

パルス磁場中X線内殻吸収分光・回折実験による 強相関f電子系の磁場誘起相転移の研究

X-ray inner-shell absorption spectroscopy and X-ray diffraction study on magnetic field induced phase transition in strongly correlated f-electron system

松田 康弘¹⁾ 稲見 俊哉²⁾ 大和田 健二²⁾ 野尻 浩之¹⁾

Yasuhiro H. MATSUDA Toshiya INAMI Kenji OHWADA Hiroyuki NOJIRI

¹⁾ 東北大学 金属材料研究所 ²⁾ 原子力機構

多段メタ磁性転移を示す TbB_4 の強磁場中での磁気構造とその起源を探るため、30 T パルス磁場中での共鳴 X 線回折実験を行った。Tb の L3 吸収端近傍のエネルギーに X 線エネルギーを合わせることで、Tb スピンの周期性を反映した磁気反射強度が増大し、パルス磁場のような測定時間の短い実験も可能になる。(100) 磁気反射の磁場依存性から、1/2 プラトーにおいてもスピンの外部磁場に対する垂直成分が多く残っていることが初めて明らかになった。

キーワード：パルス強磁場、磁気散乱、共鳴散乱、メタ磁性、f電子

1. 目的

これまで我々は非常に小型のパルスマグネットを用いて、強磁場下での放射光 X 線実験の開発を行っている[1]。X 線回折実験についてはすでに、強度の強い、いわゆる構造ピークの観察に成功し、 $Pr_{0.6}Ca_{0.4}MnO_3$ 、 $YbInCu_4$ 、 $CdCr_2O_4$ について磁場誘起の構造相転移の研究を展開した。そして現在は、次のステップとして弱い反射(超格子反射や禁制反射、磁気反射、ATS 散乱)の観測に取り組んでいる。その理由は、これらの反射は結晶の対称性や磁気秩序、四極子秩序といった物性研究上重要な性質に対する直接的な情報を持っているからで、つまるところ格子定数しか情報のない構造ピークに比べて格段に情報量が多いからと言える。その初めとして、我々は TbB_4 の共鳴磁気回折ピークの磁場依存性の測定を試みた。

TbB_4 を含む一連の Rb_4 化合物では、希土類イオンが Shastry-Sutherland 格子を組み、このためスピンならびに多極子間に強いフラストレーションが働き、興味深い物性が現れることが期待されている。 TbB_4 では、c 軸に磁場を印加した際、磁化過程に多段の転移が発見され、これがどのような磁気構造になっているのか、どのような機構で出現しているのかといった点で興味が持たれている[2]。さらに中性子回折で求まったゼロ磁場での磁気構造は c 軸と垂直な面内にスピンが寝ている構造であり[3]、c 軸に磁場を印加すると単純にそれが起き上がってくるだけという予想と実際の磁化過程とは全く相容れない。

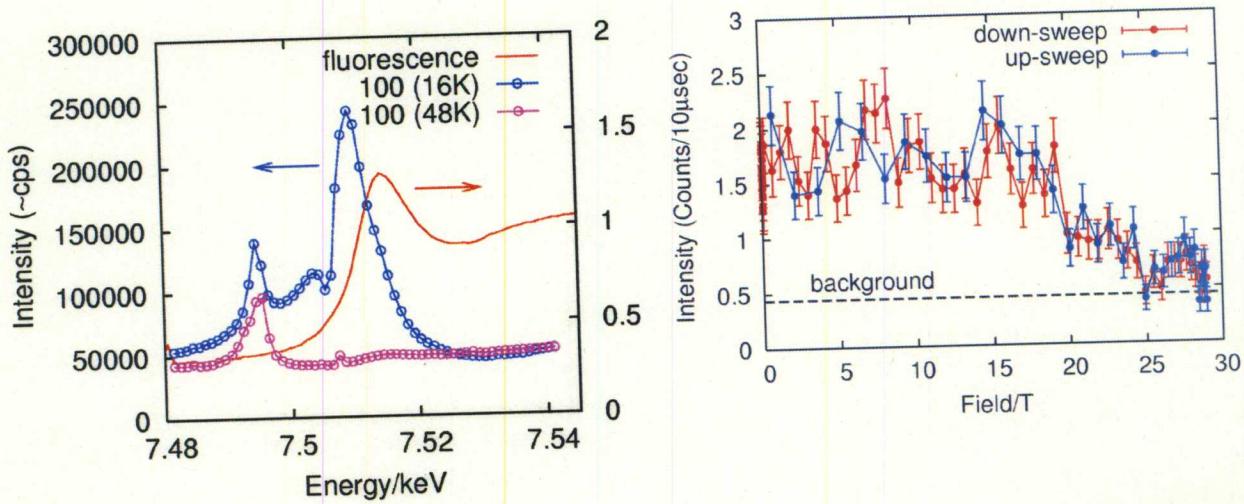
磁気構造の決定は通常中性子回折が用いられるが、X 線も磁気散乱断面積があり磁気回折実験が可能である。特に希土類イオンは回折実験ができる硬 X 線領域の L 吸収端でも共鳴散乱による強度の増大が大きく、これを用いればパルス磁場下という積算時間の短い実験条件化でも磁気回折の測定が可能と考えられる。

2. 方法

実験はビームライン 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、冷凍器としては、液体ヘリウム冷却型のものと GM 冷凍器の 2 種類を使用した。マグネットは試料とともにこれらの冷凍器で冷却される。磁場印加方向は c 軸で、散乱面に垂直である。我々は中性子回折実験[3]で磁気反射が観測される 100 反射の共鳴 X 線回折を測定した。

3. 研究成果

Tb の L_3 吸収端で毎秒 20 万カウントにもなる極めて強い共鳴回折ピークが観測され、30 回の積算で 29T までの磁場変化を測定することができた。磁化が 1/2 プラトーを示す磁場領域では、回折強度にもプラトーを観測することができた。重要な結果として挙げられる事は、まず、17T 以上の多段転移中に (1, 0, 0) 成分があるということである。次にこの (1, 0, 0) 成分の向きである。共鳴磁気散乱振幅は $m \cdot (e_i \times e_f)$ (m : 磁気モーメント、 $e_{i,f}$: 入射、散乱偏光ベクトル) に比例するため、入射偏光が p 偏光で散乱角の小さい今回の実験条件では、ほぼ c 軸に垂直な成分のみを観測する。通常磁化プラトーを示すような磁気構造は、磁場方向成分のみを持った磁気モーメントの上向き・下向きの組み合わせから構築されると考えられるが、 TbB_4 の 1/2 磁化プラトー相では磁場垂直方向成分が多く残っているという結果である。



左図：共鳴磁気回折ピーク（100）と蛍光スペクトル
右図：（100）回折ピーク強度の磁場依存性

4. 結論・考察

磁気構造を決定するためには、本来は多くの磁気回折強度を集めねばならない。今回のような測定ではユニットセルも求まらず、磁気構造解析には現段階では不十分であるが、波数にどういう方向の磁気モーメンットがあるかということが分かれれば、磁気構造の可能性は格段に絞りに入る。今回の結果は、30Tという強磁场下で共鳴X線回折実験ができ、磁気構造の決定も行えるということを示した重要な一步である。

5. 引用(参照)文献等

- [1] 松田、稻見ら、固体物理 40 (2005) 882.
- [2] 山本ら、日本物理学会第61回年次大会講演概要集第3分冊 27pSC-8 (2006).
- [3] T. Matsumura et al., J. Phys. Soc. Jpn, 76 (2007) 015001.