

軌道間相互作用とスピン間相互作用に発現する新しいタイプのフラストレーション

一般の磁性体では、スピン（磁気モーメント）間に磁氣的相互作用が働き、スピンの整列する磁気相転移を示す。しかし、系に複数の相互作用が存在し、それぞれの安定構造に競合が生じる場合には、どっちつかずの中途半端な状態を取ることが知られている。このような磁性体における『相互作用の競合～フラストレーション』が引き起こす現象に関して現在も盛んに研究が行われている。理想的なフラストレーション系では、最低エネルギーにマクロな数の状態が縮退しており、基底状態として一つの状態を取ることが出来ないが、現実の系では、系が持つ様々な自由度の中でフラストレーションによる縮退を解いて一つの状態を選ぼうとする効果が存在する。しかし、フラストレーションの影響がエネルギーの近い状態間の熱揺らぎとして残るため、秩序過程は逐次相転移を示す。その中で、正方晶や六方晶といった一軸異方性を持つ磁性体において、磁気モーメントの c 軸方向の成分のみが秩序化し、それに直交する ab 面内成分が無秩序状態（図 1(a)）である中間相を示す系が存在する。この中間相を『部分成分秩序状態』と呼ぶ。部分成分秩序状態は、スピンの一軸異方性（Ising 性）だけでは説明できず、異方的な交換相互作用を導入しなければならないが、一般的に異方的交換相互作用は、主たる交換相互作用に比べて極めて小さいために、部分成分秩序を引き起こす起源にはなり得ない。しかし、 CsNiCl_3 などの三角格子反強磁性体では、磁性イオンの幾何学的な配置による交換相互作用の競合により、実効的に異方的な相互作用を実現しており、部分成分秩序状態をとると考えられている。

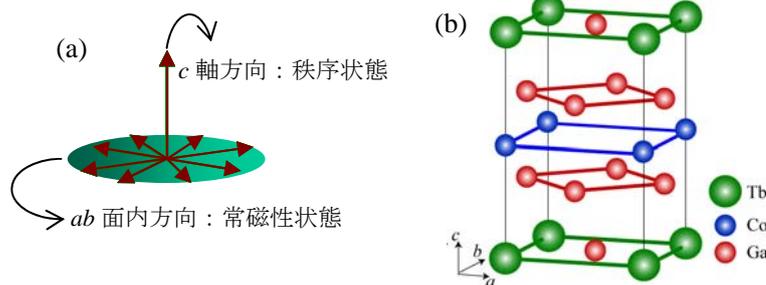


図 1. (a) 部分成分秩序の模式図。(b) TbCoGa_5 の結晶構造

最近、横浜国立大学の眞田直幸・綿貫竜太・鈴木和也氏らのグループは、幾何学的フラストレーションが小さいと考えられる正方晶系の希土類化合物 TbCoGa_5 （図 1(b)）が部分成分磁気秩序に伴う逐次相転移を示す物質であることを発見し、このような特異な逐次磁気相転移の出現には軌道自由度が重要な役割を果たしていることを見出した。この研究は、日本物理学会発行の英文学術誌 *Journal of Physical Society of Japan (JPSJ)* の 2009 年 7 月号に掲載される。

本研究では、 TbCoGa_5 の単結晶を用いた比熱および帯磁率の測定から、低温で 2 段階の磁気逐次相転移が出現すること、またその高温側の転移温度では Tb^{3+} イオンの $4f$ 電子による磁気モーメントの c 軸方向の成分のみが秩序化し、低温側の転移温度で ab 面内方向の成分も秩序化することが示された（図 2(a)）。さらに、弾性定数の測定により（図 2(b)）、2 つの転移温度の間の中間相において磁気秩序が形成されているにもかかわらず $4f$ 電子の軌道（電気四極子）の自由度の縮退が存在することがわかった。つまり、中間 II 相内では、 $4f$ 電子の磁気モーメントの ab 面内成分だけでなく軌道もほぼ完全な無秩序状態であることが明らかにされた。 TbCoGa_5 の結晶構造は単純であるため、 TbCoGa_5 の部分成分磁気秩序の起源は従来型の幾何学的フラストレーションとは異なると考えられ

