

# 重い電子系化合物 $Ce_7Ni_3$ の 磁場誘起量子臨界現象

梅尾 和則 (広島大院・先端物質)

## Field-induced Quantum Critical Phenomena of Heavy Fermion Antiferromagnet $Ce_7Ni_3$

K. Umeo (ADSM Hiroshima Univ., Higashi-Hiroshima 739-8530)

The heavy-fermion compound  $Ce_7Ni_3$  with the hexagonal  $Th_7Fe_3$ -type structure undergoes two antiferromagnetic phase transitions at  $T_{N1} = 1.9$  K and  $T_{N2} = 0.7$  K. The magnetic structure is a spin-density-wave (SDW) structure with an incommensurate modulation vector of  $0.22c^*$ . By applying the magnetic field along the  $c$  axis, magnetic easy axis,  $T_{N1}$  and  $T_{N2}$  vanished above 0.3 T. For  $B//c > 0.6$  T, another magnetic phase appeared below 0.5 K. The field-induced magnetic phase resembles that for some geometrically frustrated magnets such as  $Gd_3Ga_5O_{12}$ . The separation of the field-induced magnetic phase from the SDW phase may be attributed to large spin fluctuations originated from a geometrical frustration in a quasi-regular tetrahedron of Ce1 and Ce3.

### 1. はじめに

結晶学的に異なるセリウムサイトをもつ化合物は、それらのサイト間相互作用のフラストレーションや近藤効果と RKKY 相互作用との競合によって特異な磁性の出現が期待される。それらの相互作用の競合状態は圧力や磁場などの外場に非常に敏感である。例えば、磁気秩序をもつ Ce 化合物に圧力を加えると近藤効果が支配的になるために、その基底状態は量子相転移点を経て、長距離磁気秩序をもたない非磁性状態に容易に移り変わる。近年、その磁気臨界点近傍で、非フェルミ液体的挙動や圧力誘起超伝導が発見され、盛んに研究されている[1]。しかし、そのような磁気量子臨界点近傍の異常物性とフラストレーションとの関わりについて系統的な研究はまだない。我々はこれまで、結晶学的に異なる Ce サイトを 3 つもつ重い電子系反強磁性体  $Ce_7Ni_3$  の圧力・磁場誘起磁気臨界点近傍での物性研究を行ってきた[2]。 $Ce_7Ni_3$  の磁気秩序はわずかに  $P_c = 0.4$  GPa の圧力下で消失し、 $P_c$  近傍では比熱や帯磁率にいわゆる非フェルミ液体的な挙動が出現する[2]。最近、この物質において異常な磁場誘起磁気秩序相を見出した。ここでは、 $Ce_7Ni_3$  の磁場下での物性を紹介し、それらと幾何学的フラストレーションとの関連性について考察する。

### 2. 結晶構造

六方晶  $Th_7Fe_3$  型構造 (空間群  $P6_3mc$ ) をとる  $Ce_7Ni_3$  は図 1 (a) に示すように結晶学的に異なる 3 つの Ce サイト (Ce1, Ce2, Ce3) を持つ[3]。Ce1 と Ce3 は図 1 (a) に示すように  $c$  軸方向に頂点と底面を交互に共有した四面体を形成する。その四面体の最も長い辺と短い辺の差は 4 % 程度である。また、Ce1 は図 1 (b) に示すような辺を共有する三角格子を形成しており、その正三角形からのずれ

は3%程度である。したがって、それらの幾何学的なフラストレーションによる特異な物性が期待される。例えば、 $Ce_7Ni_3$  よりもそれらが正四面体や正三角形に近い  $Ce_7Ru_3$  では、0.8K でスピングラス的な磁気転移を示す[4]。

### 3. 零磁場下の物性

$Ce_7Ni_3$  は  $T_{N1}=1.9K$  と  $T_{N2}=0.7K$  で2段の反強磁性転移を示す[2, 5]。1.4K での磁気構造は  $k_{IC} = 0.22c^*$  の変調ベクトルを持つ非整合なスピン密度波(SDW)構造で、3つのCeサイトの磁気モーメントはそれぞれ  $0.46 \pm 0.07 \mu_B$  (Ce1)、 $0.70 \pm 0.03 \mu_B$  (Ce2)、 $0.10 \pm 0.05 \mu_B$  (Ce3)である[6]。電気抵抗は図2に示すように  $T_{N2}$  以下の0.02Kにおいても  $90 \mu\Omega\text{cm}$  以上の大きな値を示す。次節で示すように、c軸方向に磁場を印加すると磁気抵抗が大きな負の値を示すことから、大きな残留抵抗はスピン揺らぎに起因すると考えられる。内挿図に示すように、電気抵抗の4K付近のヒステリシスは4.3Kでc軸方向の熱膨張が不連続な跳びを示すことから、c軸方向の格子変調を示唆する。また、中性子回折実験における磁気構造の群論的考察から、低温での結晶構造の対称性は  $P6_3mc$  より低下していることが示唆されている[6]。したがって、4K付近でそのような対称性の低下が起こっていると推論できる。このような対称性の低下はスピン・ヤーン・テラー効果によるフラストレーションの解消として理解されている正方晶ラーベス相化合物  $YMn_2$  の構造変化[7]と類似性がある。しかし、 $Ce_7Ni_3$  ではその構造変化と磁気秩序が異なる温度で起こっている点が特異である。

