

## パルス磁場中X線内殻吸収分光による強相関f電子系の 磁場誘起相転移の研究

X-ray inner-shell absorption spectroscopy on magnetic field induced phase transition in strongly correlated f-electron systems

松田 康弘<sup>1)</sup> 稲見 俊哉<sup>2)</sup> 大和田 健二<sup>2)</sup> 野尻 浩之<sup>1)</sup>

Yasuhiro H. MATSUDA Toshiya INAMI Kenji OHWADA Hiroyuki NOJIRI

<sup>1)</sup> 東北大學 金屬材料研究所 <sup>2)</sup> 原子力機構

磁気フラストレーションを有するスピネル化合物である  $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  が示す磁化プラト一相における格子変形について調べるために 30 テスラ以上のパルス強磁場中で X 線回折実験を行った。課題は f 電子系の磁場誘起相転移を X 線吸収により調べることを目的としていたが、 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の磁場誘起相転移の解明は焦眉の課題であり、こちらを優先して研究を行った。 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の磁場誘起転移では格子変形が重要であり、X 線吸収ではなく X 線回折を行った。新規磁性体の磁場誘起相転移の解明にパルス磁場中の放射光 X 線実験はユニークで強力な手法であり、物理的観点から課題の趣旨に沿った実験であると判断される。

### キーワード :

磁場中 X 線回折、磁場誘起相転移、スピネルフラストレーション

### 1. 目的

パイロクロア格子やカゴメ格子などの幾何学的フラストレーションのある磁性体では、基底状態が多重に縮重し、そのままでは長距離秩序を持つことができない。そこで実際の系では、何らかの摂動を加えることにより、この縮重を解き、長距離秩序を実現しようとする。格子を歪ませることにより等価であった交換相互作用に強弱をつけ、フラストレーションを部分的に解消するのもひとつ的方法であり、Spin Jahn-Teller とも呼ばれる機構である。こういった磁性体に磁場を印加すると、選択される基底状態が変わり、今度は新たな基底状態を安定化するように格子の歪み方も変わることが期待される。 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  はスピネル構造を持ち、 $\text{Cr}^{3+}$  が磁性イオンで、これがパイロクロア格子を組む。 $\text{Cr}^{3+}$  は軌道モーメントがなく格子との結合は弱いと考えられるが、上述の Spin Jahn-Teller 機構により  $T_N=8\text{K}$  で反強磁性秩序を持つと同時に、格子は立方晶から正方晶にひずむ。 $\text{Cr}$  イオン間の反強磁性相互作用は強く、ワイス温度  $Q$  は  $-70\text{K}$  であり、 $T_N/Q$  が小さいことからフラストレーションの効果は大きいと考えられている。 $\text{CdCr}_2\text{O}_4$  に磁場を印加すると約  $28\text{T}$  で磁化のとびがあり、そこから上で磁化が飽和磁化の半分を示す磁化プラト一相が現れる[1]。パイロクロア格子の四面体上のスピンが  $\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow$  となっていることが予想されるが、第二近接相互作用まで考えると、その正負により菱面体晶 ( $\text{R}3\text{m}$ ) と立方晶 ( $\text{P}4_3\text{3}2$ ) の二つの可能性がある。磁歪の測定から格子に変化があることは明らかで、また、プラト一相の磁場領域が広いことも格子歪によるこの相の安定化を示唆している。本研究の目的は、磁化プラト一相の晶系を X 線回折実験により決定し、磁気構造の決定につなげ、この物質におけるスピネル格子結合の一面を明らかにすることができる。

### 2. 方法

SPring-8 の原子力機構専用ビームライン BL22XU を用いて行った。磁場発生は小型のパルスマグネットを用いて行い[2, 3]、これを液体ヘリウム冷却型の冷凍器に試料ごと挿入し、測定を行った。検出器は浜松ホトニクス製のフラットパネルセンサー (FPS) とアバランシェフォトダイオード (APD) を用い、逆空間で Bragg 反射を探索する際は FPS を X 線シャッターと組み合わせて用い、磁場依存性を細かく取る際には APD を用いて測定した。

### 3. 研究成果

$\text{CdCr}_2\text{O}_4$  の反強磁性相は正方晶の b 軸方向へのらせん構造となっており[4]、磁場印加に伴い b 軸

が磁場方向にそろうドメイン再配列が約 3T で起こる。従ってドメイン再配列後の Bragg 反射の位置を探すことが、まず実験上重要となる。我々は 2 次元検出器である FPS を用い、試料を少し回転させては 4T の磁場を印加して撮影するという測定を繰り返した。これにより、広い逆空間を観察でき、ドメイン再配列後の Bragg 反射の位置を突き止めるのに成功した。同様な測定を 30T の磁場印加でも行い、プラトー相での Bragg 反射も見出すことに成功した。また、これらの位置で時間分解能のある APD を検出器として構えることにより、細かい磁場依存性のデータを取得し、確かに 28T 近傍で鋭い転移を起こしていることを確認した。

プラトー相では Bragg 反射が 1 つしか見つからず、また、高温相(立方晶)の散乱角とほぼ等しいことから、プラトー相は立方晶である可能性が高いが、歪の小さい菱面体晶の可能性は排除できない。よって晶系を決めるためには厳密には超格子反射の観測が欠かせない。我々は  $P_{43}2$  で期待される 330 反射の位置で APD を構え、30T の磁場印加を行ったが、残念ながらピークが現れるのを観測することはできなかった。

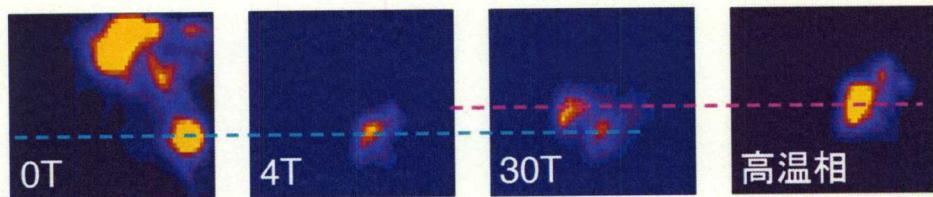


図 ; 4.6 K における 0 T、4 T、30 T での (440) 反射と、高温での (440) 反射

#### 4. 結論・考察

$CdCr_2O_4$  の 28T でのプラトー相への転移に伴う格子変形を X 線回折で観測することに成功した。超格子反射を観測できなかつたため、目的としていた晶系の決定はできなかつたが、菱面体晶では十分観測にかかる Bragg 反射の分裂が期待されることから、立方晶の可能性をより支持する結果になったといえる。2 次元検出器を用いた広い逆空間の測定に成功し、パルス強磁場下における単結晶 X 線回折の方法論が確立できたことも大きな成果であった。

#### 5. 引用(参照)文献等

- [1] H. Ueda et al., Phys. Rev. Lett. 94 (2005) 047202
- [2] T. Inami et al., Nucl. Instru. Meth. B 238 (2005) 233
- [3] Y. H. Matsuda et al., J. Phys. Soc. Jpn. 75 (2006) 024710
- [4] J.-H. Chung et al., Phys. Rev. Lett. 95 (2006) 247204