

超音波による正方晶 $\text{DyB}_2\text{C}_2 \cdot \text{HoB}_2\text{C}_2$ の四重極子秩序の研究

新潟大学大学院 自然科学研究科 柳澤 達也¹, 根本 祐一, 後藤 輝孝
 横浜国立大学大学院 工学研究科 綿貫 竜太, 鈴木 和也

正方晶 RB_2C_2 系 ($\text{R} = \text{希土類}$) の結晶構造は LaB_2C_2 型で空間群は $P4/mbm$ (D_{4h}^5) に属する [1]. 希土類イオンのサイトシンメトリーは, 層状をなす B-C 鎖のわずかな歪みから対称性が低下し C_{4h} となる. Dy^{3+} ($J = 15/2$) と Ho^{3+} ($J = 8$) の多重項基底状態は点群 C_{4h} においてそれぞれ Dy^{3+} が $4E_{1/2} \oplus 4E_{3/2}$ に, Ho^{3+} が $5A \oplus 4B \oplus 4E$ に既約分解される. 近年 RB_2C_2 系は反強四重極子 (AFQ) 秩序を示す稀有な正方晶化合物群として注目されてきた. これまでに行われた比熱, 磁化率の実験から DyB_2C_2 は $T_Q = 24.7 \text{ K}$, HoB_2C_2 は $T_{C2} = 5.0 \text{ K}$ で共に反強四重極子 (AFQ) 秩序転移を起こすことが報告されており [2, 3], 共鳴 X 線散乱実験による四重極子秩序の観測も行われている [4, 5]. HoB_2C_2 の $H//[110]$ 方向の磁気相図は反強磁性 (AFM) 秩序相 (III 相) の相境界線と AFQ 相 (II 相) の相境界線が 1.0 T 付近で交差し四重点を持つように見える. また $T_{C1} = 5.9 \text{ K}$ と $T_{C2} = 5.0 \text{ K}$ の間に新たに秩序相 IV 相が存在するなど, AFQ 秩序物質の典型物質 CeB_6 の希釈系 $\text{Ce}_{1-x}\text{La}_x\text{B}_6$ と類似した磁気相図を持ち, その起源について活発な研究が続いている [6]. さらに HoB_2C_2 の IV 相における中性子散乱実験では磁気サテライトピークと散漫散乱が観測されており, 長周期の伝播ベクトルと双極子モーメントの揺らぎを示唆している [7]. IV 相の秩序変数は未だ解明されていない.

本研究では超音波位相比較法を用いて弾性定数の測定を行った. 超音波トランスデューサとして $200\mu\text{m}$ 厚の LiNbO_3 チップ X-cut (横波) および 36°Y-cut (縦波) を用いた. 試料はテトラアーク炉で作成された. 図 1(a) に DyB_2C_2 の横波弾性定数 C_{44} , C_{66} , $(C_{11} - C_{12})/2$ の温度依存性を示す. DyB_2C_2 は全ての横波弾性定数が 100 K 付近から AFQ 秩序点 $T_Q = 24.7 \text{ K}$ に向かってソフト化を示した. 弾性定数のソフト化は結晶場基底状態の軌道縮退を強く反映する. 1 イオンの四重極子 - 歪み相互作用のハミルトニアン $H_{\text{QS}} = \sum_{\Gamma} g_{\Gamma} O_{\Gamma} \epsilon_{\Gamma}$ は結晶場ポテンシャルに摂動として作用する. 図中の実線は四重極子感受率から得られた式 $C_{44} = C_{44}^0 (T - T_C^0) / (T - \Theta)$ による弾性定数 C_{44} の解析結果であり, $T_C^0 = 13.12 \text{ K}$, $\Theta = 12.23 \text{ K}$ が得られた. DyB_2C_2 と HoB_2C_2 共に結晶場パラメータが明らかになっていないので, 我々は群論の選択則から図中右下に示す擬 4 重項結晶場基底状態を仮定した. これは比熱の結果から求められた磁気エントロピーからも妥当なモデルである [2]. クラームス 2 重項 $E_{1/2}$ と $E_{3/2}$ の積空間は $4A \oplus 4B \oplus 4E$ に既約分解される. この 15 の自由度に多重極モーメントを下位のランクから入れると, 八重極子までの全ての多重極モーメントの遷移が許される. しかし同じ対称性に属するクラームス 2 重項同士を組み合わせたモデル (例えば $E_{1/2} \otimes E_{1/2}$) では B 対称性の遷移が存在しない. よって, 第 1 励起状態の励起エネルギーが数 K 程度であればこのモデルにより横波弾性定数のソフト化が理解できる.

