

単結晶 NdFe₄P₁₂ の ³¹P-NMR による研究

琉球大院理工、琉球大理^A、都立大院理^B、徳島大院理^C
河野隆、與儀護^A、青木勇二^B、菅原仁^C、佐藤英行^B

³¹P-NMR study on single-crystal NdFe₄P₁₂

Grad. Sch. of Eng. and Sci., Univ. of the Ryukyus,
Fac. of Sci., Univ. of the Ryukyus^A, Grad. Sch. of Sci., Tokyo Metropolitan Univ.^B,
Grad. Sch. of Sci., Kobe Univ.^C
Ryu Kawano, Mamoru Yogi^A, Yuji Aoki^B, Hitoshi Sugawara^C, and Hideyuki Sato^B

希土類を含む金属間化合物の磁性には、*f* 電子が中心的役割を果たしている。*f* 電子が局在していると思わせる場合、結晶場が *f* 電子状態を決める要因として重要な役割を果たす。結晶場とは、*f* 電子とその周辺のイオンとの静電相互作用であり、縮退した *4f* 電子状態が結晶場により分裂し、*f* 電子の磁性に異方性が現れる。希土類を含む金属間化合物では、*f* 電子のみならず伝導電子も存在する。伝導電子により *f* 電子スピンが遮蔽され非磁性状態が安定化される近藤効果や、伝導電子が媒介となり *f* 電子スピンの秩序状態を安定化させる RKKY 相互作用が主要な相互作用となり、多くの希土類化合物において多様で複雑な磁性が発現する。

今回我々は、*4f* 電子を持つ Nd と *3d* 電子を持つ Fe を含む化合物である NdFe₄P₁₂ に注目した。NdFe₄P₁₂ は図 1 に示すような充填スクッテルダイト構造をとる。充填スクッテルダイト構造の特徴は、12 個の pnictogen からなるカゴ構造の中心に希土類元素が位置する点である。その結果、局在的な *f* 電子と伝導電子との間に強い混成効果が期待される。NdFe₄P₁₂ は $T_c = 2$ K 以下で強磁性を示す [1]。また dHvA 効果の測定から、NdFe₄P₁₂ のフェルミ面は LaFe₄P₁₂ と類似しており、Nd の *4f* 電子はよく局在している事が報告されている [2]。また、電気抵抗率が約 30 K 以下で降温に従い増大するという通常の強磁性体とは異なる振る舞いが報告されている [1, 3]。NdFe₄P₁₂ の *4f* 電子状態が通常の局在磁性で説明できるのか、また、Fe の *3d* 電子による物性への寄与があるのかなどについて微視的な視点から明らかにするため、³¹P 核の NMR による研究を進めている。本研究では、単結晶試料の [111] 方向に磁場を印加し得られた NMR スペクトルについて報告する。

図3に外部磁場6 T、温度14 Kで測定した ^{31}P -NMRスペクトルを示す。充填スクワテルダイト構造において、Pサイトは1つであるが、磁場印可により超微細磁場の異なる複数のサイトに分かれる。例えば、 $[111]$ 方向に磁場を印可した場合、図2のP(I)とP(II)に対応する2本の共鳴信号が1:1で観測される事が期待される。しかしながら、図3に示すように、実際には6本のピークを持つスペクトルが観測された。これは、磁場方向が $[111]$ からずれていることを示唆している。そこで、各温度で6つのピーク周波数を決め、それぞれについてナイトシフトを求めた。図4に示すように、各ナイトシフトはキュリーワイス則に従う事が分かった。6つのナイトシフトについて解析し、等方的な成分 K_{iso} と異方的な成分 K_{aniso} を求めた。 K_{aniso} の原因としてNdの4f電子による磁気双極子磁場が考えられる。数値計算によるシミュレーションを行った結果、定性的説明できるが絶対値については、実験値と計算値の間にズレがあることが分かった。これは、Ndの4f電子は局所的であるものの、伝導電子との間に混成が存在し、その結果、Pサイトへの局所磁場が抑制されたものだと考えられる。

研究会ではNMRスペクトルの解析とナイトシフトの詳細について報告する。

[1] M. S. Torikachvili, *et al.*, Phys. Rev. B **36**, 8660 (1987).

[2] H. Sugawara, *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **69**, 2938 (2000)

[3] H. Sato, *et al.*, Phys. Rev. B **62**, 15125 (2000).

