

(Y_{1-x}Sc_x)Mn₂のスピンのゆらぎ

京大 工、福井大 工[△] 和田裕文、中村裕之、吉村一良[△]、
志賀正幸、中村陽二

C15型ラーベス相構造をもつYMn₂はT_N~100K、μ_{Mn}~2.7μ_Bの過渡電子反強磁性体であり、極めて大きな磁気体積効果を示す物質である。^{1, 2)} 図-1にYMn₂の格子定数の温度依存性を示す。特徴的なのはT_Nにおける大きな跳びであり、反強磁性状態から常磁性状態になると体積が約5%減少する。この磁気転移は一次転移であり約20Kの温度ヒステリシスを伴う。さらに、T_N直上の熱膨張率が50×10⁻⁶K⁻¹と非常に大きく、しかも高温になるにしたがって熱膨張率が減少するという通常の金属とは逆の傾向がみられる。このような熱膨張の振舞はスピンのゆらぎの効果を考慮することによって定性的に理解することができる。遷移金属の磁性体ではスピンのゆらぎの振幅<μ²>に比例した余剰の体積増加が熱膨張にあらわれると考えられておりYMn₂では、この<μ_{Mn}²>がT_Nで大きく減少するために5%もの体積収縮を生じ、さらにT_N以上で<μ_{Mn}²>が温度とともに急激に回復するため熱膨張率がエンハンスされる。より高温では<μ_{Mn}²>が飽和値に近づくので熱膨張率も正常値に近づく。このようにYMn₂はスピンのゆらぎの温度変化が著しく大きな物質と考えられ、このことは核磁気緩和T₁の測定からも支持されている。このYMn₂の磁性は第3元素の添加によって大きな影響を受ける。³⁾ 本稿ではYを同族でしかも原子半径がYより小さなScで置換した(Y_{1-x}Sc_x)Mn₂の磁性について述べる。

(Y_{1-x}Sc_x)Mn₂系では室温での格子定数はXの増加にともなって急速に減少する。この系の磁化率-温度曲線を図-2に示す。X=0.01や0.015のものに対しては80K-90Kに折れまがりが見られ、これはYMn₂と同じくネール温度に対応している。Xが0.02を越えると磁化率の温度変化には異常が認められなくなり、反強磁性は消失する。この試料では磁場中のNMR測定によってMnのモーメントが低温でも消失していることが確認されており、YMn₂のYをScでわずかに2%置換しただけで反強磁性は消失することがあきらかになった。図-3に(Y_{0.98}Sc_{0.02})Mn₂の格子定数の温度依存性をYMn₂のそれとともに示す。低温でもMnモーメントがないことに対応してYMn₂の大きな熱膨張

