

層状金属間化合物 $\text{Gd}_{1-x}\text{La}_x\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の特異な磁性と伝導現象 (II) — $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の示す多段階メタ磁性転移と巨大磁気抵抗—

Unusual Magnetic and Transport Properties of Layered Intermetallic Compounds $\text{Gd}_{1-x}\text{La}_x\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ (II)
Multi-step Metamagnetism and Giant Magnetoresistance in the System $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$

藤原哲也・藤井博信・福田秀孝・繁岡 透*

広島大学総合科学部, 東広島市鏡山 1-7-1 (☎739-8521)

*山口大学理学部, 山口市吉田 1677-1 (☎753-8512)

T. Fujiwara, H. Fujii, H. Fukuda, and T. Shigeoka*

Faculty of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University, *Higashi-Hiroshima* 739-8521

*Faculty of Science, Yamaguchi University, *Yamaguchi* 753-8512

In this work, we studied the magnetic and transport properties of an intermetallic compound $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ with a ThCr_2Si_2 -type layered structure. $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ exhibits canted ferrimagnetism with ferromagnetic and antiferromagnetic components below $T_{11}=348$ K. With decreasing temperature, it moves into a non-collinear antiferromagnetic state at $T_{12}=244$ K, and finally transforms into a reentrant canted ferrimagnet at $T_{13}=142$ K. For $T_{13}<T<T_{12}$, a field induced metamagnetism from antiferromagnetism to ferrimagnetism occurs at relatively lower fields, accompanied with fractal like multi-step metamagnetic transitions, the so called “devil’s stair-case”. The appearance of such fractal like multi-step metamagnetic transitions may result from a step-like formation of ferrimagnetic clusters due to spin-flips of Mn moments that occur independently in the antiferromagnet when magnetic fields are applied as well as from a step-like growth of their ferrimagnetic clusters. In addition, a giant magnetoresistance effect ($\Delta\rho/\rho\sim 15\%$) was also observed at the metamagnetic transition.

Key words: $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$, antiferromagnetism, reentrant ferrimagnetism, magnetic phase transitions, metamagnetism, devil’s stair-case, giant magnetoresistance

1. はじめに

層状金属間化合物 RMn_2Ge_2 の研究は、反強磁性から強磁性への相転移¹⁾、リエントラント強磁性^{2), 3)}、メタ磁性転移に伴う巨大磁気抵抗^{4)~7)}など特異な現象が発見され、それらが互いにどのように相関しているのかといった観点から興味をもたれてきた。 RMn_2Ge_2 の結晶構造の特徴は、Mn 部分格子の最隣接 Mn-Mn 原子間距離 (c -面内における Mn-Mn 原子間距離) $R_{\text{Mn-Mn}}^c$ が c 軸方向の最隣接 Mn-Mn 層間距離 $R_{\text{Mn-Mn}}^z$ に比べて、約半分程度と短いため、Mn 部分格子の二次元性を強く反映した興味深い磁性の出現が期待されることである。前の論文「層状金属間化合物 $\text{Gd}_{1-x}\text{La}_x\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の特異な磁性と伝導現象 (I)」⁸⁾ において、筆者らは擬三元系層状化合物 $\text{Gd}_{1-x}\text{La}_x\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ ($0\leq x\leq 1.0$) の磁性について実験結果を報告してきた。その成果を要約すると、(1) GdMn_2Ge_2 は室温で反強磁性を示すが、低温で反強磁性からフェリ磁性へと 1 次相転移する。(2) La 濃度が $0.05\leq x<0.1$ においては、温度の降下とともに、フェリ磁

性から反強磁性へ転移した後、再びフェリ磁性が出現し、 SmMn_2Ge_2 で見られたのと同様なリエントラントな振舞が再現される。また、(3) これらのフェリ磁性、反強磁性やリエントラント・フェリ磁性は、層間磁性および層内磁性の臨界距離モデルによって、Mn モーメントが c -軸および c -面内成分をもつ三次元的ノン・コリニアな磁気構造であることが示された。(4) 層内臨界距離モデルとは、同一層内 (c -面内) の Mn モーメントが、 $R_{\text{Mn-Mn}}^c<2.84$ Å ではコリニアな反強磁性配列し、 $R_{\text{Mn-Mn}}^c\geq 2.84$ Å では、キャンとしたフェリ磁性をとる⁹⁾。一方、層間臨界距離モデルとは、層間 (c -面間) の Mn モーメントが $R_{\text{Mn-Mn}}^z>2.85$ Å では強磁性結合し、 $R_{\text{Mn-Mn}}^z\leq 2.85$ Å では反強磁性結合する^{2), 3)}。(5) さらに La 濃度が増すと、 $0.10<x<1.0$ では、全秩序温度範囲において c -軸方向に強磁性成分をもち c -面内に反強磁性成分をもつキャン・フェリ磁性を示す。(6) 加えて、フェリ磁性の磁化の補償現象が、 $x<0.50$ の組成の化合物において観測される。(7) 補償温度の出現は 2 部分格子の分子場モデルにより解析され、Gd 部分格子に作用する分子磁場 ($H_{\text{Gd}}=30$ T) が、Mn 部分格子に作用する分子磁場 ($H_{\text{Mn}}=286$ T) に比べて 1 桁小さいことにより、Gd 部分格子の磁気モーメントが Mn 部分格子より温度に対して急速に減少することによって現れることが明らかにされた。

