

# 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構造ドメイン制御 Structural Transition in $\text{RAl}_3\text{C}_3$ and Control of Structural Domains by Magnetic Fields

松村武<sup>1,\*</sup>, 大坪亨<sup>1</sup>, 高井駿<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, 〒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\*, Toru Otsubo, and Shun Takai

<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

磁場による誘電分極の制御や、電場による磁化の制御など、直接の相互作用が本来期待できない外場と物理量との間の相関は交差相関と呼ばれ、応用のみならず基礎物性学の観点からも盛んに研究されている。本研究課題である磁場による構造ドメイン制御も、通常は磁気秩序状態で磁場をかけることで磁気ドメインの整列を起し、秩序状態での強い磁気異方性を介して結晶構造が変化する現象である。それに対し、本研究で対象とする  $\text{RAl}_3\text{C}_3$  では、常磁性状態においても結晶構造のドメインが磁場で制御できることがわかってきた。それも  $\text{DyAl}_3\text{C}_3$  のように、大きな磁気モーメントをもち、磁気異方性も強い物質であるなら、それほど不思議な現象ではないかもしれない。しかし、 $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  のように磁気モーメント自体が小さく、非常に弱い磁性しかもたない物質や、 $\text{TmAl}_3\text{C}_3$  のように基底状態が非磁性であるような物質でも、常磁性状態で構造ドメインの制御が可能であるらしいことが、最近の詳しい磁化測定からわかってきた。ただ、マイクロなドメイン状態については磁化測定では詳しいことがわからない。そこで昨年度の実験では、 $\text{YbAl}_3\text{C}_3$  について磁場中 X 線回折実験を行い、確かに磁場で構造ドメインがそろそろ様子を直接観測した。構造ドメイン整列に磁性がどのように関与しているかはわからないが、もしかすると、磁性イオンが入っていない  $\text{LuAl}_3\text{C}_3$  でも、磁場で構造ドメインがそろそろ現象が見られるかもしれない。もしそれが本当なら、交差相関の新しいメカニズムの発見になるかもしれない。それが本研究の動機である。

$\text{RAl}_3\text{C}_3$  は室温では六方晶( $\text{P6}_3/\text{mmc}$ )であり、低温で構造相転移を起して直方晶(Orthorhombic)に変わる。このとき図 1 に示すように、3 種類の構造ドメインが発生する。2012 年度は  $\text{R}=\text{Yb}$  の他に、 $\text{R}=\text{Lu}$ ,  $\text{Tm}$ ,  $\text{Er}$ ,  $\text{Dy}$  についてこの構造相転移について IP カメラを用いた振動写真法で確認を行った。今年度の課題は、 $\text{R}=\text{Tm}$ ,  $\text{Dy}$ ,  $\text{Er}$ , そして  $\text{Lu}$  について、 $\text{R}=\text{Yb}$  で行ったのと同様な磁場中 X 線回折実験を行い、磁場で構造ドメインが整列する様子を直接観測することである。

## 2 実験

実験は、PF の BL-3A に設置されている 8Tesla 超伝導マグネットを用いて行った。試料の大きさは 100 ミクロン程度である。試料はマグネット中で回転させることができ、それによって磁場方向を変えることができる。基本的な実験手順は、次の 3 つである。

- (1) 無磁場冷却(ZFC)で 3 つの直方晶ドメインが観測されることを確認する。
- (2) 磁場中冷却(FC)すると、3 つのうち 1 つのドメインだけが残り、他の 2 つは消えることを確認する。
- (3) あるドメインだけが選択されるよう磁場中冷却し、低温で磁場をゼロにする。その後、試料を回転させて別のドメインが選択される磁場方向に変え、低温相(常磁性相)で磁場をかけると、ある磁場を超えたところで構造ドメインのスイッチングが起こることを確認する。

図 1 に逆格子空間の図を示す。

## 3 結果および考察

まず、 $\text{DyAl}_3\text{C}_3$  の結果から示す。図 2 は  $\text{DyAl}_3\text{C}_3$  を無磁場冷却した状態で、3 つの直方晶ドメインに対応する超格子反射ピークの強度を測定しながら、 $\psi=0^\circ$  方向の磁場を上げていった結果である。無磁場での初期状態では、ABC すべてのドメインが存在し

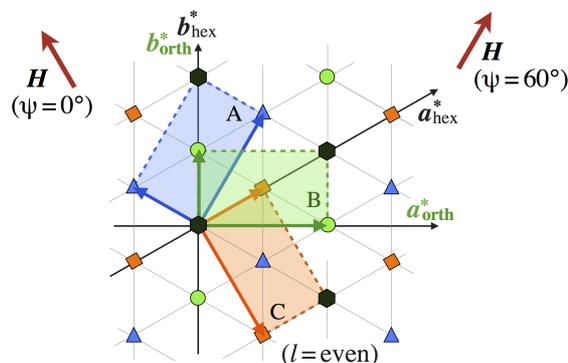


図 1 : 直方晶へ転移した後の逆格子空間図。

ているが、約 35kOe の磁場で AB ドメインが消失し、C ドメインだけが生き残る。このまま 60kOe まで磁場を上げ、磁場をゼロに戻すと、C ドメインはほとんど強度の減少なしに残るが、AB ドメインはわずかに強度が現れて復活するが、ほとんど消失したままと言ってよい。このことから、図 1 で  $a_{\text{orth}}$  軸方向が磁場と平行になるドメインが優先的に選択されることがわかる。

