

PrPd₃の磁気相図の研究Study on Magnetic Phase diagram of PdP₃鈴木 博之¹⁾ 寺田 典樹¹⁾ 目時 直人²⁾ 金子 耕士²⁾

Hiroyuki SUZUKI Noriki TERADA Naoto METOKI Koji KANEKO

¹⁾物材機構 ²⁾原子力機構

立方晶 PrPd₃ は、複雑な磁気相図を示し、その特長的な振る舞いから多極子の効果が期待される。本研究では、まずは結晶場基底状態を明らかにし、磁気秩序状態を示す低温における f 電子の自由度を特定し、加えて、単結晶を用いた磁気散乱実験によって磁気構造を明らかにすることを目的とした。結晶場基底状態は Γ_5 で、第 1 励起状態まで 160 K 程度離れていることがわかり、磁気秩序には、磁気双極子の他、電気四極子の自由度が関与していると考えられる。また、粉末実験では共存していた incommensurate な磁気秩序相と commensurate な相は、単結晶では 1 次転移で移り変わることが確認できた。

キーワード： 多極子

1. 目的

PrPd₃ は、最近の Zhang[1]らの多結晶の比熱の結果と我々の単結晶を用いた結果から、1K 以下での異常な磁気相図を示すことがわかってきた。ゼロ磁場において 0.88 K (T_1)および 0.77 K (T_2)に 2 つのピークを持ち、その温度は磁場を印加するに従い、 T_2 は磁場により減少するが、 T_1 は高磁場側で一度上昇する振る舞いを示す。このような複雑な振る舞いを示す起因として結晶場基底状態における多極子の影響が考えられるが、PrPd₃ の結晶場に関しては、過去の実験では 2 つのモデルが提唱されている。Furrer らによる中性非弾性散乱の結果[2]からは、結晶場は Γ_5 を基底として他の励起状態はほぼ 150K に縮退している状態が提案されているが、低温比熱からは Γ_5 基底状態に約 4K 付近に Γ_3 の第 1 励起状態がある結晶場モデル[3]が提唱されていた。上述した複雑な磁気相図の起源を考える場合、前者のモデルでは基底状態のみ考慮すればよいが、後者のモデルでは第 1 励起状態の自由度が関与する可能性も考慮する必要がある。Furrer らの中性非弾性散乱の実験では低エネルギー励起に関しては詳細な実験はされていない。

一方、磁気転移に関する情報については、最近我々が行った粉末試料を用いた中性子予備実験では、1K 以下で図 2 に示すように超格子(磁気)反射が観測された。比熱の T_1 のピークに対応する温度では、図 2 中で*印で示す超格子反射が生じ、その後、 T_2 のピークに対応する温度では、 T_1 で観測されたピークに加えて伝搬ベクトルが $(1/2, 1/2, 0)$ で示される超格子反射が観測されている。

比熱で観測された相転移のピークの特徴的な磁場依存性は、CeB6 等で観測されている多極子の効果を示唆しており、また、それぞれのピークで生じる超格子反射の温度依存性には相関が見られず、PrPd₃ における複雑な磁気相図を示す起源については未だ理解されていない。

本研究の目的は、PrPd₃ における異常な磁気相図の起源を明らかにすることである。

そのために、過去の中性子実験と比熱の実験結果において提唱されている結晶場の 2 つのモデルに対して決着をつけ結晶場の基底状態を確定することと、磁場中磁気弾性散乱により、それぞれの相における磁気構造を明らかにする。現在までの予想では Γ_5 基底状態が予測されている。また特徴的な磁気相図は、多極子の効果を示唆している。本研究により、この基底状態について明らかにするとともに、磁場中での磁気構造等を明らかにすることにより、 Γ_5 結晶場状態が有する多極子の効果を明らかにすることができると考えられる。

2. 方法

実験は、結晶場励起の観測と、磁気構造の決定の 2 つに分けられる。

結晶場励起には多結晶粉末を用いて、TAS2 での第 1 励起状態以上が集中していると考えられる 15meV の励起の構造と温度依存性を、そして過去の比熱の実験から提唱されている 4K 付近の結晶場励起の存在の有無を確認するために

LTAS を用いた実験を行う。

磁気構造の決定に関しては、以前の粉末試料を用いた予備実験で観測された、超格子散乱の伝搬ベクトルを参考に、単結晶を用いた実験を行う。最初は、 ^3He 冷凍機を用いてゼロ磁場の実験を行いゼロ磁場での磁気構造を決定する。

3. 研究成果

非弾性散乱の実験では、15meV の結晶場励起以外観測されなかった。特に、1meV 付近の詳細な実験でも、異常は観測されず、第 1 励起状態まで 160 K 程度離れた Γ_5 基底状態であることがわかった。

単結晶を用いた零磁場での中性子散乱実験では、比熱等に見られる 1 次転移の温度で非整数に近い伝搬ベクトルを持つ磁気構造から $q = (1/2 \ 1/2 \ 0)$ の commensurate な磁気構造への一次転移が確認された。また、 Q_1 のピーク強度の温度依存性が、 T_2 で変化していることがわかった。

4. 結論・考察

以前の粉末の実験では、伝搬ベクトルが違う 2 つの相が共存している振る舞いが観測されたが、単結晶では、結晶場基底状態は、非整数に近い伝搬ベクトルを持つ磁気構造から $q = (1/2 \ 1/2 \ 0)$ の commensurate な磁気構造への一次転移が確認された。1K 以下の実験であるために、粉末実験ではサンプル内の熱伝導が原因と考えられる。また、結晶場は、第 1 励起状態まで 160K 離れており、基底状態の Γ_5 がよく孤立していることがわかった。これから、1K 以下の低温の複雑な磁気相図は、磁気八極子の影響は無く、磁気双極子の他、電気四極子の自由度のみが関与していると考えられる。

5. 引用(参照)文献等

- [1] S. Zhang, *et al.*, *Journal of Physics: Conference Series*, 15 (2009) 042074.
- [2] A. Furrer *et al.*, *J. Phys. C: Solid State Phys.* 9 (1976) 1491.
- [3] J.M. Machado da Silva, *Solid State Communications*, 28 (1978) 857.