本論文は、前論文 (I) に引き続き、 $\text{Gd}_{1-x}\text{La}_x\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の中で最も興味深い $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ 系に焦点を絞って、メタ磁性転移と磁気伝導現象についての実験結果を報告する。

2. 試料作製と実験方法

$\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の多結晶試料の作製は、以下のような手順で行った。まず二元合金 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}$ を Ar ガス雰囲気中においてアーク溶解することによって作製した。次に、 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}$ 合金と Ge を化学量論比に、蒸気圧の高い Mn については化学量論比よりも ~5% 程度リッチに秤量し、再度 Ar ガス雰囲気中においてアーク溶解することによって多結晶試料を作製した。その後、多結晶試料を Mo 箔に包み石英管に封入し、 1.0×10^{-6} Torr の真空雰囲気中において 1 週間、900°C の温度条件で均質化処理を施した。室温での粉末 X 線回折 ($\text{Cu-K}\alpha$) の結果、試料が体心正方晶 ThCr_2Si_2 型結晶構造の単相であることを確認した。

$\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ および TbMn_2Ge_2 単結晶試料はブリッジマン法により育成した。 1.0×10^{-6} Torr の真空雰囲気中で空焼きし十分にガス抜きを施した MgO 坩堝に、アーク溶解によって得た多結晶試料を入れ、最高温度 $1,360^\circ\text{C}$ で 1 atm になるように Ar ガス量を調整し石英管に封入した。この封入石英管を縦型電気炉にセットし、 $1,360^\circ\text{C}$ で 6 時間保持した後、 $500^\circ\text{C}/\text{h}$ で 800°C まで降温し 40 時間程度保持した。できたインゴットは背面ラウエ法により撮影したラウエ写真によって体心立方晶 ThCr_2Si_2 型結晶構造の単相の単結晶であることを確認した。この方法で育成された単結晶は $0.5 \sim 0.8$ g 程度の重さであった。

磁化測定は、試料振動型磁力計によって、1.6 T までの磁場中で、4.2 K から 480 K までの温度範囲において行った。一定温度での磁化曲線の測定は、温度を ± 0.05 K 以内に一定に保ち、1.5 T/min の速さで磁場を作用させ行った。電気抵抗の測定は標準的な直流四端子法によって行った。磁気抵抗の測定は超伝導マグネットにより、最高 6 T までの磁場を印加し行った。

3. 実験結果と考察

3.1 多段階メタ磁性転移

Fig. 1(a) および (b) には、 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の 4.2 K での各温度での磁化の磁場依存および $H=1.0$ T の磁場中で測定した磁化の温度依存が示されている。Fig. 1(a) より明らかなよう

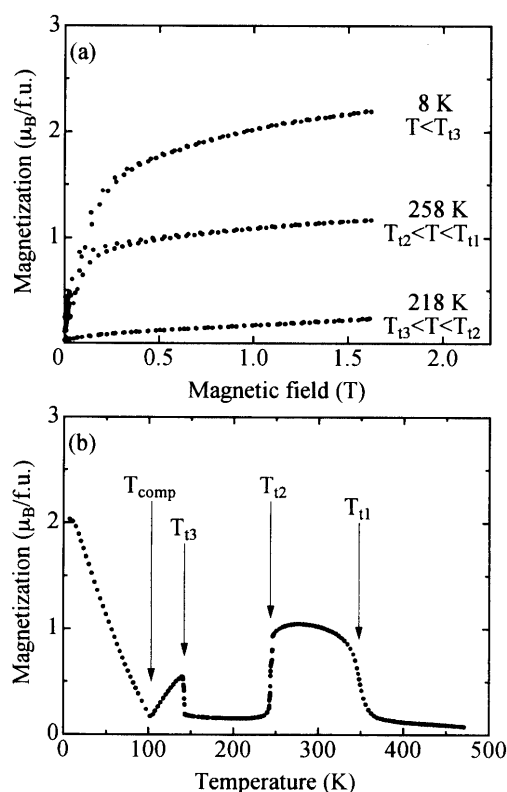


Fig. 1 Plots of (a) magnetizations as a function of the magnetic field at 8.0 K (below T_{13}), 218 K (between T_{13} and T_{12}), and 258 K (between T_{12} and T_{11}), and (b) the magnetization at $H=1.0$ T as a function of the temperature for $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$.

