

希土類カゴ状化合物 Pr₃Pd₂₀Ge₆ の四極子秩序とラットリング

Quadrupole Ordering and Rattling of Rare-Earth Clathrate Compounds Pr₃Pd₂₀Ge₆

北澤 英明¹⁾ 鈴木 博之¹⁾ 寺田 典樹¹⁾ 土屋 佳則¹⁾ 河村 幸彦¹⁾

Hideaki KITAZAWA Hiroyuki SUZUKI Noriki TERADA Yoshinori TSUCHIYA Yukihiro KAWAMURA

吉川 明子¹⁾ デニ アンドレアス¹⁾ 阿野 元貴²⁾ 赤津 光洋²⁾

Akiko KIKKAWA Andreas DÖNNI Genki ANO Mitsuhiro AKATSU

根本 祐一²⁾ 後藤 輝孝²⁾ 目時 直人³⁾

Yuichi NEMOTO Terutaka GOTO Noato METOKI

¹⁾物質・材料研究機構 ²⁾新潟大学院自然 ³⁾日本原子力研究開発機構

(概要)

カゴ状化合物 Pr₃Pd₂₀Si₆ の極低温における相転移の起源を調べるために、MUSASI-L を用いた中性子回折実験を行った。弱いながらも新しいピークが観測されたが、最低温度の波数の決定までには至らなかった。また、指数によって磁場変化が大きく異なることが判明した。

キーワード : カゴ状希土類化合物、Pr₃Pd₂₀Ge₆、四極子秩序、ラットリング、結晶場、中性子回折

1. 目的

希土類カゴ状化合物 Pr₃Pd₂₀Ge₆ は四極子秩序とラットリングを示す典型物質である¹⁾。この化合物は Pr³⁺ の2種類のサイトがあり、8c サイトは単純立方格子を形成し、4a サイトは面心立方格子を形成している (図1参照)。これまで、新潟大学後藤グループの超音波計測によって、8c サイトで反強四極子秩序 (T₀ = 260 mK) が、4a サイトで何らかの秩序 (強四極子秩序?、T_c = 63 mK) が発達している事という報告がなされた (表1参照)。さらに、同じ結晶構造をとる Pr₃Pd₂₀Si₆ についても、8c サイトで反強四極子秩序 (T₀ = 150 mK) を起こすことが示された (図2参照)²⁾。しかし、4a サイトでは 100mK での帯磁率の折れ曲がりに加え、100 mK の弾性異常は 0.25 T で消失するため、Pr₃Pd₂₀Ge₆ とは異なり、反強磁性秩序の可能性が指摘されている。そこで、T₀ および T_c における秩序化に伴う超格子散乱ピークの有無を調べるために Pr₃Pd₂₀Si₆ 多結晶バルク試料及び単結晶試料を用いた中性子回折実験を行った。

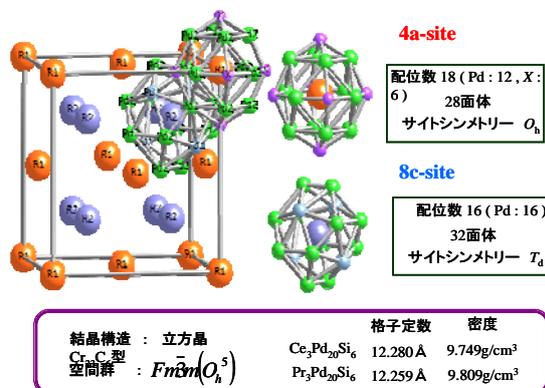


図1. 立方晶系 R₃Pd₂₀X₆ (R=希土類元素; X=Ge, Si) の結晶構造

2. 方法

2軸回折計 MUSASI-L を用いて Pr₃Pd₂₀Si₆ 多結晶バルク試料及び単結晶試料の中性子回折実験を行った。Pr₃Pd₂₀Si₆ 多結晶バルク試料はアーク溶解後、7日間真空中で熱処理したロッドを希釈冷凍機の本チャンバーから延びた銅ホルダーに機械的に密着させた。一方、Pr₃Pd₂₀Si₆ 単結晶試料は赤外線加熱炉を用いた FZ 法により育成され、散乱面が (110) 面になるようにセットされた。さらに磁場を最大 5T まで [110] 方向に平行に印加した。温度は 20mK ~ 440mK まで変化した。中性子ビームは PG002 で単色化され、波長は 2.45116 Å である。Pr₃Pd₂₀Si₆ の結晶構造の特異性から、8c サイトは全て偶数の指数を持つ回折ピークが、4a サイトは全て偶数か、全て奇数

