立方晶ラーベス相化合物 Y_{1-x} Tb_xCo₂ に於ける

成分・磁場・圧力・により制御される

Co磁化状態と伝導特性

琉球大学大学院 理工学研究科

物質地球科学専攻

竹田政貴

指導教員: 矢ヶ崎克馬, 仲間隆男, 辺土正人

立方晶 Laves 相 (C15)の結晶構造を持つ TbCo₂は,キュリー点 $T_{\rm C}$ =227 K以下で Tb モーメントと Co の 3d 遍歴磁気モーメントが反平行に整列するフェリ磁性を示す. 方,YCo₂は交換増強されたパウリ常磁性体で,臨界磁場 $B_{\rm C}$ ≈70 Tの外部磁場で常磁性 から強磁性へ遍歴電子メタ磁性転移 (IEM)を起こす.Tb を非磁性元素のY で置換する ことにより磁性および輸送特性がどのように変化するかを調べるため,Y_{1-x}Tb_xCo₂系の電気抵抗率 ρ および熱電能 S を 0~15 T の磁場中, 0~8 GPa の圧力中, 2~300 K の温度範囲で測定した.

この試料は大きな熱膨張のため試料中にクラックが入り,電気抵抗の定量的議論ができないため,今回の解析にはそれぞれ 300 Kの ρ で規格化した電気抵抗 ρ^* を使用した.図1(a)に磁気転移点 $T_{\rm C}$ の濃度依存を示す. $T_{\rm C}$ は ρ の温度微分がピークとなる温度として決定した.

T_Cは, Tb 濃度が x=1.0 から減少して いくにつれて低温に移動していき, *x*≈0.2 で消失することが分かる.図1(b)に,残留 抵抗 ρ_0^* と, T=2 K におけるマグネトレジ スタンス (MR= $rac{
ho(B,T)ho(0,T)}{
ho(0,T)}$) の濃度依存 を示す. ρ_0^* は,x=0.4より高い濃度領域の 化合物ではほぼ一定値を示すが、それより 希薄な領域の化合物では,磁気相境界近傍 (*x*≈0.2) に最大値を持つ大きな変化を示す. MRは, x> 0.4(x=1.0を除く)の化合物 は ρ_0^* と同じように x に依らずほぼ一定値, 0.0 ≤ x < 0.4 の化合物では x の減少ととも に正に増大し x≈0.25 で極大値, x≈0.2 で 極小値を示した後, x=0.0 に向かって正に 増大するという大きな変化を示す.これら の振る舞いは, 我々が $Y_{1-x}Gd_xCo_2$ 系で 報告した次のモデルで良く説明がつく.Tb のY置換によりCo副格子に働く4fモー メントからの交換磁場 B_{exc} が小さくなり, また空間的にも不均一に分布するようにな る.そのため, B_{exc}の平均がCoのメタ磁



図 1: (a)*T*_C の濃度依存 [●] (b)MR(左 軸)[▲] と ρ₀^{*}(右軸)[○] の濃度依存

性転移臨界磁場 $B_{\rm C}$ 近傍になると, $B_{\rm C}$ 以上の交換磁場を受け高い磁化状態になっている Coと, $B_{\rm C}$ 以下の交換磁場を受けて低い磁化状態の Coが存在するようになる.すなわ ち, Gd が希薄な領域の化合物では, Gd の周りは $B_{\rm eff} \ge B_{\rm C}$ で Co 副格子は高い磁化状態 になり, Y の周りは $B_{\rm eff} < B_{\rm C}$ で低い磁化状態という2種類の磁化状態がアトランダムに 存在することになる.この異なる磁化状態のアトランダムな分布により,電子が散乱され 新たな電気抵抗の原因となっていると考えられる.今,この電気抵抗 $\rho_{\rm m}$ が不規則二元合 金系の残留抵抗を説明する以下のノルドハイム則で表せると仮定する.

