

# NMR による単結晶 SrAl<sub>4</sub> の相転移に伴う電子状態の研究

琉大理工 黒島裕子、比嘉野乃花、通事樹  
琉大理<sup>A</sup> 與儀護、二木治雄、辺土正人、仲間隆男、大貫惇睦  
東北大金研<sup>B</sup> 仲村愛  
神戸大理<sup>C</sup> 播磨尚朝

**NMR study of the electronic state associated with the phase transition in single crystal SrAl<sub>4</sub>**

*Grad. Sch. of Eng. and Sci., Univ. of the Ryukyus,*

<sup>A</sup>*Fac. of Sci., Univ. of the Ryukyus,* <sup>B</sup>*IMR, Tohoku Univ.,* <sup>C</sup>*Kobe Univ.*

**H. Kuroshima, N. Higa, T. Toji, M Yogi<sup>A</sup>, H. Niki<sup>A, B</sup>, A. Nakamura<sup>B</sup>,**

**M. Hedo<sup>A</sup>, T. Nakama<sup>A</sup>, Y. Ōnuki<sup>A</sup>, H. Harima<sup>C</sup>**

SrAl<sub>4</sub> は、図 1 のような体心正方晶の BaAl<sub>4</sub> 型 (空間群 *I4/mmm*) の結晶構造をとり、Al は結晶学的に異なる 2 つのサイトに存在する。SrAl<sub>4</sub> は、電気抵抗と磁化率の測定から  $T_{CDW} = 243$  K 付近で電荷密度波(CDW)転移、 $T = 100$  K 以下でヒステリシスを伴う構造相転移をすることが報告されている [1]。しかし、相転移に伴う電子状態の詳細については明らかにされていない。

これまで我々は、単結晶試料を粉末化した試料を用いて <sup>27</sup>Al NMR ( $I = 5/2$ ) を行ってきた [2]。結晶構造の対称性から、電場勾配の主軸  $V_{zz}$  は  $c$  軸方向となる。図 2(a) に示すように、 $T = 300$  K では 10 本の鋭いピークを持つ粉末パターンが観測され、核四重極周波数  $\nu_Q$  はそれぞれ、 $\nu_{QI}$  ( $\nu_{QII}$ ) = 924 (426) kHz と求めた。この結果と理論計算から得られた値  $\nu_{QII}$  ( $\nu_{QIII}$ ) = 925.9 (421.1) kHz を比較することにより Al サイトを同定した。しかし  $T = 4.2$  K では、CDW 転移と構造相転移を経るため、図 2(b) に示すような複雑なスペクトル形状を示し、2 つの転移によって生じた電子状態の解明に至らなかった。そのため、我々は Al 自己フラックス法で育成した極めて純良な単結晶を用いて <sup>27</sup>Al NMR 測定を行い、この 2 つの転移による電子状態の解明を微視的見地から調べた。測定は約 6.5 T の外部磁場  $H_0$  を  $ab$  面と  $c$  軸にそれぞれ平行にかけ、温度範囲  $T = 4.2 \sim 300$  K で行った。

$H_0 // ab$ 、 $T = 300$  K における NMR スペクトルを図 3(a) に示す。2 つの Al サイトに対応し 10 本の共鳴線が観測された。解析の結果、核四重極周波数  $\nu_Q$  はそれぞれ、 $\nu_{QI}$  ( $\nu_{QII}$ ) = 925 (427) kHz と求められた。この結果は粉末試料の結果とよく一致している。 $H_0 // c$  では、磁場方向と電場勾配の主軸 ( $V_{zz} // c$ ) が一致するため、 $H_0 // ab$  と比べ共鳴線間隔が約 2 倍に広がったスペクトルが観測された (図 3(b))。  $T = 4.2$  K における NMR スペクトルでは、 $H_0 // ab$  と  $H_0 // c$  の両方で粉末試料の結果と同様に複数のピークをもつスペクトルが観測された。このことは、2 つの転移を経ることにより、複数の電場勾配を有する Al サイトが低温において存在していることを示唆している。

