

## 立方晶ラーベス相構造をもつ金属間化合物の電子構造と磁性

岐阜大・教養<sup>A)</sup>, 名大・工<sup>B)</sup> 山田鏗二<sup>A)</sup>, 志水正男<sup>B)</sup>

これまでに我々は立方晶ラーベス相構造をもつ種々の遷移金属間化合物中のd電子の電子構造をtight-binding近似で計算し、これらの化合物の磁性がフェルミ準位付近の状態密度曲線の形状によって説明される事を示した。最近、我々は反強磁性YMn<sub>2</sub>の電子構造を同じ方法で計算しその磁性を議論した。更に、GdMn<sub>2</sub>の磁気構造についての考察も行った。又、ScCo<sub>2</sub>, YCo<sub>2</sub>及びLuCo<sub>2</sub>のメタ磁性に関する研究も行ったのでこれらを併せて報告する。

### A) 反強磁性YMn<sub>2</sub>の電子構造と磁性

我々はまず常磁性状態でのYMn<sub>2</sub>に種々のQベクトルをもったstaggered magnetic field をかけた時の誘導磁気モーメントの計算結果から、unenanced staggered spin susceptibilityを求めた。中村等による中性子散乱の実験で見いだされた磁気構造に合致するような磁場の時、その帯磁率の計算値が最も大きくなるので、この磁気構造がエネルギー的に安定であると考えられる。次に、反強磁性YMn<sub>2</sub>中のd電子の電子構造を計算した。電子間交換相互作用はハートレー・フォック近似で扱い、その大きさはMnの副格子モーメントの計算値と実験値とが一致するように選ばれた。Mnの局所状態密度のmajority spin bandは電子によって殆ど占められ、フェルミ準位はminority spin bandの中に位置している事が示される。計算された状態密度曲線のフェルミ準位での値から評価された低温電子比熱の係数 $\gamma$ は測定値と良く一致している。更に、Mnの副格子モーメントの大きさと格子定数との関係を議論する。d電子の原子間hopping積分はその原子間距離の5乗に逆比例するので、格子定数に敏感である。種々の格子定数でMnの副格子モーメントの値を計算した。ここで、電子間交換相互作用の値は格子定数に依らず一定と仮定された。格子定数が7.5 Å以上での計算結果は吉村等によるNMRでのRMn<sub>2</sub>中のMn副格子モーメントの測定値と非常に良く一致している。しかし、格子定数が7.5 Å以下でもMnの副格子モーメントの計算値は単調に減少し、実験のように急激に0にはならなかった。この結果は、Mnの磁気モーメントが格子定数7.5 Å以下で消失しているのではなく、比較的小さなモーメントをもつ他の磁気構造になっている可能性を示唆しているかもしれない。反強磁性状態に於けるYMn<sub>2</sub>の帯磁率の測定値は非常に大きい。反強磁性状態での帯磁率 $\chi$ は多結晶の場合平行帯磁率 $\chi_{||}$ と垂直帯磁率 $\chi_{\perp}$ を用いて $\chi = \chi_{||}/3 + 2\chi_{\perp}/3$ と表される。この $\chi_{||}$ と $\chi_{\perp}$ の値を計算するため、有限の磁場をMnの副格子モーメントの方向に平行及び垂直にかけた状態での反強磁性YMn<sub>2</sub>中の電子構造を計算し、誘導磁気モーメントを求め、その値から $\chi_{||}$ と $\chi_{\perp}$ の値を評価した。Mnのmajority spin bandはフェルミ準位より低エネルギー側に位置しているため $\chi_{||}$ の値は非常に小さく、多結晶について0 Kでの $\chi$ の測定値は殆ど $\chi_{\perp}$ である事が示される。

### B) GdMn<sub>2</sub>の磁気構造

A)で議論したように反強磁性状態に於けるYMn<sub>2</sub>の帯磁率の測定値は非常に大きく、それが殆ど垂直帯磁率によるものであるという計算結果に着目し、GdMn<sub>2</sub>の磁気構造についての考察を行う。まず、GdMn<sub>2</sub>とYMn<sub>2</sub>の格子定数は殆ど同じである事から、これらの化合物ではMnの磁気モーメントは反強磁性的に配列し、GdとYの伝導電子の電子構造は同じで