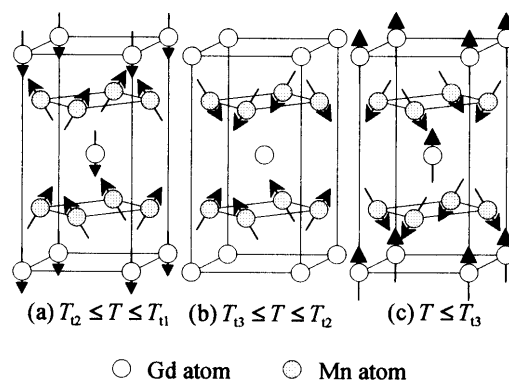


Fig. 2 Magnetic structure of $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$.

に、 $T_{12} < T < T_{11}$ および $T < T_{13}$ では、磁化曲線は自発磁化をもつフェリ磁性的な振舞を示しているが、 $T_{13} < T < T_{12}$ では磁化は飽和傾向はなく反強磁性的である。つまり、温度降下とともに、常磁性→フェリ磁性→反強磁性→リエントラント・フェリ磁性→磁化補償現象→フェリ磁性へと極めて多彩な磁気転移現象を示している。なお、本実験で得た多結晶試料は、Fig. 1(b) に示すように $T_{12}=244$ K および $T_{13}=142$ K での転移が極めてシャープであることより、組成の揺らぎの少ない良質なものであることを暗示している。Fig. 2 には、磁化測定より推定した上述の各相の磁気構造を示す。残念ながら、熱中性子に対する Gd の吸収係数が大きいため、中性子回折実験によって各相の磁気構造を確定することができなかったが、上述の磁気構造は、 SmMn_2Ge_2 の磁気構造¹⁰⁾を基に、実測した磁化曲線を説明する最も妥当なモデル構造であるといえる。まず、 $T < T_{11}$ では $R_{\text{Mn-Mn}} > 2.85$ Å であるので、Fig. 2(a) に示すように、層内磁性の臨界距離モデルより Mn の磁気モーメントは c -軸方向に強磁性成分をもち、 c -面内に反強磁性成分をもつキャント・フェリ磁性を示し、Gd モーメントは Mn スピンからの交換磁場により c -軸方向を向いた構造をとる。このとき、自発磁化は $\langle M \rangle = 2\langle \mu_{\text{Mn}}^F \rangle - \langle \mu_{\text{Gd}}^F \rangle$ で与えられる。ここで、 $\langle \mu^F \rangle$ は強磁性モーメント成分の熱平均値を表している。降温とともに、 2.84 Å $< R_{\text{Mn-Mn}} \leq 2.85$ Å となり、 $T_{13} < T < T_{12}$ では同一層内の Mn モーメントは、Fig. 2(b) に見られるように、 c -軸から傾き c -面内に反強磁性成分をもつキャント強磁性結合し、それらが層間で反強磁性的に配列した三次元的な反強磁性構造をとる。このとき、Gd モーメントは Mn から分子磁場を感じないので、無秩序化している。さらに、 $T < T_{13}$ では、Gd-Gd 間の強磁性的交換相互作用が有効に働き始め、Gd-Mn 間の交換相互作用を通して、キャントしたリエントラント・フェリ磁性が出現する。そのとき、 $T_{\text{comp}} < T$ では、一分子当たり $\langle M \rangle = 2\langle \mu_{\text{Mn}}^F \rangle - \langle \mu_{\text{Gd}}^F \rangle$ で与えられる自発磁化を示し、 $T < T_{\text{comp}}$ では自発磁化が $\langle M \rangle = \langle \mu_{\text{Gd}}^F \rangle - 2\langle \mu_{\text{Mn}}^F \rangle$ で与えられるキャント・フェリ磁性をとる。

反強磁性領域に当たる一次転移点 T_{12} , T_{13} 近傍の温度での等温磁化曲線を Fig. 3(a) および (b) に示す。本実験で使った $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ は、多結晶試料であるにもかかわらず、極めてシャープな磁場誘起メタ磁性転移が起こっている。驚くべきことに、その磁化過程は、これまで報告されているさまざまな RMn_2Ge_2 のメタ磁性転移とは全く異なって、デビルズ・ス

