

インバー合金の自発磁化の圧力変化

信州大，理 寺 尾 列

勝 木 渥

(2月18日受理)

§ 1. 序 論

われわれは先に発表した論文¹⁾ (以下〔I〕とよぶ)で、インバー合金の熱膨張の磁氣的異常 (これは自発体積磁歪と密接に関連している) が、バンド巾および分子場係数の体積依存性を考慮した簡単なバンド理論でかなりよく説明されることを示した。また、第2の論文²⁾ (以下〔II〕とよぶ)では、〔I〕と同様の考え方に基いて、itinerant electron ferromagnet に対する自発磁化の圧力変化、強制体積磁歪等の表式を 0°K で与えた。〔II〕の (18) 式、(27) 式によれば、strong ferromagnet の場合には、 $\nu_0(\epsilon_0^+) = 0$ であるために、 dm/dp ないし h_0' が 0 になってしまう (記号は〔II〕を参照されたし)。fcc Fe-Ni 合金の自発磁化の圧力変化は、Ni-rich の領域ではきわめて小さいが (ただし 0°K で負である: 〔II〕参照、おそらく s バンドの効果であろう)、Fe_{0.5} Ni_{0.5} 付近で絶対値が大きくなり始め、もっと Fe-rich なインバー領域にかけて急激に増大している。^{3, 4)} この現象を、自発磁化が Fe_{0.5} Ni_{0.5} 付近で Slater $\sim$ Pauling 曲線から外れ始め、インバー領域で急激に減少していることと関連づけて、Ni-rich な領域での strong ferromagnetism の状態から、Fe-rich な領域での weak ferromagnetism の状態への移行としてとらえ、〔II〕の (18) 式によって $|dm/dp|$ の増大を説明しようという立場も可能である。Mathon-Wohlfarth⁵⁾ は、Fe_{0.75} Ni_{0.25} $\sim$ Fe_{0.5} Ni_{0.5} での Curie 温度の組成依存性が、very weak ferromagnet に対して期待される $\sqrt{C_0 - C}$ (C : Fe content, $C_0 = 0.75$) によく一致していることから、そのような観点を提起している。これに対して、同じバンド・モデルに立ちつつも、Ni-rich な領域での strong ferromagnetism から、Fe-rich な領域での常磁性^{6, 7)} または広義の反強磁性状態⁸⁾ への、突然の、Fe_{0.7} Ni_{0.3} を臨界組成とするような移行をインバー特性の本質と考え、それに 2 次的な効果としての局所的な組成

の分布⁹⁾を考慮することによってインバーの諸現象を説明しようとする立場もありうる。この立場に立てば、 dm/dp は臨界組成の圧力変化によってもたらされることになる。もし合金の組成が一様であるならば、 dm/dp は臨界組成で正または負の無限大、それ以外の組成では0となる。局所的な組成の分布があれば、見かけ上の dm/dp は、自発磁化の圧力変化に effective であるような組成部分における磁化の変化の、重みをかけた総和として与えられる (Kondorsky⁴⁾ $\approx$ Sedov⁴⁾ の dm/dp に対する考え方もほぼこれと同様である)。

われわれは、このような立場に立ち、臨界組成 $Fe_{0.7}Ni_{0.3}$ を境として、Fe-rich側では常磁性が、Ni-rich側では strong ferromagnetism があらわれると仮定し、[I] の Fig. 3 で与えた状態密度を用い、局所的な組成の分布は Kachi⁹⁾ らの提唱した Gauss 分布に従っているとして、 dm/dp を各組成に対して計算してみた。計算の結果は測定値より約1桁小さいが、組成変化の様子は測定結果とよく似ている。

§ 2. 自発磁化の圧力変化

Fe 濃度が c であるような合金は、局所的な組成がある分布をもっているとした場合、圧力 p のもとで原子あたりの自発磁化

$$M(c, p) = \int_0^1 f(x, c) M_p(x) dx / \int_0^1 f(x, c) dx \quad (1)$$

をもつとする。 $f(x, c)$ は局所的な組成の分布の特性をあらわす関数で、ここでは Kachi⁹⁾ らに従い

$$f(x, c) = \frac{h}{\sqrt{\pi}} e^{-h^2(x-c)^2}$$

なる Gauss 型の分布関数 (ただし $h=12$) であるとする。 $x-c$ は各微小部分における Fe 濃度の平均濃度からのはずれである。 $M_p(x)$ はその微小部分における圧力 p の下での、原子あたりの自発磁化

$$M_p(x) = \begin{cases} (2x+0.6)\mu_B & \text{for } 0 \leq x < k_p \\ 0 & \text{for } k_p < x \leq 1 \end{cases}$$