### 4. 磁場誘起磁気秩序

図3に磁化容易軸のc軸方向に一定の磁場を印加した時の電気抵抗、比熱C、磁化Mの温度変化を示す。比熱は見やすいように  $0.12 \text{ J/K}^2\text{molCe}$  ずつずらして示している。磁化はキャパシタンス法を用いて測定した。零磁場下で見られた  $T_{N1}$  と  $T_{N2}$  における  $\chi(T)$  と  $C/T$  の異常はメタ磁性転移に起因して0.3 T以上で消失する。さらに磁場を1 T以上に増すと、 $C/T$  に2次転移を思わせるピークが出現する。

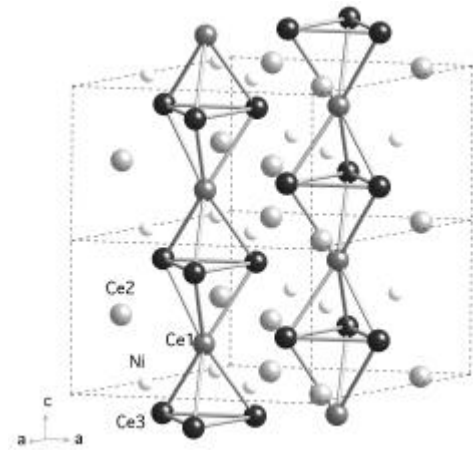


図1(a)  $Ce_7Ni_3$  の結晶構造

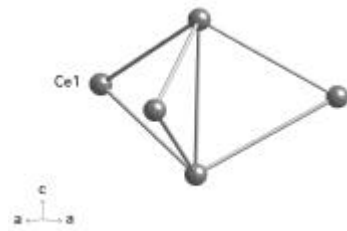


図1(b) Ce1 サイトの配置

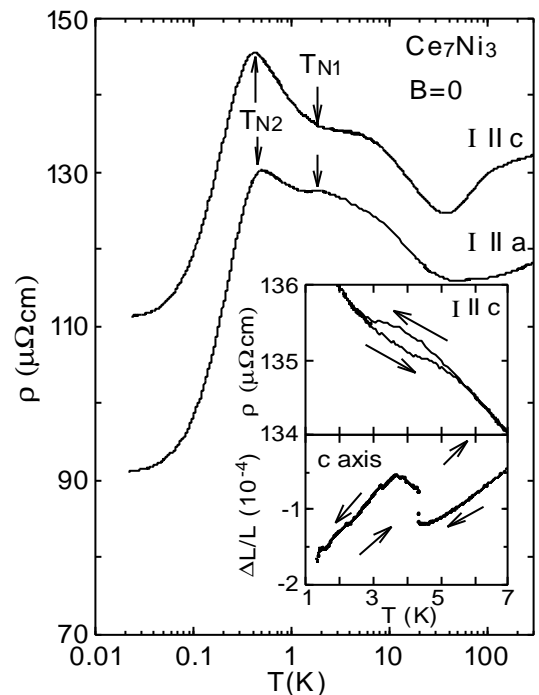


図2  $Ce_7Ni_3$  の電気抵抗の温度変化。内挿図はc軸抵抗の4K付近の拡大図とc軸方向の熱膨張。

も  $C/T$  に異常が現れた温度付近から急激に減少している。そのような相転移の兆候は 2 T と 8 T における  $M(T)$  のわずかな折れ曲がりとしても現れている。4 T, 6 T で  $M(T)$  に異常が見られないのは、後に示すように磁場-温度相図の相境界が磁場軸にほぼ平行だからである。しかし、その相転移の兆候は図 3 (d) に示すようにキャパシタンスの温度変化の折れ曲がりとして現れている。この折れ曲がりには磁気異方性の変化によるトルク効果を強く示唆する。

図 4 には一定温度における磁気抵抗の磁場依存性を示す。0.2 T 付近での異常はメタ磁性転移に起因する。さらに磁場を増していくと、0.4 K 以下では 0.6~1 T 以上で横磁気、縦磁気抵抗共に急激に減少する。また、4~6 T で横磁気抵抗は山を持ち、縦磁気抵抗は急減する。これらの異常を示す点を図 5 の磁場-温度相図に示す。

