

強磁場下における $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ ($0.05 \leq x \leq 0.2$) の磁気・電気特性

Magnetic and electrical properties of $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ ($0.05 \leq x \leq 0.2$) in high magnetic fields

島田大輔¹, 折橋広樹¹, 満永大輔¹, 廣井政彦¹, 高橋弘紀², 小山佳一¹,
鹿児島大・理¹, 東北大・金研²,
D. Shimada¹, H. Orihashi¹, D. Mitsunaga¹, M. Hiroi¹, 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

Mn_2Sb は正方晶 Cu_2Sb 型の結晶構造(空間群 $P4/nmm$)をとり、キュリー温度 $T_C = 550$ K 以下でフェリ磁性(FRI)を示す。Mn に V, Cr, Co, Cu, Zn、または Sb に As, Ge, Sn を置換した物質は、温度低下に伴いフェリ磁性から反強磁性(AFМ)に一次相転移を起こす[1]。 $\text{Mn}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{Sb}$ の FRI-AFM 一次相転移において、単位包の体積や電気抵抗率、磁化の大きな変化が起こることが報告された[2-3]。さらに、AFM-FRI 磁気一次相転移のダイナミクスが磁場により抑制されることが見いだされ、カイネティックアレスト効果 (KA 効果) として報告された[2, 4]。磁場で磁気一次相転移を制御し、機能性を効果的に利用するためには磁場による KA 効果を押さえる必要がある。

一方、Sb を Ge で一部置換すると $\text{Mn}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{Sb}$ と同様に FRI-AFM 一次相転移が発現することが見出されているが[1]、 $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ の詳細な報告は未だない。本研究の目的は、 $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ ($0.05 \leq x \leq 0.2$) の強磁場下における磁氣的や電氣的基礎性質を明らかにすることである。

2. 実験詳細

多結晶試料 $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ ($x = 0.05, 0.08, 0.09, 0.1, 0.2$) は、純度 99.9 % の Mn、純度 99.999 % の Sb と Ge を科学量論比で秤量し、アルゴン雰囲気中でアーク溶解法を用いて合成した。その後、試料を真空石英管に入れ、923 K で 24 時間均質化熱処理を行った。室温での X 線回折測定により、得られた試料は単相であることを確認し、格子定数を決定した。

磁化 M および電気抵抗 R の測定は、東北大金研強磁場センターで行われた。 $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ のキュリー温度 T_C は試料振動型磁力計を用いた磁化測定により求められた。磁化測定は 1 T の磁場 B を印加し、室温から 620 K まで昇温した。強磁場下電気抵抗は 18 T-超伝導マグネットを使用し、 $4.2 \leq T \leq 280$ K および $0 \leq B \leq 16$ T の範囲で測定した。

3. 実験結果と考察

Fig.1 に Ge 濃度 x に対する格子定数 a と c の変化を示す。 x の増加に従って a および c とも減少した。

Fig. 2 に $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ の $B = 1$ T における磁化 M の温度変化を示す。得られた磁化の温度変化はブリュアン関数に従わない。これは Mn-Zn や Ni-Zn、

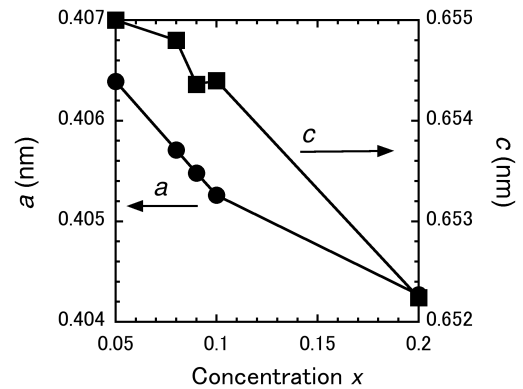


Fig.1. Concentration dependence of the lattice parameters a and c for $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$.

