

# 遍歴電子メタ磁性とインバー効果

信州大学理学部 山田 鋤二, 寺尾 洸

(1994年12月26日受理)

## 1. はじめに

最近、遍歴電子メタ磁性に関する研究が実験的にも理論的にも盛んに行われている。遍歴電子の電子構造の特異性により、磁場が0の場合には常磁性状態が安定であったとしても、有限の磁場のもとでは強磁性状態のエネルギーが低くなる場合がある。この場合、ある臨界磁場で常磁性状態から強磁性状態へ1次の相転移を起こす。この磁気相転移は、最初、Wohlfarth と Rhodes [1] によって指摘された。こうした磁性は、局在電子モデルによる反強磁性状態から強磁性状態へのメタ磁性とは異なるため、「遍歴電子メタ磁性」と呼ばれている。Shimizu [2] は自由エネルギーを Landau 展開し、メタ磁性出現条件を求めている。これらの理論の詳細は別の機会に述べるとして、最近我々は遍歴電子メタ磁性とインバー効果とに密接な関わりがあることを見出した [3] ので、本稿では、それを中心に述べることにする。

自由エネルギー  $\Delta F$  を磁化  $M$  について6次まで Landau 展開する。

$$\Delta F = \frac{1}{2}aM^2 + \frac{1}{4}bM^4 + \frac{1}{6}cM^6 - MH \quad (1)$$

ここで、 $H$  は外部磁場である。 $a > 0, b < 0, c > 0, 3/16 < ac/b^2 < 9/20$  の場合、ある臨界磁場  $H_c$  より低い磁場では常磁性状態のエネルギーが、高い磁場では強磁性状態のエネルギーが低くなり、常磁性状態から強磁性状態へのメタ磁性転移が起きる。このモデルにスピン揺らぎの効果を取り入れ、有限温度に拡張することができる [4]。また、 $a > 0, b < 0, c > 0$  で、 $5/28 < ac/b^2 < 3/16$  の場合、低温では強磁性状態が安定であり、キュリー温度  $T_C$  で常磁性状態に1次転移し、メタ磁性を示す。更に、 $ac/b^2 < 5/28$  の場合には、たとえ  $a > 0$  でも強磁性状態が安定になり、 $T_C$  では2次転移となる。このような場合について、有限温度でスピン揺らぎの効果を取り入れた状態方程式を導き、自発体積磁歪や  $T_C$  の圧力効果を調べる。

## 2. 状態方程式

自由エネルギー  $\Delta F$  を、磁氣的、弾性的局所自由エネルギーとそれらの相互作用を表す局所自由エネルギー  $\Delta f_m(\mathbf{r}), \Delta f_v(\mathbf{r}), \Delta f_{mv}(\mathbf{r})$  を用いて、次のように表す。

$$\Delta F = \int d^3r \{ \Delta f_m(\mathbf{r}) + \Delta f_v(\mathbf{r}) + \Delta f_{mv}(\mathbf{r}) \} \quad (2)$$

ここで、

$$\begin{aligned} \Delta f_m(\mathbf{r}) &= \frac{1}{2}a|\mathbf{m}(\mathbf{r})|^2 + \frac{1}{4}b|\mathbf{m}(\mathbf{r})|^4 + \frac{1}{6}c|\mathbf{m}(\mathbf{r})|^6 + \frac{1}{2}D|\nabla \cdot \mathbf{m}(\mathbf{r})|^2 \\ \Delta f_v(\mathbf{r}) &= \frac{1}{2\kappa}\rho(\mathbf{r})^2 - \alpha\rho(\mathbf{r})^3 + \frac{1}{2}\Gamma|\nabla\rho(\mathbf{r})|^2 \\ \Delta f_{mv}(\mathbf{r}) &= -C_{mv}\rho(\mathbf{r})|\mathbf{m}(\mathbf{r})|^2 \end{aligned} \quad (3)$$

