

# ホイスラー合金 $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGa}$ ( $Z = \text{Ge}, \text{Ga}$ ) の磁気抵抗

## Magnetoresistance on Heusler alloys $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrZ}$ ( $Z = \text{Ge}, \text{Ga}$ )

東北学院大・工 鹿又 武、草刈 陽介、佐野 賢二  
東北大・金研 小山 佳一、岡田 宏成、渡辺 和雄  
龍谷大・理工 西原 弘訓

T. Kanomata<sup>1</sup>, Y. Kusakari<sup>1</sup>, K. Sano<sup>1</sup>, K. Koyama<sup>2</sup>, H. Okada<sup>2</sup>,  
K. Watanabe<sup>2</sup>, H. Nishihara<sup>3</sup>

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

<sup>2</sup>Institute for Materials Research, Tohoku University

<sup>3</sup>Faculty of Science and Technology, Ryukoku University

### 1. はじめに

近年、ホイスラー合金はハーフメタル特性、強磁性形状記憶特性、熱電変換特性など多様な機能特性を示すことが明らかになり、新機能性材料の有力な候補として国内外で精力的に研究が行われている。最近の第一原理計算はホイスラー合金  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrZ}$  ( $Z = 3\text{B}, 4\text{B}$  族元素) がスピントロニクス材料として有能なハーフメタル特性を示すことを明らかにした。[1-3] また、上記合金のハーフメタル特性は Ru、Fe と Cr の無秩序性にあまり依存しないことも明らかになっている。今回、我々は新物質  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrZ}$  ( $Z = \text{Ge}, \text{Ga}$ ) の作製を試み、その磁気及び伝導特性を調べた。本報告では上記物質の磁気抵抗効果の研究結果を示し報告する。

### 2. 試料作製と実験方法

$\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ ) 及び  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGa}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ ) 合金は高純度アルゴンガス雰囲気中でテトラアーク炉を使って作製された。試料の均一性を良くするために反応物を石英ガラス管に真空封入し、850 °C で3日間熱処理を行った。この熱処理を数回繰り返すことにより、 $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  合金系では  $0 \leq x \leq 1.75$  の組成領域で単相の試料が得られた。一方、 $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGa}$  合金系では ( $0 \leq x \leq 2.0$ ) の組成領域でほぼ単相の試料が得られた。磁化測定は SQUID を用いて行われた。磁気転移温度は初透磁率の温度変化

の実験によって決定された。磁気抵抗は東北大学金属材料研究所強磁場超伝導材料研究センターに設置してある 18 T 超伝導マグネットを用いて直流四端子法により測定された。

### 3. 実験結果

初透磁率と磁化の温度変化の実験及び粉末 X 線回折実験の結果を基にして  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ ) と  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGa}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ ) の磁気状態図を決定した。Fig. 1 は  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ ) の状態図である。組成  $x$  が  $x \leq 1.0$  の領域の試料は  $L2_1$  単相構造を持つ。 $1.75 \leq x \leq 1.0$  の領域の試料の結晶構造は現在解析中である。Fig. 1 を見るとわかるように、組成が  $0 \leq x \leq 0.20$  の領域の試料は反強磁性を示す。最近、我々は  $\text{Ru}_2\text{CrGe}$  ( $x=0$ ) の中性子回折実験を行い、 $\text{Ru}_2\text{CrGe}$  が AF2 型の磁気構造を持つことを明らかにした。 $1.75 \geq x \geq 0.50$  の組成領域の試料は強磁性特性を示すので、理論計算の予測通りこれら合金はスピン分極度が大きい可能性がある。 $0.75 \geq x \geq 0.20$  の組成領域の試料はクラスターガラス的振る舞いを示した。

Fig.2 は  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGa}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ ) の磁気状態図である。 $x \leq 1.0$  の組成領域の試料は弱い遍歴電子強磁性の特性を示す。 $\text{Ru}_{1.6}\text{Fe}_{0.4}\text{CrGe}$  の 5 K における 1 分子当たりの磁気モーメントは  $0.27 \mu_B$  であり、強磁場を作用しても磁化は飽和しない。一方、 $x \geq 1.0$  の組成領域の試料は  $T_C$  が高く且つ磁気モーメントの大き

