

Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al の強磁場中電気的および磁気的特性

Electrical and magnetic properties of Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al under high magnetic fields

満永大輔¹, 折橋広樹¹, 島田大輔¹, 廣井政彦¹, 小野寺礼尚², 高橋弘紀², 小山佳一¹,
鹿児島大・理¹, 東北大・金研²

D. Mitsunaga¹, H. Orihashi¹, D. Shimada¹, M. Hiroi¹, R. Onodera², K. Takahashi² and K. Koyama¹

¹ Graduate school of science and engineering, Kagoshima University

² Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

近年、ホイスラー合金がハーフメタル特性や強磁性形状記憶効果、熱電効果など数多くの機能性を持っていることが明らかになってきた。主要なホイスラー型の合金は、X は Co や Ni あるいは Cu 族の遷移金属元素または貴金属元素、Y は Mn や V あるいは Ti 族の遷移金属、Z は III 族からの典型元素で構成されている。特に化学量論的組成を持つホイスラー合金としては、X₂MnZ (X=3d, 4d, 5d 金属, Z= s, p 元素), Co₂YZ (Y=3d, 4d, 5d 金属, Z= s, p 元素), Fe₂VZ (Z= Al, Ga, Si) について調べられている[1]。結晶構造については、A, B, C, D の 4 つを副格子とすると、その分座標はそれぞれ(0 0 0), (1/4 1/4 1/4), (1/2 1/2 1/2), (3/4 3/4 3/4)で表わされる。A, C サイトは結晶学的に同等である。完全秩序状態 (L₂₁ 構造: Cu₂MnAl 型, 空間群 No.225) の合金では X 原子が A と C サイトを占め、B と D サイトをそれぞれ Y と Z 原子が占める。Y と Z の原子が無秩序化すると結晶構造は L₂₁ 構造から B2 構造に変化する。今までに一般的なホイスラー化合物(Cu₂MnAl 型, 空間群 No.225)として Ni₂MnAl 等の磁気的、電気的報告は研究されており、その基礎特性について多く報告されている[1]。また、L₂₁ 構造をとる場合に強磁性体であり、B2 構造(Mn と Al のサイトが無秩序である構造)の場合に反強磁性の性質を示すと報告がある。[2]

一方、Mn₂NiAl については Ni₂MnAl に比べてその報告例は少ない。その結晶構造は 第一原理計算により、Hg₂CuTi 型, 空間群は No.216 と報告があった[3]。このとき、Mn が A (0 0 0) と B (1/4 1/4 1/4)サイトを占め、Ni が C (1/2 1/2 1/2)サイトを占め、Al が D (3/4 3/4 3/4)サイトを占めている。格子定数は 5.7896 Åであると発表されている[4]。

本研究の目的は Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al の x を変化させることにより、これらの電気的特性や磁気特性の強磁場による影響を明らかにすることである。

2. 実験詳細

多結晶 Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al (x = 0.0, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0) は、Mn(99.9%), Ni(99.9%)および Al(99.999%)の原料を化学量論比で秤量し、アルゴンガス雰囲気中でアーク溶解法を用いて合成した。アーク溶解は試料を裏返すなどして繰り返し行われた。得られた試料は真空封入した後、温度 900°C、72 時間の均質化熱処理を行った。室

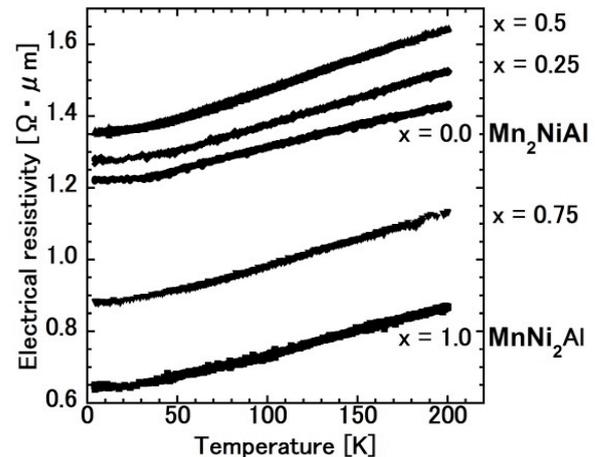


Fig.1. Temperature dependence of the electrical resistivity of Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al under a zero magnetic field.

温での X 線回折測定によって、得られた試料が単相であることを確認した。しかし、Mn_{1.75}Ni_{1.25}Al と Mn₂NiAl は僅かに不純物相の回折線が観測された。

強磁場中電気抵抗の測定は、東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターで行われた。直流 4 端子法を用いて、零磁場での温度変化 4.2 ≤ T ≤ 200 K, 温度一定(4.2 K)での磁場印加 0 ≤ B ≤ 16 T の範囲で測定が行われた。さらに試料振動型磁束計(VSM)を用いた磁化率測定は温度 293 K, 印加磁場 0 ≤ B ≤ 10 T の範囲で行われた。

3. 電気抵抗測定

Fig.1 に零磁場における電気抵抗率 ρ の温度変化を示す。零磁場において、Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al は組成によって抵抗率の傾きに特異な変化は見られず、金属的なふるまいを示した。得られた実験結果は、Mn と Ni の割合(組成)の違いで、電気抵抗率において、x=0.0 と 1.0 では約 2 倍大きさに違いが見られた。

Fig.2 に 4.2 K における電気抵抗率の磁場変化を示す。磁場印加 0 ≤ B ≤ 16 T の範囲で測定の結果、それぞれの組成で磁気抵抗の振る舞いが異なることが明らかとなった。つまり、x = 0.0, 0.25, 0.5 の電気抵抗率は磁場に対してほとんど変化しないが、x = 0.75 の電気抵