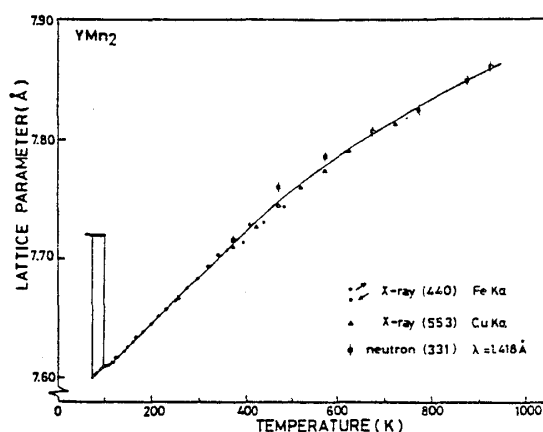


図-1

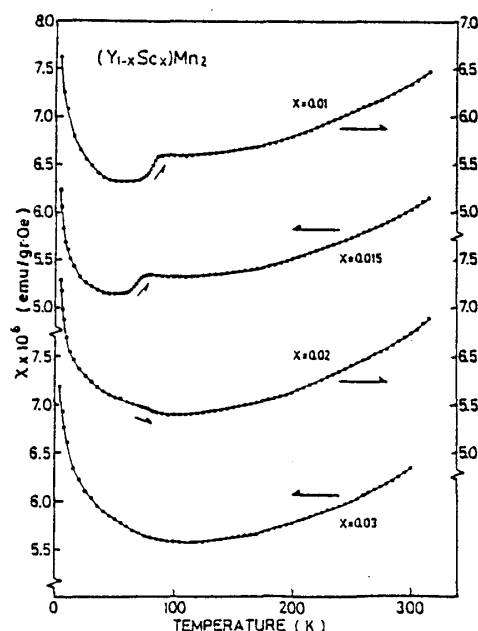


図-2

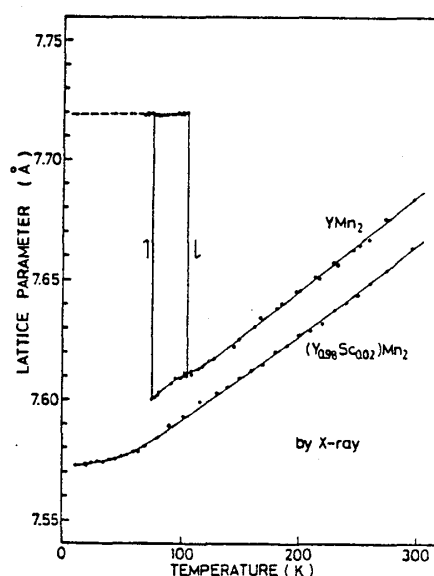


図-3

異常は消失しているが、100K以上での熱膨張率はあまり変わらない。これは $(Y_{1-x}Sc_x)Mn_2$ が YMn_2 の常磁性状態を低温まで安定化したものであることを示唆しており、大きなスピンのゆらぎの効果が期待できる。この観点から ^{45}Sc の核磁気緩和 T_1 の温度変化を測定したところ、図-4に示すように T_1^{-1} に明らかな $\sqrt{T}$ 依存性が得られたこれは反強磁性に近い金属に対するスピンのゆらぎのSCR理論から示唆される依存性であり、本系が反強磁性に近い状態、すなわちスピンのゆらぎが $q=Q$ の回りで増強された状態にあることを示している。図-5に $(Y_{0.97}Sc_{0.03})Mn_2$ の低温比熱を $C/T-T^2$ の形に整理したものを示す。この図から求められる電子比熱係数 γ は $140mJ/K^2mol$ と非常に大きい。前述のように $(Y_{1-x}Sc_x)Mn_2$ は YMn_2 の常磁性状態を低温まで実現していると考えられるので、この電子比熱係数をバンド計算から得られた YMn_2 の常磁性状態の $D(\epsilon_F)$ と比較してみると、理論から得られる γ は $12\sim 15mJ/K^2mol^{4, 5)}$ であり、実験値は約10倍大きい。この γ 値の大きなエンハンスメントもスピンのゆらぎの効果によるものと考えられる。さて、スピンのゆらぎを直接知る測定は中性子の常磁性散乱である。が、この系についてもグルノーブルで常磁性散乱の測定が行なわれており、その結果の一部を図-6に示す。この図は偏極中性子のスピン反転散乱から求めた磁気モーメントの波数依存性 $M(q)$ であるが、各温度で YMn_2 の反強磁性のBragg peakに対応する $q=1.6\text{\AA}^{-1}$ を中心としたところにピークが観測されており、この物質で反強磁性的な相関が強いことを示している。さらに、 $M(q)$ は温度が高いほど増加しており、これは定性的にはスピンのゆらぎが熱励起されていることに対応していると考えられ、今後の $M(q)$ の定量的評価が望まれる。

以上、実験結果より結論として、 $(Y_{1-x}Sc_x)Mn_2$ は $x>0.02$ で低温まで常磁性が安定した状態になるが、この常磁性は反強磁性に近い状態であり、非常に大きなスピンのゆらぎの効果を示すことが明らかになった。

- 1) Y. Nakamura, M. Shiga and S. Kawano: Physica 120B (1983) 212.
- 2) 志賀正幸: 固体物理 21 (1986) 701.
- 3) K. Yoshimura, M. Takigawa, H. Yasuoka, M. Shiga and Y. Nakamura: J. Magn. Magn. Mater. 54-57 (1986) 1075.
- 4) H. Yamada, J. Inoue, K. Terao, S. Kanda and M. Shimizu J. Phys. F 14 (1984) 1943.
- 5) 浅野啓郎, 石田尚治: 固体物理 21 (1986) 711.

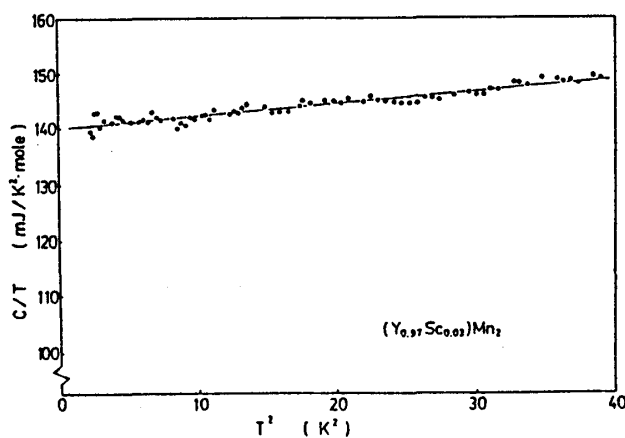


図-5

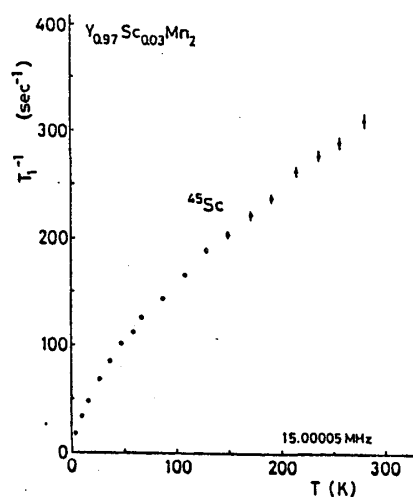


図-4

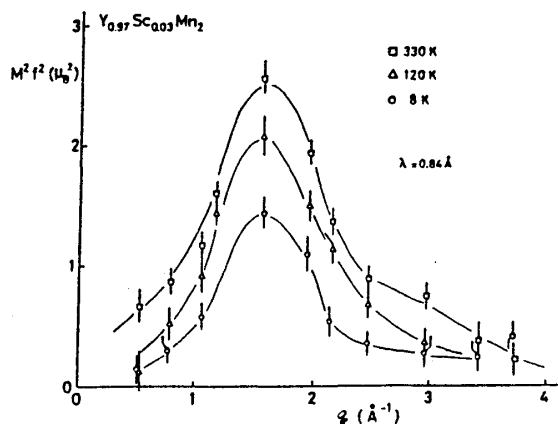


図-6