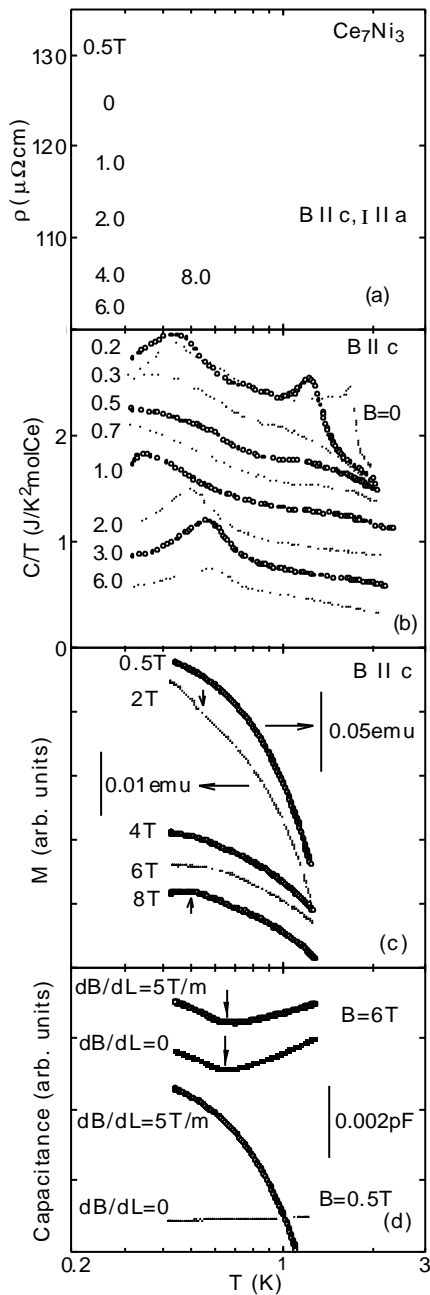


図 3 c 軸方向に一定磁場を印加した時の電気抵抗、比熱、磁化の温度変化。

この磁気相図からわかるように、磁場誘起磁気秩序相は低磁場の SDW 相とは隣接していない。このことから新しい相は通常の反強磁性体のスピントロップ相ではないと判断される。一方、このような磁場誘起磁気秩序相は幾何学的フラストレーションをもつ  $Gd_3Ga_5O_{12}$  などで見出されているが[8]、 $Ce_7Ni_3$  の場合はその相境界での比熱や磁化の変化が非常に小さいことが特徴である。例えば図 3 (b) の比熱から見積った転移温度でのエントロピーは  $R \ln 2$  の 10% 程度しかないし、0.45 K での磁化曲線にも明確な変化が観測されない。さらに、最近の  $\mu$  SR の実験でもその相境界で異常

