

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

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

山口大・理 繁岡 透, 柴崎 洋志, 藤原 哲也  
 東北大・金研 小山 佳一, 渡辺 和雄

T. Shigeoka<sup>1</sup>, H. Shibasaki<sup>1</sup>, T. Fujiwara<sup>1</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

正方晶 ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> 型結晶構造 (空間群: I4/mmm) を持つ三元化合物 RM<sub>2</sub>X<sub>2</sub> (R=希土類, M=遷移金属, X=Si, Ge など) 系は多様な物性を示すことが知られている[1]。このうち X=Rh 系は, ほとんどの化合物が, 反強磁性に秩序化し, その転移温度がかなり高温であることが報告されている[2]。我々は, この高温磁気転移をもつ化合物の磁氣的振舞いに興味を抱き単結晶を用いたこの化合物系の研究を行ってきた。PrRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> に関しては, これまでにその磁性に関する報告はなされていなかった。そこで, この化合物の単結晶を育成し, その磁氣的振舞いを調べ, 以下のような結果を得ている; Fig. 1 に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<sub>N</sub>=70 K の反強磁性であることを示していると考えられる。このネール温度は異常に高温である。隣の化合物 NdRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> のネール温度が 55 K であると報告されており[3], ドウ・ジャンヌ関数に従うとすると, 55 K より低いネール温度になる。このことは, この化合物には, 非常に強い反強磁性相互作用があり, それは, RKKY 相互作用のみでは説明できないものであることを示している。また, 磁化容易方向を[001]方向とする非常に強い磁気異方性があることもわかる。Fig. 2 に磁場 B=7T 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 Pr<sup>3+</sup> の自由イオンの磁気モーメントに期待される 3.2 μ<sub>B</sub> 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。これは, 磁気モーメントが[001]方向で, イジング的な振る舞いを示す交換相互作用の大きな反強磁性の特徴を示していると考えられる。したがって, 強磁場をかけることにより, スピンフリップによって, メタ磁性転移が現われることが期待される。そこで, 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

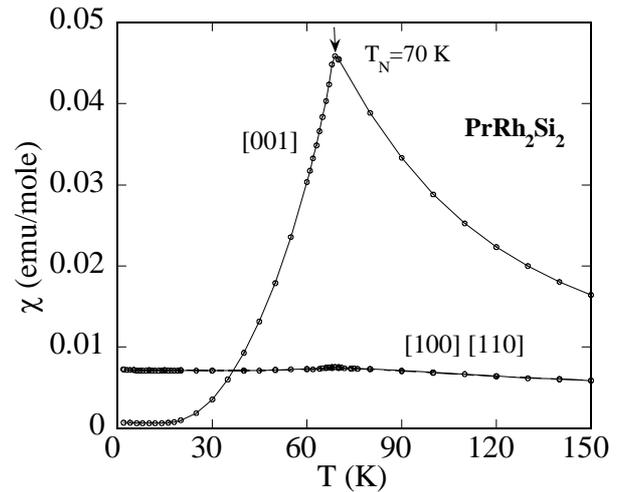


Fig. 1 Temperature dependence of magnetic susceptibility along the main symmetry directions on a PrRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> single crystal.

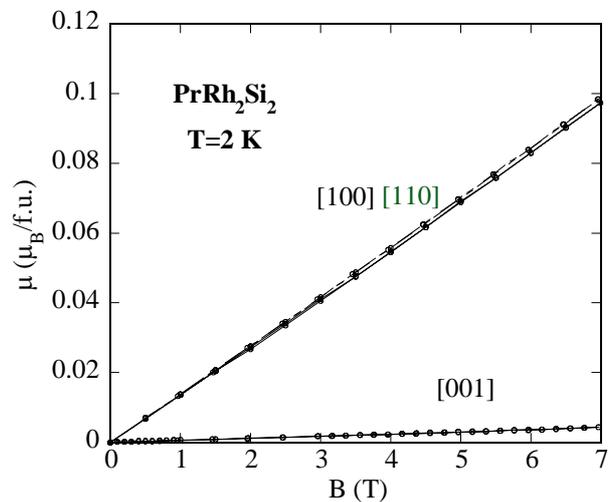


Fig. 2 Magnetization curves along the main symmetry axes at 2 K below 7 T on the PrRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> single crystal.

