

NdRu₂Si₂ の H-T 磁気相図

機器分析センター 繁岡 透

理学部

岩田允夫・岸野 猛

1. はじめに

我々は、希土類元素を含む金属間化合物の磁性の研究を主として行ってきた。そのうち、正方晶ThCr₂Si₂型の結晶構造（空間群：I4/mmm）をとる三元化合物 RM₂X₂系（R=希土類，アクチナイド，M=遷移金属，X=Si,Ge,Sn, B etc.）に、特に興味を持っている。図1に、その結晶構造を示しているが、その特徴は、比較的簡単なかつ異方的な層状構造をしていることである；同一c面内には一種類の原子のみが配置して原子層を形成しており、c/a 2.5とかなり大きい。この異方的構造を反映し、この系は、大きな磁気異方性を示す。そのため、多くのものは、Ising的な興味深い振舞を示す。また、R,M,Xの組合せにより多種多様な化合物を作る事

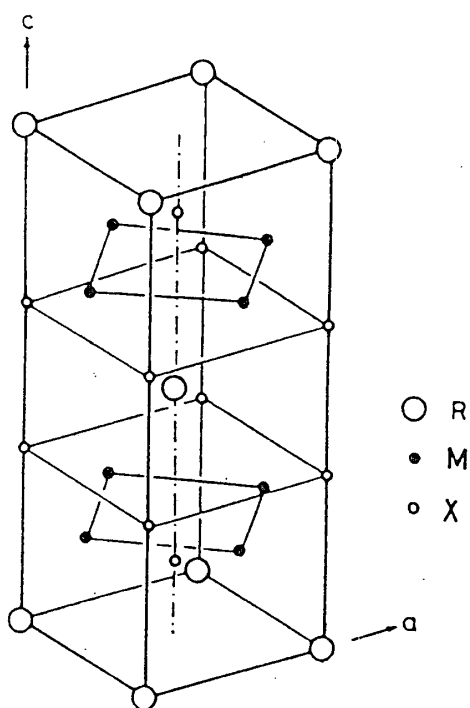


図1 RM₂X₂化合物の結晶構造

が出来、基礎的研究だけでなく、実用材料としての新物質の開発も期待される。最近、この系において、超伝導、近藤効果、非常に重い電子系としての振舞いや様々な異常磁性など興味深いものが見つけられており、注目されている。

NdRu₂Si₂も、興味深いものの一つである；NdRu₂Si₂は、ネール点 T_N=24 Kの反強磁性体であるが、Chevaier et al.は、多結晶の中性子回折より、温度をさげるとともに、24 K以下で、波数ベクトル $k=[0.13,0.13,0]$ のサイン変調構造が現れ、15 Kあたりで、その構造のsquareing-upがおこり、さらに10 K付近から、強磁性成分が現れ、2.8 Kまで、二相が共存し、それ以下で、強磁性のみになると、報告している¹⁾。この複雑な振舞いを理解するために、我々は、単結晶を作り、それをもちいたより系統的な研究を行った。

