

ホイスラー合金(Cu₂MnAl, Ni₂MnSn, Pd₂MnSn)におけるスピンドYNAMICKS

著者	久保 康則, 石田 尚治, 石田 潤治
雑誌名	鹿児島大学理学部紀要. 数学・物理学・化学
巻	14
ページ	37-55
別言語のタイトル	Spin Dynamics in the Heusler Alloys (Cu ₂ MnAl, Ni ₂ MnSn, Pd ₂ MnSn)
URL	http://hdl.handle.net/10232/00007011

ホイスラー合金 (Cu_2MnAl , Ni_2MnSn , Pd_2MnSn)

におけるスピンドイナミックス

久保 康則*・石田 尚治*・石田 潤治*

(1981年9月30日受理)

Spin Dynamics in the Heusler Alloys (Cu_2MnAl , Ni_2MnSn , Pd_2MnSn)

Yasunori KUBO, Shoji ISHIDA and Junji ISHIDA

Abstract

The dynamical spin susceptibilities $\chi(q, \omega)$ in the ferromagnetic Heusler alloys X_2MnY ($\text{X}=\text{Cu}, \text{Ni}, \text{Pd}$, $\text{Y}=\text{Al}, \text{Sn}$) are evaluated on the basis of the realistic band structures. The theoretical results of spin wave spectra of these alloys are in good agreement with the experimental ones. The correlation between the spin densities of d -electrons of Mn is important to the spin waves with small q and large q in these all alloys. However, the contributions to the spin waves from the correlation between the spin density of d -electrons of Mn and that of conduction electrons increase in the sequence of X-atoms (Cu-Ni-Pd) for the spin waves with large q . These different q dependences of the spin density correlation for these alloys are consistent with the strong dependence on the kind of X atoms in the magnetic interactions pointed out by Ishikawa *et al.*

§1. 序 論

強磁性ホイスラー合金 X_2MnY ($\text{X}=\text{Cu}, \text{Ni}, \text{Pd}$, $\text{Y}=\text{Al}, \text{Sn}$) は結晶構造が L2_1 で Mn 原子どうしが X, Y 原子により隔てられており, 1 分子当り約 $4\mu_B$ の磁気モーメントは Mn が担っている¹⁻³⁾。そこで Mn 原子は s - d 型の相互作用^{4,5)} を通してお互い磁氣的に結合していると考えられた。そして構成原子の位置での内部磁場⁶⁻¹⁰⁾ とかキュリー温度^{11,12)} 等の実測値が s - d 型の相互作用を基にして解析された。しかし決め手となる実験的証明とはいたらなかった。

一方石川らは¹³⁻¹⁶⁾ 中性子による非弾性散乱の実験からスピン波の分散関係を調べることにより次のような結果を得た。Mn 間の第 1, 第 2 近接間の相互作用は強磁性的で, 磁氣的結合を支配している。そして第 1 近接間の相互作用は X 原子の種類に強く依存し Y 原子, 伝導電子の数には余り影響されないで, $\text{X}=\text{Cu}$ の場合が一番大きく Ni, Pd と減少していき $\text{X}=\text{Cu}$ の場合は $\text{X}=\text{Pd}$ の場合の 4 倍以上の大きさである。他方長距離間の相互作用は振動的振るまいを示し, 簡単な s - d 型の相互作用により説明可能である。

このような実験面での興味ある微視的情報に対して, これらホイスラー合金の磁氣的相互作用機構を電子構造を基に調べることは非常に有益と思われる。そこで我々は X_2MnY ($\text{X}=\text{Cu}$,

* 鹿児島大学理学部物理学教室 (Department of Physics, Faculty of Science, Kagoshima University)

Ni, Pd, Y=Al, Sn) の電子構造を基に, それらの動的帯磁率 $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ の計算を行ない電子スピンの動的振るまいについて調べた。 $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ の計算において電子間の多体効果に関し近似が必要になるけれども, 我々は近似の意味が明確な RPA に基づいた方法 (Cooke¹⁷⁻¹⁹) らが Fe, Ni に対して適用しかなりな成功をおさめた方法を合金系に拡張した) を適用した。この方法ではホイスラー合金の電子構造は Tight-Binding・OPW 法 (T.B.-OPW) より求められた²⁰ものを使用する。この方法は X, Mn 原子の *d* 電子状態, OPW (伝導電子に対応する) による電子状態, それら個々の状態間の磁氣的相互作用機構への関与の仕方が明確な形で導出できる特徴がある。

我々は以前 Cu₂MnAl²¹, Pd₂MnSn²²) について上述の方法により $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ を計算し, それらのスピン波励起スペクトルを求めた。それらはいずれも石川らの実測値とよく対応することが知られた。さらにスピン波スペクトルの \mathbf{q} 依存を調べることで X=Cu と X=Pd の場合, 磁氣的相互作用機構がそれらの電子状態によってどのように影響されるかを明示した。

ここでは最近求めた Ni₂MnSn のスピン波励起スペクトルの計算結果と共に X₂MnY (X=Cu, Ni, Pd, Y=Al, Sn) についてこれら合金のスピン密度のゆらぎが X 原子に対してどのような依存性を持ち, 又 \mathbf{q} の変化に対してどのような変化をするかを, それらの $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ の構造を詳細に調べることでこれら合金の磁氣的相互作用機構への新たな知見を与える。

§2. 計算の方法

物質の電子スピン系からの磁氣的非弾性中性子散乱に対する微分断面積の横成分は次式で与えられる²³。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \left(\frac{ge^2}{2mc^2}\right)^2 \frac{k'}{k} (1+e_z^2) (1-e^{-\beta\hbar\omega})^{-1} S(\mathbf{q}, \omega) \quad (1)$$

ここで g は磁気回転比, m は電子の質量, \mathbf{k} と \mathbf{k}' はそれぞれ入射, 散乱に対する中性子の波数ベクトル, $\beta=1/k_B T$, $\mathbf{q}=\mathbf{k}-\mathbf{k}'$, $\mathbf{e}=\mathbf{q}/|\mathbf{q}|$, $\hbar\omega$ は中性子の入射, 散乱間のエネルギー差である。又 $S(\mathbf{q}, \omega)$ は動的帯磁率 $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ の横成分により次式で与えられる。

$$S(\mathbf{q}, \omega) = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \text{Im} [\chi^+(\mathbf{q}, \omega - i\epsilon) + \chi^-(\mathbf{q}, \omega - i\epsilon)] \quad (2)$$

$\chi(\mathbf{q}, \omega)$ を正確に計算することは非常に困難であるので今まで多くの人々により種々の近似の下で求められてきた。その中で Cooke らが Fe, Ni に対して適用しかなりな成功をおさめた方法¹⁷⁻¹⁹, つまり求めようとする物質のバンド構造を忠実に反映させ, 電子間の相関効果はある有効相互作用でおきかえる改良した RPA に基づいた方法が現在の所最も有効と思われる。

そこで我々はその方法を合金系に拡張して X₂MnY (X=Cu, Ni, Pd, Y=Al, Sn) の $\chi(\mathbf{q}, \omega)$ を求める。改良した RPA によると

$$\chi^+(\mathbf{q}, z) = \hbar |F(\mathbf{q})|^2 \sum_{\mu} X_{\mu}(\mathbf{q}, z) \quad (\mu = 1 \sim 30), \quad (3)$$

ここで $F(\mathbf{q})$ は磁気形状因子で, z は複素振動数, $X_{\mu}(\mathbf{q}, z)$ は次式で与えられる。

$$X_{\mu}(\mathbf{q}, z) = \sum_{\nu} \chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, z) - \sum_{\xi} \chi_{\mu\xi}^0(\mathbf{q}, z) U_{eff,\xi}^{d-d} X_{\xi}(\mathbf{q}, z) \quad (\mu, \nu = 1 \sim 30, \xi = 1 \sim 15), \quad (4)$$

ここで指標 μ 等は T.B.-OPW 法での対称軌道を示し, 1~5 が Mn の d -軌道, 6~15 が X-原子の d -軌道, 16~30 が OPW を与える。 $U_{eff,\xi}^{d-d}$ は d 電子間の有効クーロン相互作用を示し次式で与えられる。

$$U_{eff,\xi}^{d-d} = U_{eff}^{d-d}(\mu, \nu, \xi, \eta) \delta_{\xi\mu} \delta_{\xi\nu} \delta_{\nu\eta} (\xi = 1 \sim 15), \quad (5)$$

$$U_{eff,\xi}^{d-d}(\mu, \nu, \xi, \eta) = N^{-2} \sum_l \int \phi_\mu^*(\mathbf{r}-\mathbf{R}_l) \phi_\nu^*(\mathbf{r}'-\mathbf{R}_l) U_{eff}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \times \phi_\xi(\mathbf{r}'-\mathbf{R}_l) \phi_\eta(\mathbf{r}-\mathbf{R}_l) d^3r d^3r' \quad (6)$$

ここで $U_{eff}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ は有効にスクリーンされたクーロン相互作用, $\phi_\mu(\mathbf{r}-\mathbf{R}_l)$ は \mathbf{R}_l の位置に中心を持つ原子 d 軌道である。又 $\chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, z)$ は零次の動的帯磁率で 2 粒子グリーン関数の μ, ν 成分 $G_{\mu\nu}(n\mathbf{k}, m\mathbf{k}+\mathbf{q}, z)$ と次式で関係づけられる。

$$\chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, z) = \sum_{n,m,\mathbf{k}} G_{\mu\nu}(n\mathbf{k}, m\mathbf{k}+\mathbf{q}, z), \quad (7)$$

$$G_{\mu\nu}(n\mathbf{k}, m\mathbf{k}+\mathbf{q}, z) = \frac{a_{n\mu\sigma}^*(\mathbf{k}) a_{m\mu\sigma'}(\mathbf{k}+\mathbf{q}) a_{m\nu\sigma'}^*(\mathbf{k}+\mathbf{q}) a_{n\nu\sigma}(\mathbf{k}) (f_{n\mathbf{k}\sigma} - f_{m\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'})}{\hbar z - E(m, \mathbf{k}+\mathbf{q}, \sigma') + E(n, \mathbf{k}, \sigma)}, \quad (8)$$

