

TbPd₂Si₂ 単結晶の高磁場磁化過程

High Field Magnetization Process of TbPd₂Si₂ Single Crystal

山口大・理 繁岡 透, 東島 和宏, 藤原 哲也
 東北大・金研 小山 佳一, 渡辺 和雄
 T. Shigeoka¹, K. Tohjima¹, T. Fujiwara¹, K. Koyama², K. Watanabe²
¹ Graduate School of Science and Engineering, Yamaguchi University
² Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

正方晶 ThCr₂Si₂ 型結晶構造 (空間群: I4/mmm) を持つ三元化合物 RM₂X₂ (R=希土類, M=遷移金属, X=Si, Ge など) 系は多様な物性を示すことが知られている[1]。我々は、この系の磁性を単結晶により詳細に系統的に研究してきている。この系の多くの化合物では、磁気モーメントが正方晶の主軸の *c* 軸に向いており、*c* 軸磁気モーメントの振る舞いは、かなり理解されてきている。一方、基底面内 (*c* 面内) に磁気モーメントがある化合物は少なく、面内磁気モーメントの振る舞いは、まだ理解不足である。Pd 系化合物では、磁気モーメントが *c* 軸から傾いていると報告されており[2]、この磁性に興味を持ち、研究を行っている。これまでは多結晶による報告はなされているが、その磁性の詳細は不明である。そこで、この系の単結晶を育成し、その磁氣的振舞いを調べた。Fig. 1 に TbPd₂Si₂ 単結晶の磁化率の温度依存性を示している。この結果は、この化合物が、ネール温度 $T_N=15.0$ 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見られない。面内方向の磁化率は、低温で異常な増加を示している。Fig. 2 に磁場 $B=7$ T までで行った、 $T=2$ K における磁化測定結果を示している。いずれの方向も磁化は磁場とともに直線的に変化している。磁化の大きさは、最高磁場でも Tb³⁺ の自由イオンの磁気モーメントに期待される $9 \mu_B$ に全く達していないことがわかる。基底面内、*c* 面内、では磁気異方性はなく、*c* 軸方向、[001] 方向、の磁化が最も小さい。面内の磁化には、低磁場で強磁性成分と思われるわずかな増加がみられる。この磁化過程の全容を明らかにするために、高磁場下での磁化測定を行った。

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、結晶三主軸が平面に垂直に立つように試料を固定し測定に用いた。高磁場磁化測定は、東北大学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

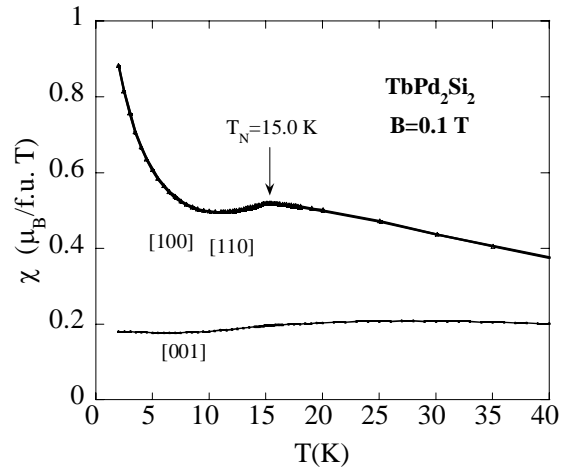


Fig. 1 Temperature dependence of magnetic susceptibility along the main symmetry directions on a TbPd₂Si₂ single crystal.

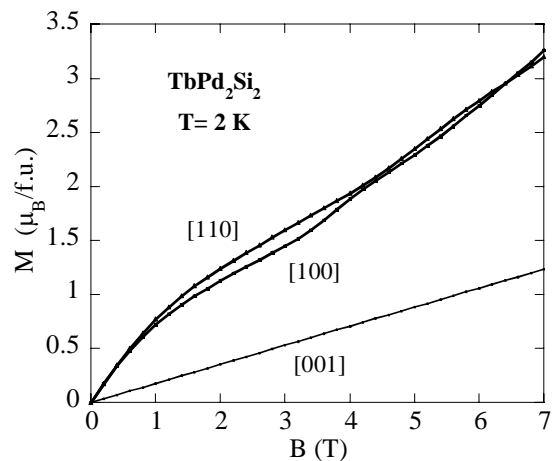


Fig. 2 Magnetization curves along the main symmetry axes at 2 K below 7 T on the TbPd₂Si₂ single crystal.