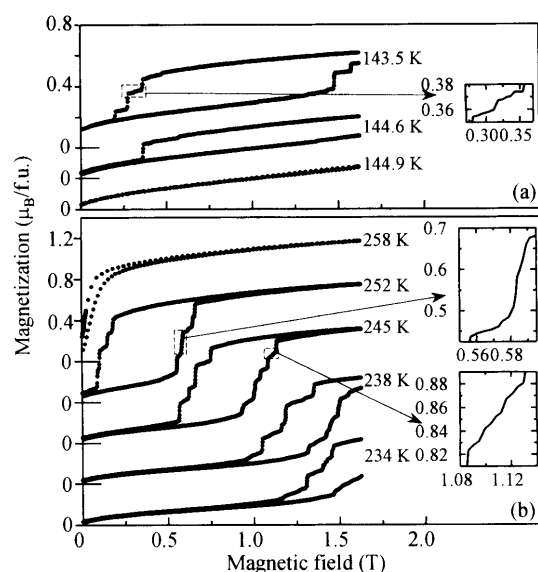


Fig. 3 Plots of magnetizations as a function of the magnetic field in the antiferromagnetic state for $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$.

テア・ケース (devil's stair case—悪魔の階段—) と呼ばれる多段階に及ぶ磁化の鋭い立ち上がりを伴っている。さらに、一見直線的に見える磁化曲線の任意の一部分を拡大してみると、さらにその中に非常に多くの小さな磁化の跳びが起こっていることが見てとれる。その形はまさに自己相似性 (フラクタルズ) を連想させる。このような特異な磁化過程は、これまで全く観測されたことのない現象であり、その発現メカニズムの解明は今後の課題である。可能性としては、反強磁性体の中で磁場に対してミクロな磁気モーメントの反転が原子レベルのサイズで半ば独立に起こっていることにより生成する (1) フェリ磁性クラスターのステップ・ライクな形成と同時に、(2) 生成したフェリ磁性クラスターの磁場に対するステップ・ライクな成長に起源していると推論している。このような状況は組成の統計的な揺らぎに基づくスピン系の自由エネルギー最小の状態が無限小のエネルギー差の中に無数に存在し、それらの間に摩擦が存在していることにより生まれているのかもしれない。いずれにしても、この系の特徴である、(1) 磁気異方性の極めて小さい、(2) 種々の強磁性・反強磁性交換相互作用が競合している、(3) 三次元的自由度をもったスピン系であることに由来しているに違いない。

なお、ここでは、1.5 T/min の磁場スイープ速度で磁化測定を行った実験結果を示しているが、1.5 T/10 min の磁場スイープ速度で同様な実験を行った結果もほとんど同じ結果を与えた。したがって、上記のフラクタル・ライクな多段階メタ磁性転移の実験結果は本質的な描像をとらえたものであるといえる。

3.2 磁気伝導特性

Fig. 4(a) に多結晶 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の電気抵抗率 ρ^{poly} の温度変化を示す。一次転移点 T_{12} , T_{13} 付近において電気抵抗率の異常な変化が認められる。つまり、反強磁性相での電気抵抗率はフェリ磁性相でのそれより 10~15% 程度大きいことを示唆している。150 K 以下での温度依存の振舞は繁岡らによって

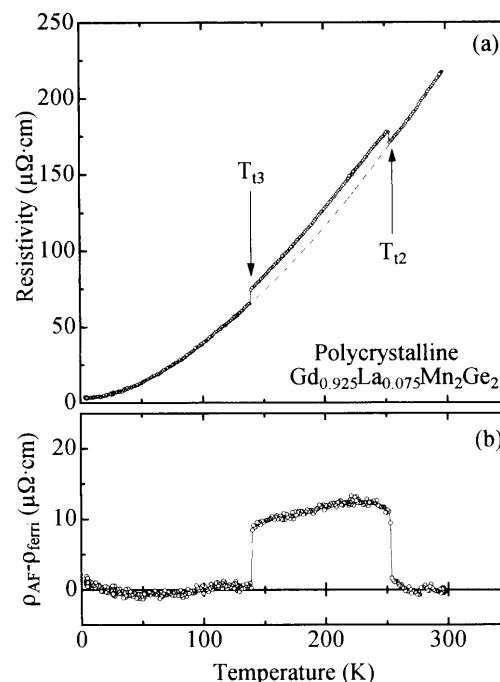


Fig. 4 Plots of (a) the resistivity as a function of the temperature for polycrystalline $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$, and (b) excess resistivity in the antiferromagnetic state compared with the ferrimagnetic state ($\rho_{\text{AF}} - \rho_{\text{ferr}}$) in $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$.