い強磁性体である。これはこの組成領域の試料が A2(bcc)構造を持つことに起因すると予想される。前述したように  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  系において、 $0.20 < x < 0.75$  の組成領域の試料は低温でクラスターガラス的振る舞いを示す。スピンの平行あるいは反平行に整列している強磁性体あるいは反強磁性体と違って、クラスターガラス状態では磁場を作用したときにクラスターの磁気モーメントが磁場方向に整列しやすいと予想される。

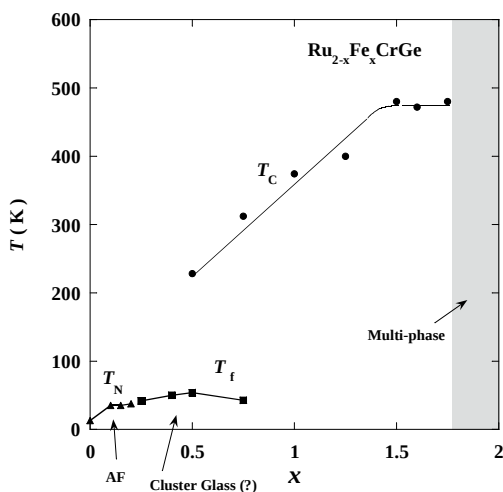


Fig.1 Magnetic phase diagram of  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  ( $0 < x < 2.0$ ).  $T_N$  and  $T_C$  indicate the Néel temperature and the Curie temperature, respectively.  $T_f$  means the spin freezing temperature.

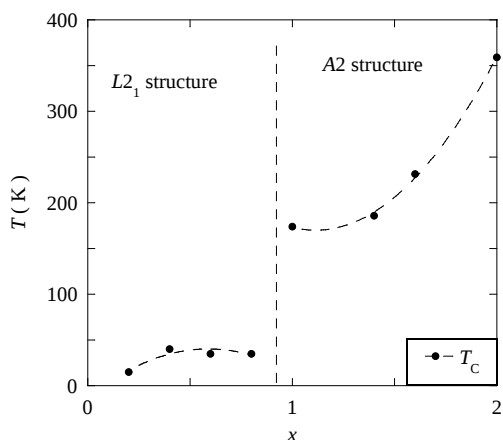


Fig.2 Magnetic phase diagram of  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGa}$  ( $0 < x < 2.0$ ).  $T_C$  indicates the Curie temperature.

Fig.3 は  $\text{Ru}_{1.5}\text{Fe}_{0.5}\text{CrGe}$  の電気抵抗  $\rho$  の温度変化である。抵抗率  $\rho$  は低温から温度を上昇するとクラスターガラス転移温度  $T_f$  までほぼ一定であるが、温度の上昇に伴い  $\rho$  も上昇する。キュリー温度 228 K 近傍で  $\rho$  はブロードな最大値を持つ。

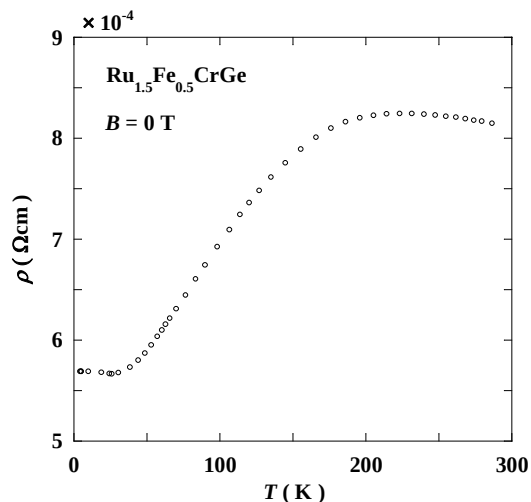


Fig.3 Temperature dependence of the electric resistivity  $\rho$  for  $\text{Ru}_{1.5}\text{Fe}_{0.5}\text{CrGe}$ .