る。では、何によって実効的な磁気相互作用の異方性が生じるのか？ 弾性定数測定の結果、部分成分秩序状態では軌道自由の縮退が存在することから、磁気相互作用だけでなく四極子（軌道）間相互作用が重要な役割を果たしていると考えられる。各磁気モーメントは磁気相互作用によって磁気秩序を形成しようとする。一方で四極子（軌道）は四極子間相互作用によって四極子秩序を形成しようとする。TbCoGa₅ではTb³⁺イオンの局所的な対称性から磁気モーメントの ab 面内成分と四極子（軌道）の O_{yz} , O_{zx} 成分が各Tb³⁺イオン上で結合しているため、この結合を通して ab 面内の磁気秩序と O_{yz} , O_{zx} 成分の四極子秩序がそれぞれの安定構造を取ろうとせめぎ合い、互いの秩序化を抑制することが起こり得る。TbCoGa₅の部分成分秩序は、このような軌道間相互作用と ab 面内のスピン間相互作用が局所的なスピンと軌道の結合を通して競合する新しいタイプのフラストレーションによって発現するものと考えられる。

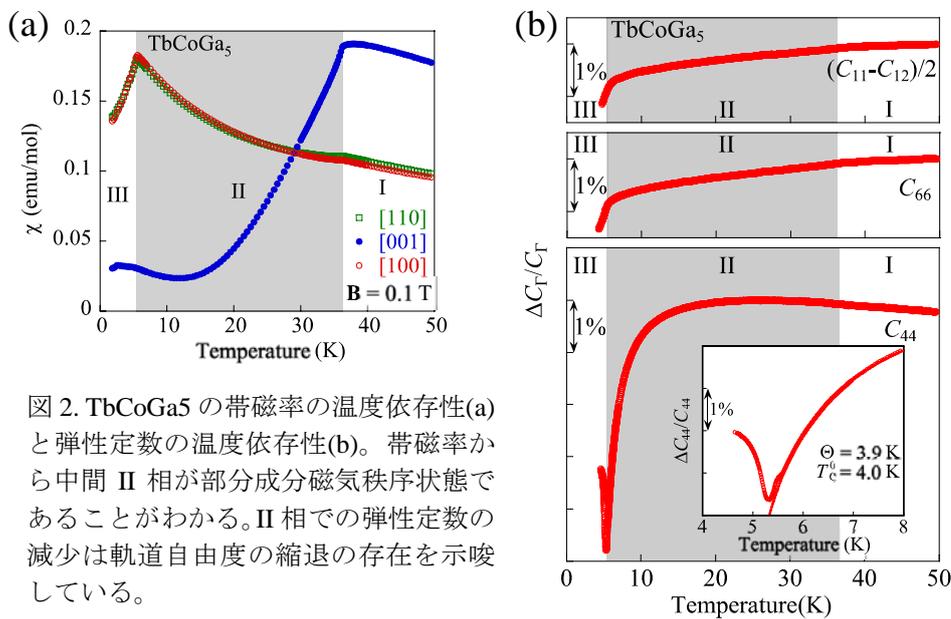


図 2. TbCoGa₅ の帯磁率の温度依存性(a)と弾性定数の温度依存性(b)。帯磁率から中間 II 相が部分成分磁気秩序状態であることがわかる。II 相での弾性定数の減少は軌道自由度の縮退の存在を示唆している。

TbCoGa₅で部分成分磁気秩序が見出されたことより、軌道間相互作用とスピン間相互作用とによって発現する新しいタイプの相互作用競合機構は、結晶場基底状態に軌道縮退をもつ 4f 電子系において普遍的なものである可能性が高いと考えられることから、本研究結果は多くの研究者の注目を集めている。今後、同様の磁性を示す物質を含めた 4f 電子系の系統的な研究により、電気四極子や高次の多極子間相互作用とスピン間相互作用の競合による新しいフラストレーションの概念が発展し、4f 電子系の磁性に関する理解がより一層進展するものと大いに期待される。

論文掲載誌: J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) No. 7, p. 073709

電子版: <http://jpsj.ipap.jp/link?JPSJ/78/073709>

<情報提供: 眞田直幸、綿貫竜太、鈴木和也 (横浜国立大学) >