報告されている GdMn_2Ge_2 の結果^{11), 12)} と酷似しており、全体的には $\rho \propto T^{-1.6}$ の金属的な温度依存性を示している。反強磁性状態での電気抵抗率の実測値からフェリ磁性状態の電気抵抗率の成分 (図中破線: フェリ磁性状態の電気抵抗率を $T^{1.6}$ 則に従うとして対数プロットから求めた) を差し引いた $\Delta\rho = \rho_{\text{AF}} - \rho_{\text{ferr}}$ は Fig. 4(b) のようになる。反強磁性状態における電気抵抗率はフェリ磁性状態よりも 10~15 ($\mu\Omega\cdot\text{cm}$) 高く、Brabers らの多結晶 SmMn_2Ge_2 の振舞^{4), 6)} とよく似ている。つまり、 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ についても、 $T_{13} < T < T_{12}$ の温度範囲で反強磁性からフェリ磁性への磁場誘起メタ磁性相転移に伴って巨

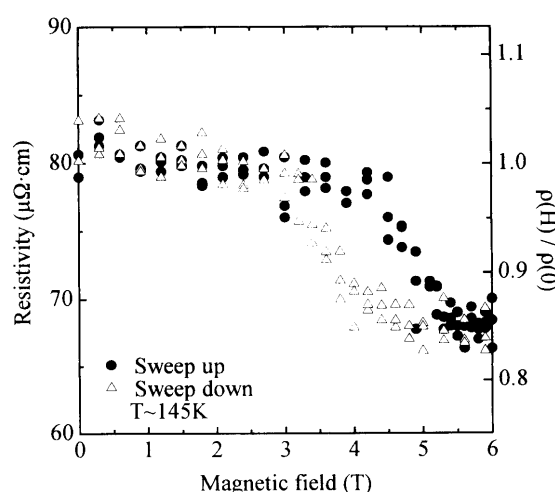


Fig. 5 Plot of the resistivity as a function of the magnetic field at $T \sim 145$ K for polycrystalline $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$.

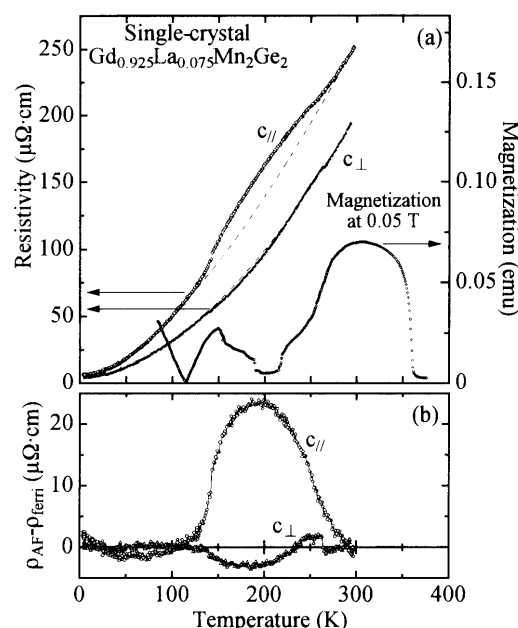


Fig. 6 Plots of (a) the magnetization at 0.05 T and resistivities along the *c*-axis and *c*-plane as a function of the temperature for single-crystalline $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$, and (b) excess resistivities along the *c*-axis and *c*-plane in the antiferromagnetic state compared with the ferrimagnetic state ($\rho_{\text{AF}} - \rho_{\text{ferri}}$) in single-crystalline $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$.

大磁気抵抗効果 (GMR) の発現が期待できる。Fig. 5 は T_{13} 直上の $T \sim 145$ K における等温磁気抵抗曲線である。電気抵抗率 ρ は磁場上昇過程では $H \sim 4.9$ T において、磁場下降過程では $H \sim 3.7$ T において電気抵抗率に不連続な減少が見られている。測定点にばらつきが大きい原因は、試料が太く短いため実験精度が悪い点にあるが、磁化の多段階ステップの影響を含んでいる可能性も見逃せない。今、磁気抵抗効果を $\Delta\rho/\rho = (\rho_{\text{AF}} - \rho_{\text{ferri}})/\rho_{\text{AF}}$ で定義すると、 $\Delta\rho/\rho \cong 15\%$ at 145 K の巨大磁気抵抗を示している。