ここで σ, σ' はそれぞれ *majority-spin* (\downarrow), *minority-spin* (\uparrow) を示し, $\chi^{+-}(\mathbf{q}, z)$ ではその逆である。 $E(n, \mathbf{k}, \sigma)$ はバンド指標 n , 波数ベクトル \mathbf{k} , スピン σ の強磁性ブロッホ状態 $|n, \mathbf{k}, \sigma\rangle$ のエネルギー値で, $f_{n\mathbf{k}\sigma}$ はフェルミ分布関数, $\{a_{n\mu\sigma}(\mathbf{k})\}$ は次式で示される T.B.-OPW の展開係数である。 T.B.-OPW 法では波動関数は次のように与えられる。

$$\psi_{n\mathbf{k}\sigma}(\mathbf{r}) = N^{-1/2} \sum_{l,\mu} a_{n\mu\sigma}(\mathbf{k}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_l} \phi_\mu(\mathbf{r}-\mathbf{R}_l) + \sum_{\mathbf{K}} a_{n\mathbf{K}\sigma}(\mathbf{k}) \varphi_{\mathbf{K}\mathbf{K}}(\mathbf{r}), \quad (9)$$

ここで N はユニットセルの数, $a_{n\mu\sigma}(\mathbf{k}), a_{n\mathbf{K}\sigma}(\mathbf{k})$ はそれぞれ対称 d 軌道指標 μ , 逆格子ベクトル \mathbf{K} を持つ展開係数である。 $\phi_\mu(\mathbf{r}-\mathbf{R}_l)$ は位置 \mathbf{R}_l に中心を持つ原子 d 軌道で, $\mu=1\sim 5$ が Mn の d 軌道, $\mu=6\sim 15$ が X-原子の d 軌道を表わす。 $\varphi_{\mathbf{K}\mathbf{K}}(\mathbf{r})$ は OPW である (SAPW 法による $E(\mathbf{k})$ の導出においては 31 コの OPW を使用したが, ここでは良い近似で 15 コの OPW を使う)。又 (7) 式の \mathbf{k} にかんする summation は以前行った方法と同じ手法²⁵⁾ でおこなう。(7) 式のバンドにかんする評価は低い方から (\downarrow)-*spin* バンド, (\uparrow)-*spin* バンドそれぞれに対して 19 コのバンドを使って行った。

§3. スピ ン 波

スピン波励起スペクトルは (4) 式の $X_\mu(\mathbf{q}, z)$ の虚部の極より求められる。その際 d 軌道 ($\mu=1\sim 15$) からの寄与と, OPW ($\mu=16\sim 30$) からの寄与に対して (4) 式の $X_\mu(\mathbf{q}, z)$ はそれぞれ次の形で表わされる。

$$X_\mu(\mathbf{q}, z) = \sum_\nu \sum_\xi \Gamma_{\mu\xi}(\mathbf{q}, z) \chi_{\xi\nu}^0(\mathbf{q}, z) (\mu, \xi = 1 \sim 15, \nu = 1 \sim 30), \quad (10)$$

$$\Gamma(\mathbf{q}, z) = [I + A(\mathbf{q}, z)]^{-1} \quad (11)$$

$$A_{\mu\xi}(\mathbf{q}, z) = U_{eff,\xi}^{d-d} \chi_{\mu\xi}^0(\mathbf{q}, z) \quad (12)$$

ここで I は単位行列で $U_{eff,\xi}^{d-d}$ は $\det[I + A(\mathbf{q}, z)] \sim 0$ の条件から実測値が再現されるよう決定される。

$$X_{\mu}(\mathbf{q}, z) = \sum_{\nu} \chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, z) - \sum_{\nu} \sum_{\xi} \sum_{\eta} \chi_{\mu\xi}^0(\mathbf{q}, z) M_{\xi\eta}(\mathbf{q}, z) \chi_{\eta\nu}^0(\mathbf{q}, z) \quad (13)$$

$(\mu = 16 \sim 30, \nu = 1 \sim 30, \xi, \eta = 1 \sim 15)$

$$M_{\xi\eta}(\mathbf{q}, z) = U_{eff,\xi}^{d-d} \Gamma_{\xi\eta}(\mathbf{q}, z) \quad (\xi, \eta = 1 \sim 15) \quad (14)$$

(7) 式の $\chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, z)$ の計算から (10), (13) 式の虚部の極よりスピン波励起スペクトルが求められるがこれらの計算を多数の \mathbf{q} について評価するのは現在の所非常に困難なため, (10), (13) 式による評価は主な \mathbf{q} についてのみ行ない, 他は (8) 式の分子で係数 $a_{n\mu\sigma}^*(\mathbf{k})$ 等を一定とし分母の $E(n, \mathbf{k}, \sigma)$ のみでスピン波励起スペクトルを評価する。その場合には (4), (7) 式に対応する式は次の形で表わされる。

$$\text{Im} X^0(\mathbf{q}, z) \sim \frac{\text{Im} \chi_c^0(\mathbf{q}, z)}{(1 + U_{eff}^{d-d} \text{Re} \chi_c^0(\mathbf{q}, z))^2 + (U_{eff}^{d-d} \text{Im} \chi_c^0(\mathbf{q}, z))^2} \quad (15)$$

$$\chi_c^0(\mathbf{q}, z) = \sum_{n, m, \mathbf{k}} \frac{f_{n\mathbf{k}\sigma} - f_{m\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}}{\hbar z - E(m, \mathbf{k} + \mathbf{q}, \sigma') + E(n, \mathbf{k}, \sigma)} \quad (16)$$

このような方法によるスピン波励起スペクトルの評価は大局的であるが有用な視察を与えてくれる。(15) 式の U_{eff}^{d-d} はその分母が零になるような条件で実測値が再現されるよう決められる。

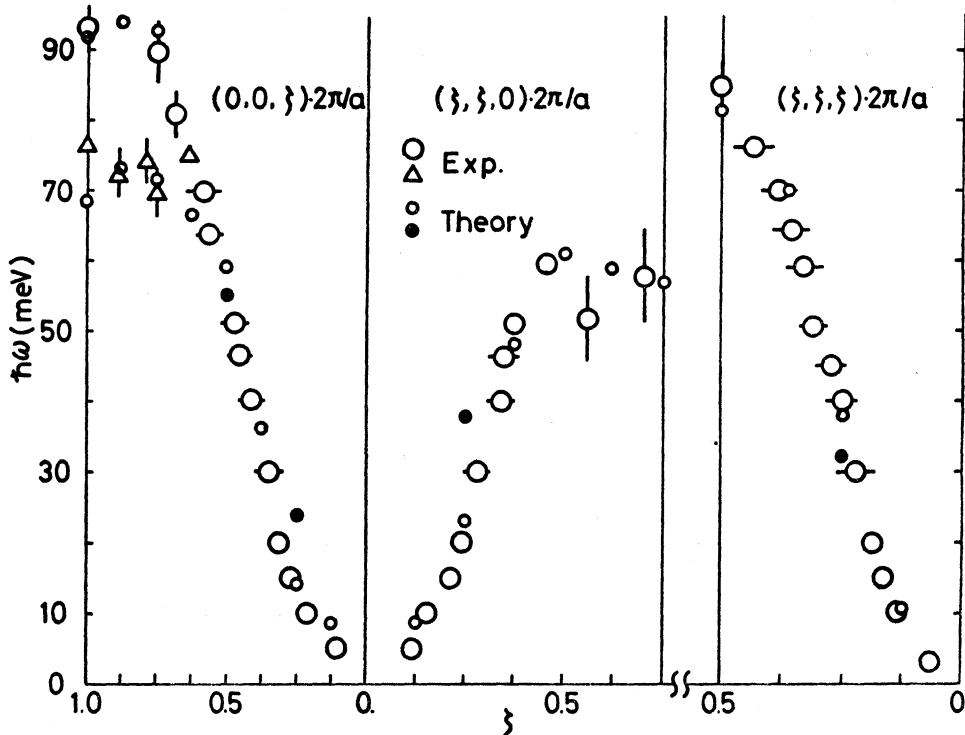


図 1. Cu_2MnAl のスピン波分散関係。大きい丸, 三角は田島, 石川ら¹⁵⁾ の実測値, 小さい丸, 黒丸はそれぞれ式 (15), 式 (10), (13) より求めた理論値。

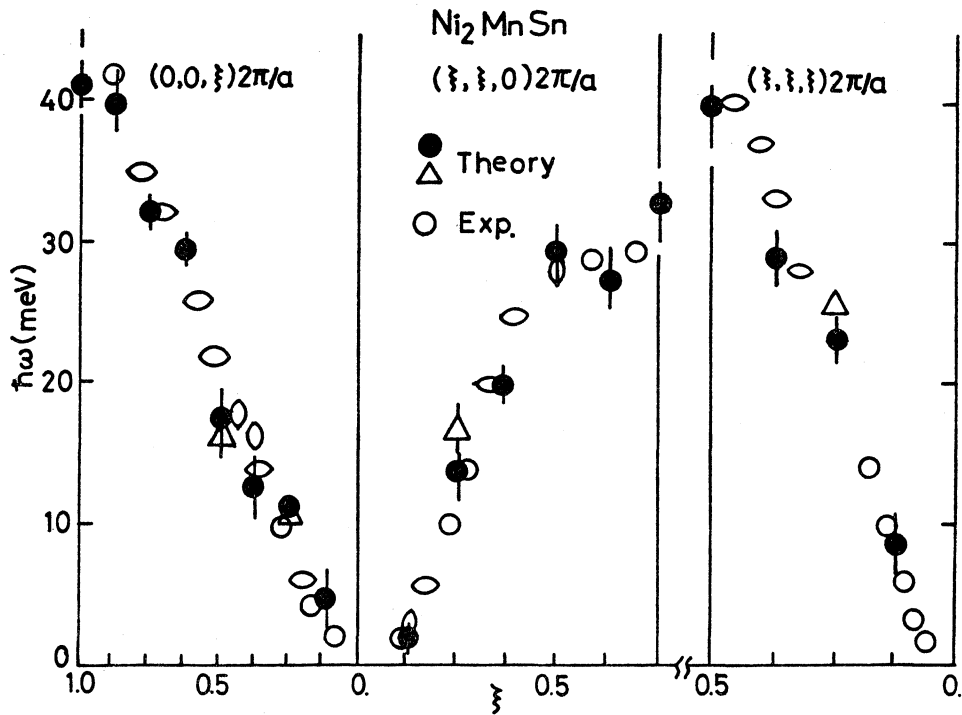


図 2. Ni_2MnSn のスピン波分散関係。○, △: 野田, 石川¹³⁾ による実測値, ●: (15) 式による理論値, △: (10), (13) 式による理論値。