$a, b, c, d$  は Landau-Ginzburg 係数、 $\kappa$  は圧縮率、 $\alpha$  は非調和項の係数、 $\Gamma$  は非局所的な弾性エネルギーの係数、 $C_{mv}$  は磁気体積結合定数である。また、 $\rho(\mathbf{r})$  は体積の密度で、0 K で圧力も磁気モーメントも 0 のときの体積を  $V_0$  として

$$\int d^3r \rho(\mathbf{r}) = V - V_0$$

で定義されるものである。 $\mathbf{m}(\mathbf{r})$  及び  $\rho(\mathbf{r})$  を Fourier 展開し、波数の揃った項を適当に選ぶと、磁気モーメント  $M$ 、体積膨張  $\omega$ 、スピン揺らぎの振幅  $\xi(T)$  及び体積の密度の揺らぎの振幅  $\nu(T)$  を用いて、自由エネルギー  $\Delta F$  を表すことができる。この自由エネルギーから、圧力  $P$ 、磁場  $H$  に対し、状態方程式

$$P = -\omega/\kappa + 3\alpha \{ \omega^2 + \nu(T)^2 \} + C_{mv} \{ M^2 + \xi(T)^2 \} \quad (4)$$

$$H = A(T)M + B(T)M^3 + C(T)M^5 - 2C_{mv}\omega M \quad (5)$$

が得られる。ここで、 $A(T)$ 、 $B(T)$ 、 $C(T)$  は

$$\begin{aligned} A(T) &= a + \frac{5}{3}b\xi(T)^2 + \frac{35}{9}c\xi(T)^4 \\ B(T) &= b + \frac{14}{3}c\xi(T)^2 \\ C(T) &= c \end{aligned} \quad (6)$$

である。

### 3. 自発体積磁歪と $T_C$ の圧力変化

状態方程式 (4) 左辺の  $P$  を 0 とおけば自発体積磁歪  $\omega_m$  が得られる。0 K の場合、体積の密度やスピンの揺らぎの項  $\nu(T)^2$ 、 $\xi(T)^2$  が 0 である（零点振動は無視）から、次式が得られる。

$$\omega_m(0) = \kappa C_{mv} M(0)^2$$

他方、 $T_C$  での体積磁歪は  $M(T_C) = 0$  より、

$$\omega_m(T_C) = \kappa C_{mv} \xi(T_C)^2$$

となり、0 K と  $T_C$  での体積磁歪の差  $\Delta\omega_m$  が、

$$\Delta\omega_m = \kappa C_{mv} \{ M(0)^2 - \xi(T_C)^2 \} \quad (7)$$

となる。ここで、格子の非調和項は無視した。(7) 式は Moriya と Usami [5] が得た結果と同じであるが、Moriya と Usami は Landau 係数  $a < 0$ 、 $b > 0$ 、 $c = 0$  の弱い強磁性の場合について議論している。ここでは、 $a > 0$ 、 $b < 0$ 、 $c > 0$  の場合について議論する。(7) 式の  $M(0)^2$  は

$$M(0)^2 = \frac{|b|}{2c} \left\{ 1 + \sqrt{1 - 4\frac{ac}{b^2}} \right\} \quad (8)$$

で与えられる。Wohlfarth [6] は、Moriya-Usami の理論を用いて  $T_C$  の圧力変化を議論し、種々の強磁性体では Moriya-Usami のスピン揺らぎの項だけでは説明できない事を指摘した。

また、

$$\eta(T_C) = \xi(T_C)^2 / M(0)^2 \quad (9)$$

と表したとき、Moriya-Usami の弱い強磁性体に対するスピン揺らぎの理論では  $\eta(T_C) = 3/5$  であるが、Fe-Ni インバー合金での中性子散乱の実験値 [7] は  $\eta(T_C) \sim 0.25$  となり、かなり小さい。Stoner 模型ではスピン揺らぎが一切考慮されていないので、 $\eta(T_C) = 0$  となる事から一見、Fe-Ni インバー合金はスピン揺らぎ模型と Stoner 模型の間であるかのように見える。そこで、我々の模型  $a > 0, b < 0, c > 0$  での  $\eta(T_C)$  を議論する。

