

PrPd₃の磁気相図の研究Study on Magnetic Phase diagram of PdP₃利用者 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

所 属 ¹⁾物材機構、²⁾原子力機構

概 要

立方晶PrPd₃は、複雑な磁気相図を示し、その特長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160K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。

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、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おらず、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思われる。

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

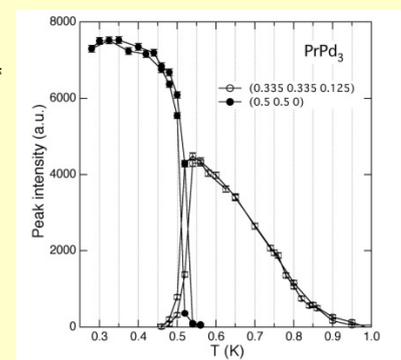
非弾性散乱の実験では、15meVの結晶場励起以外観測されなかった。特に、1meV付近の詳細な実験でも、異常は観測されず、第1励起状態まで160K程度離れた Γ_5 基底状態であることがわかった。

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(右図)。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.PrPd₃にお磁気散乱ピーク強度の温度依存性