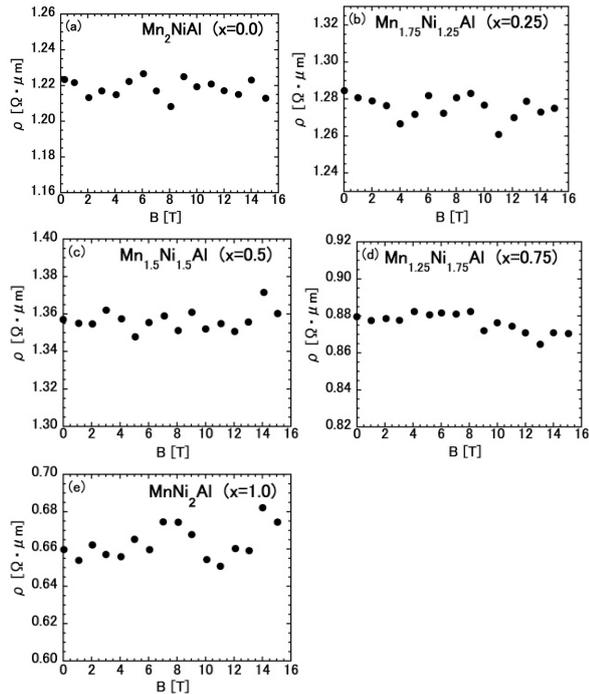


Fig.2. Magnetic field dependence of the electrical resistivity of $Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al$ ($x = 0.0, 0.25, 0.5, 0.75, 1.0$) at 4.2 K. Detailed data are presented in (a)-(e) for $x = 0.0-1.0$, respectively.

抗率は磁場増加とともに減少, $x = 1.0$ の電気抵抗率は磁場増加とともに増加する傾向がある。現在, これらの振る舞いの起源については検討中である。

4. 磁化率測定

Fig.3 に $Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al$ の組成変化に対する磁化率を示す。この組成 x の中で最も大きい磁化率をもつものは $Mn_{1.5}Ni_{1.5}Al$ [$x = 0.5$] であり, 3.17 emu/g の磁化率を持つ。ほかの組成は大きい順に $MnNi_2Al$ [$x = 1.0$] で 2.38 emu/g, $Mn_{1.75}Ni_{1.25}Al$ [$x=0.25$] で 1.00 emu/g, そして最も小さい磁化率を持つ組成は Mn_2NiAl [$x = 0.0$] で 0.33 emu/g である。この試料は 10T の磁場中で約 3.3emu/g の磁化しか示さない。今回の測定では室温において, 常磁性的性質が確認された。Fig.3 より, x の値が 0.0 から 0.5 まで変化すると, 磁化率は 0.33 から 3.17 emu/g になり, 860.6% 増加する。さらに x の値が 0.5 から 1.0 まで変化すると, 磁化率は 3.17 から 2.38 emu/g になり, 24.9% 減少していることがわかる。現在, 我々のグループでは詳細な電子状態の計算を計画しており, 強磁場実験とバンド計算の両面からこれら物質の磁気特性を解明する予定である。

4. まとめ

$Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al$ 多結晶試料について, 温度 $4.2 \leq T \leq 230$ K, 印加磁場 $0 \leq B \leq 16$ T の範囲で電気抵抗測定と温度 293 K, 印加磁場 $0 \leq B \leq 10$ T の範囲で VSM による磁化率測定が行われた。強磁場電気抵抗測定の結

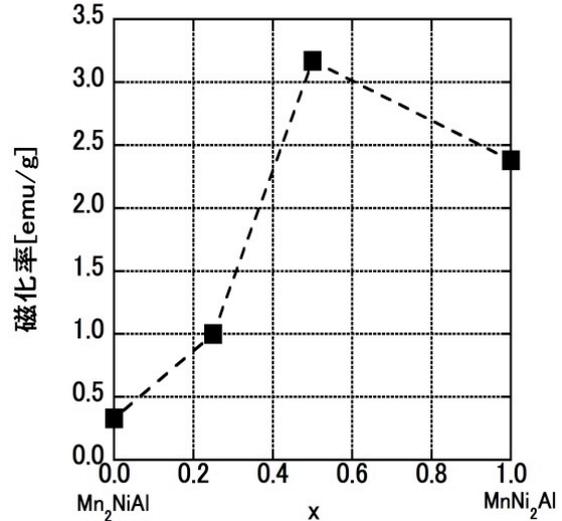


Fig.3. Magnetic susceptibility of $Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al$ ($0.0 \leq x \leq 1.0$).

果, 零磁場において, $Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al$ は温度の低下に伴い, 組成変化に対して抵抗率の傾きに変化は見られなかった。また, 温度一定の状態において磁場を印加することにより, 電気抵抗の上昇を一部の組成で観測された。磁化率測定の結果, $Mn_{2-x}Ni_{1+x}Al$ において, $0.0 \leq x \leq 0.25$ までは低い磁化率が観測される。 $x=0.5$ では, 磁化率が急激に上昇した。

謝辞

本研究は科研費 22360285 の助成を受けて行いました。

参考文献

- [1] T. Kanomata, K. Shirakawa and T. Kaneko, J. Magn. Mater 65 (1987) 76-82.
- [2] 星野 敏春, Shizuoka University Repository (2011).
- [3] H. Luo, G. Liu, F. Meng, S. Li, W. Zhu, G. Wu, X. Zhu, C. Jiang, Physica B 405 (2010) 3092-3095.
- [4] L. Luo, C. Zhong, J. Fang, P. Zhou, Y. Zhao, and X. Jiang, J. At. Mol. Sci. 2, No.4 (2011) 368-376.