

強磁性体 EuPd_2 と EuPt_2 の単結晶育成と圧力下電気抵抗

¹ 東北大金研, ² 琉球大院理工, ³ 阪大低温セ, ⁴ 東京大院理,
⁴ 東大物性研, ⁵ 電通大, ⁷ 琉球大理, ⁸ 神大院理

仲村愛^{1,2}, 安次富洋介², 赤嶺拓², 本多史憲¹, 青木大¹, 竹内徹也³,
松林和幸^{4,5}, 上床美也⁴, 立津慶幸^{2,6}, 眞榮平孝裕⁷, 播磨尚朝⁸,
辺土正人⁷, 仲間隆男⁷, 大貫惇睦⁷

希土類化合物は一般的に 3 価であるが, Eu 化合物は 2 価が安定で $S=7/2$ の磁性を示す. しかし, Eu 化合物の 2 価と 3 価のエネルギー差は小さいので圧力を加えると 3 価に価数転移することが知られている. 例えば体心正方晶 ThCr_2Si_2 型結晶構造の EuRh_2Si_2 や EuNi_2Ge_2 等は, 圧力や温度などの外部パラメータによって Eu^{2+} から Eu^{3+} へ価数転移することが報告されている. EuRh_2Si_2 では, $P=1$ GPa の圧力下で室温から温度を下げていくと, $T_v \simeq 30$ K で Eu^{2+} から Eu^{3+} に近い電子状態へ一次の価数転移を示す [1]. また, EuNi_2P_2 では, Eu の価数は室温の 2.25 価から低温で 2.48 価へ温度変化し, これまでの研究から, 電子比熱係数 $\gamma \simeq 100$ mJ/(K²·mol) や熱膨張の異常から近藤効果に基づく重い電子状態が提唱された [2]. ごく最近では, 同じく体心正方晶である EuGa_4 は臨界圧力 $P_c \sim 6$ GPa 以上の圧力下で価数転移が起き, P_c 付近で重い電子状態となっていることが示唆されている [3].

本研究の EuPd_2 と EuPt_2 は立方晶ラーベス相構造であり, 常圧でそれぞれキュリー温度 $T_C \sim 80$ K および 100 K の強磁性体として報告されているが, これまでの研究は多結晶試料での研究であった [4, 5]. 本研究では EuPd_2 と EuPt_2 の詳細な物性と圧力下の電子状態を明らかにするために, 単結晶を育成し電気抵抗測定, 磁化率・磁化測定, ドハース・ファンアルフェン (dHvA) 効果測定, 圧力下電気抵抗測定を行った.

今回, EuPd_2 と EuPt_2 は, 原材料をモリブデンるつぼに封入し, 約 1500 °C でのブリッジマン法で初めて単結晶育成に成功した. 育成された単結晶試料の大きさはおよそ 1.0~1.5 mm 角であった. 電気抵抗測定は“4 端子法”を用い, 磁化率・磁化測定はカンタム・デザイン社製の SQUID 磁束計で測定した. 比熱測定は EuPd_2 および EuPt_2 でそれぞれ“疑似断熱法”および“緩和法”である. dHvA 効果測定は“磁場変調法”を用い, 5 T から 13.5 T の磁場範囲で測定した. また, 8 GPa までの圧力下の電気抵抗測定はキュービクアンビルセルを使用し, 圧力媒体はフロリナート (FC-70:FC-77=1:1) である.

図 1 に EuPd_2 および EuPt_2 の電気抵抗の温度依存を示す. それぞれ $T_C = 74.4$ K および 99.0 K で電気抵抗に急激な減少が現れており, T_C で比熱にラムダ型の転移を示す. 磁化率および磁化測定の結果から, EuPd_2 および EuPt_2 は飽和磁気モーメントが $7 \mu_B/\text{Eu}$ であり

Eu²⁺ の強磁性体であることがわかった。また、 $H \parallel \langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$, $\langle 111 \rangle$ 方向で異方性がほとんどなく、磁化容易軸は決定できなかった。EuPd₂ では dHvA 測定を行い、dHvA 振動が観測された。図 2 に EuPd₂ の dHvA 振動とそのフーリエスペクトルを示す。主要な dHvA ブランチが観測されており、ブランチはスピン分裂している。dHvA 振動数の角度依存性から閉じたフェルミ面が予測され、それは SrPd₂ のバンド計算の結果でよく説明できることがわかった。さらに、EuPd₂ および EuPt₂ の圧力下での電気抵抗測定では、それぞれ 8 GPa まで圧力増加とともに T_C がほぼ直線的に上昇し Eu²⁺ が安定的であることを示していた。