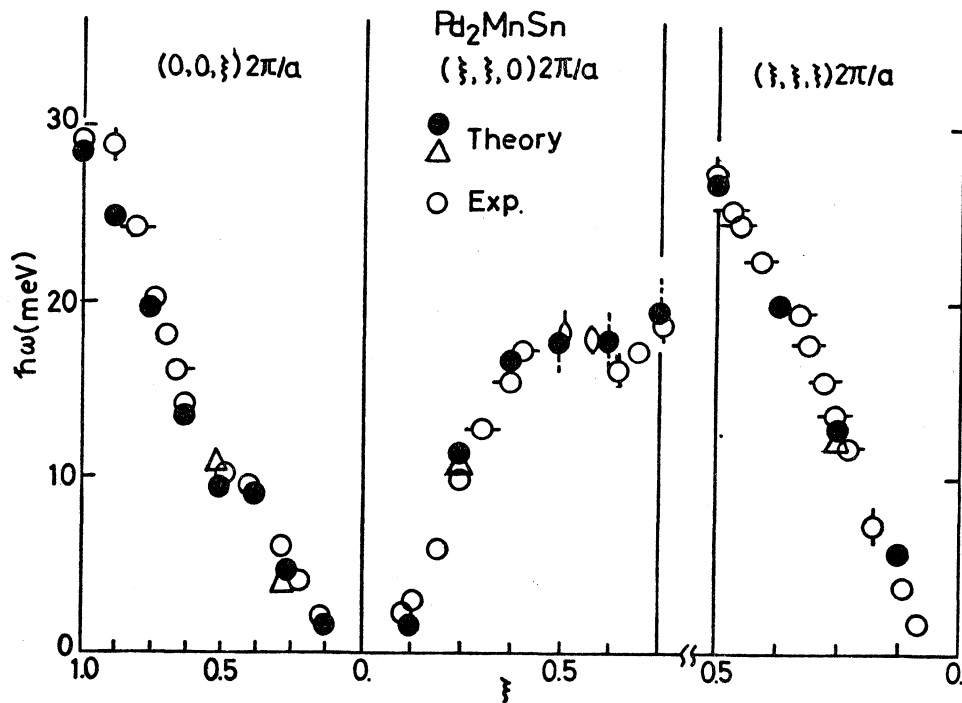


図 3. Pd_2MnSn のスピン波分散関係。○, △: 野田, 石川¹³⁾ による実測値, ●: 式 (15) から求めた理論値, △: 式 (10), (13) より求めた理論値。

以上のプロセスより (10), (13), (15) 式より求めたスピン波分散関係を図 1, 2, 3 に示す。

図 1 は Cu_2MnAl のスピン波励起スペクトルの分散関係で、田島、石川ら¹⁵⁾ の実測値と、(10), (13), (15) 式より求めた理論値が比較して示される。図 2 は Ni_2MnSn のもので実測値は野田、石川ら¹⁴⁾ のものである。又、図 3 は Pd_2MnSn のもので実測値は野田、石川ら¹⁴⁾ によるものである。図 1, 2, 3 に見られるように、理論値は実測値をいずれの場合もよく再現していることが知られる。ところで、これらの理論値を求める際、式 (12), (14) に見られる $U_{\text{eff},\xi}^{d-d}$ をパラメータとして扱おうわけだが、その値は ξ が 1~5 (Mn に対応) に対しては \mathbf{q} が 0 の場合、(\downarrow)-spin バンドと (\uparrow)-spin バンドの交換分裂の大きさに対応するものである。それゆえ、各物質の交換分裂の値 (一意的には決まらないけれども) は、 $U_{\text{eff},\xi}^{d-d} (\xi=1\sim 5)$ を決める際の目安となる。

一方、 $\xi=6\sim 15$ (X atom に対応) のものに対してははっきりとした目安になるものがない。ただ (12) 式の $\chi_{\mu\xi}^0(\mathbf{q}, \omega)$ の $\xi=6\sim 15$ の値は $\xi=1\sim 5$ に対する値に比べ一桁以上小さく、常識的に考えられる $U_{\text{eff},\xi}^{d-d} (\xi=6\sim 15)$ の値 ($\xi=1\sim 5$ のものと同じオーダーか、それ以下の値) の範囲では $\det[\mathbf{I} + \mathbf{A}(\mathbf{q}, \omega)] \sim 0$ の決定に際し本質的な影響はしない。つまり、 $\det[\mathbf{I} + \mathbf{A}(\mathbf{q}, \omega)] \sim 0$ の条件を決定づけるのは $U_{\text{eff},\xi}^{d-d} (\xi=1\sim 5)$ の値である。現在の所、 $\xi=1\sim 5$ に関し別々にその値を決定できないので、 $U_{\text{eff},\xi}^{d-d}$ は $\xi=1\sim 5$ に対し全て同じ値とした。それらの値を X=Cu, Ni, Pd に対して表 I に示す。その表にみられる $U_{\text{eff},\xi}^{d-d}$ の値は \mathbf{q} が有限での値であるが、各物質の交換分裂の値に大体対応していることが知られる。 Pd_2MnSn の場合、それらの間の差が少し大きいけれども、このことは後程示されるように、そのスピン波励起スペクトルを決める Mn-Mn 相間のスペクトルのピーク位置が約 1.5 eV 程度の間隔で分かれているためである。

表 I. X_2MnY (X=Cu, Ni, Pd, Y=Al, Sn) の Mn の $U_{\text{eff},\xi}^{d-d}$ の値を各 \mathbf{q} に対して示す。splitting value は majority-spin バンドと minority-spin バンドの Mn の d 電子状態の交換分裂の大きさを与える。 U_{eff}^{d-d} は (15) 式の値で、図 1, 2, 3 にみられる各 \mathbf{q} の値に対するスピン波エネルギーは、示された範囲内の値で求められる。

$\mathbf{q}(2\pi/a)$	Cu_2MnAl	Ni_2MnSn	Pd_2MnSn
$\langle 001 \rangle 1/4$	2.98 (eV)	4.43 (eV)	4.19 (eV)
$\langle 001 \rangle 1/2$	3.36	4.53	4.26
$\langle 110 \rangle 1/4$	3.41	4.71	4.25
$\langle 111 \rangle 1/4$	3.23	4.38	4.28
splitting value	2.77	4.41	4.94
U_{eff}^{d-d}	.033~.036	.036~.037	.031~.033

一方、(15) 式の U_{eff}^{d-d} の値は絶対値としては意味を持たないけれども、表 I に示すように各 \mathbf{q} の変化に対し、各物質ごとほぼ同じ値で各スピン波励起スペクトルを再現することが知られる。

ところで、スピン波励起スペクトルは (2) 式から知られるように (\downarrow)-spin バンドから

(↑)-spin バンドへの励起に対応する $\chi^+(\mathbf{q}, \omega - i\epsilon)$ と、その逆の励起による $\chi^-(\mathbf{q}, \omega - i\epsilon)$ とから得られるが、ここで考えている Cu₂MnAl, Ni₂MnSn, Pd₂MnSn に対しては、そのスピン波励起スペクトルは $\chi^+(\mathbf{q}, \omega - i\epsilon)$ により決定される。それゆえ、以下の各節での考察は $\chi^+(\mathbf{q}, \omega - i\epsilon)$ に対してのみ行なわれる。

§4. 動的スピン帯磁率

式 (10), (11), (13), (14) を図式的に示すと次のように表わせる。

$$\chi_{\mu\nu}(\mathbf{q}, \omega) = \sum_{\nu} \uparrow \left[\text{Diagram: Ellipse with shaded left half and arrow } \Gamma \right] \downarrow = \sum_{\nu} \uparrow \left[\text{Diagram: Ellipse with arrow } \Gamma \right] \downarrow \quad (\mu=1\sim 15, \nu=1\sim 30) \quad (10')$$

$$\Gamma_{\mu\xi}(\mathbf{q}, \omega) = \delta_{\mathbf{q}, 0} + \dots \left[\text{Diagram: Ellipse with shaded left half and arrow } \mu \right] \quad (\mu, \xi=1\sim 15) \quad (11')$$

$$\chi_{\mu\nu}(\mathbf{q}, \omega) = \sum_{\nu} \uparrow \left[\text{Diagram: Ellipse with arrow } \Gamma \right] \downarrow - \sum_{\nu} \uparrow \left[\text{Diagram: Ellipse with shaded right half and arrow } M \right] \downarrow \quad (\mu=16\sim 30, \nu=1\sim 30) \quad (13')$$

$$M_{\xi\eta}(\mathbf{q}, \omega) = \left[\text{Diagram: Two vertical arrows } \xi \text{ and } \eta \text{ with dashed line} \right] + \left[\text{Diagram: Rectangle with shaded bottom half and arrow } M \right] \quad (\xi, \eta=1\sim 15) \quad (14')$$

(10'), (13') 式の虚部の極からスピン波励起スペクトルが決まるわけだが、その際そのスピン波励起を特徴づけるのは零次の動的帯磁率 $\chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, \omega)$ で電子-正孔対の 2 粒子グリーン関数である。そこで $\chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, \omega)$ をあるモーメントベクトル \mathbf{q} 、エネルギー $\hbar\omega$ に対する構造に対して詳細に調べれば、スピン波励起スペクトルがどのような電子状態間の相関効果から生じたかを評価することができる。又それらのモーメントベクトル \mathbf{q} への依存性を調べることでその場合のスピン密度間の相関が短距離的なものか、長距離的なものであるかを調べることができる。

