

# PrPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 単結晶の高磁場磁化過程

## High Field Magnetization Process of PrPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> Single Crystal

山口大・理 繁岡 透, 崔 菁蔚, 藤原 哲也  
 東北大・金研 木村 尚次郎, 小山 佳一\*, 渡辺 和雄  
 T. Shigeoka<sup>1</sup>, J. Cui<sup>1</sup>, T. Fujiwara<sup>1</sup>, S. Kimura<sup>2</sup>, K. Koyama<sup>2</sup>, K. Watanabe<sup>2</sup>  
<sup>1</sup> Graduate School of Science and Engineering, Yamaguchi University  
<sup>2</sup> Institute for Materials Research, Tohoku University

### 1. はじめに

我々は、正方晶 ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 型結晶構造（空間群：I4/mmm）を持つ希土類三元化合物 RM<sub>2</sub>X<sub>2</sub>（R=希土類, M=遷移金属, X=Si, Ge など）の単結晶による系統的な磁性研究を行ってきている。この系の化合物は、多種多様な物性を示し[1], 新しい現象, 物理を発見できる可能性を秘めていると考えているからである。PrPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> は反強磁性を示すことが報告されているが[2], その磁氣的振舞いの詳細は不明である。また、この化合物は、圧力誘起超伝導およびヘビーフェルミオン反強磁性を示す CePd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>[3]と関連が大と考えられ、大変興味深い化合物である。さらに、磁気モーメントが基底面内（c面内）にある可能性が大である。我々は、この基底面内の磁気モーメントの振舞いにも興味を持っている。そこで、単結晶を育成し、その磁氣的振舞いを調べた。

Fig. 1 に PrPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 単結晶の磁化率の温度依存を示している。この結果は、この化合物が、ネール温度  $T_N=3.2$  K の反強磁性であることを示していると考えられる。また、磁化容易方向はc面内方向であり、面内の磁気異方性は小さい。Fig. 2 に磁場  $B=7$  T 以下で測定した単結晶の主要3軸方向の磁化過程を示している。幾つかのメタ磁性転移が見られる。磁化は3軸とも飽和には達してなく、さらに高磁場での測定が必要である。そこで、高磁場磁化測定を計画した。

### 2. 実験

単結晶試料は、トリ・アーク・チョクラルスキー法により育成した。結晶の一部を粉末にし、X線回折により単一相であることを確認した後、背面ラウエ法により結晶方位を決定し、結晶三主軸がそれぞれ平面に垂直に立つように試料をアクリル板に固定し測定に用いた。高磁場磁化測定は、東北大金属材料研究所附属強磁場超伝導材料センターの超伝導マグネット 18 T-SM で 18 T までの磁場で、試料引き抜き法による磁力計を用いて、1.6 K ~ 5 K の温度範囲で行った。

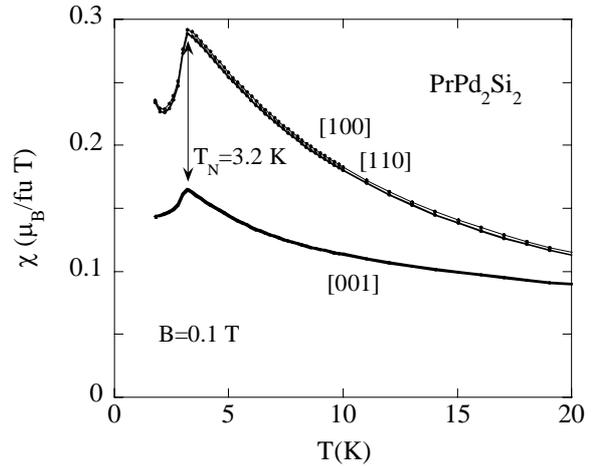


Fig. 1 Temperature dependence of magnetic susceptibility along the main symmetry directions on a PrPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> single crystal.

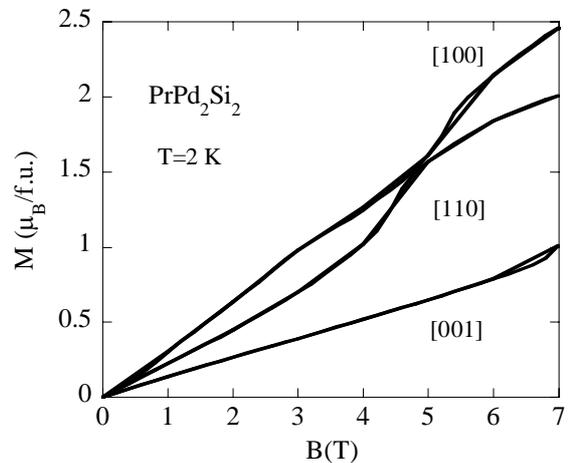


Fig. 2 Magnetization curves along the main symmetry axes below 7 T at 2 K on the PrPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> single crystal.

