

## RB<sub>4</sub> (R=Tb, Dy, Ho) における磁気双極子および電気四極子の秩序とゆらぎ

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 RB<sub>4</sub> (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 TbB<sub>4</sub>, DyB<sub>4</sub>, HoB<sub>4</sub> の 3 物質は、いずれも 2 段階の相転移を示すなど、磁気双極子と電気四極子の自由度に起因する多彩な相転移現象を示すことが知られている。我々はこの系で磁気双極子と電気四極子がどのような秩序状態や揺らいだ状態を形成しているのかを、共鳴 X 線散乱や中性子散乱を用いて観測することで、両自由度が絡んだ相転移機構に関する理解を深めることを目的とした実験を行ってきた。

DyB<sub>4</sub> は  $T_{N1} = 20.3$  K と  $T_{N2} = 12.7$  K で 2 段階の相転移を示す。中間相では  $c$  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が、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とから、 $c$  面内モーメントと四極子  $O_{zx}$  が秩序化せずにゆらいでいると考えられている。共鳴 X 線散乱の実験を行ったところ、中間相では磁気双極子の  $c$  軸成分は長距離秩序になっているのに対し、 $c$  面内成分はピーク幅が広がっており、短距離秩序に止まっていることがわかった。この相では構造相転移は伴わず、帯磁率や弾性定数が常磁性的であることから、静的な秩序になってはいないと考えられる。図 1 はアジマス角 0 度と 90 度における共鳴散乱強度とピーク幅の温度依存性であり、0 度が  $c$  軸成分、90 度が  $c$  面内成分に対応している。低温相に入ると  $c$  面内成分と  $O_{zx}$  の秩序化と共に、単斜晶への構造相転移が起こる。

中間相における  $c$  面内成分の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。この系におけるフラストレーションは、図 2 の太線で示す第 1 近接、点線で示す第 2 近接、 $c$  軸方向の第 3 近接の相互作用だけでは、長距離秩序にはなれず、第 4 近接の相互作用を考慮することで初めて長距離秩序になる点にある。恐らく RB<sub>4</sub> では  $c$  軸成分の方が  $c$  面内成分より第 4 近接の相互作用が大きく、DyB<sub>4</sub> の秩序相では  $c$  軸成分の磁気双極子が大きいために  $c$  面内成分が短距離秩序に止まるのではないか。

HoB<sub>4</sub> では格子非整合な磁気秩序状態と DyB<sub>4</sub> の低温相と同様な秩序状態とが競合した状態から 1 次相転移的に後者の状態へ転移する。低温相での共鳴 X 線散乱の結果は DyB<sub>4</sub> と定性的にほぼ同じ結果であった。ただし  $c$  面内成分によるアジマス角 90 度での強度の方が  $c$  軸成分によるアジマス角 0 度での強度よりもずっと強い。また、TbB<sub>4</sub> では図 2 右図のような磁気構造が実現し、それに付随する形で四極子が発生する様子を観測した。RB<sub>2</sub>C<sub>2</sub> 系との比較も大変興味深く、磁気秩序と四極子秩序の競合、各 R イオンの特徴といった観点から整理を行ってみる。

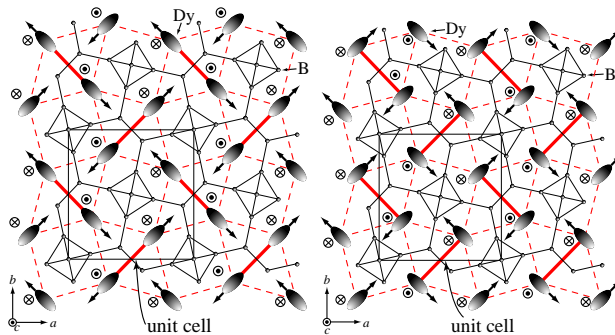
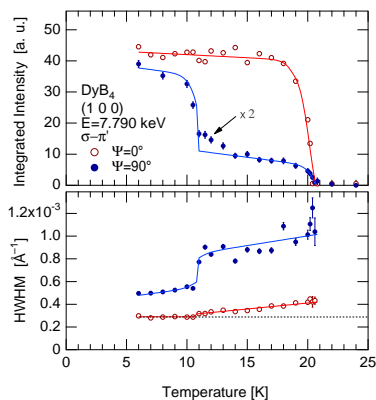


図 1: DyB<sub>4</sub> の (100) 共鳴反射強度の温度依存性。 図 2: (右) TbB<sub>4</sub> (左) DyB<sub>4</sub> と HoB<sub>4</sub> における磁気および四極子の構造モデル。