参考文献

- [1] A. Mitsuda, S. Hamano, N. Araoka, H. Yayama, and H. Wada, J. Phys. Soc. Jpn. **81**, 023709 (2012).
- [2] Y. Hiranaka, A. Nakamura, M. Hedo, T. Takeuchi, A. Mori, Y. Hirose, K. Mitamura, K. Sugiyama, M. Hagiwara, T. Nakama, and Y. Ōnuki, J. Phys. Soc. Jpn., **82**, 083708 (2013).
- [3] A. Nakamura, T. Uejo, F. Honda, T. Takeuchi, H. Harima, E. Yamamoto, Y. Haga, K. Matsubayashi, Y. Uwatoko, M. Hedo, T. Nakama, and Y. Ōnuki, J. Phys. Soc. Jpn., in press.
- [4] A. Iandelli and A. Palenzona, J. Less-Common Met. **38**, 1 (1974).
- [5] H. de Graaf et al., Physica **100B**, 81 (1980).

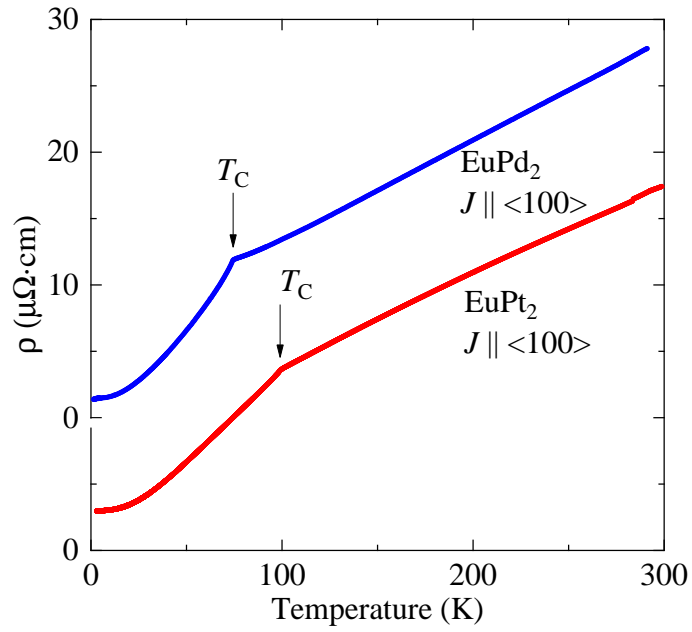


図1 EuPd₂ および EuPt₂ 単結晶の常圧での電気抵抗 ρ の温度依存性.

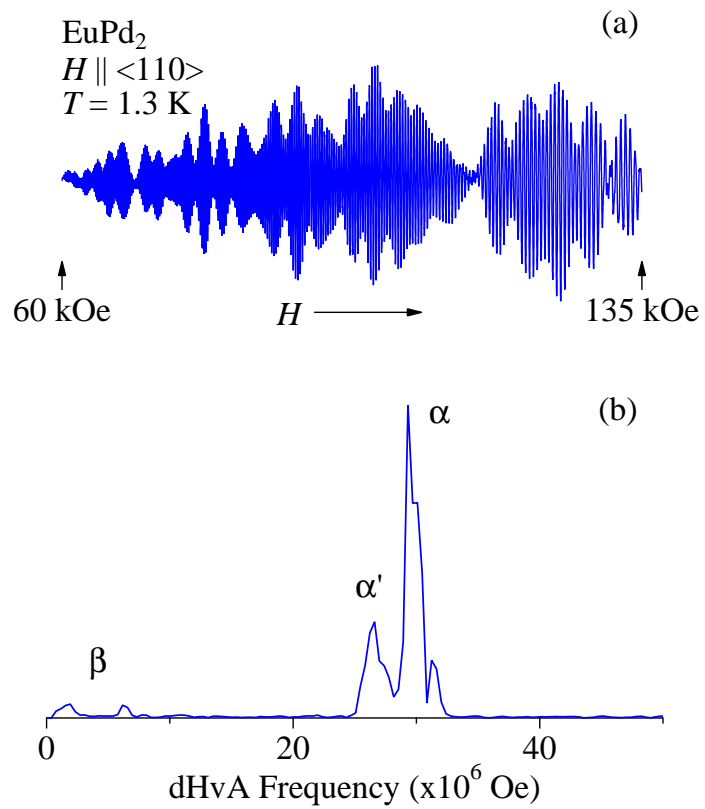


図2 EuPd₂ の dHvA 振動とそのフーリエスペクトル.