ここで取り扱う X₂MnY (X=Cu, Ni, Pd, Y=Al, Sn) の場合、スピン波励起の主な担い手は Mn の d 電子であるから、Mn の d 電子間の相関 ($\mu=1\sim 5, \nu=1\sim 5$, 対角項 $\nu=\mu$, 非対角項 $\nu\neq\mu$), Mn の d 電子と X 原子の d 電子間の相関 ($\mu=1\sim 5, \nu=6\sim 15$), Mn の d 電子と OPW 間の相関 ($\mu=1\sim 5, \nu=16\sim 30$) を調べればよいことがわかる。

図 4-a は Cu₂MnAl の $\chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, \omega)$ の虚部で $\mathbf{q}=(001)^{1/4}$ の場合の Mn の対角項 ($\mu=\nu=1\sim 5$) の和 $\text{Im}\chi_{\mu\mu}^0$ と Mn-Mn, Mn-X, Mn-OPW よりなり非対角項 ($\mu=1\sim 5, \nu=1\sim 30, \mu\neq\nu$)

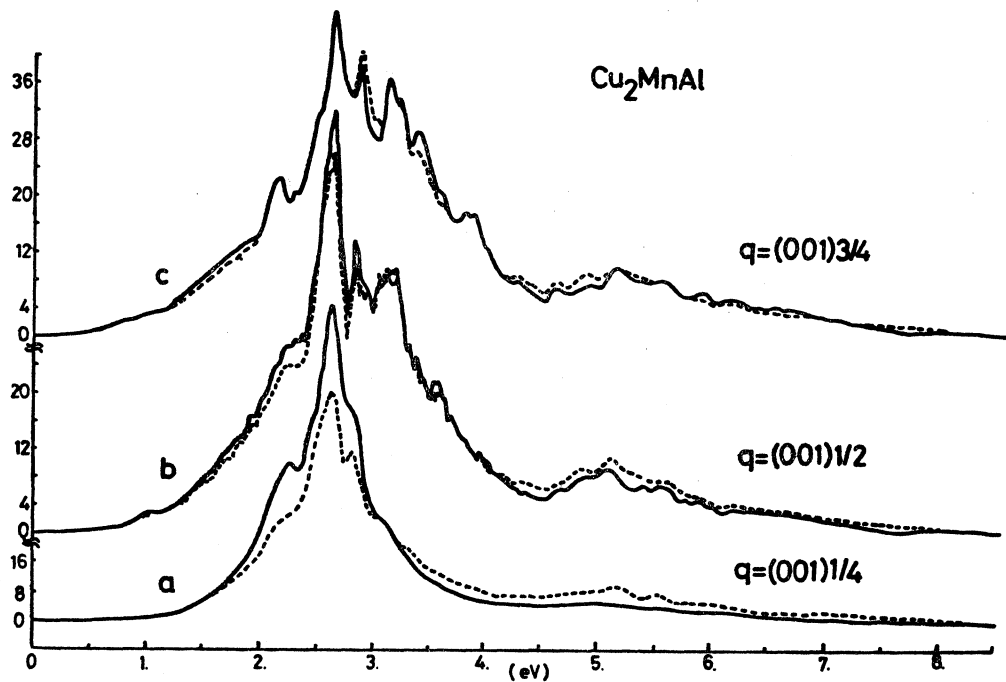


図 4. Cu_2MnAl の零次の動的帯磁率の虚部。実線は、Mn-Mn (対角項, 非対角項), Mn-Cu, Mn-OPW 間の遷移に対して和をとったもの, 破線は Mn-Mn (対角項) 間のみの遷移に対して和をとったもの。

も含めたものの和からなるもの $\text{Im } \chi^0$ を比較して示す。図において 2.8 eV 付近に中心を持つスペクトルのピークがスピン波励起の分極の主な担い手で、その分極を通じて (10), (10') 式と (13), (13') 式の第 2 項の虚部の極が決まることになる。そこで図にみられるような非対角項からの寄与が充分認められる場合には、そのスピン波励起は Mn の d 電子間の非対角項, Mn-X, Mn-OPW 間の相関によるスピン分極の影響を強く受けることが予想される。そこでそのような非対角項からの寄与を図 5-a に示す。

図から知られるように Mn-Mn, Mn-Cu, Mn-OPW の寄与は Mn-Mn の対角項とほとんど同じエネルギー領域にそれらのスペクトルのピークを持ち対角項に対して 9% から 15% 程度の大きさを示している。図 4-b は $q=(001)^{1/2}$ の場合の $\text{Im } \chi_d^0$ と $\text{Im } \chi^0$ を示す。図 4-a と比べスペクトルがブロードになりピーク値での大きさが 15% 近く小さくなっていることが知られる。又非対角項からの寄与がかなり小さくなっている。その非対角項からの寄与を図 5-b に示す。図からわかるように、この場合には Mn-Mn, Mn-Cu, Mn-OPW からの寄与はほぼ同じで対角項の 6% 程度の寄与になっている。さらに図 4-c に $q=(001)^{3/4}$ の場合の $\text{Im } \chi_d^0$, $\text{Im } \chi^0$ を示す。この場合は $q=(001)^{1/2}$ の場合と大体同じスペクトル構造で、ただピーク値はそれより 15% 近く小さくなっている。又非対角項からの寄与は非常に小さくなっていることがわかる。図 5-c にその非対角項からの寄与を示す。この場合は対角項のメインピーク位置付近での非対角項からの寄与が Mn-Mn に対しては逆符号で Mn-Cu, Mn-OPW に対しては同符号となっており、それらの値は対角項の 2%~5% 程度である。又 1.7 eV 付近の低エネルギー領域に Mn-Mn の非対角項からの寄与がみえるのが特徴的である。

次に Pd_2MnSn の場合について調べる。

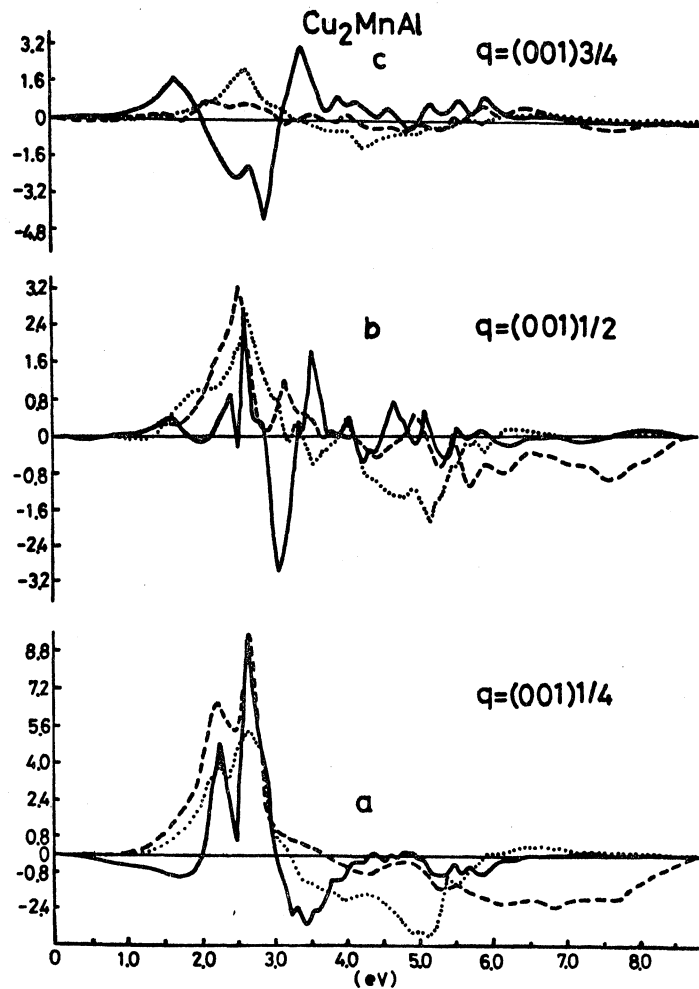


図 5. Cu_2MnAl の零次の動的帯磁率の虚部で, Mn の遷移に対して非対角項からの寄与。
 実線: Mn-Mn (非対角項), 点線: Mn-Cu, 破線: Mn-OPW.

図 6-a は $q=(001)^{1/4}$ の場合の $\text{Im}\chi_a^0$ と $\text{Im}\chi^0$ で, $\text{Im}\chi_a^0$ のメインピーク位置が 4.1 eV, 5.6 eV 付近にあり図 4 の Cu_2MnAl の場合と比較して相当高エネルギー側に移っている。又 $\text{Im}\chi_a^0$ のスペクトルが 2 つに別れているのも特徴的である。 $\text{Im}\chi^0$ と $\text{Im}\chi_a^0$ を比較すると 3 eV, 4 eV 付近で大きな差が認められ非対角項からの寄与が示唆される。図 7-a にその非対角項からの寄与を示す。

図より, 4 eV, 5.6 eV 付近に Mn-Mn, Mn-Pd, Mn-OPW からの寄与が対角項に対して 11% 程度みられ, 5.6 eV 付近では Mn-Pd からの寄与は対角項と逆符号であることがわかる。又 3 eV 付近の Mn-Pd からの寄与は, 対角項に対して 60% 以上で, 0.3 eV 付近に Mn-Pd, Mn-OPW からの寄与が認められるのが Cu_2MnAl の場合と比べて大きく違っている。図 6-b に $q=(001)^{1/2}$ の場合の $\text{Im}\chi_a^0$, $\text{Im}\chi^0$ を示す。図から知られるように, 5.6 eV 付近のピーク値が $q=(001)^{1/4}$ の場合と比べ 15% 程度小さくなっているが, 4.1 eV 付近のものはほとんど変わっていない。この場合の非対角項からの寄与を図 7-b に示す。図 7-a にみられたように, この場合も Mn-Pd 間の相関が 3 eV, 4 eV 付近で他と比べて大きく低エネルギー ($\sim 1\text{eV}$ 以下) 側に Mn-Pd, Mn-OPW からの寄与が認められる。図 6-c に $q=(001)^{3/4}$ の場合の $\text{Im}\chi_a^0$,