計を用いて、1.6 K ~ 30 K の温度範囲で行った。

3. 実験結果と考察

Fig. 3 に $T=1.6$ K における TbPd_2Si_2 単結晶の高磁場磁化曲線を示す。磁場は正方晶の主軸方向に、18T 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、ほぼ直線的に増加するだけである。最高磁場(18T)での磁化は $3.6 \mu_B/\text{f.u.}$ である。磁化容易方向は、 c 面内の [110] 方向で、磁化は、低磁場で上に凸な曲率(弱い強磁性成分)を持って増加し、11T および 12T 付近で急激に増加後、一度フラットになり、さらに 17T 付近から緩やかに増加を示す; この磁化過程には、多段階のメタ磁性転移が表れていることがわかる。また、[100] 方向では、9T および 17T 付近で磁化が急激に増加しており、やはり多段階のメタ磁性転移があることがわかる。磁化の大きさは、[110] および [100] 方向で、それぞれ $8.5 \mu_B/\text{f.u.}$ および $8.0 \mu_B/\text{f.u.}$ であり、 Tb^{3+} の自由イオンのモーメントより小さく、さらに強磁場で磁化の増加が見込まれる。この化合物では、磁気モーメントが [100] 方向を向いているということが、中性子回折から報告されているが、この結果は、これを支持していない。Fig. 4 に常磁性温度領域での磁化曲線を示している。面内の磁化は低磁場ではほとんど同じであるが、高磁場で異方的になっている; [110] 方向が最も磁化しやすい方向である。[001] 方向の磁化は奇妙な振る舞いを示している; 磁化は、低磁場では直線的に増加を示しているが、高磁場側で直線から上の方にずれている。これはメタ磁性転移の前兆であると思われる。常磁性領域で、磁化困難方向にメタ磁性転移が現れるなら、大変奇妙な現象である。この現象が現れるかどうかを確かめるためには、さらに高磁場での実験が必要である。ここに現れた複雑なメタ磁性転移など、この化合物の奇妙な磁氣的振る舞いの機構は不明であるが、今後、磁場中中性子回折実験などを行い、この機構解明を行いたいと考えている。

4. まとめ

TbPd_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 [110] 方向であり、低温で、この磁化過程には多段階(4 段?)メタ磁性転移が現れることがわかった。また、[100] 方向の磁化過程にも、3 段階メタ磁性転移が現れる。大変奇妙な現象として、常磁性温度領域において、磁化困難方向の磁化過程に、メタ磁性転移の兆候が見られたことは特筆すべきことである。今後この現象をさらに高磁場をかけることによって確かめる必要がある。

参考文献

- [1] D. Gignoux, D. Schmitt, in K.H.J. Buschow (Ed.), Handbook of Magnetic Materials, vol. 10 Elsevier, Amsterdam, 1997. p.239 (Chapter 2).
- [2] J. Leciejewicz, et. al., J. Magn. Magn. Matter. 96 (1991) 114.

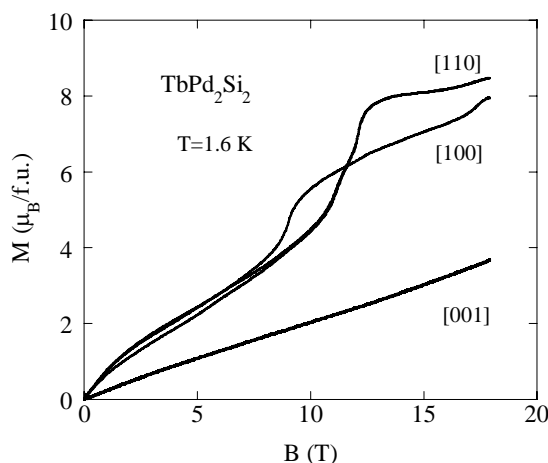


Fig. 3 High field magnetization curves along the main symmetry axes at 1.6 K on the TbPd_2Si_2 single crystal.

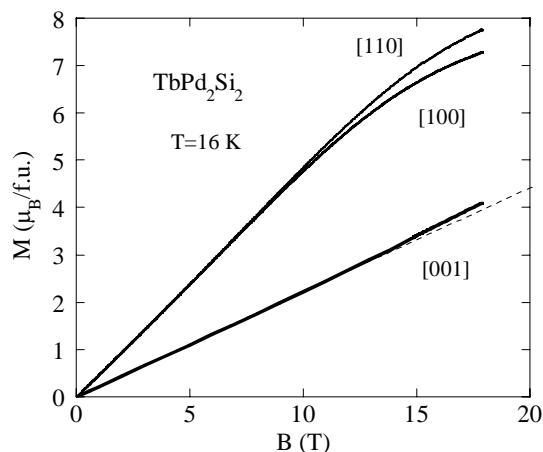


Fig. 4 Magnetization curves along along the main symmetry axes at the paramagnetic region of 16 K.

- [3] W. Bazela, et. al., Condens. Matter. 9 (1997) 2267.