

RRh₂Ge₂ 単結晶の高磁場磁化過程

High Field Magnetization Process of RRh₂Ge₂ Single Crystal

山口大・理 繁岡 透, 大河原 遊, 藤原 哲也
 東北大・金研 木村 尚次郎, 渡辺 和雄
 T. Shigeoka¹, Y. Okawara¹, T. Fujiwara¹, S. Kimura², K. Watanabe²
¹ Graduate School of Science and Engineering, Yamaguchi University
² Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

我々は、正方晶 ThCr₂Si₂ 型結晶構造（空間群：I4/mmm）を持つ希土類三元化合物 RM₂X₂（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た。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。RRh₂X₂（R=希土類，X=Si, Ge）化合物系は同系の他の化合物と比べて異常に高いネール温度を持つ反強磁性を示すことが多結晶による研究で報告されている[2]。しかし，その磁氣的振舞いの詳細は不明である。我々は，この系の磁氣的振舞いを明らかにすることおよび極端に高いネール温度の起因解明のため，この化合物系の単結晶による磁性研究を行ってきた。このうち，PrRh₂Ge₂は T_N=47 K と報告されていたが，我々の最近の測定によると，さらに高温 T_N=52 K のネール温度を持つことがわかった。また，磁化率の温度依存（Fig. 1）において，T₁=3.8 K，T₂=33 K および T₃=38 K にも磁気転移を示唆する異常を見出した。そして，7 T までの磁化過程（Fig. 2）において，低温では，磁化容易方向 [001] 方向にシャープなメタ磁性転移が B=5 T 付近に，B=1 T 付近に小さな転移が現れることを見出した。磁化は，7 T で 0.64 μ_B にしか達しなかった。Pr³⁺の飽和磁化の理論値は 3.2 μ_B であり，この磁化の振舞いから，高磁場でさらなるメタ磁性転移が現れることが予想される。また，新たに見つかった磁気転移前後では，低磁場の磁化過程では確かな違いが見出せなかった。この磁氣的振舞いの全容を知るには，さらに高磁場における磁化測定が不可欠である。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薄いアクリル板に固定し測定に用いた。高磁場磁化測定は，東北大学

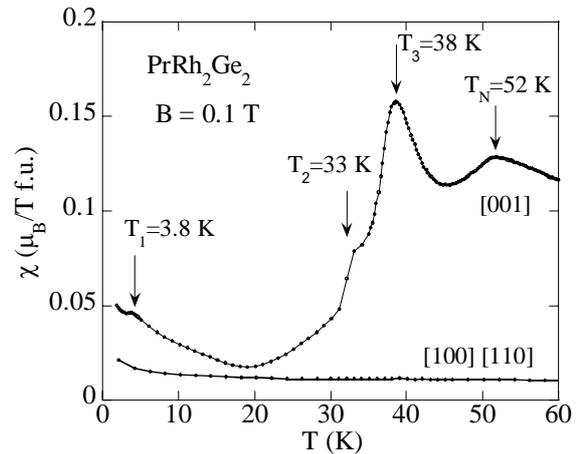


Fig. 1 Temperature dependence of magnetic susceptibility along the main symmetry directions on a PrRh₂Ge₂ single crystal.

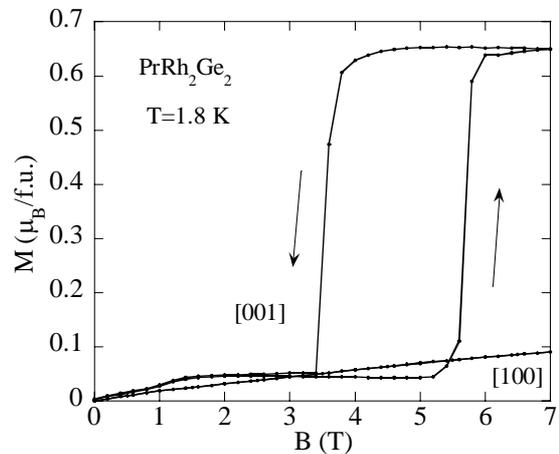


Fig. 2 Magnetization curves along the main symmetry axes of a tetragonal cell below 7 T at 1.8 K on the PrRh₂Ge₂ single crystal.