Fig.4 は同試料の種々の温度における磁気抵抗  $\Delta\rho/\rho$  (%) の磁場依存性を示す。すべての温度において、負の大きい磁気抵抗が観測される。特に 4.2 K においては 18 T の最大磁場においても磁気抵抗は飽和していない。

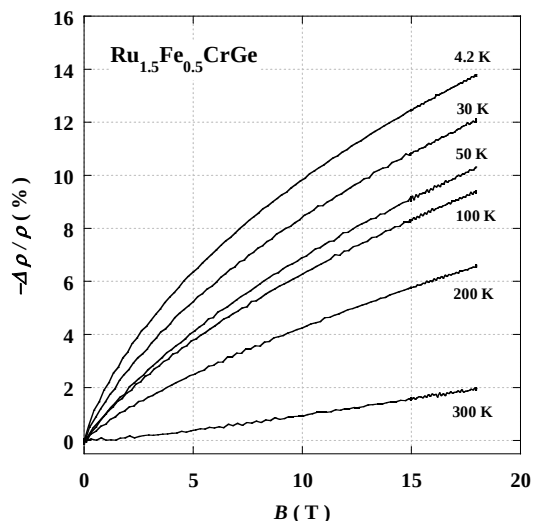


Fig.4 Magnetoresistance  $\Delta\rho/\rho$  (%) of  $\text{Ru}_{1.5}\text{Fe}_{0.5}\text{CrGe}$  at various temperatures.

Fig.5 は  $\text{Ru}_{1.5}\text{Fe}_{0.5}\text{CrGe}$  の 5 T、10 T、18 T における磁気抵抗の温度変化である。図を見ると明らかなようにクラスターガラス状態において大きな負の磁気抵抗が観測された。

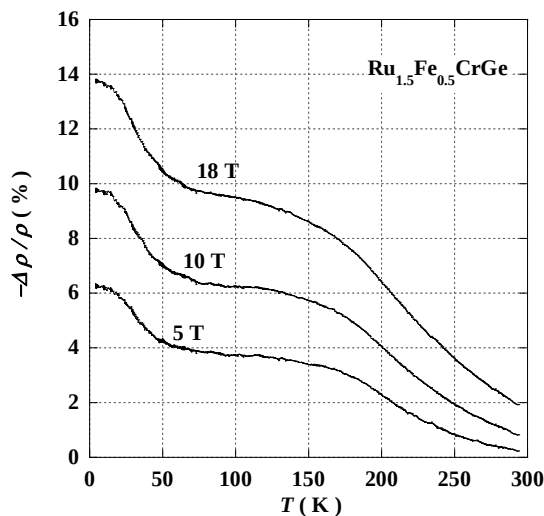


Fig.5 Temperature dependence of magnetoresistance  $\Delta\rho/\rho$  (%) at 5 T, 10 T and 18 T for  $\text{Ru}_{1.5}\text{Fe}_{0.5}\text{CrGe}$ .

#### 4 . まとめ

新物質  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ )と  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGa}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ )の磁気及び伝導物性を調べ、以下のような成果を得た。

- ( 1 )  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ )と  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGa}$  ( $0 \leq x \leq 2.0$ )の磁気相図を決定した。  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  において  $1.0 \leq x \leq 1.75$  の組成領域の試料は第一原理計算の予測通り約  $2 \mu_B$  の磁気モーメントを持つ強磁性体であるので、スピン分極率が大きい可能性がある。
- ( 2 )  $\text{Ru}_{2-x}\text{Fe}_x\text{CrGe}$  において、  $0.20 \leq x \leq 0.75$  の組成領域の試料は低温でクラスターガラス的振る舞いを示す。これら合金において大きな負の磁気抵抗が観測された。

#### 参考文献

- [1] S.Mizuani et al. Mater. Trans. 47 (2006) 25.
- [2] S.Ishida et al. Mater. Trans. 47 (2006) 31.
- [3] S.Ishida et al. Mater. Trans. 47 (2006) 464.