

# 希土類化合物 $\text{RAl}_3\text{C}_3$ における構造相転移と磁場によるドメイン制御 Structural phase transition in $\text{RAl}_3\text{C}_3$ and manipulation of structural domains by magnetic fields

松村武<sup>1\*</sup>, 大坪亨<sup>1</sup>, 落合明<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 広島大学大学院先端物質科学研究科量子物質科学専攻, 〒739-8530 東広島市鏡山 1-3-1

<sup>2</sup> 東北大学大学院理学研究科物理学専攻, 〒980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

Takeshi Matsumura<sup>1\*</sup>, Toru Otsubo<sup>1</sup>, and Akira Ochiai<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Department of Quantum Matter, AdSM, Hiroshima University, Higashi-Hiroshima, 739-8530, Japan

<sup>2</sup>Department of Physics, Graduate School of Science, Tohoku University, Sendai, 980-8578, Japan

## 1 はじめに

電子系のスピンの秩序化する過程において、スピンの量子効果が顕著に表れる量子スピン系の研究が多くの研究者から注目されている。具体例の多くは主に d 電子系物質で見られる。それは量子効果が大きい  $S=1/2$  のスピン状態が実現することが多く、また結晶構造の低次元性および相互作用のフラストレーション効果によって秩序が抑制されることが多いためである。一方、f 電子系物質においては、磁性を担う電子の状態はスピンと軌道が結合した J 多重項で記述され、多くの場合 J は  $1/2$  よりずっと大きい。また、金属的性質をもつことが多く、伝導電子を媒介とする RKKY 相互作用によって相互作用が 3 次元的となり、低次元性が実現することもまれである。そのような一般的な状況の中で、最近  $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  が量子スピン状態を実現する新しい f 電子系物質として研究されている[1]。

$\text{YbAl}_3\text{C}_3$  のもう一つの注目点は、構造相転移とそのドメイン状態である。高温では六方晶( $P6_3/mmc$ )であるが、80 K で構造相転移を起こし、斜方晶へと転移する。図 1 に逆格子空間の図を示す。高温相では基本反射ピークしか現れないが、80 K 以下では図に示すように 3 種類の斜方晶ドメインが形成される。これらに対応した X 線回折ピークも実際に観測されている[2]。注目すべき点は、この構造ドメインが磁場で選択可能である点である。BL-3A で行った磁場中 X 線回折によれば、図 1 で磁場を  $\Psi=60^\circ$  の方向にかけた状態で温度を下げると、青 ( $\blacktriangle$ ) で示したドメインだけが出現し、赤 ( $\blacksquare$ ) と緑 ( $\bullet$ ) のドメインは現れない。磁場をゼロにしてもこの状態は保持される。さらに驚くべきことに、青 ( $\blacktriangle$ ) ドメインだけが選択されたこの状態で、低温相のまま、今度は磁場を  $\Psi=0^\circ$  の方向にかけると、ある磁場で赤 ( $\blacksquare$ ) ドメインの状態へスイッチする。この様子を示したのが図 2 である。 $\text{Yb}$  の磁気モーメントは非常に小さく、しかもこの現象が起こるのは常磁性状態であり、どのような磁気的作用が働いてこのような構造の変化が起こるのか興味深い。

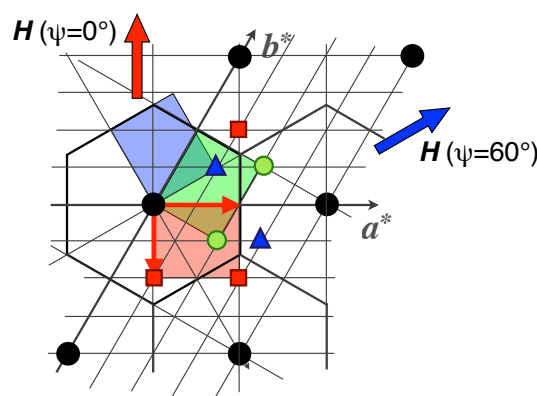


図 1 :  $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  の逆格子点 ( $\bullet$ ) と低温相で現れる斜方晶の Bragg 点。3 つのドメインが形成される。

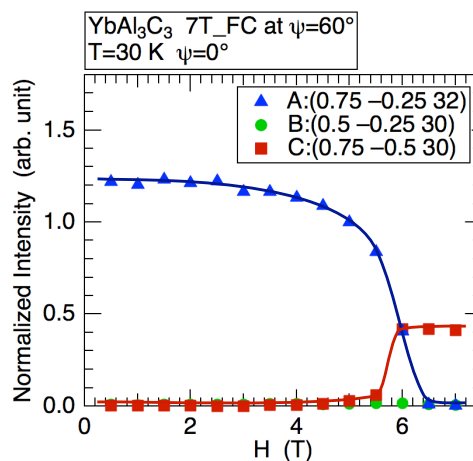


図 2 : 低温相における構造ドメインのスイッチング。

本課題の研究目的は、このような構造相転移が他の  $\text{RAl}_3\text{C}_3$  系でも起こるのかどうか、また、磁場によるドメイン選択やスイッチングなどの現象が起こるのかどうかを調べることで、磁気相互作用と構造に関する理解を深めることである。