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 18T-SM で 18T 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 ~ 55 K の温度範囲で行った。

3. 実験結果と考察

Fig. 3 に $T=4.2$ K における PrRh_2Ge_2 単結晶の高磁場磁化曲線を示す。磁化困難方向である c 面内方向の磁化は、磁場増加とともに、直線的に増加する。なお、 c 面内の $[100]$ と $[110]$ 方向ではほぼ同じ磁化過程を示した；すなわち、面内では等方的である。最高磁場 18 T での磁化は $0.28 \mu_B/\text{f.u.}$ で、かなり小さい。このことは、 c 軸を容易方向とする一軸磁気異方性が大変強く、この系はイジング的な振舞いをしていることを示している。磁化容易方向 c 軸、 $[001]$ 方向では、低磁場で小さな転移は消え、高磁場で明確な二段階メタ磁性転移が現れる。転移磁場は、磁場上昇時で $B_1 = 5.1$ T および $B_2 = 13.0$ T、磁場下降時で、 $B_1 = 3.9$ T および $B_2 = 12.8$ T である。両転移においてヒステリシスが観測され、これらの転移は、一次転移である。したがって、これらの転移で、磁気構造の変化が起こっていると考えられる。このような振る舞いは、競合する交換相互作用がある Ising 系によくみられるものである。二段目のメタ磁性転移後、 B_2 以上の磁場で、磁化は飽和し、 $3.17 \mu_B/\text{f.u.}$ に達する。この大きさは Pr^{3+} の自由イオンの磁気モーメント $3.2 \mu_B/\text{atom}$ にほぼ一致する。中間相、 $B_1 < B < B_2$ の磁化は $0.65 \mu_B/\text{f.u.}$ で飽和磁気モーメントの $1/5$ である。

Fig. 4 にさまざまな温度、各転移温度間、での磁化過程を示している。磁化過程は、 $T < T_1$ 、3 段階メタ磁性磁化過程、 $T_1 < T < T_3$ 、2 段階、 $T_3 < T < T_N$ 、1 段階、 $T_N < T$ 、常磁性過程と変化している。

磁化の大きさ等から、Fig. 3 の磁化過程は次のような磁気構造変化によって説明可能であると考えられる。反強磁性磁気構造は、同系の化合物 NdRh_2Ge_2 と同じ可能性が大きい。すなわち、波数ベクトル $k=(0,0,1)$ 、磁気モーメントが c 軸平行の単純な反強磁性構造； $+ - [3]$ 。 B_1 の転移は $+ - + + - + - + - + -$ と変化している。すなわち、 $k=(0,0,1)$ 、 $k=(0,0,1/5)$ 。単位胞が c 軸方向に 5 倍になり、この単位胞を形成する 10 層の強磁性 c 面のうち、磁場と反対方向；マイナス面の一つが磁場方向にスピリップする。この過程は、結晶場および競合する交換相互作用を含めたモデルによって説明可能であると考えている。このモデルを考案する前に、磁気構造を決定する必要がある、磁場中を含め中性子回折実験を計画している。

4. まとめ

PrRh_2Ge_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 軸、 $[001]$ 方向であり、強い一軸異方性を示す。 c 軸磁化過程には、多段階（3 段階、2 段階および 1 段階）メタ磁性転移が現れる。この過程は、競合する交換相互作用を持つ Ising 系に特徴的

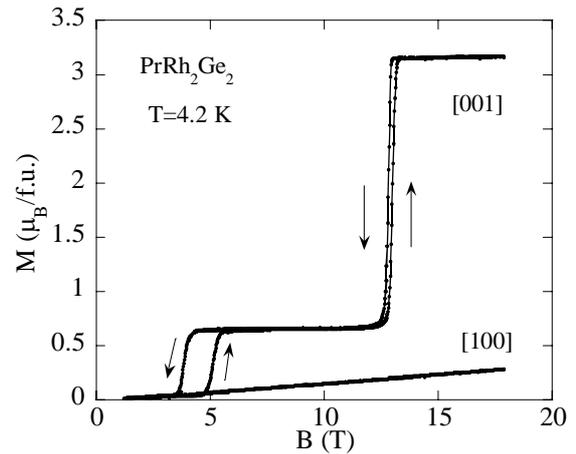


Fig. 3 High field magnetization curves at 4.2 K on the PrRh_2Ge_2 single crystal.

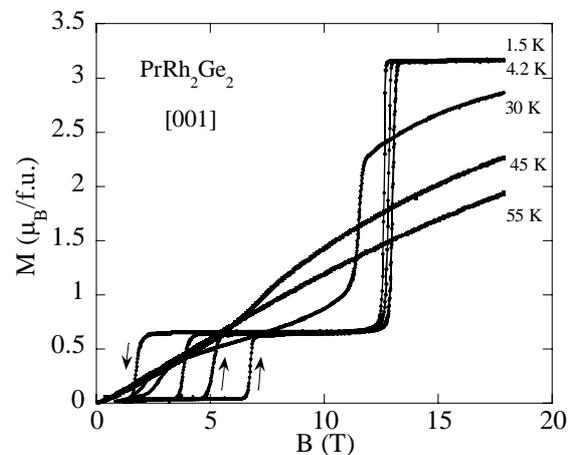


Fig. 4 Magnetization curves along the $[001]$ direction at various temperatures.

なものである。今後、モデル計算によりこの磁化過程の説明を試みる予定である。

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] I. Felner, I. Nowik, J. Phys. Chem. Solids, 46 (1985) 681.
- [3] V. Venturini et.al., Solid State Commun., 66 (1988) 597.