$\text{Im}\chi^0$ を示す。この場合は $q=(001)^{1/2}$ のものと比べそのスペクトルのピーク位置が 0.2eV 程度高エネルギー側へシフトしているがそれとほとんど変わらない。その非対角項からの寄与を図 7-c に示す。図にみられるように、 4eV 、 5.6eV 付近の Mn-Mn からの寄与が対角項と逆符号で、Mn-OPW からの寄与が小さくなっているが、Mn-Pd からの寄与は 3eV 、 4eV 付近にみられ、 1eV 以下の低エネルギー側に Mn-Pd、Mn-OPW からの寄与が認められる。

次に Ni_2MnSn の場合を示す。

図 8-a は Ni_2MnSn の $\text{Im}\chi^0$ 、 $\text{Im}\chi^0$ で 2eV から 4eV 付近にわたって非対角項からの寄与が大きいことが知られる。図 9-a にその非対角項からの寄与を示す。

図にみられるように、 3.5eV から 4eV 付近は主に Mn-Mn、Mn-OPW からの寄与が大きいが、 $2\text{eV}\sim 3.5\text{eV}$ においては Mn-Ni、Mn-OPW からの寄与が大きく、Mn-Mn の対角項がつくるピーク位置からはずれた所に、 Pd_2MnSn の場合と比べると小さいけども、Mn-Ni からの寄与が認められる。又 1eV 以下の低エネルギー側に Mn-Ni、Mn-OPW からの寄与が認められる。 $q=(001)^{1/2}$ の場合は $\text{Im}\chi^0$ 、 $\text{Im}\chi^0$ は図 8-b にみられるように $q=(001)^{1/4}$ の場合と比べ全体的に高エネルギー側に 0.3eV 程度シフトしている。この場合の非対角項からの寄与を図 9-b に示す。図から知られるように、Mn-Mn からの 4.1eV 付近にみられるピークは $q=(001)^{1/4}$ の場合の対応するものに比べ 0.3eV 程度高エネルギー側へシフトしているが、Mn-OPW からの寄与はほとんど移動していないでその大きさが $q=(001)^{1/4}$ の場合と比べて半分程度になっている。又 Mn-Ni からの寄与が 2.2eV 付近に小さなピークとしてみとめられる。 $q=(001)^{3/4}$ の場合は図 8-c より $\text{Im}\chi^0$ 、 $\text{Im}\chi^0$ は $q=(001)^{1/2}$ の場合とほとんど同じであることがわかる。その非対角項からの寄与を図 9-c に示す。図から知られるように、この場

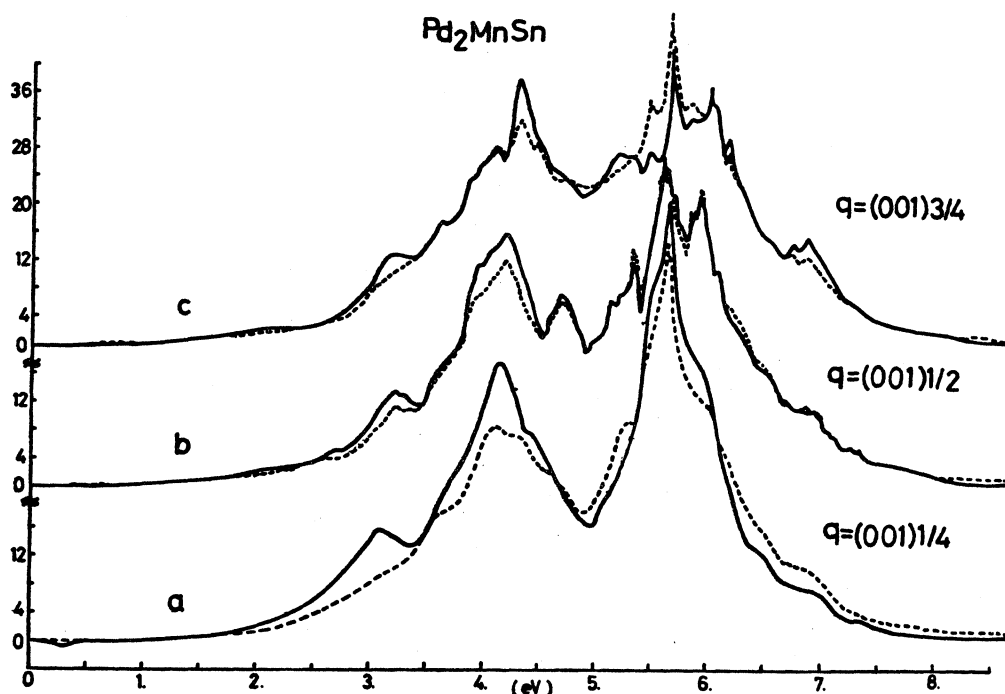


図 6. Pd_2MnSn の零次の動的帯磁率の虚部。実線は、Mn-Mn (対角項, 非対角項), Mn-Pd, Mn-OPW 間の遷移に対して和をとったもの、破線は Mn-Mn (対角項) のみの遷移に対して和をとったもの。

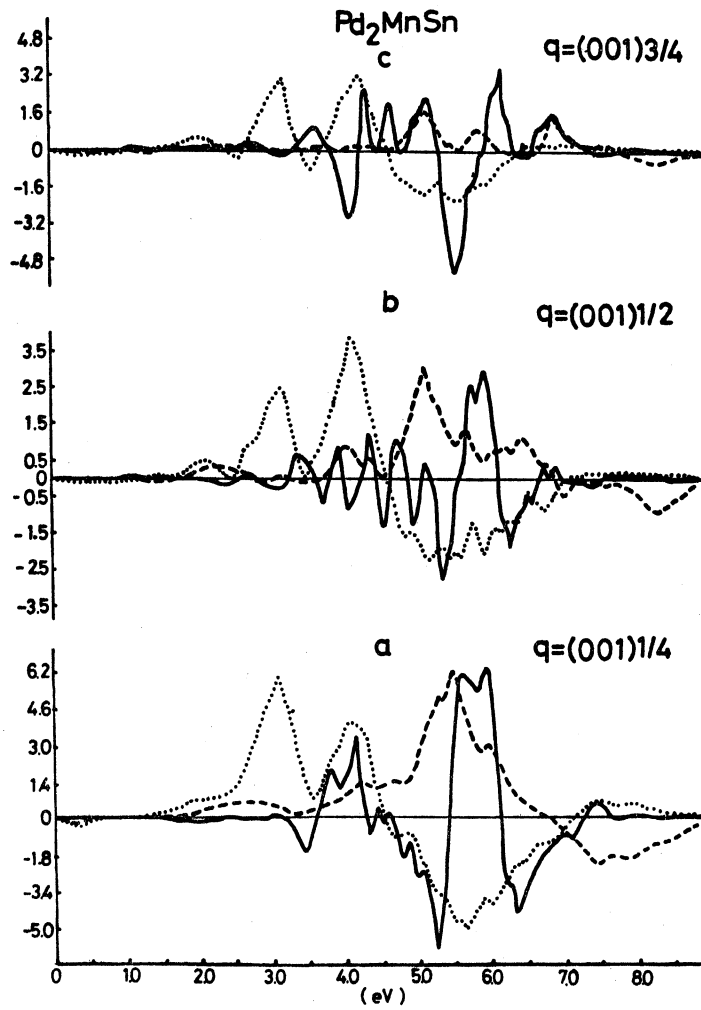


図 7. Pd_2MnSn の零次の動的帯磁率の虚部。実線: Mn-Mn (非対角項), 点線: Mn-Pd, 破線: Mn-OPW。

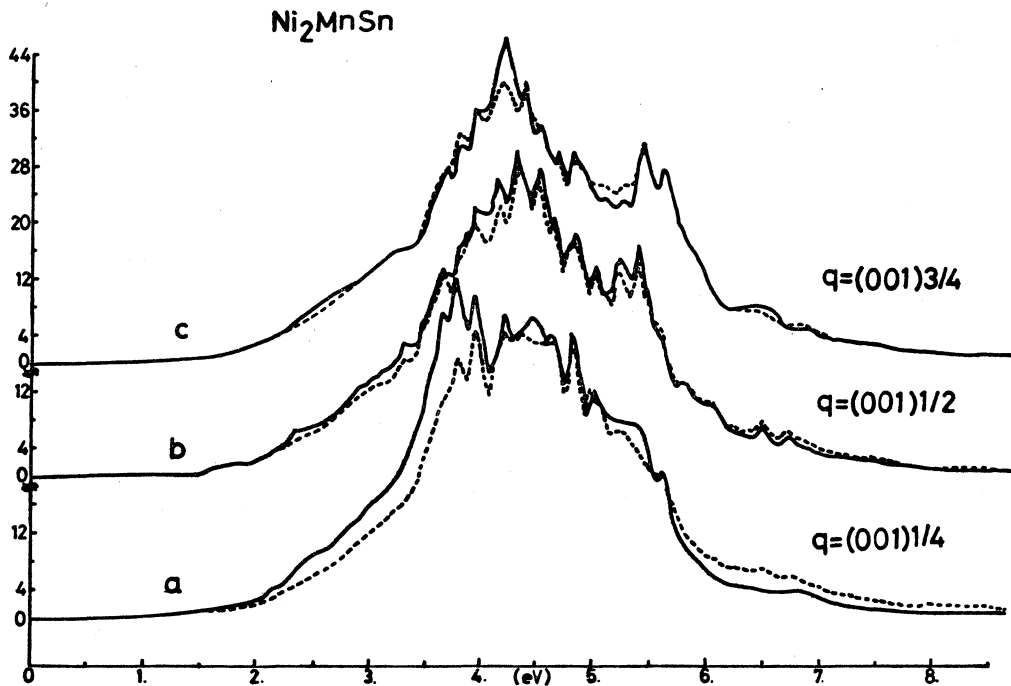


図 8. Ni_2MnSn 零次の動的帯磁率の虚部。実線は、Mn-Mn (対角項, 非対角項), Mn-Ni, Mn-OPW 間の遷移について和をとったもの, 破線は Mn-Mn (対角項) 間のみ遷移に対して和をとったもの。

