

# ホイスラー合金 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$ の強磁場下における磁性と伝導現象

## Magnetic and transport properties of Heusler alloys $\text{Pd}_2\text{MnIn}$ under high magnetic field

岡田 宏成<sup>1</sup>, 山崎 洋平<sup>1</sup>, 鹿又 武<sup>1,2</sup>, 淡路 智<sup>3</sup>

<sup>1</sup>東北学院大・工, <sup>2</sup>東北大・工, <sup>3</sup>東北大・金研

H. Okada<sup>1</sup>, Y. Yamazaki<sup>1</sup>, T. Kanomata<sup>1,2</sup> and S. Awaji<sup>3</sup>

<sup>1</sup> Faculty of Engineering, Tohoku Gakuin University

<sup>2</sup> Faculty of Engineering, Tohoku University

<sup>3</sup> Institute for Materials Research, Tohoku University

### 1. はじめに

ホイスラー合金は  $L2_1$  構造と呼ばれる規則格子を形成する物質群で、近年では、ハーフメタル特性や磁気抵抗効果、磁気熱量効果、磁性形状記憶効果といった多様な機能性を示すことが発見され、現在精力的に研究が行われている。ホイスラー合金の磁氣的性質は、その多くが強磁性を示すが、本研究で着目する  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  は、ホイスラー合金としては稀な反強磁性を示す物質で、ホイスラー合金で最初に発見された反強磁性体である[1]。中性子回折実験では、ネール温度  $T_N \sim 140$  K であり、その磁気構造は第 2 種反強磁性であることが明らかとなっている[2]。また、Mn 原子あたりの磁気モーメントは  $4.3 \mu_B/\text{Mn}$  であり、他の Mn を含むホイスラー合金と同様に、Mn が約  $4 \mu_B$  の局在した磁気モーメントをもっている。

$\text{Pd}_2\text{MnIn}$  は第 2 種反強磁性であると報告されているが、常磁性磁化率のキュリー-ワイス則から得られるキュリー-ワイス温度は正の値を示すほか、5T の磁場下では低温で磁化の増加が見られるなど、典型的な反強磁性体では見られない振る舞いを示すことが報告されている[3,4]。これらの報告例から、我々は  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  の反強磁性が不安定な状態にあると考え、今回、強磁場下での磁化測定および電気抵抗測定を行うことで、 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  の磁性に対する磁場効果を明らかにすることを目的とした。

### 2. 実験方法

試料はアーク溶解法によって作製された。適切な組成比に秤量した高純度原料をアーク溶解した。前回の我々の報告では、溶解による Mn の欠損を補うように仕込組成を決めていたが、今回は Mn の欠損が 1% 以下になるように溶解方法を工夫して試料作製を行った[5]。アーク溶解後、試料を石英管に真空封入して、 $1000^\circ\text{C}$  で 1 週間の均質化処理を行った。次に、規則格子を形成させるための熱処理として  $500^\circ\text{C}$  で 1 週間熱処理を行った。粉末 X 線回折実験により、得られた試料が  $L2_1$  構造を有する単相試料であることを確認した。また、エネルギー分散型分析計(EDX)によって、作製した試料の組成比が目的の組成比に調整されていることを確認した。強磁場下での磁化測定は引き抜き法および電気

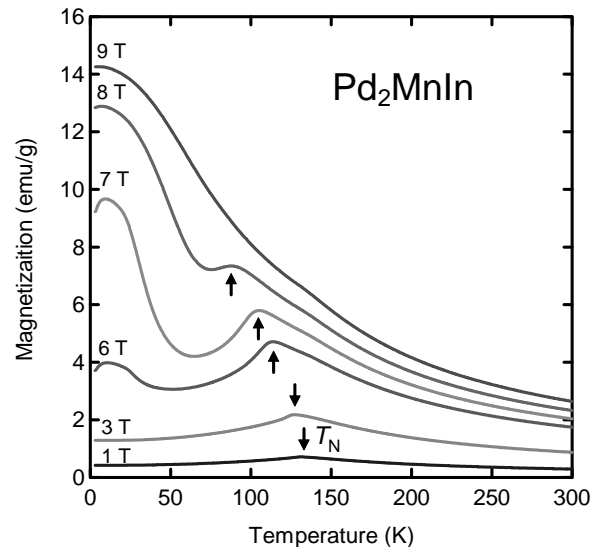


Fig. 1 Temperature dependence of the Magnetization for  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  under various magnetic fields.