2 つの転移を経た低温での電子状態を調べるために、Al(I)の右の第一サテライトと Al(II)の右の第二サテライトのスペクトルの温度変化を測定した。図 4(a) に  $H_0 // ab$  でのスペクトルの温度変化を示す。300 K では 1 本の鋭い共鳴線を示すが、240 K 以下で線幅が広がり

分裂し始めた。複数のピークを持つスペクトル形状から、incommensurate CDW(IC-CDW) と commensurate CDW(C-CDW)が共存する電子状態が実現していると考えられる。また、 $T = 240$  K 付近の CDW 転移は二次転移であることがスペクトルの温度変化から確認された。100 K 以下では、スペクトルの中心部分のみが残る形状へと変化していった。このことから、構造相転移に伴い、両方の CDW が共存した状態から IC-CDW が消失し、C-CDW のみの状態に転移していると考えられる。また、スペクトルの温度変化から、この転移は一次転移であることが確認された。図 4(b)に示す様に  $H_0 // c$  においても CDW 転移に伴うスペクトルの分裂は見られたが、 $H_0 // ab$  と比べてその変化はあまり顕著ではないことがわかった。以上のことより、CDW に伴うスペクトルの変化は、 $ab$  面の電場勾配が効いていると考えられる。

[1] A.Nakamura *et al.*, Journal of Alloys and Compounds 654 (2016) 290-299