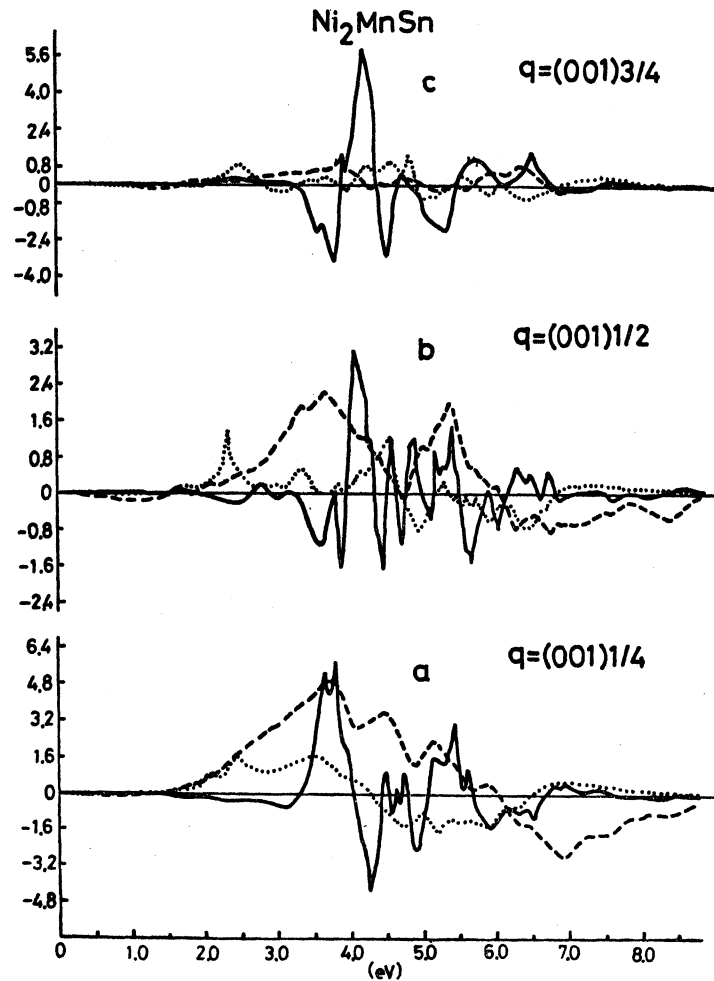


図 9. Ni_2MnSn の零次の動的帯磁率の虚部。実線: Mn-Mn (非対角項), 点線: Mn-Ni, 破線: Mn-OPW。

合は 4.3eV 付近にみられる Mn-Mn からの寄与に比べ, Mn-Ni, Mn-OPW からの寄与, 特に Mn-OPW からの寄与が小さくなっていて, Mn-Mn からの寄与が $q=(001)^{1/2}$ の時の倍程度に増加している。

以上示した Cu_2MnAl , Pd_2MnSn , Ni_2MnSn の $\text{Im}\chi^0$, $\text{Im}\chi_d^0$, $\text{Im}\chi_{\mu\nu}^0$ の構造の特徴から, それぞれのスピนว励起の担い手が何であるかが理解でき, 又磁氣的相互作用機構についての情報を得ることができる。それらに関しては次の節で実測値との比較を通して検討する。

§5. スピนว励起と磁氣的相互作用機構

ホイスラー合金 X_2MnY ($\text{X}=\text{Cu}, \text{Ni}, \text{Pd}$, $\text{Y}=\text{Al}, \text{Sn}$) のバンド構造に基づいて求めたそれらのスピนว励起スペクトルは §3 においてみられたように石川らの実測値をよく再現することがわかった。そしてそれらのスピนว励起スペクトルを構成するスピन्द度の分極スペクトルは §4 においてみられたように, Cu_2MnAl , Pd_2MnSn , Ni_2MnSn それぞれに特徴的構造を示す。そこでここではスピนว励起の仕方が $\text{X}=\text{Cu}, \text{Ni}, \text{Pd}$ に対してどのように異なり, そのことが磁氣的相互作用機構にどのような相違を生じさせるかを調べる。

まずスピンドイナミックススペクトルは (10), (13) 式の虚部の極から得られるけれども, その際そのスピンドイナミックスの分極の主な担い手は (11), (11'), (14), (14') 式から知られるように分極マトリックス $\Gamma(\mathbf{q}, \omega)$ である。このマトリックスは今の場合次に示すように 15×15 のマトリックスからなっている。

$$\Gamma(\mathbf{q}, \omega) \sim \begin{matrix} & \begin{matrix} 5 & 10 \end{matrix} \\ \begin{matrix} 5 \\ 10 \end{matrix} & \left(\begin{array}{cc} \text{Mn-Mn} & \vdots & \text{Mn-X} \\ \dots\dots\dots & \vdots & \dots\dots\dots \\ \text{X-Mn} & \vdots & \text{X-X} \end{array} \right) \end{matrix} \quad (17)$$

つまり, Mn-Mn (対角項, 非対角項), Mn-X, X-X 間のそれぞれの d 電子のスピンドイナミックス密度間の相関によりつくられるスピンドイナミックス密度の分極項がスピンドイナミックスの担い手となるのである。そこで (17) 式において行列の各要素がスピンドイナミックスに対してどのような寄与をするかを調べればどの状態間の相関項がその際大切であるかを知ることができる。ところで, (17) 式の各要素は (11'), (12), (14') 式から知られるように電子-正孔対の分極 (7) 式から決められる。そして (7) 式の分極項 $\text{Re } \chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, \omega)$ とスペクトル項 $\text{Im } \chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, \omega)$ は次式のようにクラマース・クローニヒの関係で結びついており, スペクトル項を調べることで分極項の構造を知ることができる。

$$\text{Re } \chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, \omega) = -(\pi)^{-1} P \int_{-\infty}^{\infty} \text{Im } \chi_{\mu\nu}^0(\mathbf{q}, \omega') (\omega - \omega')^{-1} d\omega' \quad (18)$$

勿論, ここで考えているホイスラー合金の場合 Mn が磁気モーメントの主な担い手であるから (17) 式で Mn-Mn, Mn-X, X-Mn の項を調べればよい。まずスピンドイナミックスの分極の主な担い手である Mn-Mn の d 電子間の相関の対角項が $\mathbf{X} = \text{Cu, Ni, Pd}$ でどのような変化を示すかを調べてみる。図 4, 6, 8 にみられるように, Cu₂MnAl の場合は 2.7 eV 付近に鋭いピークを持つ 1.5 eV 程度の巾のスペクトルで, Ni₂MnSn の場合は 4.2 eV 付近に中心のある 3 eV 程度の巾のブロードなもので, Pd₂MnSn の場合は 4.2 eV, 5.7 eV 付近の 2 個所にピークを持つ 4 eV 程度の巾のブロードなものとなっている。つまり分極項の担い手であるこれらのスペクトルの中心位置が $\mathbf{X} = \text{Cu, Ni, Pd}$ の順で高エネルギー側にシフトし, しかもよりブロードになっていることがわかる。そこで, $\mathbf{X} = \text{Cu}$ の場合は Mn-Mn の d 電子間の相関によりスピンドイナミックス分極が強く拘束されており, $\mathbf{X} = \text{Ni, Pd}$ と移るに従い (17) 式のオフダイアゴナルの要素が大切な因子となることが期待され, Mn-Mn の対角項による相関がやわらげられることが推察される。つまり, (17) 式の Mn-Mn の対角項が $\mathbf{X} = \text{Pd, Ni, Cu}$ の順で $\Gamma(\mathbf{q}, \omega)$ の主要項でスピンドイナミックスの主な担い手となる。

次に Mn-Mn の非対角項, Mn-X による項の寄与を調べてみる。これらについては, 図 5 の $\mathbf{X} = \text{Cu}$ と図 7 の $\mathbf{X} = \text{Pd}$ の場合の比較を行なう。図 5 において, Mn-Mn の非対角項は $\mathbf{q} = (001)^{1/4}$ の場合には分極への有効な寄与が期待できるけれども, $\mathbf{q} = (001)^{1/2}$, $\mathbf{q} = (001)^{3/4}$ では振動型のスペクトルより相殺され, 分極への寄与は非常に小さくなるであろうことが推察される。又 Mn-Cu の場合も同様な傾向がみられる。一方 Pd₂MnSn の場合には図 7 にみられるように, Mn-Mn の相関項は $\mathbf{X} = \text{Cu}$ の場合と同様なふるまいを示すが, Mn-Pd に関してはそのスペクトルのピーク位置が Mn-Mn の対角項のものより低いエネルギー側 (3 eV 付近のもの) にありその値も大きく, 又 1 eV 以下の低エネルギー側にもその寄与が認められる。それゆえ $\mathbf{X} = \text{Pd}$ の場合は (17) 式の Mn-X の項からの寄与が $\mathbf{X} = \text{Cu}$ の場合に比べ大切な因

子となり、Mn-Mn の対角項による分極が Mn-Pd 間の分極効果に充分影響される。X=Ni の場合は、図 9 より Mn-Ni 間の相関の様子はほぼ X=Cu と X=Pd の間にあると見なされる。ただこの場合は Mn-Mn の非対角項の寄与が q の増加に対しても残っているようである。