抵抗測定は通常の 4 端子を用い、磁場  $0 \text{ T} \leq B \leq 18 \text{ T}$  の範囲で測定を行った。また 9 T までの磁化測定は Physical Property Measurement System (Quantum Design) の試料振動型磁束計を用いて行われた。

#### 2-1. 実験結果と考察

Fig. 1 に  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  の各磁場下で測定した磁化の温度依存性を示す。0.1T の磁化下で測定した結果から、ネール温度  $T_N = 131$  K であることがわかった。また、常磁性磁化率のキュリー-ワイス則から得られるキュリー-ワイス温度  $\theta_{\text{CW}} = 28$  K であり、先行研究と同様に正の値を示した[3]。3 T の磁場までは、典型的な反強磁性体を示す磁化の温度変化であるが、6 T の磁場下では、低温で磁化が増大しており、先行研究の結果と類似している[4]。さらに磁場を強くすると、磁化の増大は顕著に現れ、より高温で磁化の増大が現れる。また、9 T の磁場においては、ネール温度  $T_N$  は観測されなかった。これらの結果は、磁場の印加によって低温で磁場誘起磁性相が出現したことを示しており、その磁場誘起磁性相が強磁場下で安定化することで反強磁性相が消失したと考えられる。

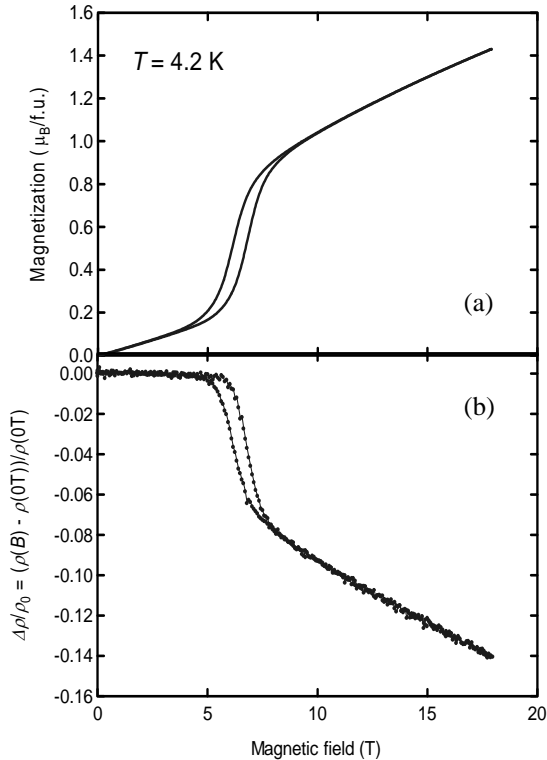


Fig. 2 Magnetization curve (a) and magnetoresistance ratio (b) at 4.2 K for Pd<sub>2</sub>MnIn.

Fig.2 に 4.2 K で測定した磁化曲線と磁気抵抗比を示す。4.2 K での磁化曲線では、約 5 T までは直線的に増加する反強磁性的振る舞いを示すが、6.5 T 付近の磁場で磁場ヒステリシスを伴った磁化の跳びが現れ、不連続に増大することがわかった。この結果より、磁場誘起磁性相は、メタ磁性転移によって出現した磁場誘起強磁性相であることがわかった。しかし、メタ磁性転移後も磁化は飽和することなく増加を続けており、18 T の磁場下においても  $M = 1.43 \mu_B/\text{f.u.}$  しか示さない。中性子回折実験により Mn 原子あたりの磁気モーメントは  $4.3 \mu_B/\text{Mn}$  であると報告されていることから[2]、メタ磁性転移によって出現した磁場誘起強磁性相はノンコリニアな強磁性状態にあると考えられる。