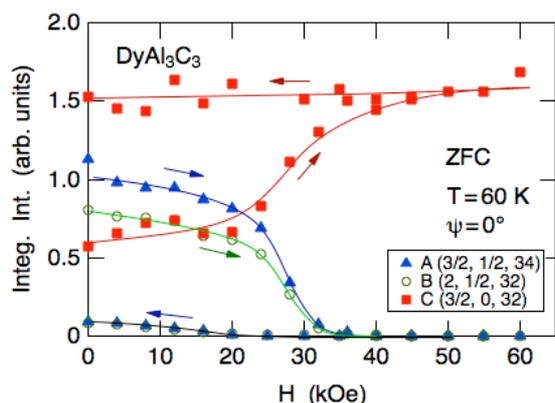


図 2 : DyAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> を無磁場冷却した状態での磁場変化。

図 3 は TmAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> について、無磁場冷却と磁場中冷却の比較を行った結果である。無磁場冷却では 3 つのドメインがすべて存在しているが、磁場中冷却すると、やはり 1 つのドメインだけが選択されることがわかる。ただし、TmAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> では、磁場を  $\psi=30^\circ$  方向にかけることで B ドメインだけが選択される結果となり、この方向が他と異なっている。つまり、 $b_{\text{orth}}$  軸方向が磁場と平行になるドメインが優先的に選択される。

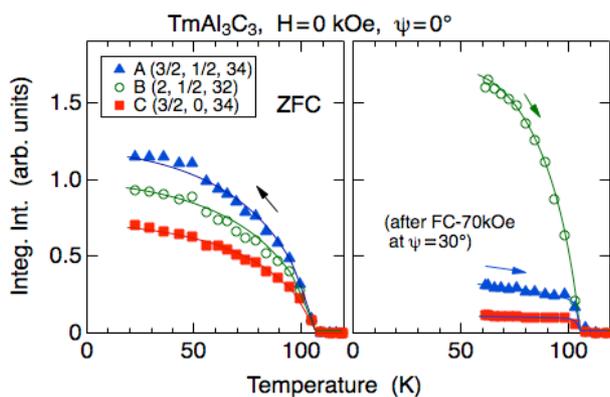


図 3 : TmAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> の無磁場冷却での温度変化と磁場中冷却で B ドメインだけを選択した状態からの温度変化。

最後は LuAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> である。図 4 に無磁場冷却の状態では、3 つのドメインが存在する状態から磁場をかけていった結果を示す。ここでも磁場でドメインが選択さ

れる結果を期待していたが、この結果が示すとおり、磁場に反応しているとは考えられない結果となった。

以上の結果から、RAI<sub>3</sub>C<sub>3</sub> で起こっている磁場による構造ドメイン制御は、やはり希土類イオンの磁性と磁気異方性を介した現象であると考えられる。R=Dy での転移磁場が低いのは Dy の磁気モーメントが大きいためであろう。R=Tm で AC ドメインが消失しきらずに残るのは、Tm が非磁性基底状態で磁性が弱いことと関係しているものと考えられる。

数テスラという弱い磁場でこのような現象が起こる原因の一つとして、直方晶に転移するとき格子定数の変化がほとんどなく、単格子内部での原子変位だけで六方晶から直方晶への変化が起きている点が挙げられる。その結果、あるドメインから別のドメインへ変化するときを超えなければならないエネルギー障壁が比較的低下しているものと思われる。

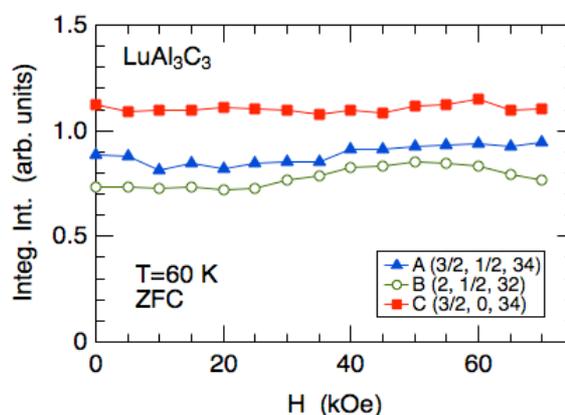


図 4 : LuAl<sub>3</sub>C<sub>3</sub> の無磁場冷却の状態からの磁場変化。

#### 4 まとめ

RAI<sub>3</sub>C<sub>3</sub> について磁場中 X 線回折実験を行い、常磁性状態でも構造ドメインが磁場によって制御される現象を調べた。その結果、この現象の起源はやはり希土類の磁性と磁気異方性にあることがわかった。

#### 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