

DyB₄ における幾何学的フラストレーションと磁気双極子および電気四極子の短距離相関：共鳴 X 線散乱による研究

東北大学大学院理学研究科 松村武, 奥山大輔, 中尾裕則, 村上洋一

希土類四ホウ化物 RB₄ (正方晶, $P4/mbm$) は c 面内の R イオンが Shastry-Sutherland 型の幾何学的フラストレーション格子 (SSL) を形成する物質系である. その中でも DyB₄ は, 比熱, 磁化率, 弾性定数等の基礎物性測定から, Dy³⁺ イオンの基底状態は 2 つの 2 重項が接近した擬 4 重項になっており, 磁気双極子と電気四極子の両方の自由度が有効に働いている系であることもわかっている. 電気四極子という軌道自由度が幾何学的なフラストレーションの中に置かれたときに, 単にスピンのみのフラストレーションとは異なる特異な秩序状態が実現されるのではないかと興味から, RB₄ における磁気および電気四極子の秩序状態の観測を共鳴 X 線散乱を用いて行っている.

DyB₄ は $T_{N1} = 20.3$ K と $T_{N2} = 12.7$ K で 2 段階の相転移を示し, 既に中性子粉末回折実験から T_{N1} 以下で c 軸方向の磁気モーメントが $[100]$ 方向に反強磁性的に秩序化することがわかっている. ところが, T_{N1} 以下でもまだ $R \ln 2$ のエントロピーを残しており, 弾性定数 C_{44} はより急峻にソフト化を続ける. これらの結果から T_{N1} 以下でも四極子の自由度がなぜか生き残っているのではないかと考えられている.

BL16A2 において我々は DyB₄ の共鳴 X 線散乱実験を行い, (100) 禁制反射の偏光依存性, アジマス角依存性, 温度変化を詳しく調べた. その結果, 偏光ベクトルが a 軸に平行なとき (アジマス角 $\Psi = 0^\circ$), 反射ピークのプロファイルは試料モザイクによる分解能限界に達しているのに対し, 偏光ベクトルが c 軸に平行なとき ($\Psi = 90^\circ$), 図 1 に示すようにピークプロファイルは分解能よりも明らかに広がっていることを見出した. $\Psi = 0^\circ$ で観測しているのは c 軸方向の磁気モーメント成分 J_z の秩序であるのに対して, $\Psi = 90^\circ$ で観測しているのは c 面内の磁気モーメント (J_x, J_y), または四極子 O_{yz} の秩序であることがモデル計算からわかる. すなわち, SSL を含む c 面内モーメントの秩序が短距離になっている. 図 2 にこれまでの実験結果を説明できる 2 種類の構造モデルを示す.

$T \leq T_{N1}$ で見られたピークプロファイルの広がりや幾何学的フラストレーションとがどのように関わっているのか, 実はまだよくわかっていない. 相関長を見積もると, 15 K で約 1500 Å であり, かなりの長距離相関になっている. 現在, 類似の系である HoB₄ を中性子と共鳴 X 線を用いて研究中である. HoB₄ の秩序相でも中性子回折で (100) 反射に同様なプロファイルの広がりが見つかっており, SSL における秩序に特有のものではないかと考えている.

[1] D. Okuyama *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 2434 (2005).

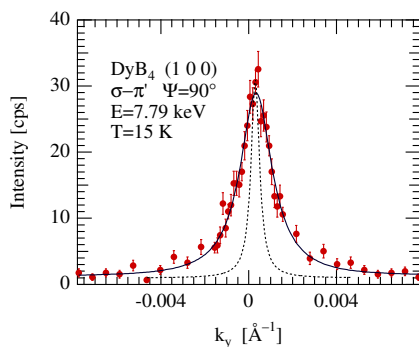


図 1: Dy-L₃ 吸収端エネルギーにおける DyB₄ のアジマス角 90 度での (100) 反射プロファイル. 点線は装置分解能.

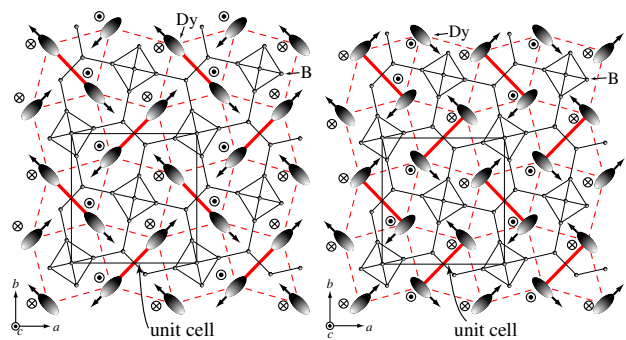


図 2: 現在提唱している磁気および四極子の構造モデル.