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 17 T までの磁場で, 試料引き抜き法による磁力計を用いて, 4.2 K ~ 75 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  $\text{PrRh}_2\text{Si}_2$  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、17 T までかけた。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、直線的にわずかに増加するだけである。また、面内での磁気異方性は見られない。これまでの結果と以下に述べる  $c$  軸磁化から、この化合物は、 $c$  軸方向を磁化容易方向とする非常に強い一軸磁気異方性を持っていることがわかる。磁化容易方向、[001] 方向、の磁化過程には、 $B_c=16$  T に明確なメタ磁性転移が見られる。ほぼ不連続に非常に鋭く変化していることから、この転移は、一次転移であると考えられる。転移後の磁化はほぼ飽和しており、飽和磁化  $M_s=3.1 \mu_B$  に達している。この値は、 $\text{Pr}^{3+}$  の自由イオンに期待される磁気モーメントに近い。したがって、転移後は強磁性配列になっている。この振舞いは、強い磁気異方性を持つ反強磁性における典型的な振舞いであると考えられる。同型の  $\text{NdRh}_2\text{Si}_2$  の磁気構造から[3]、 $\text{PrRh}_2\text{Si}_2$  の反強磁性磁気構造も、磁気モーメントが  $c$  軸を向いた単純な AF 型 ( $c$  面内で強磁性的に配列、面間で  $+ - + -$  と伝搬ベクトル  $k = (0, 0, 1)$  で変調) であると考えられる。この構造から、磁場によって、メタ磁性転移では、スピンフリップをおこし、強磁性配列になると推察される。この転移の温度変化を知るため、さまざまな温度での磁化過程を調べた (Fig. 3)。転移は、温度上昇とともに低磁場側に移動していき、ネール温度で消える。この結果から作った  $B-T$  磁気相図を Fig. 3 の挿図に示している。反強磁性相と常磁性相がある単純な相図である。ここに現れたメタ磁性転移は、強い磁気異方性 (結晶場による) のもとでの反強磁性交換相互作用と磁場との競合で説明できると考えられる。この解析は、現在進行中である。

### 4. まとめ

$\text{PrRh}_2\text{Si}_2$  単結晶の高磁場下磁化測定を行った。磁化容易方向、 $c$  軸方向の磁化過程において、低温で、16 T でメタ磁性転移が現れることを見出した。転移後、磁化は飽和し、飽和磁化は、 $3.1 \mu_B$  と  $\text{Pr}^{3+}$  に期待されるモーメントに近い値になった。この振舞いは、強い磁気異方性をもつ反強磁性に典型的なもので、スピンフリップによる反強磁性 強磁性転移であると考えられる。さまざまな温度での磁化測定も行い、 $B-T$  磁気相図を作った。相図は、反強磁性相と常磁性相とからなる単純なものである。この振舞いを結晶場と交換相互作用を考慮したモデルで解析中である。

### 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).

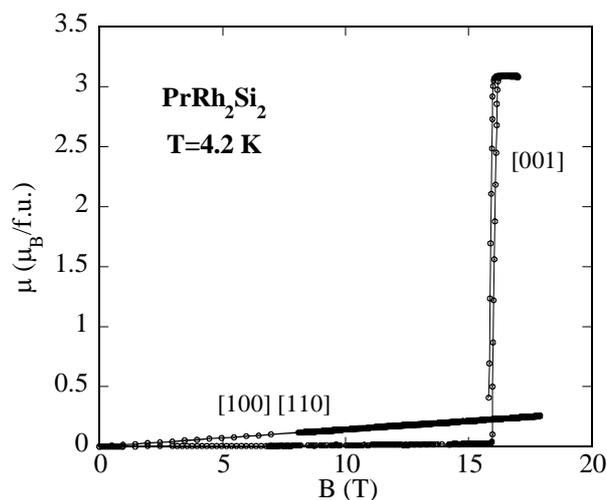


Fig. 3 High field magnetization curves along the main symmetry axes at 4.2 K on the  $\text{PrRh}_2\text{Si}_2$  single crystal.

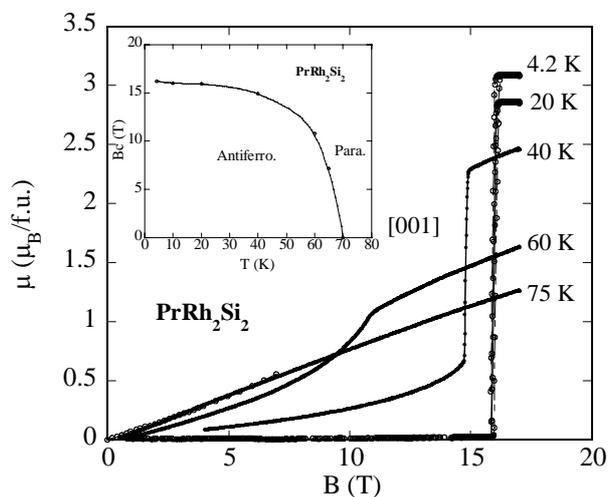


Fig. 4 Magnetization curves along the  $c$ -axis at various temperatures on the  $\text{PrRh}_2\text{Si}_2$  single crystal. Inset:  $B-T$  magnetic phase diagram applied field along the  $c$ -axis.

[2] G. Venturini, et. al., Solid State Commun. 66 (1998) 597.

[3] A. Szytula, et. al., Solid State Commun. 52 (1984) 395.