

立方晶ラーベス相化合物 $Y_{1-x}Dy_xCo_2$ の 極限環境下における輸送特性

琉球大学大学院 理工学研究科 物質地球科学専攻

高良 江理子

指導教員: 仲間隆男, 辺土正人, 矢ヶ崎克馬

立方晶ラーベス相構造 (C15 型) を持つ希土類遷移金属化合物 YCo_2 は、交換増強されたパウリ常磁性体で、約 70 T の外部磁場で常磁性から強磁性へと一次の遍歴電子メタ磁性転移を示す。一方、 $DyCo_2$ は、キュリー温度 $T_C=134$ K で高温の常磁性から Dy の局在 4f 磁気モーメントと Co の遍歴 3d 磁気モーメントが反平行に揃うフェリ磁性へ一次転移する。これは、オーダーした局在 4f 磁気モーメントから Co の 3d バンドのメタ磁性転移臨界磁場の 70 T よりも大きい分子磁場が働き、Co 副格子が磁化を持つためである。今回、Dy を Y で置換した $Y_{1-x}Dy_xCo_2$ 系の電気抵抗率 ρ および熱電能 S を 2-300 K の温度範囲、15 T までの強磁場、8.0 GPa までの高圧力中で測定した。平均場近似では Co に働く交換磁場 B_{exc} が Y 置換とともに減少する。それに伴う磁性、輸送特性がどのように変化するか調べた。

図 1 に電気抵抗から得られた $Y_{1-x}Dy_xCo_2$ の磁気相図を示す。Dy の濃度 x が減少していくにともない磁気転移温度 T_C もほぼ直線的に減少し、 $x \approx 0.2$ で消失することが分かる。 $0.1 \leq x \leq 0.3$ の組成領域で T_C が見られなかったため ρ の変曲点をとってプロットしてみたところ、報告されている freezing 温度 T_f とほぼ一致した。この図から系の磁気状態は $0.4 \lesssim x \leq 1.0$ でフェリ磁性相、 $0.1 \leq x < 0.4$ で freezing 相、 $x < 0.1$ で常磁性相であることが分かった。

図 2 に 2 K での電気抵抗率 ρ_{2K} とマグネトレジスタンス ($MR_{2K} = \frac{\rho(15,T) - \rho(0,T)}{\rho(0,T)}$) の Dy 濃度 x 依存を示す。 $x \geq 0.4$ では、 ρ_{2K} および MR_{2K} とともに大きな濃度依存は示さないが、 $x < 0.4$ の Dy 濃度が小さい領域では大きな x 依存を示す。 $x \approx 0.2$ で ρ_{2K} はピークをとり、 MR_{2K} は正負が逆転するという特異な振る舞いを示す。これらの振る舞いは平均場近似では説明がつかず、我々が $Y_{1-x}R_xCo_2$ ($R=Gd, Tb$) 系で報告した次のモデルで良く説明できる。

磁性元素 Dy を非磁性元素 Y で置換すると、Y と Dy は空間的にアランダムに分布し、 $x < 0.4$ では Y の周りの Co 副格子は交換磁場 $B_{exc} \leq 70$ T の低い磁化状態となり、Dy の周りには $B_{exc} \geq 70$ T の高い磁化状