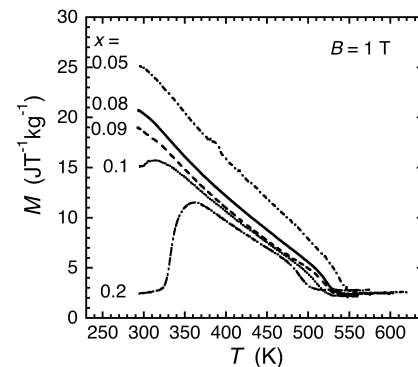


Fig.2. Temperature dependence of the magnetization.

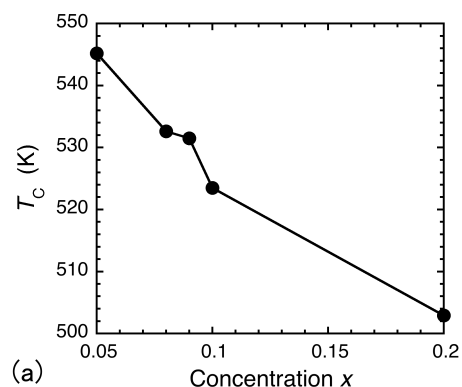


Fig.3. Curie temperature vs. x for $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$.

Co フェライト等のフェリ磁性体で見られる特徴的な変化である。よって、本研究ではアロット・プロット法ではなく、磁化の消失する温度で T_C を決定した。 T_C の x 依存性を Fig.3 に示す。 x が増加するに従い、

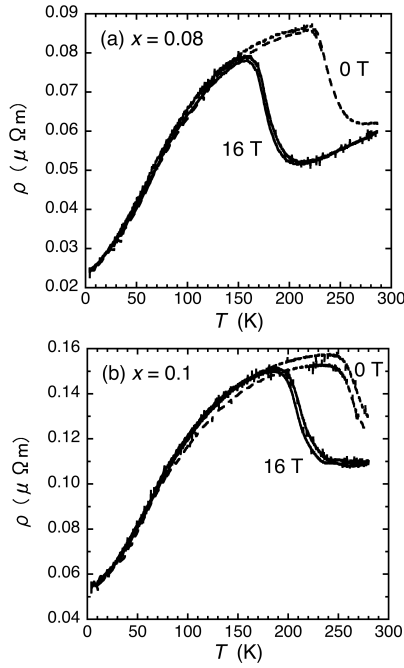


Fig.4. Temperature dependence of the electrical resistivity of $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ for (a) $x = 0.08$ and (b) $x = 0.1$.

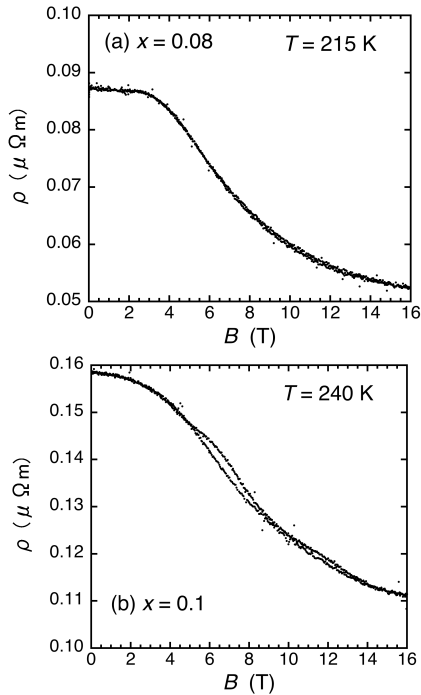


Fig.5. Magnetic field dependence of the electrical resistivity of $\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ for (a) $x = 0.08$ at 215 K and (b) $x = 0.1$ at 240 K.