### 3. 実験結果と考察

Fig. 3 に  $T=1.6$  K における PrPd<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 単結晶の高磁場磁化曲線を示す。磁場は正方晶の主軸3方向に、18 T までかけた。磁化困難方向である c 軸方向の磁化は、磁場増加とともに、低磁場で直線的に増加し、

\*現在 鹿児島大学理学部

6.7 T 付近で急激に増加；メタ磁性転移を示し、その後、緩やかに増加を続ける。最高磁場 18 T での磁化は、 $1.8 \mu_B/f.u.$  である。磁化容易方向は、 $c$  面内の [100] 方向で、磁化は、10 T 以上の高磁場側でほぼ飽和し、18 T で  $2.9 \mu_B/f.u.$  (この磁化の大きさを  $M_{max}$  とする) に達する。この値は、 $Pr^{3+}$  自由イオンの理論値  $3.2 \mu_B$  より小さい。これは結晶場効果によるものと思われる。この磁化過程はいわゆる多段階メタ磁性磁化過程である；少なくとも 4 つの転移が見られる ( 図中、矢印で示した)。転移磁場は、それぞれ、1.0 T, 2.6 T, 4.2, T, 5.6 T である ( 磁化の磁場微分曲線のピークから決めた)。[100] 方向でも、やはり 2 段のメタ磁性転移が 3.3 T と 4.9 T に見られる。10 T 以上の高磁場側で、磁化曲線は、[100] の磁化曲線とほぼ平行になっている。最高磁場における磁化は、 $2.2 \mu_B/f.u.$  である。この大きさは、 $M_{max} \cos 40^\circ$  に相当する。このことは、磁気モーメントは [110] 方向に磁場をかけても、18 T では、[100] 方向からたった  $5^\circ$  しか傾いていないことを示している。すなわち、面内の [100] 方向を容易軸とする磁気異方性は非常に強いことがわかる。このような強い異方性の起因が結晶場のみで説明できるかは疑問である。結晶場の評価が急がれる。

Fig. 4 にさまざまな温度での磁化測定、磁化率の温度依存の結果から得られた  $B//[100]$ - $T$  の磁気相を示している。1.6 K 以下の低温側および 2 K 以上の相境界はまだ決定できていないが、少なくとも 4 つの磁気秩序相が存在している。相境界の決定のために磁場中比熱測定を計画している。また、この系の複雑な磁氣的振舞い；メタ磁性転移で何が起きているのかおよびその機構解明のためには、これらの磁気相の磁気構造を決定することが必要であり、磁場中中性子回折実験などを予定である。

#### 4. まとめ

$PrPd_2Si_2$  単結晶の高磁場下磁化測定を行った。磁化容易方向は  $c$  面内の [100] 方向であり、低温で、この磁化過程には多段階 ( 少なくとも 4 段) メタ磁性転移が現れることがわかった。また、[110] 方向の磁化過程にも、2 段階メタ磁性転移が現れる。 $c$  面内の磁気異方性は非常に強いことが明らかになった。今後、結晶場解析および磁場中中性子回折実験により、結晶場効果および磁気構造を決定し、この複雑な磁化過程の機構解明を行いたい。

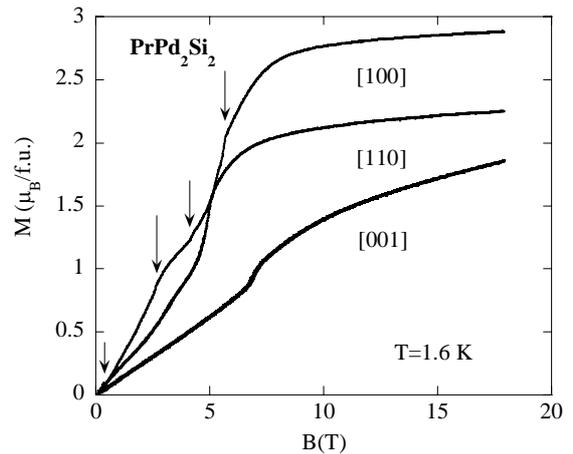


Fig. 3 High field magnetization curves at 1.6 K on the  $PrPd_2Si_2$  single crystal.

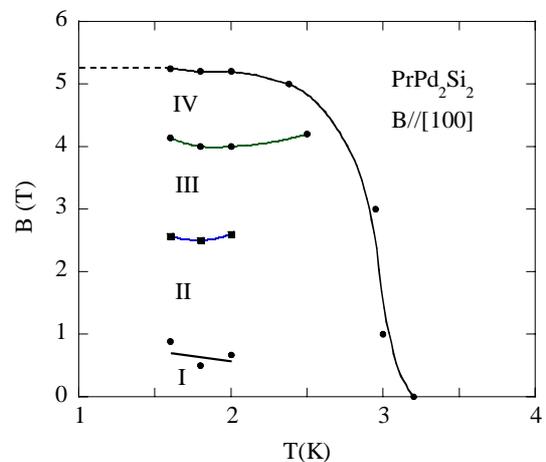


Fig. 4  $B_{100}$ - $T$  magnetic phase diagram along the [100] direction on the  $PrPd_2Si_2$  single crystal.

#### 参考文献

- [1] D. Gignoux, D. Schmitt, in K.H.J Buschow(Ed.) , Handbook of Magnetic Materials, vol. 10, North-Holand, Amsterdam, 1997.
- [2] V.K. Anand et.al., J. Phys. Condens. Matter. 19 (2007) 486207.
- [3] F.M. Grosche et.al., J. Phys, Condens. Matter. 12 (2000) L533.