$a > 0, b < 0, c > 0, 5/28 < ac/b^2 < 3/16$  の場合、 $T_C$  で 1 次の相転移を示し、 $ac/b^2 < 5/28$  の場合には、2 次の相転移となる。1 次の相転移温度を  $T'_C$ 、2 次の相転移を  $T_C$  と表すと、それぞれ

$$\begin{aligned} \xi(T'_C)^2 &= \frac{3|b|}{14c} \left\{ 1 - 4\sqrt{7} \sqrt{\frac{ac}{b^2} - \frac{5}{28}} \right\} \\ \xi(T_C)^2 &= \frac{3|b|}{14c} \left\{ 1 + 2\sqrt{\frac{7}{5}} \sqrt{\frac{5}{28} - \frac{ac}{b^2}} \right\} \end{aligned} \quad (10)$$

で与えられる。したがって、 $\eta(T_C)$  は  $ac/b^2$  に依存して変化する事が分かる。図 1 に  $\eta(T_C)$  と  $ac/b^2$  との関係が示されている。 $ac/b^2 < 5/28$  の領域は  $\eta(T_C)$  が、 $ac/b^2 > 5/28$  の領域には  $\eta(T'_C)$  が描かれている。 $ac/b^2 = 5/28$  のとき  $\eta(T_C) \sim 0.28$  となり、Fe-Ni インバー合金の中性子散乱の実測値に近い値がこのスピン揺らぎの模型で得られる。

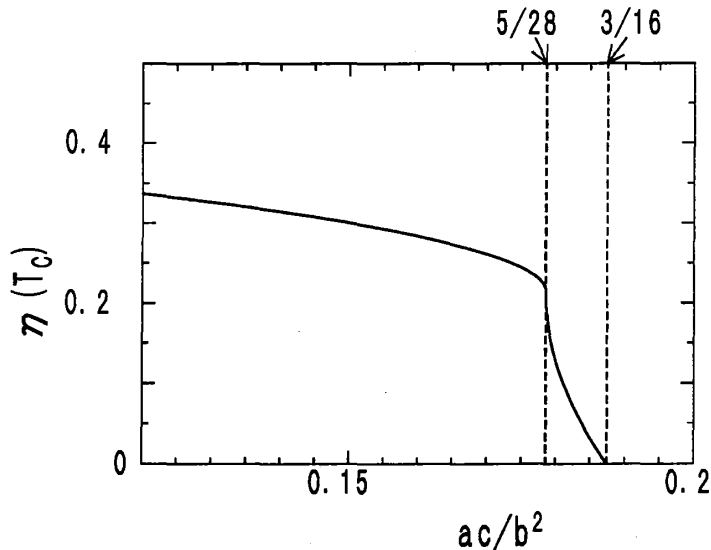


図 1  $\eta(T_C)$  と  $ac/b^2$  の関係

$T_C, T'_C$  の圧力依存は、Landau 係数  $a$  を通して現れる。すなわち、

$$a(P) = a + 2\kappa C_{mv} P \quad (11)$$

より

$$\frac{\partial \xi(T_C)^2}{\partial P} = -\frac{3\kappa C_{mv}}{\sqrt{35} |b|} \left\{ \frac{5}{28} - \frac{ac}{b^2} \right\}^{-1/2}$$

$$\frac{\partial \xi(T'_C)^2}{\partial P} = -\frac{6\kappa C_{mv}}{\sqrt{7}|b|} \left\{ \frac{ac}{b^2} - \frac{5}{28} \right\}^{-1/2} \quad (12)$$

が得られる。 $ac/b^2$  に対する  $\Delta\omega_m/\omega_m(0)$ ,  $\xi(T_C)^2$ ,  $\xi(T'_C)^2$ ,  $\partial\xi(T_C)^2/\partial P$ ,  $\partial\xi(T'_C)^2/\partial P$  は図 2 に示されている。 $\partial\xi(T_C)^2/\partial P$  や  $\partial\xi(T'_C)^2/\partial P$  は  $ac/b^2$  が  $5/28$  で発散する。これは、(10) 式から分かるように、 $\xi(T_C)^2$  や  $\xi(T'_C)^2$  が  $ac/b^2 = 5/28$  で  $P^{-1/2}$  に比例して減少するためであり、有限の  $P$  の値では発散しない。

