Dy イオンはパイロクロア格子（頂点共有の正四面体ネットワーク）上に存在しており、 $\langle 111 \rangle$ 方向に容易軸を持つイジングスピンで記述される。この容易軸のために相互作用が強磁性的であっても $Dy_2Ti_2O_7$ はフラストレーションを示す。最も安定な状態は四面体上の4つのスピンは2つのスピンが内側、2つのスピンが外側を向いた two-in, two-out 構造であり、六重に縮退している。この縮退により結晶全体では基底状態は巨視的な縮重度を持ち、実験的にも残留エントロピーが観測されている。未解決の問題として、粉末試料の磁場中比熱実験により示唆されている磁場誘起相転移が上げられる。スピンの磁気モーメントが $\sim g_J J \mu_B = 10 \mu_B$ と大きくスピン間の相互作用としては交換相互作用よりも長距離に及ぶ磁気双極子相互作用が利いてくるため、この長距離力との関連からも興味深い現象である。 $(1\bar{1}0)$ 面内において角度分解磁化測定を行なうことにより磁場誘起相転移について調べた結果、2つの新しい相転移を発見した。一つ目は、 $[111]$ と $[112]$ の間に磁場を印加することで現れる相転移で、臨界温度 $T_c = 0.26 \pm 0.01$ K を持つ。磁化の角度依存性を詳細に解析することにより、 $[11\bar{1}]$ 方向にイジング軸を持つスピンの強磁性転移であることが分かった。これらスピン間は第三近接距離だけ離れているため、双極子相互作用が引き起こす相転移と言える。二つ目は $[111]$ と $[110]$ の間の磁場方向に存在し、 $T_c = 0.49 \pm 0.02$ K の臨界温度を持つ。この相転移は $[\bar{1}11]$ 方向と $[1\bar{1}1]$ 方向にイジング軸を持つ2種類のスピンが関与したものであることが明らかとなった。これらスピン間は最低でも第二近接距離だけ離れているためこの相転移も双極子相互作用が引き起こす相転移と言える。

【充填スクッテルダイト化合物 $PrFe_4P_{12}$ 】

$PrFe_4P_{12}$ は電気抵抗や熱電能などにおいて近藤効果的な挙動を示し、低温高磁場において Pr 系化合物としては非常に珍しい重い電子状態が形成されるため、興味を持たれている物質である。体心立方構造をもつこの物質は $T_A = 6.5$ K において相転移を示す。この相転移は磁氣的なものでないことが中性子回折、NMR、 μ SR 実験により明らかにされている。X 線回折実験では A 相において $q = (100)$ の超格子反射が観測されており、Fe イオンが $(\delta, \delta, -2\delta)$ で歪んでいると報告されている。また磁場中中性子回折実験により A 相において反強磁性モーメントが磁場方向に誘起されると報告されている。これらのことから A 相は O_2^0 型の四極子が反強的に整列している状態であると考えられている。

この A 相において、角度分解磁化測定を行い以下の結果を得た。

- 磁化が磁場に比例する磁場領域においては、異方性がない。
- 磁化の異方性は cubic invariant な $h_x^4 + h_y^4 + h_z^4$ に従う。

- 転移温度の異方性も $h_x^4 + h_y^4 + h_z^4$ に従う。

ここで h_x 、 h_y 、 h_z は磁場の方向余弦である。この結果は、秩序相においても立方対称性を保つということを強く示唆し、立方対称性を落とす四極子転移の可能性を否定するものである。 f 電子が持つ時間反転対称性と立方対称性を破らない高次の多極子自由度としては Γ_1 型の電気十六極子がある。しかし反強十六極子秩序では基底状態に縮退が残ることが予想され比熱の実験結果と合わない。このことから、単純な反強十六極子秩序の可能性は低いと考えられる。

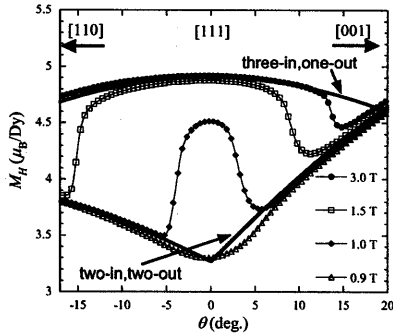


図 1: $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の磁化の角度依存性。

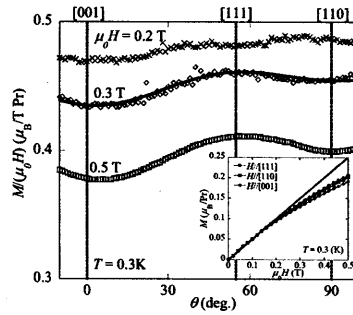


図 2: $\text{PrFe}_4\text{P}_{12}$ の磁化の角度依存性。挿入図は主軸方向の磁化の磁場依存性。