一方 (13) 式の第 2 項は次式のように書き換えることができ、いわゆる s - d タイプの相互作用表現^{4,5)} と対応づけられる。

$$\begin{aligned} & (g\mu_B)^{-1} \sum_{\xi, \eta, \nu} \chi_{\mu\xi}^0(\mathbf{q}, \omega) (g\mu_B)^{-1} U_{eff, \xi}^{d-d} \mathbf{X}_{\xi}(\mathbf{q}, \omega) \delta s_{\xi} \\ &= (g\mu_B)^{-1} \sum_{\xi, \eta, \nu} \chi_{\mu\xi}^0(\mathbf{q}, \omega) (g\mu_B)^{-1} M_{\xi\eta}(\mathbf{q}, \omega) \delta s_{eff, \xi} \\ &= \delta s_{\mu} \quad (\xi, \eta, \nu = 1 \sim 15, \mu = 16 \sim 30) \end{aligned} \quad (19)$$

ここで δs_{ξ} は d 電子スピンのゆらぎの大きさであり、それが (14') 式に示されるバーテックスを通して有効磁場となり $\chi_{\mu\xi}^0$ により伝導電子 (OPW) のスピン分極 δs_{μ} を誘起するのである。(19) 式の形での s - d タイプの相互作用を通じてスピン波励起スペクトルへの寄与は、(13) 式の虚部 (第 2 項) から求められるが、実際に有効な寄与をするのは第 2 項で $\text{Im} \chi_{\mu\xi}^0 \cdot \text{Re} M_{\xi\eta} \cdot \text{Re} \chi_{\eta\nu}^0$ の項からである。そこで、Mn-OPW の相関項としては低エネルギー側の $\chi_{\mu\xi}^0$ のスペクトルが重要な因子となることがわかる。図 5, 7, 9 を調べてみると、図 7, 9 においては、1 eV 以下の低エネルギー領域に Mn-OPW によるスペクトルが小さいながら認められる。実際 (13) 式の第 2 項を評価してみると、Pd₂MnSn と Cu₂MnAl については既に示したが²²⁾、Pd₂MnSn, Ni₂MnSn においては q の大きい場合でも Mn-OPW からの寄与がかなりあることが知られる。そして X=Cu, Ni, Pd の順でその寄与の大きさが大きくなっている。図 5, 7, 9 において、各物質の Mn-Mn 間の相関付近にみられる Mn-OPW スペクトルのピーク位置が、X=Cu, Ni, Pd の順で q が大きくなるにつれ低エネルギー側へシフトしているのが見られるが、この現象はこのことと関係しているのかもしれない。

次に磁氣的相互作用機構に関して調べる。そのためにはスピン波励起へのモーメントトランスファーベクトル q 依存がどのような電子状態間の相関を伴うかを調べればよい。X=Cu の場合には、 $q=(001)^{1/4}$ において Mn-Mn の対角項に対して非対角項からの寄与は、図 5-a にみられるように、Mn-Mn, Mn-X, Mn-OPW の各々に対して 10~15% に及び (13) 式の第 2 項からの寄与は (10) 式からのものとほぼ同程度になっている。しかし $q=(001)^{1/2}$ の場合には図 4-b, 5-b から知られるように非対角項からの寄与は対角項のせいぜい 6% 程度で、そのスピン波励起スペクトルは (10) 式の Mn-Mn の対角項でほとんど決められる。 $q=(001)^{3/4}$ の場合はスピン波励起スペクトルを計算していないが図 4-c, 5-c の対角項、非対角項の比較から Mn-Mn の対角項によるスピン波励起スペクトルへの寄与が支配的であろう。

X=Pd の場合には、 $q=(001)^{1/4}$ の時には図 6-a, 7-a にみられるように非対角項からの寄与が大きく Cu₂MnAl の場合と同様 (13) 式の第 2 項からのスピン波スペクトルへの寄与が (10) 式からのものと同程度みられる。さらにこの場合には $q=(001)^{1/2}$ においても、先に図 7-b において指摘したように Mn-Pd の相関による寄与が充分有効で、(17) 式に示した Mn-Mn の対角項に対してこの非対角項による寄与が無視できない。そこで、Mn-Mn 間の相関はやわらげられ、(13) 式の第 2 項からの寄与が充分認められる。 $q=(001)^{3/4}$ においては計算を行っていないが、図 6-c, 7-c を見る限りでは Mn-OPW のスペクトルが小さくなっているのので、(13) 式の第 2 項からの寄与はかなり小さくなるかもしれない。

X=Ni の場合には、図 8, 9 と他の場合と比較してみればわかるように、そのスピン波励起

スペクトルの q 依存は $X=\text{Cu}$ と $X=\text{Pd}$ の場合のほぼ中間に位置している。つまり、 Cu_2MnAl の場合は q が小さい時はスピン波励起に対して、 Mn-Mn , Mn-Cu , Mn-OPW からの寄与が大切で、 q が大きくなるとほとんど Mn-Mn 間の相関でスピン波が決められ、 Pd_2MnSn の場合は q が小さい時、大きい時共に Mn-Mn , Mn-Pd , Mn-OPW 間の相関を考えなくてはならないことを示唆している。そして Ni_2MnSn はそれらのほぼ中間状態にあるとみなされる。

一方石川らは中性子散乱により実測した $X_2\text{MnY}$ ($X=\text{Cu}$, Ni , Pd , $Y=\text{Al}$, Sn) のスピン波分散関係をハイゼンベルグ・ハミルトニアンにより解析し、それらの磁氣的相互作用機構について以下のような知見を得た。まず、 Mn のみが局在磁気モーメントを持つとするとスピン波分散関係は次式で与えられる²⁶⁾。

$$\hbar\omega_{\mathbf{q}} = 2S[J(0) - J(\mathbf{q})] \quad (20)$$

$$J(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{R}} J_{\mathbf{R}} e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}} \quad (21)$$

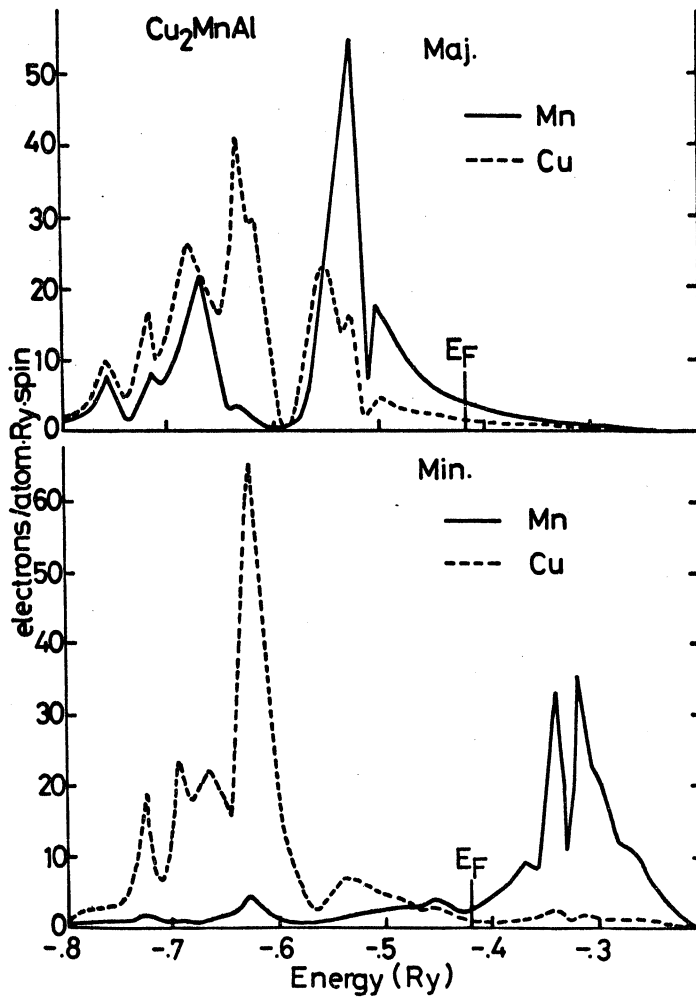


図 10. Cu_2MnAl の Cu と Mn の d 電子状態に対する状態密度曲線。上側が *majority-spin states*, 下側が *minority-spin states*.

ここで J_R は交換積分である。石川らは¹³⁻¹⁶⁾ (20), (21) 式より J_R をパラメーターとして実測されたスピン波励起スペクトルを再現し, その時得られた J_R からこれら合金の磁氣的相互作用は *long range* で, 充分離れた距離では *s-d* タイプの振動的ふるまいを J_R が示すことを見出した。石川らはさらに *nearly-free-election model* に基づいて J_R の評価を試みた。以上のような過程より次のような結論を得た。

(A) これら合金の磁氣的相互作用は *long range* で *3rd* 近傍以上での Mn-Mn 間の相互作用は簡単なモデルでの *s-d* タイプの相互作用で説明できる。

(B) J_1 の大きさは X atoms の種類に強く依存し伝導電子数には敏感でない。

石川らの得た (A), (B), の結果はこの節で示したバンド理論によるものと以下のように対応している。

スピン波励起スペクトル $\hbar\omega_q$ の q が小さい時 (実空間で考えると大きい距離での相互作用, J_R において R が大きい距離に相当する) は X=Cu, Ni, Pd 共に (18) 式に示した *s-d* タイプの相関がスピン波励起スペクトルに重要な寄与をするという点は (A) の結論に対応している。

