

# ホイスラー合金 $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$ の強磁場輸送特性

## Transport properties of Heusler alloys $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$ under high magnetic field

岡田 宏成<sup>1</sup>, 山崎 洋平<sup>1</sup>, 安田 賢史<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. Yasuda<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

1996年に $\text{Ni}_2\text{MnGa}$ 系ホイスラー合金において見出された磁性形状記憶効果は、大きな磁場誘起歪みを瞬時に発生させることができるため、センサーやアクチュエータ材料としての応用が期待され、現在 Mn を含むホイスラー合金の研究が精力的に行われている[1]。 $\text{Ni}_2\text{MnGa}$ 系合金では、マルテンサイト変態によって生じる双晶界面の移動による双晶磁歪を利用しているのに対し、これとは異なるメカニズムによって発生する磁性形状記憶効果が $\text{Ni}_2\text{MnSn}$ 系合金、 $\text{Ni}_2\text{MnIn}$ 系合金において発見された[2]。これらの合金は、強磁性オーステナイト相から常磁性マルテンサイト相へのマルテンサイト変態を示すため、マルテンサイト変態温度直下で磁場を印加すると、常磁性マルテンサイト相から強磁性オーステナイト相へと逆変態が生じ、メタ磁性転移を伴った形状記憶特性が現れる。この現象はメタ磁性形状記憶効果と呼ばれ、新しい磁性形状記憶合金として期待されている。

これらの磁性形状記憶効果を示すホイスラー合金においては、Mn のもつ磁気モーメントのみではなく、Ni の磁気モーメントの重要な役割を担っていると考えられている。さらに、マルテンサイト変態に関しても Ni の 3d バンドの重要性が指摘されている[3]。一方で、ごく最近、Ni を Pd に置き換えた  $\text{Pd}_2\text{MnSn}$  系合金においても、 $\text{Ni}_2\text{MnSn}$  系合金、 $\text{Ni}_2\text{MnIn}$  系合金と同様な磁気特性、構造特性が見出された。本研究では、Ni 系、Pd 系ホイスラー合金が示すメタ磁性形状記憶効果の発現機構を系統的に理解するために、関連物質である反強磁性体  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  について着目し、 $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$  合金の強磁場下輸送特性を評価した。

### 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後、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。強磁場下での電気抵抗率測定には、通常の 4 端子を用い、磁場  $0 \text{ T} \leq B \leq 16.5 \text{ T}$  の範囲で測定を行った。

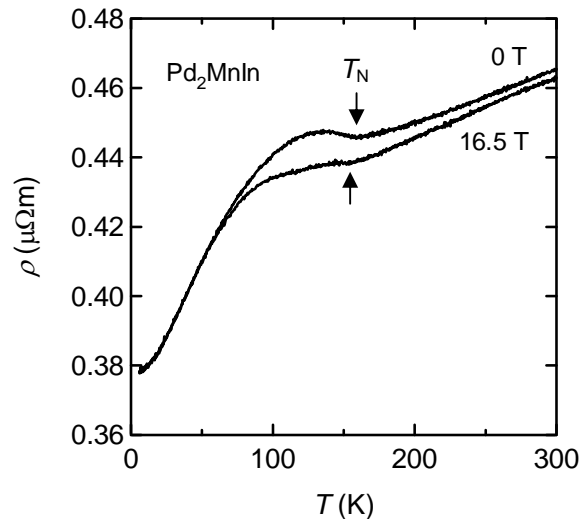


Fig. 1 Temperature dependence of the electrical resistivity for  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  under 0 and 16.5 T.

### 2-1. 実験結果と考察

Fig. 1 に  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  のゼロ磁場下と 16.5 T の磁場下で測定した電気抵抗率の温度依存性を示す。ゼロ磁場で測定した電気抵抗率は、室温から温度を下げると、金属的に低下していき、160 K 付近からわずかに増加してハンプ状の抵抗異常を示し、さらに低温に冷却すると金属的に低下する振る舞いを示す。 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  は  $T_N = 150 \text{ K}$  付近で反強磁性転移を示し、反強磁性の磁気構造は type2 であると報告されている [4]。160 K 付近に見られる抵抗異常は反強磁性転移によるものと考えられるが、その振る舞いはスピン密度物質に見られる抵抗異常と類似している。16.5 T の磁場下では反強磁性転移温度はわずかに低下し、転移温度以下のハンプ状異常も抑制される傾向にあることがわかる。しかし、約 50 K 以下の低温では、磁場による電気抵抗の変化にほとんど見られず、結果として、転移温度以下の 130 K 付近で大きな磁気抵抗が観測された。