この GMR の発現メカニズムを理解するために、 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の単結晶を用いた磁化および磁気抵抗効果の実験を行った。Fig. 6(a) に単結晶 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ に関して $H = 0.05$ T における *c*-軸方向 (磁化容易方向) の磁化と *c*-軸方向および *c*-面内の電気抵抗率 (それぞれ $\rho_{c\parallel}$, $\rho_{c\perp}$) の温度変化を示す。磁化の振舞は多結晶と比較すると、 T_{13} , T_{12} での一次転移はブロードになり、反強磁性相の温度領域がかなり狭くなっている。これは、 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の単結晶固有の振舞というよりは、ブリッジマン法により単結晶試料を育成したために試料中の構成元素の組成比の揺らぎがアーク溶解によって作製した多結晶試料中より大きいためと考えられる。また、磁化の温度依存性にステップ状の磁化の変化が観測されている。これは、前述した磁化の多段階メタ磁性転移を反映したものであるといえよう。

Fig. 6(a) に見られる *c*-軸方向および *c*-面内の電気抵抗率 $\rho_{c\parallel}$ および $\rho_{c\perp}$ は、それぞれ $T^{-1.5}$ および $T^{-1.8}$ に比例した温度依存特性を示し、その大きさは $\rho_{c\parallel} > \rho_{c\perp}$ である。これは、Mn3d 電子はおもに *c*-面内で遍歴性がより強いことを示唆

しており、Mn 部分格子の二次元性を反映した結果といえる。*c*-軸方向の電気抵抗率に関しては、 $140 \text{ K} \leq T \leq 260 \text{ K}$ においてハンプが見てとれる。つまり、反強磁性の出現に伴って電気抵抗が増大しており、多結晶の振舞と一致している。一方、*c*-面内に関しては、転移点 T_{12} 付近の $T \sim 250 \text{ K}$ において、わずかな異常が見られるが、転移点 T_{13} 近傍では、これといった変化は認められない。Fig. 6(b) には、各主軸方向の電気抵抗率の実測値から、フェリ磁性状態の電気抵抗の成分 (図中の破線) を差し引いた $\Delta\rho$ を温度に対してプロットしてある。反強磁性配列による電気抵抗率の増加分は、*c*-軸方向に関しては、 $T \sim 200 \text{ K}$ において $\Delta\rho \sim 24 (\mu\Omega\cdot\text{cm})$ と評価され、単純に絶対値だけを比較すると多結晶の約 2 倍に達し、おもに *c*-軸方向の伝導特性が多結晶の巨視的な測定結果に反映していることをうかがわせる。この反強磁性秩序化による電気抵抗率の増大は反強磁性配列に伴って起こるフェルミ面の再構築に起源していると思われる。今、単純正方晶を形成している Mn 部分格子の *c*-軸成分のみに着目すると、フェリ磁性相では *c*-軸方向を容易軸とした強磁性配列であるのに対して、反強磁性相では同一層内で強磁性結合した Mn 層モーメントが *c*-軸に沿って + - + - の順に配列し、2 倍の磁気超格子を形成している。その結果、第一ブリルアン・ゾーンの *c*-軸方向に沿ってバンドギャップが生じ、フェルミ面の面積が減少 (伝導電子が減少) している可能性が強い。このような例は局在モーメント系、遍歴モーメント系を問わず金属間化合物において多く報告されている。局在モーメント系の典型例としては層状ウラン化合物の $\text{UNiGa}^{13, 14}$ 、遍歴モーメント系では CsCl-型結晶構造をもつ反強磁性体 Cr および Cr-Mn 合金¹⁵⁾などがそうである。

一方、*c*-面内の $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ の伝導特性は、Fig. 6(b) を見る限り、反強磁性配列が及ぼす効果は複雑である。 $240 \text{ K} \leq T \leq 260 \text{ K}$ では反強磁性配列に伴って電気抵抗が高くなっているものの、 $140 \text{ K} \leq T \leq 240 \text{ K}$ ではむしろ低くなる傾向が見られ、正の寄与と負の寄与が混在していることを示唆している。Tomka らは、 SmMn_2Ge_2 の磁気構造¹⁰⁾を基に、 SmMn_2Ge_2 の *c*-面内の電気抵抗率は反強磁性相の方が強磁性相のものより数%程度小さい原因を次のように説明している。 SmMn_2Ge_2 は $T \leq T_{11}$ のすべての磁気相において、Mn モーメントがキャンテしたノン・コリニアな磁気構造を形成しており、*c*-面内の反強磁性 Mn モーメント成分が *c*-面内の伝導電子を散乱する要因となると考えた。つまり、 SmMn_2Ge_2 では、リエントラント強磁性相 ($T \leq T_{13}$)、強磁性相 ($T_{12} \leq T \leq T_{11}$)、および $T_{13} \leq T \leq T_{12}$ でのメタ磁性転移後の磁場誘起強磁性状態の *c*-面内反強磁性モーメント成分が、 $T_{13} \leq T \leq T_{12}$ での $H = 0$ の反強磁性状態の *c*-面内モーメント成分よりも大きいことから、 $\rho_{\text{AF}}^{c\text{-plane}} < \rho_{\text{F}}^{c\text{-plane}}$ であると説明している。したがって、Fig. 6(b) に見られるように、 $\text{Gd}_{0.925}\text{La}_{0.075}\text{Mn}_2\text{Ge}_2$ において反強磁性秩序により *c*-面内の電気抵抗率が小さくなる現象 ($140 \text{ K} \leq T \leq 240 \text{ K}$) が見られている以上、*c*-面内の反強磁性構造を考慮しなければならないことを示唆している。