2. 実験結果

2.1. 磁氣的測定

図2は、c-, a-軸の磁化率、 χ_c , χ_a 、の温度依存を示したものである。 χ_c には、10 K付近と24 Kに異常が見られる。これらの

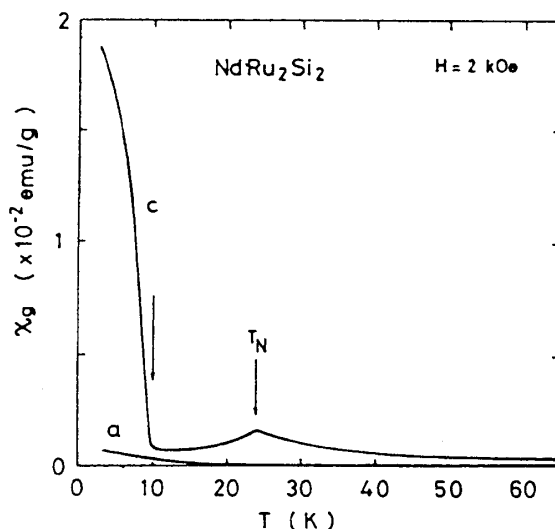


図2 NdRu₂Si₂単結晶のc-およびa-軸の磁化率、 χ_c および χ_a 、の温度依存

温度は、後で述べる中性子回折の結果から明らかのように、それぞれ、フェリ磁性-反強磁性転移(T_c)およびネール点(反強磁性秩序化温度 T_N)に対応している。一方、 χ_a は、非常に小さく、ほとんど異常は見られない。この結果は、強い磁気異方性のために低温ではIsing的な振舞いをしている(磁気モーメントはc軸にそっている。)ことを示している。

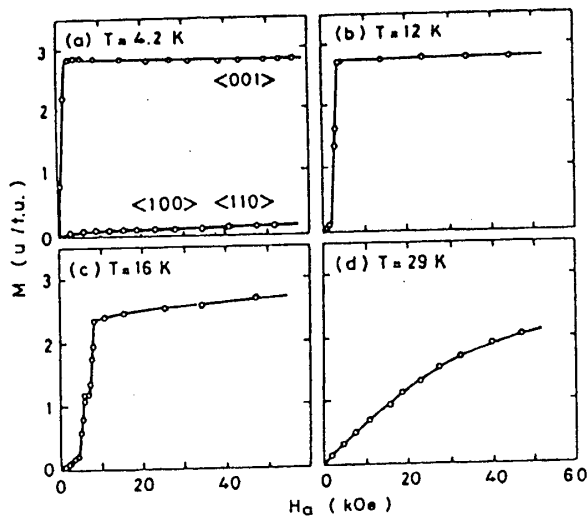


図3 NdRu_2Si_2 単結晶のc軸方向の磁化曲線
(a)4.2 K (b)12 K (c)16 K (d)29 K

る。図3に、さまざまな温度における磁化曲線を示している。磁化容易方向c軸の磁化過程が、温度とともに、興味深い変化をすることがわかる： $24 \text{ K} > T > 15 \text{ K}$ で二段階メタ磁性転移、 $15 \text{ K} > T > 8 \text{ K}$ で一段階メタ磁性転移を示し、さらに低温では強磁性的な磁化過程をしめす²⁾。このような複雑な磁氣的振舞いは、競合する交換相互作用をもつIsing系に特徴的なものと考えられるが、これまでは、あまり例を見ない。この振舞いをさらに詳しく調べるためには、単結晶による磁場下での中性子回折をおこなう必要がある。

2. 2. 中性子回折

中性子回折実験は、全国共同利用施設である日本原子力研究所の改3号炉のに設置されている東京大学物性研究所の三軸型中性子分光器(4G TAS)を用いて行った。単結晶試料は、c軸方向に磁場をかけ、 a^*b^* 逆格子面内をスキャンできるように超伝導マグネット内にセットされた:c軸を垂直に立てた。入射波長 $\lambda = 1.645 \text{ \AA}$ 、コリメーションは、 $40^\circ-40'-40'$ -openを用いた。測定は、温度 $T = 1.5$