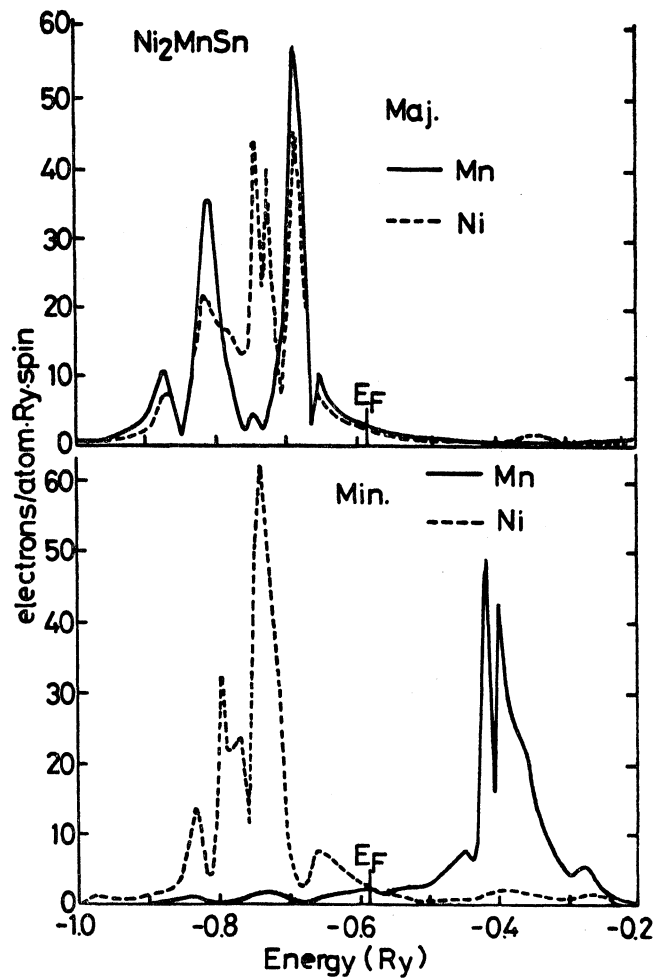


図 11. Ni_2MnSn の Ni と Mn に対する d 電子状態の状態密度曲線。上側に *majority-spin states*, 下側に *minority-spin states* に対するものを示す。

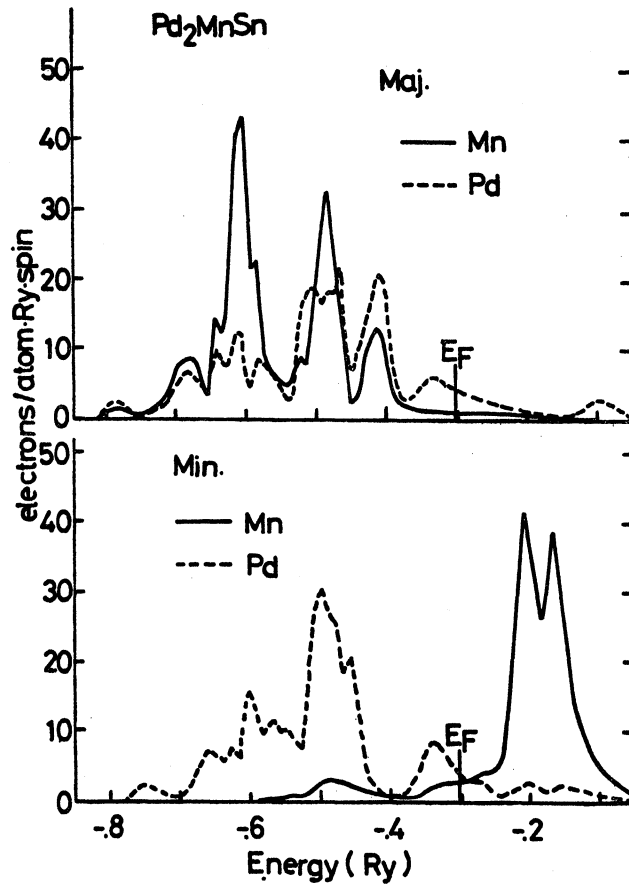


図 12. Pd_2MnSn の Pd と Mn に対する d 電子状態の状態密度曲線。上側に *majority-spin states*, 下側に *minority-spin states* に対するものを示す。

q が大きくなると (実空間において隣接間距離での相互作用, J_R で R が小さい距離に関する情報) $X=\text{Cu}$ の場合は (18) 式に対応する項からの寄与は充分小さくなり, その時のスピンドイナミックスはほとんど Mn-Mn 間の対角項の相関で済む。しかし, $X=\text{Pd}$ の場合は Mn-Pd, Mn-OPW からの寄与が大切で, $X=\text{Ni}$ の場合は $X=\text{Cu}$ と $X=\text{Pd}$ のほぼ中間に位置している。これらの点は (B) の結論と対応する。

結局, X atoms が Cu か Ni か Pd かで, (17) 式に分極マトリックスにおいて, Mn-Mn 間の相関が主要項になるか, Mn-X 間の相関によりその結びつきが緩和されるかどうかで, (19) 式の $s-d$ タイプの相関が Mn のスピンドイナミックスの橋渡しとして有効に働くかどうかポイントとなる。この X atoms の種類により Mn-Mn 間の相関が影響を受けるかどうかは, ホイスラー合金の状態密度を調べることで直観的には理解できる。そこで図 10, 11, 12 に $X=\text{Cu}$, Ni , Pd の場合の Mn と X atom の d 電子に対する状態密度を示す。図 10 から, (\downarrow)-*spin* バンドにおいて Mn の d 電子状態は Cu のそれより高エネルギー側に位置し, Mn の (\downarrow)-*spin* の d 電子と (\uparrow)-*spin* のそれとの相関は Cu の d 電子状態にほとんど影響されることなく行なわれ, Mn-Mn 間の相関が大きくなりやすいことが推察される。

一方 $X=\text{Pd}$ の場合は, (\downarrow)-*spin* バンドにおいて Mn の d 電子状態が Pd のそれより低エネルギー側に位置するため (図 12 から知られるように), Mn-Mn 間の相関は Pd の d 電子状態に影響されその Mn-Mn 間の結びつきが弱められることが推測できる。そして $X=\text{Ni}$ の場

合には、図 11 にみられるように (\downarrow)-*spin* バンドの Mn と Ni の *d* 電子状態は重っており、その状態は $X=Cu$ と Pd の場合のほぼ中間に位置している。それゆえ、 $X=Ni$ の場合は Mn-Mn 間の結びつきの強さが $X=Cu$ と $X=Pd$ の時のほぼ中間に位置するものと思われる。

§6. 結 論

ホイスラー合金 X_2MnY ($X=Cu, Ni, Pd, Y=Al, Sn$) の動的帯磁率をそれらのバンド構造に基づいて近似の明確な RPA 内で評価することは充分有効であることが示された。つまり石川らのスピン波励起スペクトルの実測値¹³⁻¹⁶⁾をよく再現し、磁氣的相互作用機構について彼らが得た結論 ($X=Cu$ の場合、隣接間距離での Mn-Mn 間の相互作用 (交換積分 J_s) が一番大きく、 $X=Ni, Pd$ と進むにつれ小さくなるという事) とよく対応する結果が得られ、その際 X atoms がどのような形で効いているかを明示できた。つまり (\downarrow)-*spin* バンドの Mn の *d* 電子状態に対して、 X atoms の *d* 電子状態が高エネルギー側にあるか低エネルギー側にあるかでスピン分極に寄与する Mn-Mn 間の相関の大きさが異なり、 $X=Cu, Ni, Pd$ の順で小さくなることが知られた。このことは、石川らの得た結論 $X=Cu, Ni, Pd$ の順で J_s が小さくなるということに対応している。又、Mn-OPW 間の相関の寄与をその q 依存から評価し、小さな q (実空間で離れた距離での Mn-Mn 間の相関の情報を含む) においては、 $X=Cu, Ni, Pd$ いずれの場合もそれからのスピン波励起への寄与が充分重要であるという結果を得た。このことは石川らの *s-d* タイプの相互作用が離れた距離で重要であるという結論と対応している。

謝辞 この研究の遂行に当たり、九大大型計算機センターのスタッフの方々、鹿大計算機室の皆様にも種々御世話になりましたこと深く感謝致します。またこの研究の一部は科学研究費の援助の下に行なわれました。

References

- 1) P.J. Webster and R.S. Tebble: *Phil. Mag.* **16** (1967) 347.
- 2) Y. Ishikawa, K. Tajima and P. Radhakrishna: *J. Phys. Soc. Jpn.* **40** (1976) 1597.
- 3) P.J. Webster: *J. Phys. Chem. Solids* **32** (1971) 1221.
- 4) B. Caroli and A. Blandin: *J. Phys. Chem. Solids* **27** (1966) 503.
- 5) B. Caroli: *J. Phys. Chem. Solids* **28** (1967) 1427.
- 6) S. Ogawa and J. Smit: *J. Phys. Chem. Solids* **30** (1969) 657.
- 7) L.D. Khoi *et al.*: *Phys. Lett.* **33A** (1970) 435.
- 8) W. Leiper, D.J. Geldart and P.J. Pothier: *Phys. Rev.* **B3** (1971) 1637.
- 9) T. Shinohara: *J. Phys. Soc. Jpn.* **27** (1969) 1127.
- 10) T. Shinohara: *J. Phys. Soc. Jpn.* **28** (1970) 313.
- 11) D.J.W. Geldart and P. Ganguly: *Phys. Rev.* **B1** (1970) 310.
- 12) K. Endo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **40** (1970) 690.
- 13) Y. Noda and Y. Ishikawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **40** (1976) 690.
- 14) Y. Noda and Y. Ishikawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **40** (1976) 699.
- 15) K. Tajima *et al.*: *J. Phys. Soc. Jpn.* **43** (1977) 483.
- 16) Y. Ishikawa and Y. Noda: *AIP Conf. Proc.* **24** (1975) 145.
- 17) J.F. Cooke: *Phys. Rev.* **B7** (1973) 1108.
- 18) J.F. Cooke and H.L. Davis: *AIP Conf. Proc.* **10** (1973) 1218.
- 19) J.F. Cooke, J.W. Lynn and H.L. Davis: *Solid State Commun.* **20** (1976) 799.
- 20) S. Ishida *et al.*: *J. Phys. F: Metal Phys.* **11** (1981) 1035.
- 21) Y. Kubo *et al.*: *J. Phys. Soc. Jpn.* **48** (1980) 407.
- 22) Y. Kubo, S. Ishida and J. Ishida: *J. Phys. Soc. Jpn.* **50** (1981) 47.

- 23) T. Izuyama, D.J. Kim and R. Kubo: J. Phys. Soc. Jpn. **18** (1963) 1025.
- 24) F.M. Mueller: Phys. Rev. **153** (1967) 659.
- 25) Y. Kubo: J. Phys. Soc. Jpn. **40** (1976) 1339.
- 26) W. Marshall and S. Lovesey: Theory of Thermal Neutron Scattering (OUP., Oxford, England 1971).