Fig. 2 に  $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1.1}\text{In}_{0.9}$  のゼロ磁場下と 16.5 T の磁場下で測定した電気抵抗率の温度依存性を示す。ゼロ磁場での温度依存性は  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  とほぼ同様な振る舞いを示しているが、過剰 Mn の導入により、反強磁性転移に伴うハンプ状の抵抗異常はブロードになり、反強磁性転移温度も明確に決定できなかった。16.5 T の磁場下では、ゼロ磁場下でのデータと比較して電気抵抗が減少し、

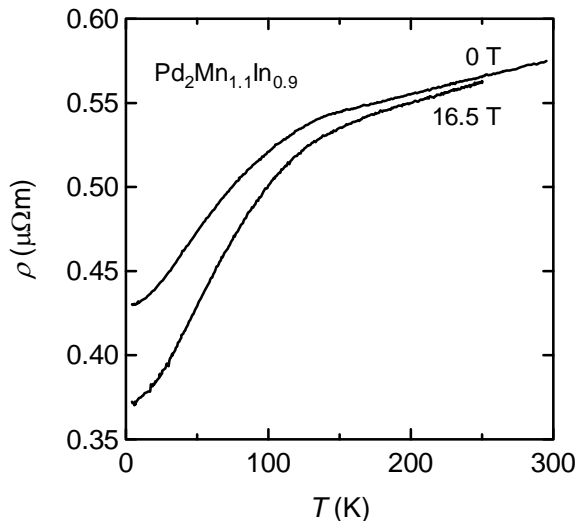


Fig. 2 Temperature dependence of the electrical resistivity for  $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1.1}\text{In}_{0.9}$  under 0 and 16.5 T.

負の磁気抵抗が観測された。しかし、 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$ とは異なり、反強磁性転移温度以下の低温で磁気抵抗効果が大きく増大することがわかった。

$\text{Pd}_2\text{MnIn}$ の反強磁性転移温度は、16.5 Tの磁場下においても5 K程度しか変化しないため、低温では安定な反強磁性相を形成していると考えられる。そのため、転移温度付近を除き、低温での電気抵抗率の磁場効果はほとんど現れないものと考えられる。 $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1.1}\text{In}_{0.9}$ においては、低温で磁気抵抗効果が大きく増大した。これは、InをMnで置換し過剰Mnを導入することにより、Inサイトに入った過剰Mnの磁気モーメントとMnサイトのMnの磁気モーメントと相互作用が生じ、反強磁性相が不安定かすることによって考えられる。MnサイトのMnと過剰Mnとの相互作用は物質により様々であり、強磁性的な場合と反強磁性的な場合がある。 $\text{Ni}_2\text{MnIn}$ の場合、MnサイトのMnと過剰Mnとの相互作用は強磁性的であると報告されている[5]。 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$ における過剰Mnの役割を理解することが今後の課題である。

#### 4. まとめ

メタ磁性形状記憶効果を示すホイスラー合金の関連物質である反強磁性体  $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  について着目し、 $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1+x}\text{In}_{1-x}$  合金の強磁場下輸送特性を評価した。 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$  では反強磁性転移に伴って、スピン密度波物質に現れる抵抗異常に類似したハンプ状の異常を観測した。磁気抵抗効果は転移温度付近にのみ現れ、低温ではほとんど観測されなかったが、Inサイトに過剰Mnを導入した  $\text{Pd}_2\text{Mn}_{1.1}\text{In}_{0.9}$  では、転移温度以下において磁気抵抗効果が大きく増大することがわかった。過剰Mnにより反強磁性状態が不安定化したことによって低温での磁気抵抗効果が現れたものと考えられるが、 $\text{Pd}_2\text{MnIn}$ における過剰Mnの役割は不明であり、低温での磁気状態の調査が今後の課題である。

#### 参考文献

- [1] K. Ullakko et al. Appl. Phys. Lett. 69, 1966 (1996)
- [2] R. Kainuma et al. Nature 439, 957 (2006)
- [3] M. Ye et al. Phys. Rev. Lett. 104, 176401 (2010)
- [4] P. J. Webster et al. Phil. Mag. 16, 347 (1967)
- [5] T. Kanomata et al. J. Mag. Mag. Mater. 321, 773 (2009)