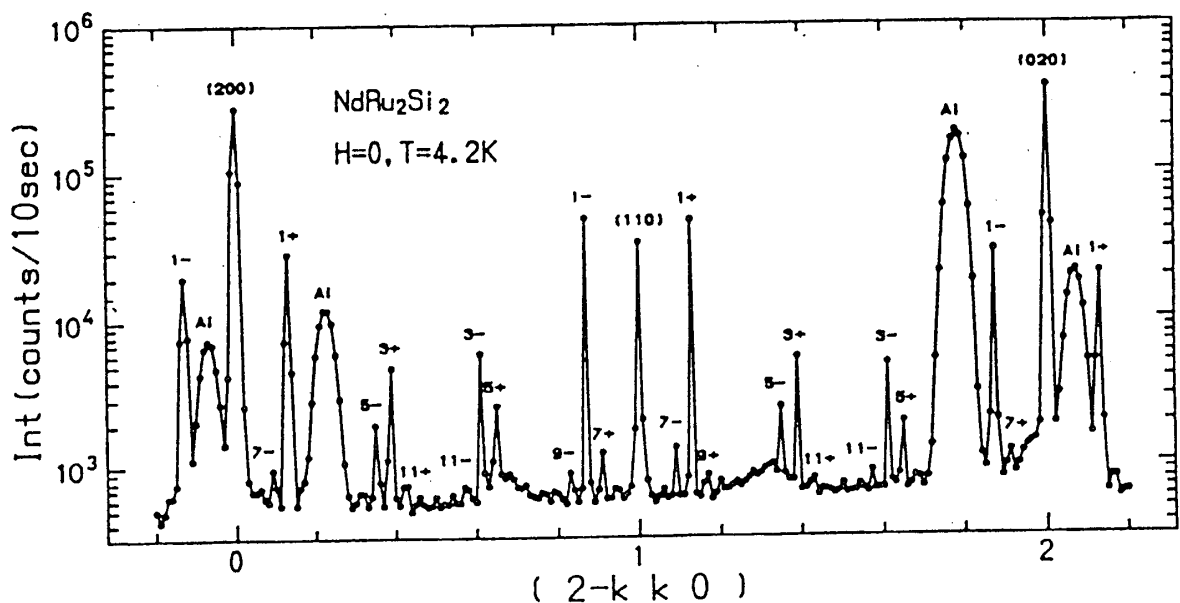


図4 (110)のまわりを $[-1, 1, 0]$ 方向にスキャンした中性子回折パターン

K~30K, 磁場 $H=0\sim 2$ テスラ ので行い, 各点で, 磁気構造を決定し, H-T磁気相図を作った。

まず, 磁場 $H=0$ での測定から述べる。図4に, 磁場 $H=0$, 温度 $T=4.2$ K において, (110)のまわりを $[-1, 1, 0]$ 方向にスキャンした回折パターンを示している。ここで縦軸の強度は, 小さなピークまでよく見えるように対数プロットをしている。波数ベクトル $k = [0.13, 0.13, 0]$ に対応した反強磁性ピークとその奇数次の高調波のピークが11次まで見られている。このように, 高次の高調波まで見られることは非常にまれなケースである。これは, 結晶が非常に良質であること, および改3号炉の稼働により中性子の強度があがったことによる。この高調波の存在は, 低温では, 磁気構造が, 矩形波であることを示している。図5, 6に, これら反強磁性ピークおよび(110)ピークの温度依存をそれぞれ示している。15K付近以下で高調波が現れ, sine-waveのsquaring-upが起きていること, 約8K以下から, 強磁性成分が現れていることがわかる。これらの結果はおおむねChevalier et al.の報告¹⁾と一致しているが, 我々の結果には, 2.8 Kにおいて報告されている強磁

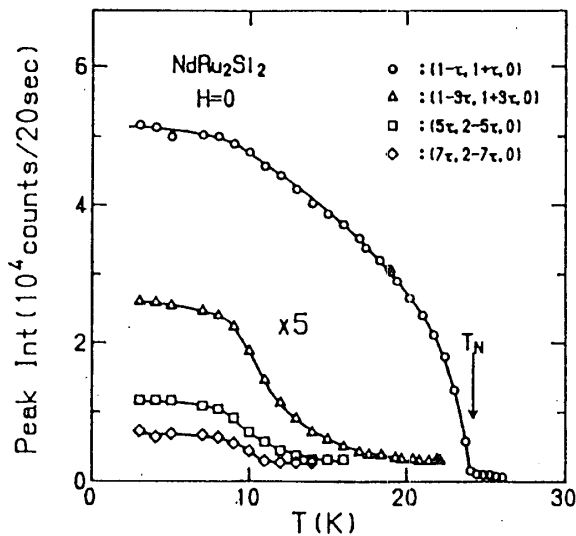


図5 反強磁性ピーク強度の温度依存: $H=0$

性だけの相は見られなかった。次に, 各温度において, 磁場下での測定を行った。その一例を次にしめす。図7に, (110)ピークの磁場依存をいろいろな温度について示している。図から, 温度により, 一段階, 二段階メタ磁性転移が起きていることがわかる。また, 低温では, わずかな強磁性成分の存在も見られる。