それでは、*c*-面内の反強磁性成分のない TbMn_2Ge_2 ($T \leq T_{13} = 95 \text{ K}$ ではコリニアな *c*-面フェリ磁性、 $T_{13} \leq T \leq T_N = 417 \text{ K}$ ではコリニアな *c*-面反強磁性)¹⁶⁾ の *c*-面内の電気抵抗はどのよ

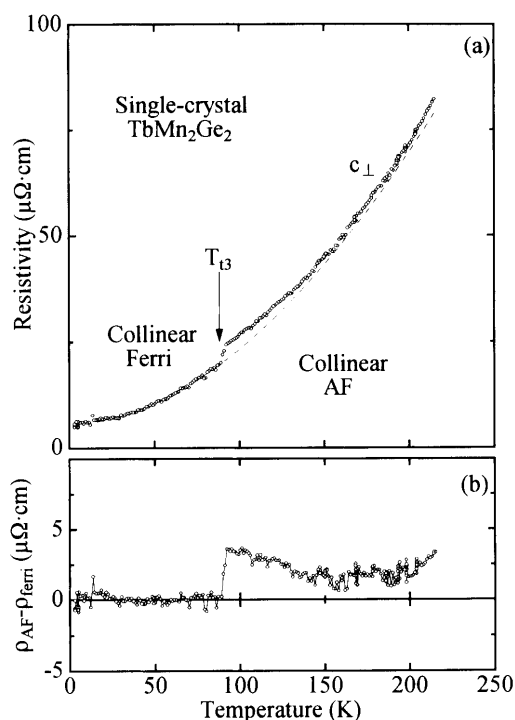


Fig. 7 Plots of the resistivity along the c -plane and $(\rho_{AF}^{c\text{-plane}} - \rho_{Ferri}^{c\text{-plane}})$ as a function of the temperature for single-crystalline $TbMn_2Ge_2$.

うな振舞を見せるのであろうか。Fig. 7(a)に、 $TbMn_2Ge_2$ の c -面内の電気抵抗の温度変化を示す。図から明白のように、一次転移点 T_{13} において明確な電気抵抗率の異常が見られ、 c -軸方向に沿ってのコリニアは反強磁性配列によって c -面内の電気抵抗率が増加している。電気抵抗の温度依存特性は、 $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ と同様に $\rho \propto T^{-1.8}$ 則に従っているとして求めた反強磁性配列による c -面内電気抵抗率の増加分 $\Delta\rho$ は3~4 ($\mu\Omega\cdot cm$)程度である。したがって、 $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ の示す c -面内の電気抵抗率の振舞には、 c -軸方向の反強磁性配列による正の寄与と c -面内の反強磁性配列に伴う負の寄与が同時に関与しており、それらの効果が拮抗し、かつ、異なった温度依存性をもっていることに起源していると推測される。

4. 結 論

本研究において、層状化合物 $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ のメタ磁性転移現象と磁気伝導特性の研究を行った。その結果、

(1) $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ は温度降下とともに、常磁性→フェリ磁性→反強磁性→リエントラント・フェリ磁性→磁化補償現象→フェリ磁性へと極めて多彩な磁気転移現象を示すことを明らかにした。

(2) 多結晶 $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ の反強磁性温度領域における、 T_{12} , T_{13} 近傍の温度で等温磁化曲線を測定したところ、悪魔の階段（デビルズ・ステア・ケース）と呼ばれる多段階にわたっての磁化の鋭い立ち上がりを伴ったメタ磁性転移が観測された。

(3) さらに、メタ磁性転移の途中における一見直線的に見える磁化過程の任意の一部を拡大してみると、その中に非常に多くの小さな磁化の飛びが観測された。その形は自己相似性（フ