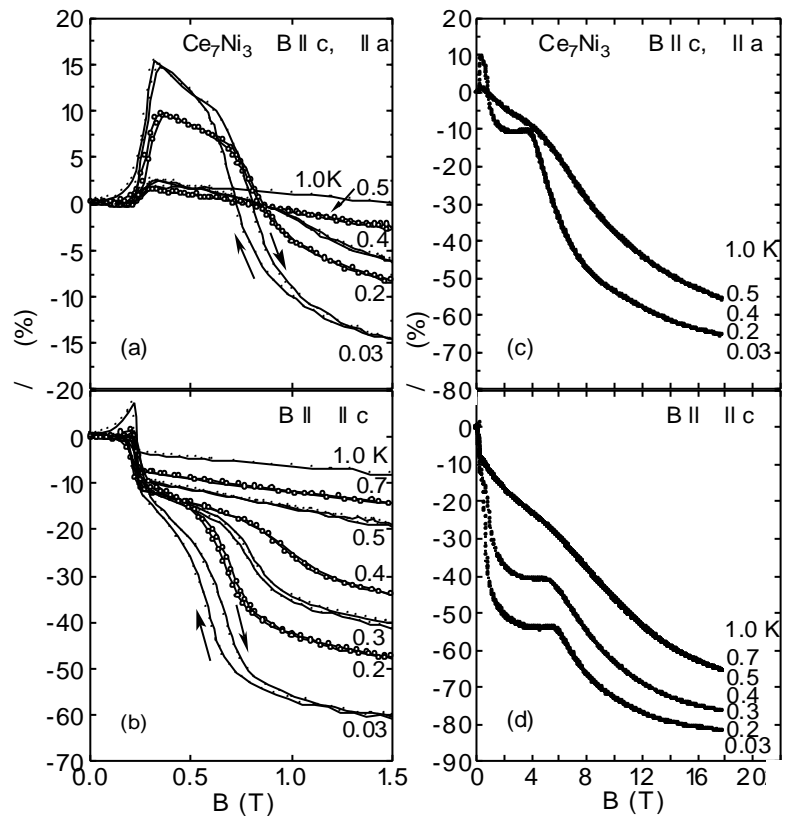


図 4 磁化容易軸方向の c 軸方向に磁場を印加した時の磁気抵抗。

は見られていない[9]。これらのことを考えると、その磁場誘起磁気秩序相では磁気モーメントの最も小さな Ce3 サイトのスピンの秩序に寄与していると予想される。2つの相が隣接しないのは、フラストレーションと近藤効果によるこの強いスピン揺らぎによって、磁場中で Ce サイトのスピンの秩序が阻害されているためと考えられる。磁場誘起磁気秩序相内の 4~6T に見られる別の相境界の起源は現段階では不明であり、今後の課題である。

## 5. おわりに

図5の磁気相図からわかるように、0.3Tと0.6Tに磁場誘起の量子相転移点が0.3Tと0.6Tに存在する。その磁場付近ではC/Tの値が $-\ln T$ に比例して増大している。さらに低温で比熱や磁化率がどのような臨界現象を示すのか、また、それらの温度変化に磁氣的フラストレーションがどのように関与しているかといった問題が重要な課題である。そのためにさらに低温での比熱や磁化の測定を計画している。また、その臨界現象とスピン揺らぎの関係や磁場誘起磁気秩序相の磁気構造を明らかにするため、極低温下、磁場中の中性子散乱実験も進行中である。

結晶学的に異なる Ce サイトをもつ化合物は数多く存在するので、 $Ce_7Ni_3$  で見られたような特異な磁気秩序など興味深い磁性の出現が期待される。理論的解釈は容易ではないが、そのような物質系の研究から新しい物理的な概念が出現するかもしれない。今後、多数の方がこの分野に興味を持っていただけることを期待する。

最後に、本研究は広島大学大学院先端物質科学研究科の越前勇次氏、高畠敏郎両氏、東大物性研榊原研究室、物質・材料研究機構の寺嶋太一、寺倉千恵子両氏、ドイツ・カールスルーエ大学の Prof. Löhneysen のグループとの共同研究である。また、磁場下での測定の多くは広島大学低温センターで行った。本研究の一部は文部科学省の科学研究費補助金（奨励研究(A)、COEプロジェクト；13CE2002）の援助を受けて行った。

## 【参考文献】

- [1] for example F. Steglich, J. Magn. Magn. Mater., 226-230 (2001) 1.
- [2] K. Umeo, H. Kadomatsu, and T. Takabatake, J. Phys.:Condens. Matter **8** (1996) 9743. K. Umeo et al., Phys. Rev. B **58** (1998) 12095.
- [3] R. B. Roof, Jr., A. C. Larson, and D. T. Cromer, Acta Cryst. **14** (1961) 1081.
- [4] O. Trovarelli, J. G. Sereni, and J. P. Kappler, J. Low Temp. Phys., **108** (1997) 53.
- [5] K. Umeo et al., J. Phys. Soc. Jpn., **66** (1997) 2133.
- [6] H. Kadowaki et al., J. Phys. Soc. Jpn., **69** (2000) 2269.
- [7] Y. Tagawa et al., J. Phys. Soc. Jpn., **54** (1985) 591.
- [8] P. Schiffer et al., Phys. Rev. Lett., **73** (1994) 2500.
- [9] A. Schenck, private communication.

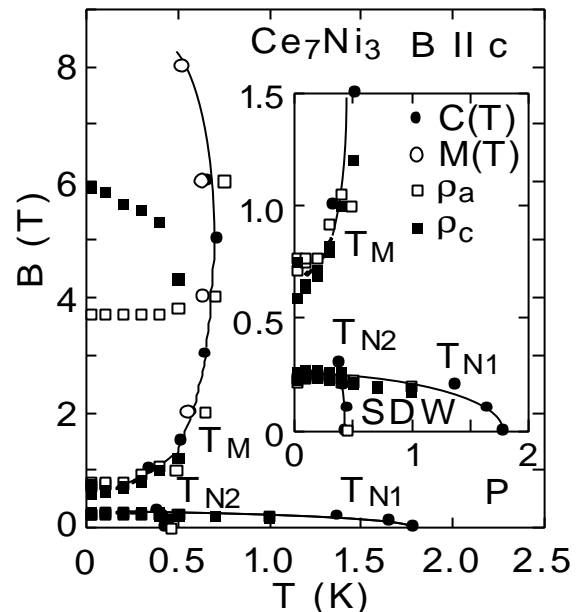


図5 磁気相図