図8に, $T=17$ K ($H=0$ では, sin-wave構造をもつ温度領域)における, (110), (1+

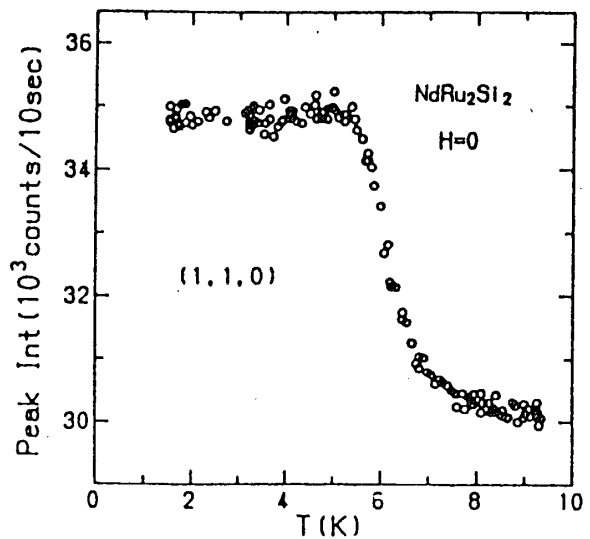


図6 $H=0$ での(110)ピーク強度の温度依存

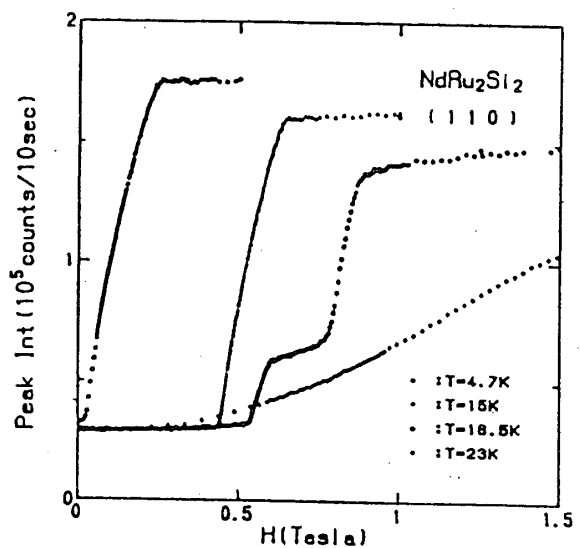


図7 温度 $T=4.7, 15, 18.5, 23$ K における (110)ピーク強度の磁場依存

$\tau, 1-\tau, 0), (1, 1-2\tau, 0)$ ($\tau=0.13$) ピークの磁場依存を示している。(110)の変化は、磁化過程をよく再現しており、二段階メタ磁性転移をしめしている。また、反強磁性ピーク $(1+\tau, 1-\tau, 0)$ の変化も磁化過程によく対応しており、(110)の変化のうらがえしになっている。中間磁場領域では、 $(1, 1-2\tau, 0)$ ピークが現れ、(110), $(1+\tau, 1-\tau, 0)$ とともに三成分があることがわかる。

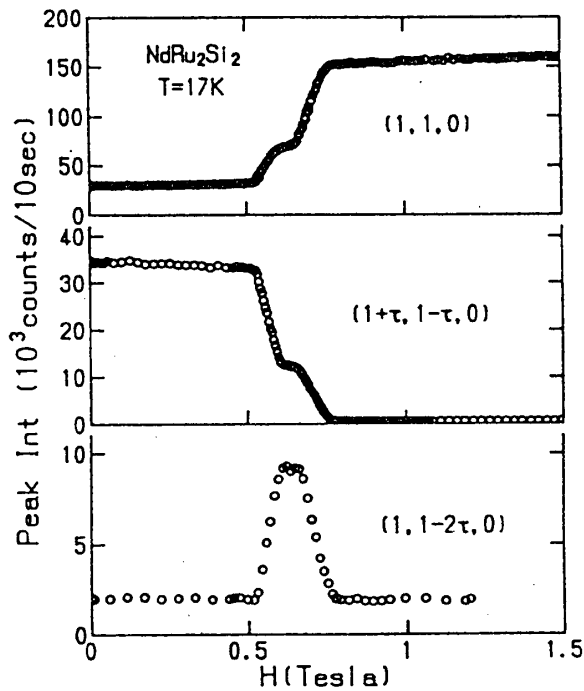


図8 T=17 Kにおける(110), $(1+\tau, 1-\tau, 0)$, $(1, 1-2\tau, 0)$ ($\tau=0.13$) ピーク強度の磁場依存