[2] H.Niki *et al.*, ICM 2015 to be published

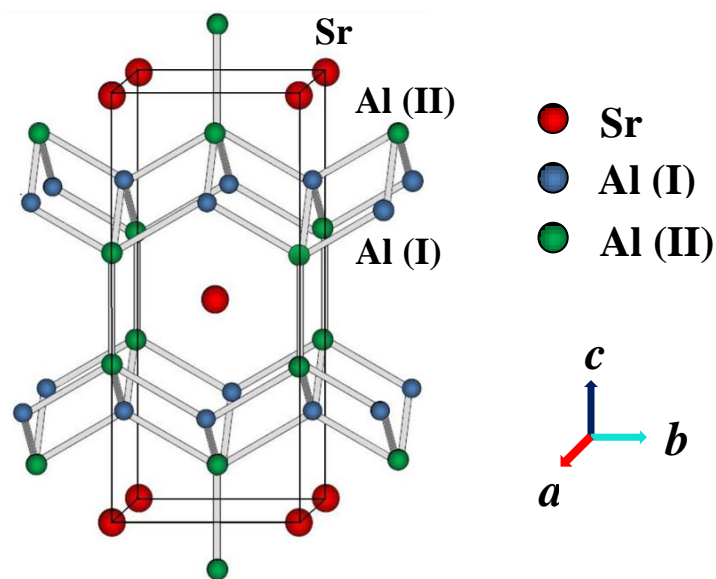


図 1 : SrAl<sub>4</sub> の結晶構造

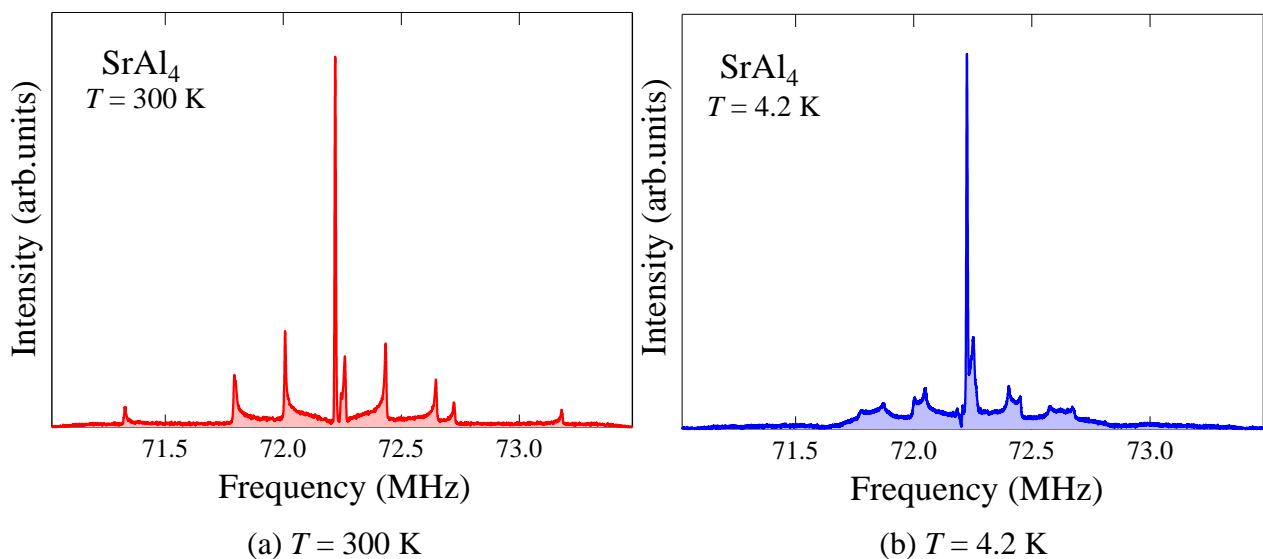


図 2 : 粉末試料による <sup>27</sup>Al NMR スペクトル

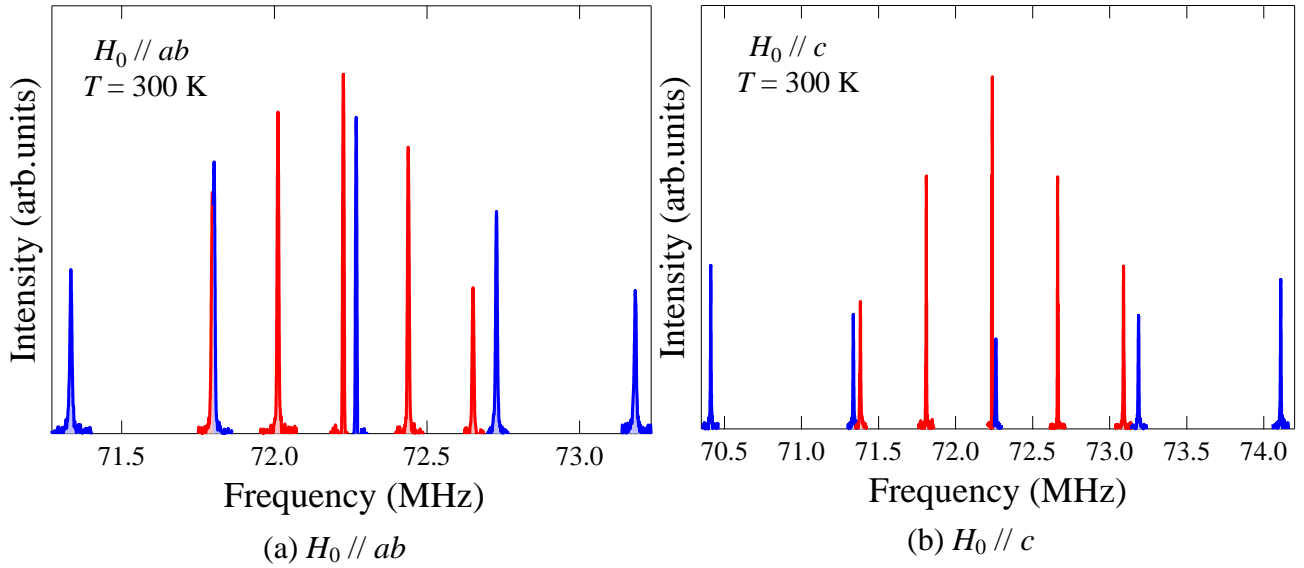


図 3 : 300 K における NMR スペクトル

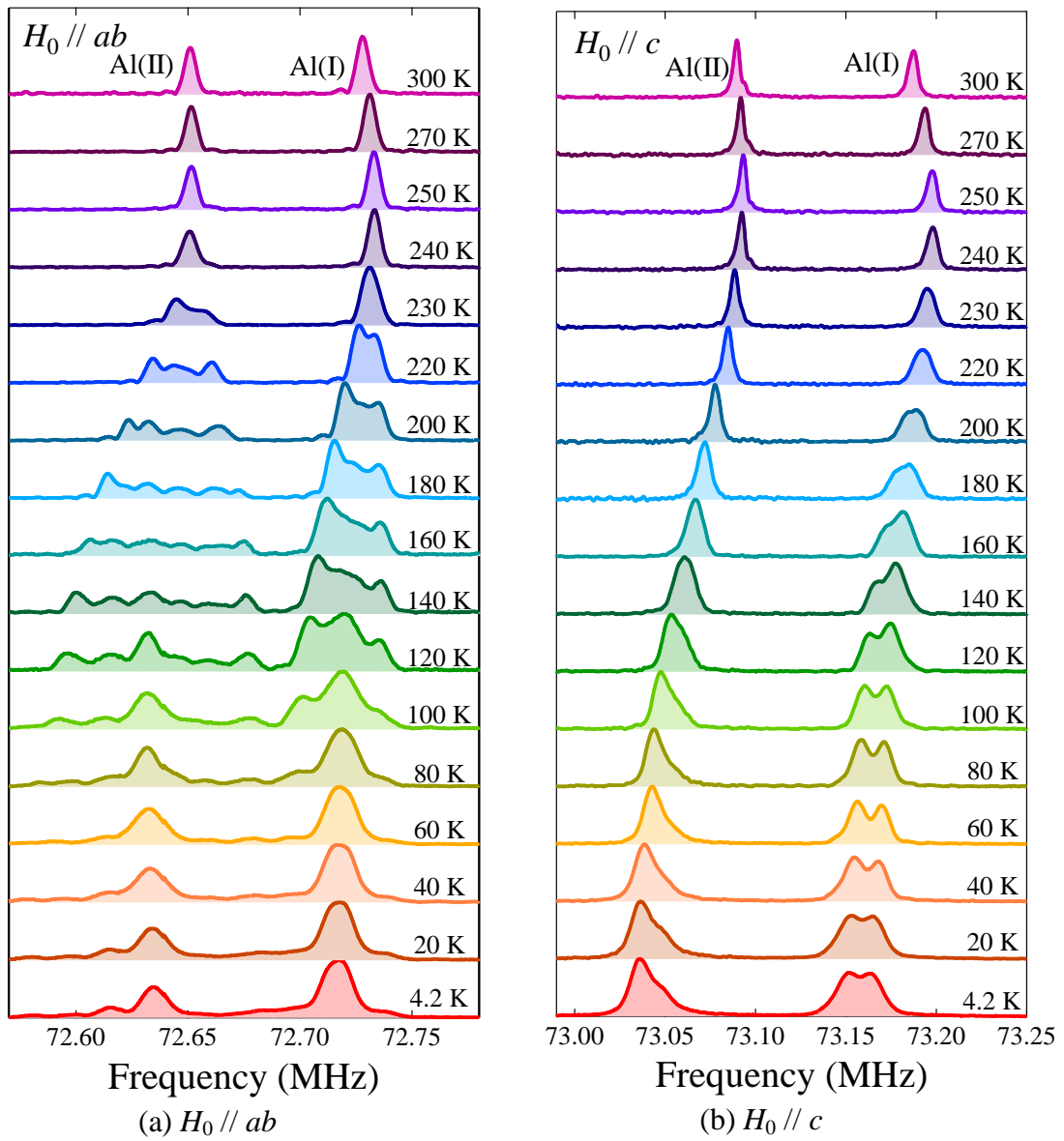


図 4 : サテライトスペクトルの温度依存性