## 2 実験

$\text{RAl}_3\text{C}_3$  (R=Lu, Yb, Tm, Er, Dy)について、密封タンクステンるつぼを用いて作製された、六角形の表面をもつ試料を用いて、BL-8B の IP カメラを用いた振動写真法により、低温で現れる超格子反射ピークを探索し、どのような構造相転移が起こっているかを調べた。

## 3 結果および考察

実験の結果、すべての  $\text{RAl}_3\text{C}_3$  で低温で構造相転移が観測された。ただし、R=Lu, Tm, Er では、超格子反射の指数は R=Yb とは異なっていた。さらに、R=Dy での構造相転移は 2 段階であり、中間相が R=Lu, Tm, Er と同じで、低温相が R=Yb と同じであることがわかった。R=Dy での相転移にともなう超格子反射ピークの出現と消滅の様子を図 3 に示す。また、図 4 には超格子の様子を示す。この構造は、六方晶のままでも解釈はできるが、恐らく斜方晶になっているものと思われる。磁場をかけるなど、ドメイン占有率の変化を調べる実験が必要である。

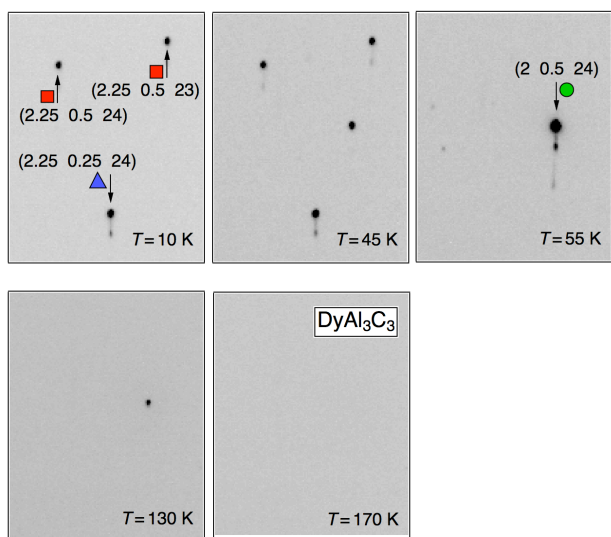


図 3 :  $\text{DyAl}_3\text{C}_3$  で観測された 2 段階の構造相転移。

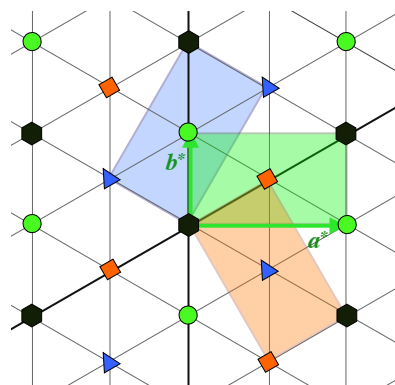


図 4 :  $\text{LuAl}_3\text{C}_3$ ,  $\text{TmAl}_3\text{C}_3$ ,  $\text{ErAl}_3\text{C}_3$ , および  $\text{DyAl}_3\text{C}_3$  の中間相での超格子反射ピーク。

現在のところ、R=Dy の低温相の空間群は R=Yb と同じ  $\text{Pbca}$  であると考えられるが、強度の弱いピークの正確な測定ができておらず、同定には至っていない。他の化合物についても同様であり、恐らく斜方晶であると思われるが、空間群の同定には至っていない。

弱い常磁性状態にもかかわらず磁場によって構造ドメインが制御できるのはなぜかという疑問が残るが、磁気異方性を利用して粉末試料を配向させることができるように、やはり弱いながらも磁気異方性と関係しているのではないかと考えられる。まだ R=Yb しか磁場中 X 線回折は行っていないが、非磁性の R=Lu や一重項非磁性基底状態の R=Tm, 大きな磁気モーメントを持つ R=Er, Dy についても磁場でドメインがどう影響されるかが明らかにされれば、あまり例のない重要な情報を含む結果になるものと期待される。

## 4 まとめ

電気抵抗や帯磁率から構造相転移の存在が予想されている  $\text{RAl}_3\text{C}_3$  (R=Lu, Tm, Er, Dy)について、低温での X 線回折実験を行い、振動写真法により、構造相転移によって出現する超格子反射ピークを観測した。R=Lu, Tm, Er については、低温相の構造は R=Yb とは異なっており、より単位胞の大きな構造であった。R=Dy ではそこからもう一度相転移を起こして R=Yb と同様な構造に転移することがわかった。今後は、X 線回折実験を磁場中で行い、相転移後の超格子反射ピークが磁場方位によってどのように生き残り消滅したりするかを調べる予定である。

## 参考文献

- [1] K. Hara *et al.*, *Phys. Rev. B* **85**, 144416 (2012).
- [2] T. Matsumura *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn* **77**, 103601 (2008).

\* tmatsu@hiroshima-u.ac.jp