3. まとめ

中性子回折の結果および磁氣的測定結果を総合し、図9のようなH-T磁気相図をえた。 T_N 以下に、四つの磁気相があることがわかる；1) $24\text{ K} > T > 8\text{ K}$, 低磁場, Antiferro相： $k = [0.13, 0.13, 0]$ を持つ, 2) $24\text{ K} > T > 15\text{ K}$, 中間磁場, Ferri-II相： $k = [0.13, 0.13, 0]$ および $k = [0.13, 0, 0]$ の反強磁性成分と $1.34 \mu_B/\text{f.u.}$ の強磁性成分を持つ,

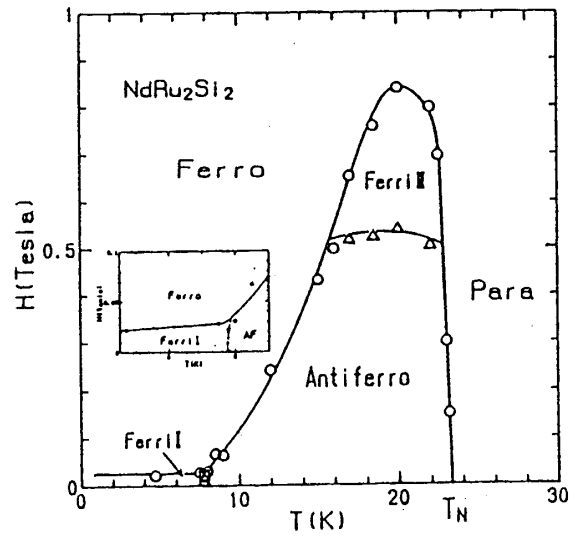


図9 NdRu_2Si_2 のH-T磁気相図

3) $T < 8\text{ K}$, 非常に低い磁場 $H < 0.4\text{ kOe}$, Ferri-I相： $k = [0.13, 0.13, 0]$ の反強磁性成分と $0.39 \mu_B/\text{f.u.}$ 強磁性成分を持つ, 4) 高磁場, Ferro相, $T = 4.2\text{ K}$ で $\mu = 2.8 \mu_B/\text{f.u.}$ を持つ。したがって、温度、磁場の变化にともなって、さまざまなタイプの磁気転移が見られる；磁場変化では、1) $T < 8\text{ K}$, Ferri-Ferro転移：ferro的な一段階メタ磁性転移, 2) $8\text{ K} < T < 15\text{ K}$, Antiferro-ferro転移：一段階メタ磁性転移, 3) $15\text{ K} < T < 24\text{ K}$, antiferro-ferri-ferro転移：二段階メタ磁性転移, また、温度変化では、低磁場側から、温度上昇とともに、ferri-antiferro, ferro-antiferroferro-ferri転移が見られる。このような振舞いを示す物質は、これまでにほとんど知られていないとおもわれる。このような複雑な振舞いは、これまでにある単純な分子場モデルなどではとうてい説明できそうもない。我々は、現在、不整合波分子場モデル^{3,4)}を二次元に拡張する事によって、その説明を試みているところである。さらなる、理論的研究の発展が期待される。

参考文献

- 1) B. Chevalier et al., J. Less-Common Met. 111 (1985) 161.
- 2) T. Shigeoka et al., J. Magn. Magn. Mat. 90&91 (1990) 557.
- 3) M. Date, J. Phys. Soc. Jpn. 57 (1988) 3682.
- 4) N. Iwata, J. Magn. Magn. Mat. 86 (1990) 225.