Pd<sub>2</sub>MnIn のメタ磁性転移は、伝導現象にも影響を与え、Fig. 1(b)に示すようにメタ磁性転移磁場で不連続な負の磁気抵抗が観測された。また、反強磁性状態では磁気抵抗効果はほぼ現れないが、磁場誘起強磁性相では大きな負の磁気抵抗効果を示し、18 T では約 14% に達している。このように、メタ磁性転移によって負の磁気抵抗が現れ、磁場誘起相で磁気抵抗効果が大きくなっていることから、メタ磁性転移によってフェルミ面が大きく変化していると示唆される。

Fig.3 に Pd<sub>2</sub>MnIn の磁気相図を示す。ここで、メタ磁性転移磁場  $H_0$  は磁化曲線の微分が極大値をとる磁場を励磁・消磁過程で平均して見積もられた。低温低磁場領域には反強磁性(AFМ)相が存在し、低温強磁場領

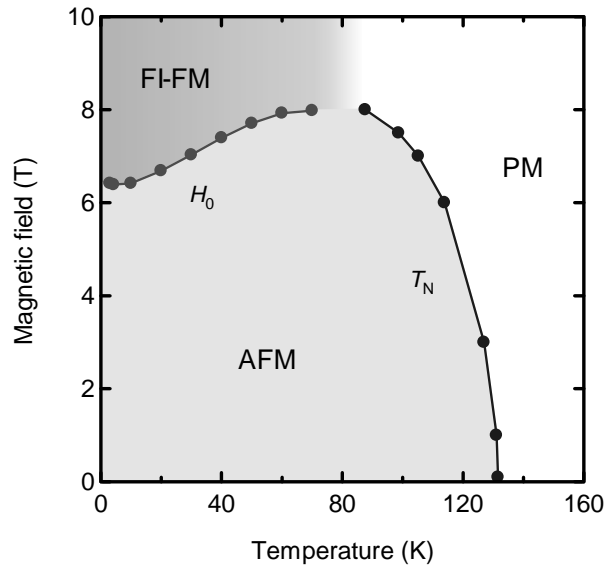


Fig. 3 Magnetic phase diagram of Pd<sub>2</sub>MnIn.

域に磁場誘起強磁性(FI-FM)相が存在する。磁場誘起強磁性相と常磁性(PM)相との境界は明らかではないが、低温強磁場領域での磁場誘起強磁性相の出現は、Pd<sub>2</sub>MnIn の反強磁性が不安定な状態にあり、強磁性状態に近い状態にあることを示している。

#### 4. まとめ

反強磁性ホイスラー合金 Pd<sub>2</sub>MnIn の磁性に対する磁場効果を明らかにするために、強磁場下における磁化測定および電気抵抗測定を行った。131 K 以下で現れる反強磁性は、4.2 K において 6.5 T の磁場でメタ磁性転移を示し、磁場誘起強磁性相へ転移することが明らかとなった。磁場誘起強磁性相では、18 T の磁場下においても  $1.43 \mu_B/\text{f.u.}$  の磁化しか示さないため、ノンコリニアな強磁性状態にあると示唆される。さらに強磁場を印加することによって、多段的なメタ磁性転移が観測される可能性も考えられる。このメタ磁性転移に伴って不連続な負の磁気抵抗が観測され、磁場誘起相での磁気抵抗効果も反強磁性相とは異なることから、磁気状態の変化によって電子状態が大きく変化していると考えられる。これらの結果から、Pd<sub>2</sub>MnIn は不安定な反強磁性状態にあり、磁気相関としては強磁性状態に近い反強磁性状態にあると考えられる。

#### 参考文献

- [1] P.J. Webster and R.S. Tebble, Phil. Mag. 16 (1967) 347.
- [2] P.J. Webster and M.R.I. Ramadan, JMMM 5 (1977) 51.
- [3] P.J. Webster and R.S. Tebble, APL 39 (1968) 471.
- [4] D.J. Doherty et al., JMMM 140 (1977) 189.
- [5] H. Okada et al., HFLSM 2011 Annual Report p.67.