図 1(b) に HoB_2C_2 の弾性定数の温度依存性を示す. DyB_2C_2 と同様に全ての横波弾性定数がソフト化を示した. 図中の実線は四重極子応答理論による弾性定数 C_{44} の計算結果であり, $T_C^0 = 2.03 \text{ K}$, $\Theta = 1.04 \text{ K}$ が得られた. 我々は群論的考察から E-doublet と A-また

¹E-mail: tatsuya@phys.sc.niigata-u.ac.jp

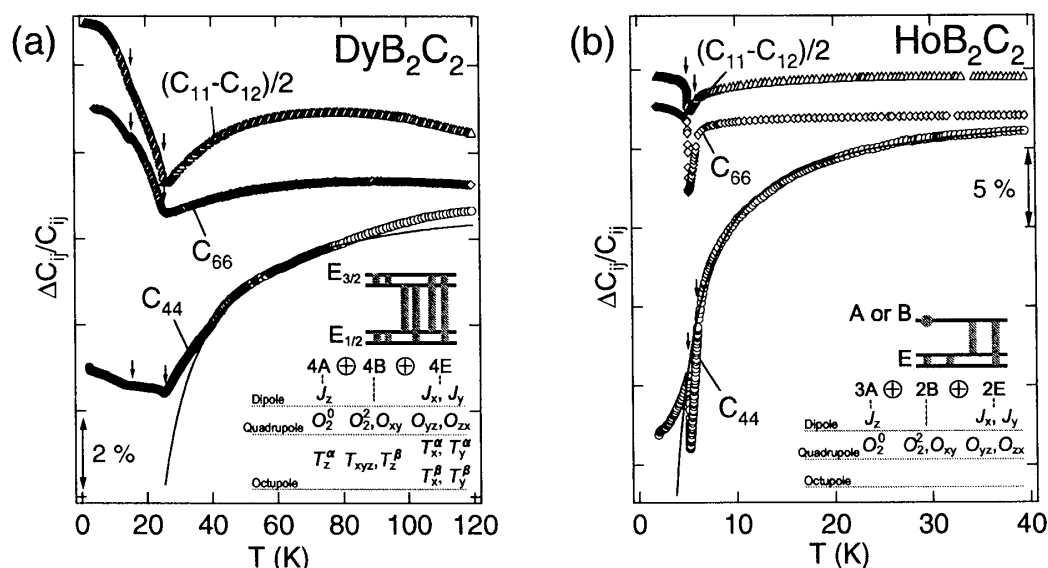


図 1: (a) DyB_2C_2 の横波弾性定数の温度依存性 (b) HoB_2C_2 の横波弾性定数の温度依存性

は B-singlet からなる擬 3 重項基底状態のモデルを仮定し、ソフト化を説明した。擬 3 重項モデルは比熱の結果とも整合する。 DyB_2C_2 と HoB_2C_2 はいずれも弾性定数 C_{44} のソフト化が支配的であることから、 C_{44} に対応した E 対称性の四重極子 O_{yz} , O_{zx} が AFQ 相の秩序変数に強く関与していることを示唆している。また HoB_2C_2 の IV 相においてソフト化の急激な増大が縦波を含めた全ての弾性定数に観測された。同時に超音波吸収を観測し、IV 相の狭い温度領域で弾性定数 C_{44} に対応する超音波吸収係数 α_{44} の急激な増大がみられた (図には示さない)。超音波吸収係数と弾性定数から見積もられた緩和時間は $\tau = 7 \times 10^{-9}$ sec となり、IV 相内においてきわめてゆっくりとした四重極子ゆらぎが存在することを明らかにした。

参考文献

- [1] T. Onimaru, H. Onodera, K. Ohoyama, H. Yamauchi and Y. Yamaguchi, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 2287 (1999).
- [2] H. Yamauchi, H. Onodera, K. Ohoyama, T. Onimaru, M. Kosaka, M. Ohashi and Y. Yamaguchi, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 2057 (1999).
- [3] H. Onodera, H. Yamauchi and Y. Yamaguchi, J. Phys. Soc. Jpn. **68**, 2526 (1999).
- [4] T. Matsumura, N. Oumi, K. Hirota, H. Nakao, Y. Murakami, Y. Wakabayashi, T. Arima, S. Ishihara and Y. Endoh, Phys. Rev. B **65**, 94420 (2002).
- [5] T. Matsumura, N. Oumi, K. Hirota, H. Nakao, Y. Wakabayashi and Y. Murakami, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 91 (2002) Suppl..
- [6] O. Suzuki, T. Goto, S. Nakamura, T. Matsumura and S. Kunii, J. Phys. Soc. Jpn. **67**, 4243 (1998).
- [7] K. Ohoyama, H. Yamauchi, A. Tobo, H. Onodera, H. Kadowaki and Y. Yamaguchi, J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 3401 (2000). **71**, 94 (2002) Suppl.