 $\rho_{\rm m} \propto y(1-y) \qquad (0.0 \le y \le 1.0)$

y は高い磁化状態の Co の割合を表す.これは y=0.5 でピークとなる曲線をあらわし, 図 1(b) に示した $Y_{1-x}Tb_xCo_2$ の ρ_0^* の濃度依存を定性的に説明することができる. $0.0 \le y \le 1.0$ に対応する範囲は $0.0 \le x \le 0.4$ で, y=0.5 は $x \approx 0.2$ と対応する.x の減少 は B_{eff} を減少させ, y を減少させることになる.2 つの Co の磁化状態が混在してい る化合物に外部磁場 B_{ext} を加えると, Co 副格子にはたらく有効磁場 $B_{\text{eff}}=B_{\text{exc}}-B_{\text{ext}}$ は減少するため高い磁化状態の Co の割合 y が減少することになる.これから, y>0.5の状態にある化合物の MR は正, y<0.5 の場合は負となることが予想される.実際, 図 1(b) に示した MR は y>0.5 の状態にあると考えられる $x \ge 0.25$ の化合物の MR は正, y<0.5 の状態にあると考えられる $x \ge 0.25$ の化合物の MR

さらに上述のモデルの妥当性を 確認するため, 圧力を加えて ρ お よびSを測定した.0~1.6 GPa はクランプ式ピストンシリンダー 型,2~8 GPaはキュービックア ンビル型高圧発生装置で測定した. 加圧により Co が磁化を持つ臨界 磁場BCが上昇することが報告さ れている[1][2].これは,加圧によ り電子状態密度の幅が広がりフェ ルミ準位の状態が小さくなるため である. B_C が上昇すると結果的 に y が減少することになる.図2 に,常圧のとき y>0.5 の領域にあ る *x*=0.25 の ρ_0 及び *T*_C の圧力依 存を示す. ρ0 は,加圧とともに増 大し *P*≈1.6 GPa でピークを示 し,更に加圧すると減少する.T_C



図 2: x=0.25 の T_C(左軸)[▼] と ρ₀(右軸)[●] の圧力 依存

は、加圧とともに低温に移動し、 ρ_0 がピークを示す $P \approx 1.6$ GPa で消失する. この ρ_0 と $T_{\rm C}$ の対応は、図1に示した $\rho_0^* \ge T_{\rm C}$ の置換効果とよく一致している. ρ_0 は、加圧すると まず増加し $y \approx 0.5$ となる $P \approx 1.6$ GPa でピークを示し、その後y < 0.5の状態となるため 減少する.この他にも、x=0.2、及び 0.15の試料についても同様な結果を得た. 図3に、 x=0.25の圧力中で測定した熱電能 S の低温領域の温度依存を示す.図中の破線はx=0.2の S の温度依存を示す.S は、常圧で見られた 35 K および 60 K 付近の明確な極小値、極 大値が,加圧とともに低温にシフトし, $P \approx 1.6$ GPa で極小値は無くなっている.x=0.25の圧力中Sの振る舞いも,圧力増加とともにxが小さいx=0.2のSの温度依存に近づいているのが分かる.これは,加圧によってCoの電子構造がxが小さい化合物のそれに近づいていることを示しており,SもCoの磁化状態が大きく関係していることが分かる.

成分置換,磁場印加,加圧による低温領 域の輸送特性の変化は,yを減少させる効 果として統一的に考えられることが分かっ た.図4に,圧力効果を置換効果に換算し てプロットした ρ_0 の濃度依存を示す.加圧 した時の対応する濃度xへの換算には,

$$x = -\frac{1}{53.4}P + x_0$$

の関係式を用いた x_0 は加圧する化合物の 濃度である.この式を用いると, ρ_0^* の圧力 依存を濃度依存としてプロットできること がわかる.その他に, T_C や低温のSの勾配 などの圧力依存と濃度依存についても,同 じ式を用いて換算できることが分かった.

以上の結果から, Tb 濃度が小さい領域 (x≲0.4)の低温における電気抵抗および熱 電能等の輸送特性は,高い磁化状態,低い



図 3: x=0.25の圧力中で測定した熱電能 S の温度依存.破線は, x=0.2の常圧の Sの温度依存を示す.

磁化状態という異なる2種類の Co磁化状態のアトランダムな分布による散乱で説明できることが分かった.



図 4: 圧力依存の濃度依存に換算した ρ_0^* の濃度依存 . [•] 濃度依存 [\blacktriangle] x=0.25の圧力依存 [\checkmark]x=0.2の圧力依存 [\times]x=0.15の圧力依存

- H. Saito, T. Yokoyama, K. Fukamichi, K. Kamishima and T. Goto, Phys. Rev. B 59 8725 (1999)
- [2] H. Yamada, J. Magn. Magn. Mater. 139 162 (1995)