#### 4. おわりに

Moriya と Usami の理論 [5] では、 $\Delta\omega_m/\omega_m(0)$  が  $a, b$  の値に依らず 0.4 となる。これは、 $T_C$  でのスピン揺らぎの振幅の 2 乗  $\xi(T_C)^2$  と  $M(0)^2$  との比が  $3/5$  であるからである。他方、我々の模型 ( $a > 0, b < 0, c > 0$ ) では、この比が  $ac/b^2$  の値に依存し、 $ac/b^2 = 5/28$  で  $\xi(T_C)^2/M(0)^2$  が約 0.28 となり、Moriya と Usami の得た値よりかなり小さい。この事は、自発体積磁歪が大きくなり、いわゆるインバー特性を表わしている。また、図 2 に示されたように、 $T_C$  の圧力変化も大きく、Fe-Ni, Fe-Pd, Fe-Pt 合金のインバー効果を定性的に説明していると思われる。これは、最近 fixed-spin-moment 法によるバンド計算から評価された Fe<sub>3</sub>Ni, Fe<sub>3</sub>Pt の Landau 係数  $a, b, c$  の値 [8] が、ここで議論した  $ac/b^2$  の値に近いからである。また、パイライト化合物 Co(S,Se)<sub>2</sub> やラーベス相化合物 Hf(Fe,Co)<sub>2</sub> 等では、強磁性と常磁性の境界の組成領域でメタ磁性が出現する。この組成領域付近では、 $ac/b^2$  の値は  $5/28$  に近いので、この模型で示されたようなインバー特性が観測されることが期待される。

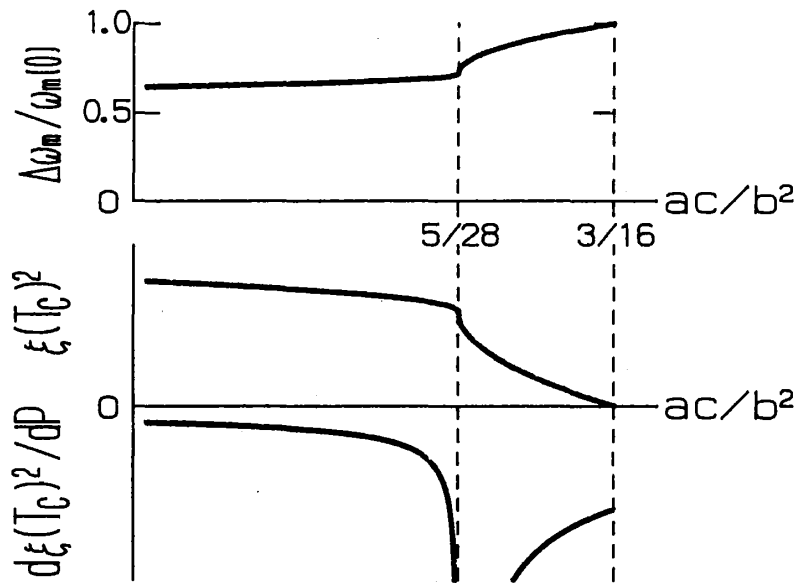


図 2  $ac/b^2$  に対する  $\Delta\omega_m/\omega_m$ ,  $\xi(T_C)^2$ ,  $\xi(T'_C)^2$ ,  $\partial\xi(T_C)^2/\partial P$ ,  $\partial\xi(T'_C)^2/\partial P$  の計算値

参考文献

- [1] E. P. Wohlfarth and P. Rhodes, *Phil. Mag.* **7** (1962) 1817.
- [2] M. Shimizu, *J. Phys. (Paris)* **43** (1982) 155.
- [3] H. Yamada and K. Terao, *J. Phys.: Cond. Mat.* **6** (1994) 10805.
- [4] H. Yamada, *Phys. Rev. B* **47** (1993) 11211.
- [5] T. Moriya and K. Usami, *Solid State Commun.* **34** (1980) 95.
- [6] E. P. Wohlfarth, *Solid State Commun.* **35** (1980) 797.
- [7] M. Collins, *Proc. Phys. Soc.* **86** (1965) 973.
- [8] P. Entel and M. Schröter, *Physica B* **161** (1989) 161.