あると仮定する。Gdの4f電子は局在し、その局在モーメントはGdの5d電子には平行に、Mnの3d電子には逆方向にexchange fieldを及ぼす。そのため、互いに反強磁性的になっているMnのモーメントは、その $\chi_1$ の値が $\chi_2$ の値に比べ充分大きいので、exchange fieldの方向に垂直になり、更にその方向にMnのモーメントが傾くと考えられる。この事柄を確かめるため、仮想的に反強磁性YMn<sub>2</sub>のYサイトに3000 T、Mnサイトに-367 Tの外場をかけ、その電子構造を前と同じ方法で計算した。その結果次のような事が得られた。(1)Yの4d電子は外場と同じ向きに原子当たり0.68 $\mu_B$ 分極する。(2)Mnの副格子モーメントの大きさは原子当たり3.0 $\mu_B$ となる。(3)Mnの副格子モーメント同志は67度の角度を保ち、Yの磁気モーメントの方向と逆向きになる。GdMn<sub>2</sub>のd電子の電子構造がYMn<sub>2</sub>のものと同じであると仮定すれば、Gdの5d電子は原子当たり0.68 $\mu_B$ 分極し、Mnの3d電子の磁気モーメントはGdの磁気モーメントと逆向きで、原子当たり3.0  $\mu_B$ のキャントした反強磁性磁気構造となっていると推察される。更に、GdMn<sub>2</sub>全磁気モーメントの大きさはformula unit当たり2.7 $\mu_B$ となり、大体実験値と一致している。このようにGdの局在モーメントの作るexchange fieldによりMnの磁気モーメントがキャントする事が予想されるが、キャントしたMnの磁気モーメントの水平成分はGdの局在モーメントと逆向きとなっている。これはGdの局在モーメントがMnサイトに逆向きのexchange fieldを及ぼしている事も原因であるが、Mnの3d状態とGdの5d状態との混じり方がmajority spinバンドとminority spinバンドで異なり、そのためMnの磁気モーメントの水平成分がGdの局在モーメントと逆向きになる事もその原因であると考えられる。このmajority spinバンドとminority spinバンドとで3d-5d状態のhybridizationが異なりGdのモーメントとMnのモーメントの水平成分が逆向きになるという事実は、同じ結晶構造をもつRCO<sub>2</sub>やRFe<sub>2</sub>で実験的にも理論的にも確かめられており、原子価の差が大きい元素の二元系化合物共通の現象である。

### C) ScCo<sub>2</sub>, YCo<sub>2</sub>およびLuCo<sub>2</sub>のメタ磁性

以前、我々はYCo<sub>2</sub>のメタ磁性を議論し、常磁性から強磁性(又は、フェリ磁性)へ転移する磁場が90 Tであると予測した。最近、Aleksandryan等や榊原等はYCo<sub>2</sub>と同じ結晶構造をもつY(Co<sub>1-x</sub>Al<sub>x</sub>)<sub>2</sub>の0.07<x<0.11の組成領域でメタ磁性を見いだしている。メタ磁性を起こす限界磁場は組成xに敏感に依存し、x=0への概挿値は約100 Tとなっている。この測定結果は我々の推定値と大体一致している。我々はScCo<sub>2</sub>やLuCo<sub>2</sub>の電子構造がYCo<sub>2</sub>と非常に良く似ている事から、ScCo<sub>2</sub>やLuCo<sub>2</sub>でもYCo<sub>2</sub>のようにメタ磁性が起きると考え、これらの化合物の0 Kにおける限界磁場を計算した。YCo<sub>2</sub>で行ったように有限の磁場をかけた状態での電子構造をtight-binding法で計算し、電子間相互作用をハートレー・フォック近似で扱った。この相互作用の大きさは、低磁場での帯磁率の計算値と測定値が一致するように選ばれた。100 Tの磁場の領域で常磁性と強磁性の2つのself consistentな解がある事が判った。この2つの状態のエネルギーを比較し、メタ磁性の限界磁場を評価した。その結果、LuCo<sub>2</sub>での限界磁場は95 T、ScCo<sub>2</sub>は120 Tと得られた。このようにSc, Y, LuとCoの化合物は電子構造が良く似ており、フェルミ準位が状態密度曲線のピークの直上にあるため、帯磁率の温度変化や磁場変化に異常が現れる事が電子論的な立場から理解される。