であり, k_p は圧力 p のもとにおける臨界組成での F_e 濃度である。 k_p が圧力変化することを通じて $M_p(x)$ は圧力に依存する。結局, 外圧 p のもとでの原子あたりの自発磁化 $M(c, p)$ の圧力変化は

$$\frac{\partial M(c, p)}{\partial p} = \frac{f(k_p, c) M_p(k_p)}{\int_0^1 f(x, c) dx} \left(\frac{dk}{dp} \right)_{k=k_p} \quad (2)$$

であたえられる。こうして問題は臨界組成 k の圧力変化を見積ることに帰着する。

§ 3. 臨界組成の圧力変化

〔I〕におけると同様に, fcc Fe—Ni 合金の1原子あたり, 1スピン方向あたりの状態密度 $\nu(\epsilon)$ を第1図のような階段状のバンド, すなわち

$$\nu(\epsilon) = \begin{cases} \rho_0 & \text{for } 0 \leq \epsilon < W_1 \\ b\rho_0 & \text{for } W_1 \leq \epsilon \end{cases}$$

で近似する。ただし $b < 1$ 。また $\rho_0 W_1 = n_0$, $\rho_0^{-1} = W_0$ とおく。実効交換相互作用 J を, 〔I〕, 〔II〕におけると同様に定義すれば, 強磁性出現のための Stoner 条件は $2J\nu(\epsilon) \geq 1$ で与えられる。

$$\frac{1}{b\rho_0} > 2J > \frac{1+b}{2b} \frac{1}{\rho_0}$$

であるような J に対しては, 常磁性状態の Fermi 準位が状態密度の低い部分にあるような合金は Stoner 条件はみたさないが

$$n_k = n_0 \sqrt{\frac{2(1-b)}{1-2b\rho_0 J}} \quad (3)$$

なる n_k を境にして $n < n_k$ では strong ferromagnetism が, $n > n_k$ では para-magnetism が実現することが強磁性出現についての Shimizu の条件¹⁰⁾ からわかる。臨界組成のホール数 n_k と, その Fe 濃度との間には

$$n_k = 0.6 + 2k \quad (4)$$

なる関係が成立つものとする。 $b = 0.5$, $n_0 = 0.6$ とおいた階段状状態密度で fcc Fe-Ni 系の状態密度を近似し, 圧力をかけないときの臨界組成が Fe_{0.7}Ni_{0.3} ($n=2$) であるとして J を評価すると

$$\left(\frac{J}{W}\right)_{p=0} = 0.91$$

となる。またこのとき (3) と (4) から臨界濃度の圧力変化は,

$$\begin{aligned} \frac{dk}{dp} &= \frac{1}{2} \left(\frac{dn_k}{dp} \right) \\ &= \left(\frac{n_0}{4} \right) \left(1 - \frac{J}{W} \right)^{-3/2} \frac{d}{dp} \left(\frac{J}{W} \right) \end{aligned}$$

で与えられる。ここで最後の微分係数は

$$\frac{d}{dp} \left(\frac{J}{W} \right) = \frac{W'}{W} \left(\frac{J'}{W'} - \frac{J}{W} \right) \frac{da}{dp}$$

とかける。ただし a は原子間距離で, W' , J' は W , J の a での微分係数である。さきにわれわれは $J'/W' = 0.75$ ¹⁾, $W'/W = -0.2 \text{ \AA}^{-1.11}$ ¹⁾ と評価した。また, 圧縮率を κ とすれば

$$\frac{da}{dp} = -\frac{\kappa}{3} a$$

であるから, a , κ として Ni の値

$$a = 2.5 \text{ \AA} \quad ^{12)} \quad \kappa = 6 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{Kg} \quad ^{13)}$$

を用いることにすれば, 必要な数値はすべて与えられたことになる。これらの数値を用いれば結局

$$\frac{dk}{dp} = -0.9 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{Kg}$$

を得る。Kondorsky ら⁴⁾ は $dk/dp < 0$ であることがインバー領域での大きな負の dM/dp を説明するために重要であることを指摘しているが、彼らはやや恣意的に $dk/dp < 0$ を導いている。しかし、われわれはここでは、 $\text{Fe}_{0.7}\text{Ni}_{0.3}$ が臨界組成であることから評価した J/W と、fcc Fe-Ni 合金の自発体積磁歪の組成依存性から評価した J'/W' とを用いることによって、 $dk/dp < 0$ を得たのである。