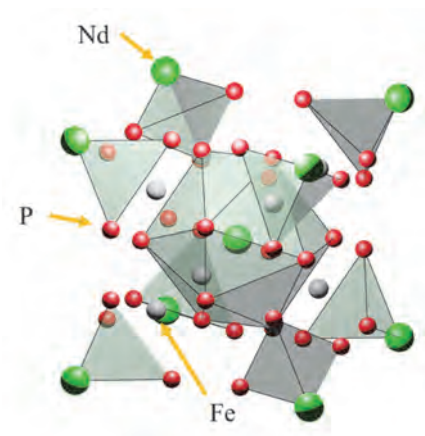


図1 : $\text{NdFe}_4\text{P}_{12}$ の結晶構造

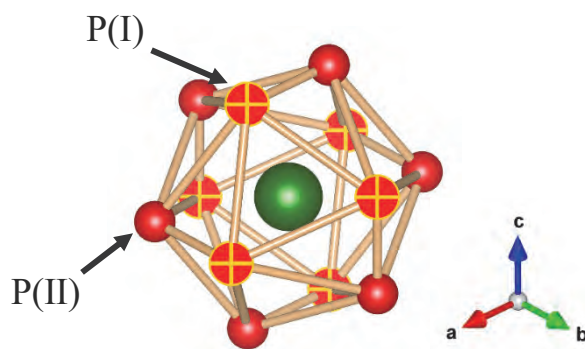


図2 : $[111]$ 方向から見たPによる籠構造。
P(I)とP(II)は超微細磁場の異なる
Pサイトを示す。

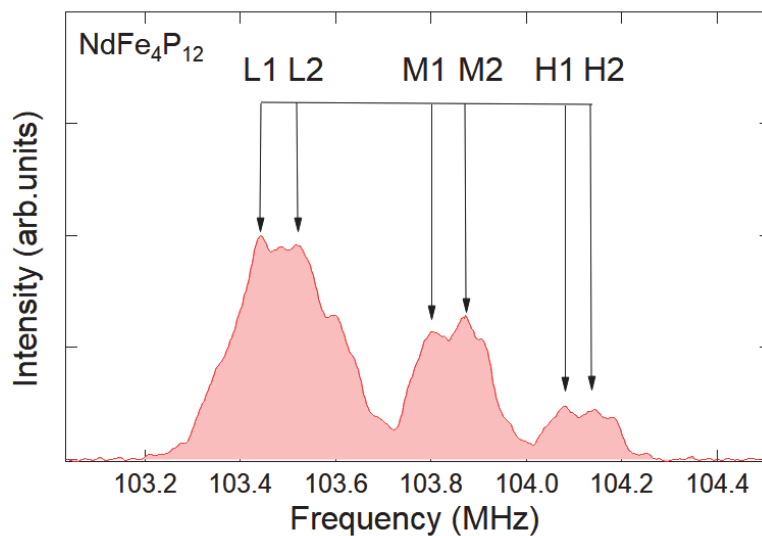


図 3 : 外部磁場 6 T、温度 14 K で測定した ^{31}P -NMR スペクトル

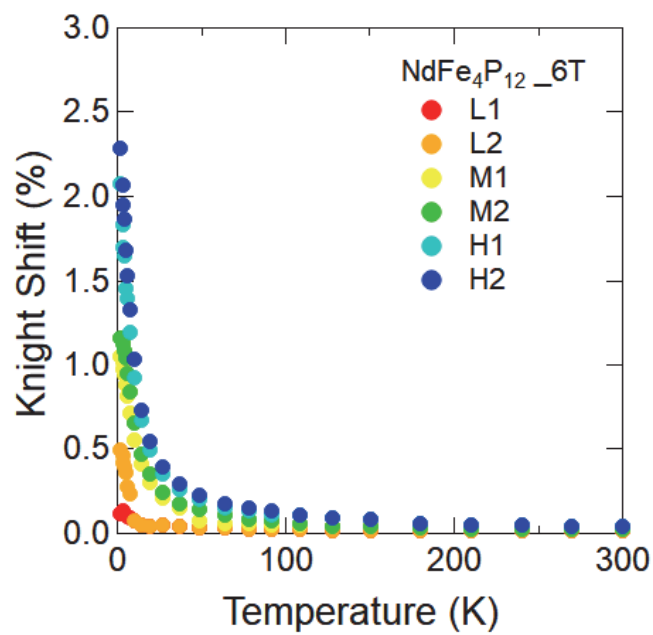


図 4 : ナイトシフトの温度依存性