ラクタルズ）を連想させるもので、本実験によって初めて見いだされた。

(4) 多結晶 $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ に対して、 $T \sim 145$ K の温度において、反強磁性からフェリ磁性へのメタ磁性転移に伴う磁気抵抗効果を測定した結果、 $\Delta\rho/\rho = (\rho_{AF} - \rho_{ferri})/\rho_{AF} \sim 15\%$ の負の巨大磁気抵抗効果を観測した。

(5) $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ 単結晶の磁気抵抗効果の測定より、 $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ の c -軸方向の電気抵抗率はフェリ磁性から反強磁性への転移に伴って20~30%程度増大するが、 c -面内の電気抵抗率はほとんど変化しないことを明らかにした。

(6) さらに、 $TbMn_2Ge_2$ 単結晶の磁気抵抗効果の測定より、 c -面内の電気抵抗率には、 c -軸成分のフェリ磁性から反強磁性への転移に伴って起こる正の磁気抵抗効果に加えて、 c -面内の反強磁性秩序状態の変化による負の効果が拮抗していることを明らかにした。

(7) つまり、多結晶 $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ において観測された負のGMRは、 c -軸方向のMnモーメントの反強磁性から強磁性への磁気秩序の変化をおもに反映したものであると結論される。

謝 辞 単結晶 $Gd_{0.925}La_{0.075}Mn_2Ge_2$ を育成するにあたり、

非常に有益な助言をしていただいた東北大学理学研究科の小林寿夫博士にこの紙面を借りて感謝致します。また、広島大学低温センターにおいて、液体ヘリウムの供給および試料振動型磁力計の利用の便を図っていただいたことに対して感謝いたします。

文 献

- 1) A. Szytula and J. Leciejewicz: Handbook on the Physical and Chemistry of Rare Earths, ed. by K. A. Gschneidner, Jr. and L. Eyring, Vol. 12, Chapter 83, p. 133 (North-Holland, Amsterdam, 1989).
- 2) H. Fujii, T. Okamoto, T. Shigeoka, and N. Iwata: *Solid State Commun.*, **53**, 715 (1985).
- 3) H. Fujii, M. Isoda, T. Okamoto, T. Shigeoka, and N. Iwata: *J. Magn. Magn. Mat.*, **54-57**, 1345 (1986).
- 4) J. H. V. J. Brabers, K. Bakker, H. Nakotte, F. R. de Boer, S. K. J. Lenczowski, and K. H. J. Buschow: *J. Alloys Comp.*, **199**, L1 (1993).
- 5) R. B. van Dover, E. M. Gyorgy, R. J. Cava, J. J. Krajewski, R. J. Felder, and W. F. Peck: *Phys. Rev. B*, **47**, 6134 (1993).
- 6) J. H. V. J. Brabers, A. J. Nolten, F. Kayzel, S. H. J. Lenczowski, K. H. J. Bushow, and F. R. de Boer: *Phys. Rev. B*, **50**, 16410 (1994).
- 7) E. V. Sampathkumaran, P. L. Paulose, and R. Malik: *Phys. Rev. B*, **54**, R3710 (1996).
- 8) 藤原哲也, 藤井博信, 繁岡 透: 日本応用磁気学会誌, **24**, 000 (2000).
- 9) G. Venturini, R. Weklter, E. Ressouche, and B. Malaman: *J. Magn. Magn. Mat.*, **150**, 197 (1995).
- 10) G. J. Tomka, C. Ritter, P. C. Riedi, Cz. Kapusta, and W. Kochemba: *Phys. Rev. B*, **58**, 6330 (1998).
- 11) T. Shigeoka, H. Fujii, H. Fujiwara, K. Yagasaki, and T. Okamoto: *J. Magn. Magn. Mat.*, **31-34**, 209 (1983).
- 12) T. Shigeoka: *J. Sci. Hiroshima Univ. Ser. A*, **48**, 103 (1984).
- 13) V. Sechovský, L. Havela, L. Jirman, W. Ye, T. Takabatake, H. Fujii, E. Brück, F. R. de Boer, and H. Nakotte: *J. Appl. Phys.*,

- 70, 5794 (1991).
- 14) V. N. Antonov, A. Ya. Perlov, P. M. Oppeneer, A. N. Yaresko, and S. V. Halilov: *Phys. Rev. Lett.*, **77**, 5253 (1996).
- 15) S. Maki and K. Adachi: *J. Phys. Soc. Jpn.*, **46**, 1131 (1979).
- 16) L. Morellon, P. A. Algarabel, M. R. Ibarra and C. Ritter: *Phys. Rev. B*, **55**, 12363 (1997).

1999 年 12 月 16 日受理, 2000 年 1 月 25 日採録