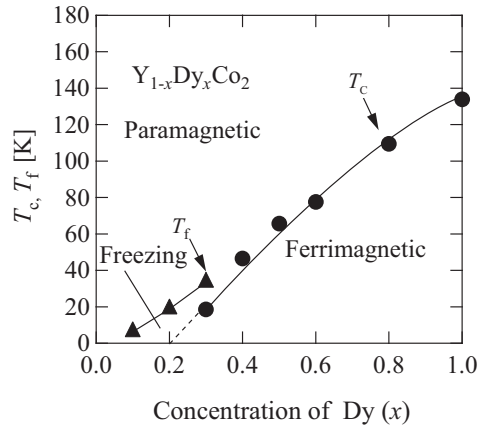


図 1: $Y_{1-x}Dy_xCo_2$ の磁気相図

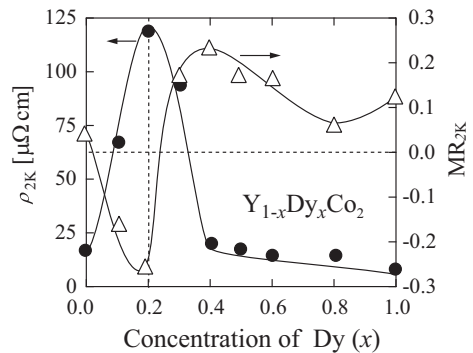


図 2: 2Kにおける ρ と MR の濃度依存

態になるため、異なる Co の磁化状態がアランダムな分布となる。このランダムな磁化が低温における電子散乱の原因になっていると考えられる。ここで、高い磁化状態の割合を y 、低い磁化状態の割合を $1 - y$ とおくと、 ρ_{2K} は不規則二元合金系の残留抵抗を説明する下記のノルドハイム則に従うというモデルで良く説明がつく。

$$\rho_m \propto y(1 - y) \quad (0.0 \leq y \leq 1.0)$$

これは $y=0.5$ でピークとなる二次曲線を表し、図 2 に示した Dy 濃度 x が希薄な領域で ρ_{2K} が $x \approx 0.2$ でピークをとる振る舞いを定性的に説明することができる。また、この化合物に外部磁場 B_{ext} を加えると Co に働く有効磁場 $B_{\text{eff}} = B_{\text{exc}} - B_{\text{ext}}$ を減少させることになり、高い磁化状態の Co の割合 y を減少させ、その結果、 $y > 0.5$ で MR は正、 $y < 0.5$ で負となり、磁場効果もこのモデルで説明がつく。

圧力効果においても上述のモデルが適用できるかどうか確認するため、図 2 の ρ_{2K} がノルドハイム的に変化する成分境界にある $x=0.4$ の化合物について、0-8 GPa の圧力、2-300 K の温度範囲で ρ を測定した。図 3 に ρ_{2K} と T_C 、 T_f の圧力依存を示す。 ρ_{2K} は圧力増加とともに増大し、2 GPa で最大となった後、さらに圧力を加えると減少する。 T_C は、加圧とともに低温に移動し、 ρ_{2K} がピークを示す $P \approx 2$ GPa で消失する。さらに加圧すると T_f がほぼ直線的に減少していく。この振る舞いは、図 2 に示した $x < 0.4$ で x の減少ともなう ρ_{2K} の振る舞いと類似し、圧力が x 減少と同じ効果を与えていることが分かる。これは、圧力をかけることでバンド幅が広がりフェルミ準位の状態密度が減少するため、Co 副格子がメタ磁性転移する臨界磁場が上昇し、高い磁化状態の Co の割合 y が減少するためである。実験結果は $P \approx 2$ GPa でピークを示すことから、 $P \approx 2$ GPa のときに $y \approx 0.5$ となると考えられる。

以上の結果より、Y 置換、外部磁場、圧力を加える事は、 y を減少させる効果として輸送特性に寄与することが分かった。 $x=0.4$ の化合物の ρ_{2K} の圧力依存と ρ_{2K} の濃度 x 依存のデータを重ね合わせ、圧力効果を濃度 x の置換効果に換算する式を得た。

$$\Delta x = -\frac{1}{20} \Delta P$$

これは、1 GPa 加圧すると Dy 濃度 x が 0.05 減少することに相当する。この換算式を用いて、 $x=0.2$ および 0.3 の化合物の ρ_{2K} の圧力依存も濃度 x の置換効果で説明することができた。詳細は熱電能とともに当日発表する。

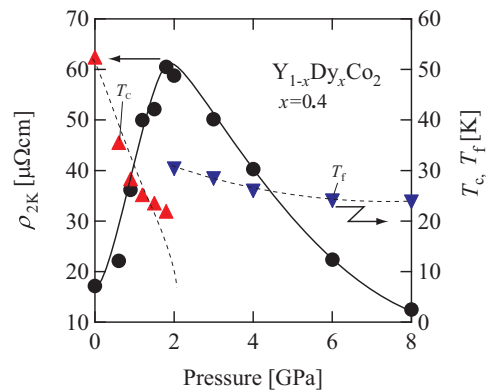


図 3：残留抵抗率 ρ_{2K} と T_C 、 T_f の圧力依存