T_C が低下した。また、Fig.2に示すように、この温度範囲ではFRI-AFM磁気一次相転移は $x = 0.2$ の試料のみで観測され、転移温度は $T_t = 330$ Kと見積もられた。 $x = 0.1$ では300 K付近で M 減少の兆候が見られ、 $x \leq 0.1$ では T_t が300 K以下にあると示唆される。

Fig. 4に(a) $x = 0.08$ と(b) $x = 0.1$ のゼロ磁場および16 Tにおける電気抵抗 ρ の温度 T 依存性を示す。AFM

相の ρ はFRI相のそれに比べ高い。そのため、FRI-AFM磁気一次相転移に伴い ρ の急激な変化($\Delta\rho/\rho = 50\text{-}60\%$)が観測された。 $x = 0.08$ のゼロ磁場における T_t は240 Kで、16 Tの磁場印加により61 K低温側へシフトし $T_t = 179$ Kに達した。 $x = 0.1$ の T_t は、ゼロ磁場で266 K、16 Tの磁場印加により53 K低温側へシフトし $T_t = 213$ Kとなった。これは磁場を印加するとゼーマンエネルギーの利得のため、フェリ磁性相が安定となるためである。注目すべき点は、この物質の磁気一次相転移に伴うヒステリシス幅がかなり狭いこと、強磁場印加をしてもヒステリシス幅の増加が極めて小さいことである。また、強磁場印加してもAFM相の ρ の値がゼロ磁場のそれと一致しており、磁場によるKA効果は観測されなかった。これらの特徴は $\text{Mn}_{1.85}\text{Co}_{0.15}\text{Sb}$ の磁場中特性と異なっており、磁場誘起KA効果が単にFRI-AFM磁気一次相転移の特徴ではなく、磁性原子サイトの乱れや磁気的不安定性に起因している可能性を示している。

Fig.5に T_t 直下における(a) $x = 0.08$ と(b) $x = 0.1$ の ρ の磁場 B 依存性を示す。AFM相からFRI相に磁場誘起相転移に伴い ρ の低下が観測された。 $x = 0.08$ および $x = 0.1$ で、16 Tの強磁場を印可しても飽和することはない。16 Tを印加した場合、ゼロ磁場に比べ $x = 0.08$ で $\Delta\rho/\rho = -60\%$ 、 $x = 0.1$ で $\Delta\rho/\rho = -40\%$ の負の磁気抵抗効果を示した。

$\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ 系は x の添加量によって磁気一次相転移を室温付近に制御でき、 $\Delta\rho/\rho = 60\%$ 程度の変化と狭い磁気ヒステリシスをもつが、さらに弱磁場で $\Delta\rho/\rho$ を制御できるように検討する必要がある。

5. まとめ

$\text{Mn}_2\text{Sb}_{1-x}\text{Ge}_x$ 多結晶試料($x = 0.05, 0.08, 0.09, 0.1, 0.2$)について、 $4.2 \leq T \leq 620$ K、磁場 $0 \leq B \leq 16$ Tの範囲で磁化と電気抵抗測定を行った。 x の増加とともに格子定数 a と c は単調に減少し、 T_C も545 K($x = 0.05$)から504 K($x = 0.2$)に単調に低下する。電気抵抗測定によって決定した $x = 0.08$ のフェリ磁性—反強磁性一次磁気相転移温度 T_t は240 Kで、 $x = 0.1$ では $T_t = 266$ Kである。16 Tの強磁場を印加したとき、 $x = 0.08$ では $T_t = 179$ Kに、 $x = 0.1$ では $T_t = 213$ Kになった。

謝辞

本研究は科研費22360285の助成を受けました。

参考文献

- [1] O. Beckman and L. Lundgren, Handbook of Magnetic Materials vol 6, ed K H J Buschow (Amsterdam: Elsevier) chapter 3, (1991) p 181-287
- [2] P. Kushwaha, et al., J. Phys. Condens. Matter 20 (2008) 022204.
- [3] M.I. Bartashevich et al. Physica B 351 (2004) 71-76.
- [4] 折橋ら、日本金属学会誌 76 (2012) 246-250.