の指数をもつ回折ピークが期待される。つまり、回折ピークの偶・奇によっては4aサイト、8cサイトの情報を取り出すことが可能となる。

3. 研究成果

図3に Pr₃Pd₂₀Si₆ 多結晶試料の磁場ゼロ、温度 300mK と 20mK における回折パターンを示す。20mK で矢印に示す 34.4° の位置に弱いピークが発達していることがわかった。低温で何らかの秩序が発達していると考えられる。しかしながらピーク強度が弱すぎるため、以降は単結晶に切り替えて再測定した。Pr₃Pd₂₀Si₆ 単結晶試料の(110)面内の幾つかのピークの周りをスキャンしたが、何れも新しいピークの観測には至らなかった。さらにもっときめ細かなスキャンが必要である。また、代表的なブラッグピークの磁場変化を計測したところ、全て奇数の指数に対しては、積分強度に飽和傾向が観測された(図4参照)。一方、全て偶数の指数に関しては、直線的に増加するか、または磁場変化が小さかった。それぞれのサイトの磁化の磁場変化を反映していると考えられる。

		R ₃ Pd ₂₀ Ge ₆		R ₃ Pd ₂₀ Si ₆	
R	Site	Ground state	Ordered phase	Ground state	Ordered phase
Ce	4a	Γ ₈	AFM (T _N = 0.75 K)	Γ ₇	The Kondo singlet state?
	8c	Γ ₈	FQ (T _Q = 1.3 K)	Γ ₈	AFQ
Pr	4a	Γ ₅	FQ? (T _Q = 63 mK)	Γ ₃	AFM (T _N = 100 mK)?
	8c	Γ ₃	AFQ (T _Q = 260 mK)	Γ ₃	AFQ (T _Q = 150 mK)

表 1. 立方晶系 R₃Pd₂₀X₆ (R=Ce, Pr; X=Ge, Si) の秩序状態

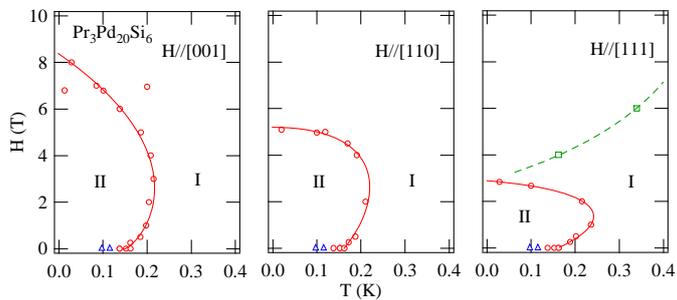


図 2. Pr₃Pd₂₀Si₆ の磁場-温度相図

4. 結論・考察

カゴ状化合物 Pr₃Pd₂₀Si₆ の極低温における相転移の起源を調べるために、MUSASI-L を用いた中性子回折実験を行った。弱いながらも新しいピークが観測されたが、最低温度の波数の決定までには至らなかった。また、指数によって磁場変化が大きく異なることが判明した。

5. 引用(参照)文献等

- 1) G. Ano *et al.*, to be published in J. Phys. Conf. Ser.
- 2) H. Kobayashi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. 77 (2008) suppl. A 263.

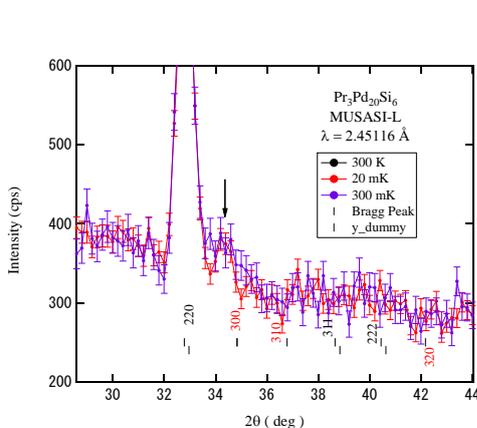


図 3. Pr₃Pd₂₀Si₆ の回折パターンの温度変化

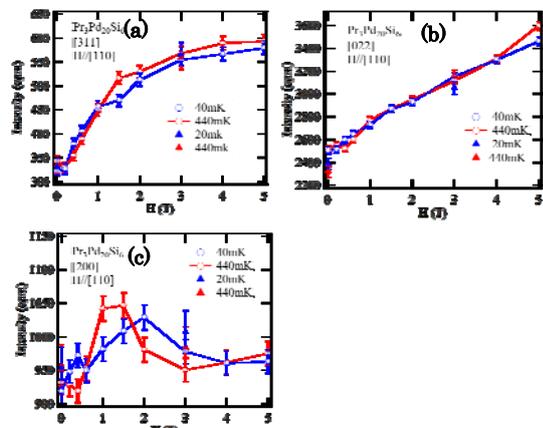


図 4. Pr₃Pd₂₀Si₆ の代表的な指数の回折ピーク積分強度の磁場変化。(a) 全て奇数、(b) および(c) 全て偶数。