§ 4. 測定値との比較

計算結果と測定値とを Fig. 2 で比較する。⊙は Kouvel ら³⁾ が室温での実験結果から、磁化の温度変化は Curie 温度を T_c とするとき組成によらず T/T_c の函数で表わされると仮定して、Patrick⁴⁾ による T_c の圧力変化の実験データを使って評価した 0°K での $\partial M/M\partial p$ (文献3, Fig. 5) の値に、同じく Kouvel ら³⁾ が自発磁化の温度変化の実験結果を外挿して得た 0°K での自発磁化の値をかけて得たものであり、×は Kondorsky ら⁴⁾ による低温での $\partial M/M\partial p$ に、Crangle ら¹⁵⁾ による自発磁化の大きさをかけて得たものである。 $|\partial M/M\partial p|$ はインバー領域で急激に増大しているが、 M が急激に減少しているため、両者の積である $|\partial M/\partial p|$ にはピークがあらわれた。計算結果(実線)は(2)式に、§§ 2, 3 で与えられた必要な数値を入れて計算したものである。ピークの値は、計算結果では -1.2×10^{-6} で実験結果の -1.9×10^{-5} (単位はともに $\mu_B \cdot \text{atom}^{-1}/\text{Kg} \cdot \text{cm}^{-2}$) に比べると1桁小さい。ただここでひとつ注意しておきたいことは、計算の途中であらわれた式

$$\frac{J'}{W'} - \frac{J}{W} = 0.75 - 0.91$$

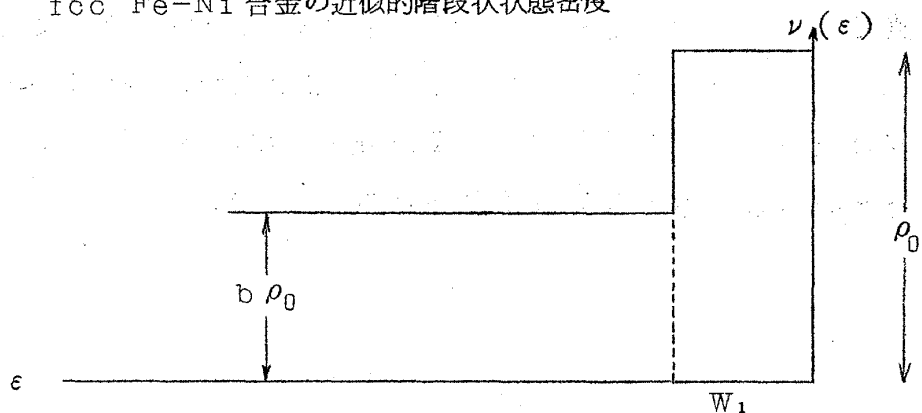
は、その各項の値が、近似的な階段状の状態密度を用いての粗い見積りである上、同程度の数値同志の引算なので、かなりの誤差を含んでいるだろうということである。したがって、ほぼ1桁のちがいにもかかわらず、 $|dM/dp|$ の

ピークの値で normalize した値の，組成変化の様子が互いによく似ていることから，fcc Fe-Ni 合金系の自発磁化の圧力変化を，バンド・モデルに基いた臨界組成の圧力依存性と局所的な組成の分布とに結びつけて理解することはできそうだと結論してもよさそうに思われる。

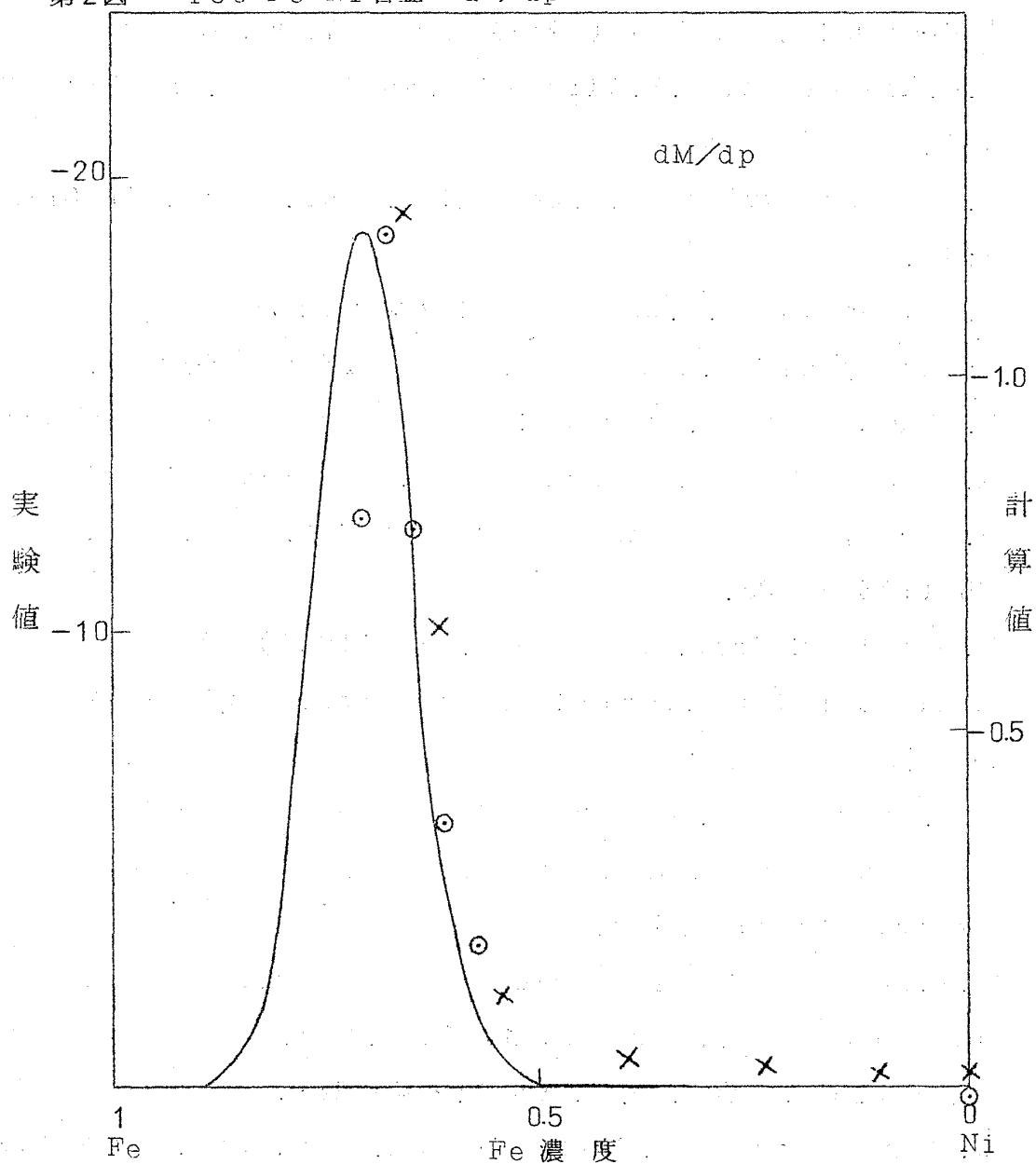
文 献

- 1) 勝木・寺尾：物性研究 11 (1968) 190 ([I] とよぶ)。
- 2) 寺尾・勝木：物性研究 11 (1969) 275 ([II] とよぶ)。
- 3) J.S.Kouvel and R.H.Wilson : J.appl. Phys. 32 (1961) 435.
- 4) E.I.Kondorsky and V.L.Sedov : J.appl. Phys. 31 (1960) 3318.
- 5) J.Mathon and E.P.Wohlfarth : プレプリント。
- 6) T.Mizoguchi : J.Phys. Soc. Japan 25 (1968) 904.
- 7) M.Shimizu and S.Hirooka : Phys. Letters 27A (1968) 530.
- 8) A.Katsuki : Brit. J.appl. Phys. 18 (1967) 199.
- 9) S.Kachi, H.Asano and N.Nakanishi : J.Phys. Soc. Japan 25 (1968) 285.
- 10) M.Shimizu : Proc. Phys. Soc. 84 (1964) 397.
- 11) A.Katsuki and K.Terao : J.Phys. Soc. Japan 投稿中 ([I] の増補)。
- 12) W.B.Pearson : A Handbook of Lattice Spacings and Structures of Metals and Alloys (Pergamon Press, Oxford, 1964) p.638.
- 13) P.W.Bridgman : The Physics of High Pressure (G.Bell and Sons, Ltd., London, 1958) p.160.
- 14) L.Patrick : Phys. Rev. 93 (1954) 384.
- 15) J.Crangle and G.C.Hallam : Proc. Roy. Soc. A272 (1963) 119.

第1図 fcc Fe-Ni 合金の近似的階段状状態密度



第2図 fcc Fe-Ni 合金の dM/dp



実線は計算結果で目盛は右側に与えてある。⊙, ×はそれぞれ文献3) および文献4) 15) のデータから求めた実験値で目盛は左側に与えてある。単位はともに $10^{-6} \mu_B \text{ atom}^{-1} / \text{Kg cm}^{-2}$