軟X線放射光を用いた強磁性形状記憶効果の起源の解明

Origin of ferromagnetic shape memory effect studied by soft X-ray synchrotron radiation

叶　茂[1)]、崔 芸涛[1)]、宮本幸治[1)]、木村昭夫[1)]、谷口雅樹[1)]、
竹田幸治[2)]、斉藤 祐児[2)]、鹿又武[3)]

Mao YE [1)], Yitao CUI [1)], Kouji MIYAMOTO [1)], Akio KIMURA [1)], Masaki TANIGUCHI [1)],
Yukiharu TAKEDA [2)], Yuji SAITOH [2)], Takeshi KANOMATA [3)]

[1)]広島大学　[2)]原子力機構　[3)]東北学院大

（要約）軟 X 線放射光を用いて、ホイスラー型強磁性形状記憶合金 $Ni_2Mn_{1+x}Sn_{1-x}$ の Mn および Ni L_{23} 内殻吸収端における磁気円二色性（XMCD）分光を行い、マルテンサイト変態に伴う Mn および Ni 3d 電子の磁気モーメントを元素選択的に捉えることを試みた。

キーワード：強磁性形状記憶、マルテンサイト変態、巨大磁気抵抗、ホイスラー型合金、
内殻吸収磁気円二色性（XMCD)、スピン磁気モーメント、軌道磁気モーメント

１．目的

ホイスラー型合金 Ni_2MnGa は、キュリー温度 374K の強磁性体で、高温側では立方晶（オーステナイト相）となるが、約 200K 以下で正方晶（マルテンサイト相）に構造相転移をすることが知られている[1]。これはマルテンサイト変態と呼ばれている。この強磁性マルテンサイト相では、磁場による双晶バリアント再配列により大きな磁場誘起歪を生じることが知られる。これによって、高速で大変位が発生できる新しい磁場駆動アクチュエーター材料として大きな注目を集めている[2,3]。

最近、Ni 系ホイスラー合金系の中で強磁性母相（オーステナイト相）から非磁性相へとマルテンサイト変態を生じる $Ni_2Mn_{1+x}Z_{1-x}$（Z= In, Sn, Sb）形状記憶合金が作成され、5 テスラの外部磁場によりマルテンサイト変態温度が 50 ℃も低下する事が明らかにされた[4]。またこの現象を利用して磁場誘起逆マルテンサイト変態に起因する形状記憶効果が世界で初めて観測され「メタ磁性形状記憶効果」と命名された[5]。さらには電気抵抗率が磁場の作用により磁気抵抗は約 75 %も変化することも報告された[6]。このように $Ni_2Mn_{1+x}Z_{1-x}$（Z= In, Sn, Sb）磁気形状記憶合金は磁気センサー、磁気アクチュエーター、磁気冷凍材料への応用の極めて有力な候補であるが、見出されて間もないために巨大磁気抵抗発生の機構については現在全く不明である。

本研究では、$Ni_2Mn_{1+x}Sn_{1-x}$ について内殻吸収磁気円二色性（XMCD）分光を行い Ni および Mn 3d のスピン及び軌道磁気モーメントの定量評価を行い、マルテンサイト変態と磁気モーメントの関係を明らかにすることを目的として実験を行った。

２．方法

XMCD 分光は、BL23SU・軟 X 線放射光ビームラインにて行った。試料は超高真空中で破断することにより清浄表面を得た。また 7 テスラの外部磁場を印可し、全電子収量法により内殻吸収スペクトルを得た。

３．研究成果

本研究では $Ni_2Mn_{1+x}Sn_{1-x}$ の x=0.36, 0.40, 0.42 の多結晶試料について、室温（オーステナイト相）から 30K（マルテンサイト相）まで温度を変化させて XMCD スペクトルの観測を行った。まず図 1 に x=0.36 および 0.42 の試料について Mn L_{23} 吸収端における XMCD スペクトルを示す。それぞれの XMCD スペクトルは Mn L_{23} 端スペクトル強度で規格化を行った上で示している。室温では、x=0.36、0.42 ともに XMCD スペクトル強度が同じであるが、低温では x=0.42 の XMCD スペクトル強度が極端に減少していることがわかる。

また Ni L_{23} 吸収端の XMCD スペクトルから Ni 3d 電子のスピンおよび軌道磁気モーメントを定量評価しその温度依存性を調べた。その結果、マルテンサイト変態温度の前後で大きな磁気モーメントの変化は観測さ

れなかった。

４．結論・考察

$Ni_2Mn_{1+x}Sn_{1-x}$ についての磁化測定の結果によると、低温では Mn 濃度（x）の増加に伴って磁化が直線的に減少していることが分かっている[7]。その結果は Sn サイトを占める Mn 原子の磁気モーメントが Mn サイトの磁気モーメントと反強磁性的になっていることを示唆している。さらには、マルテンサイト相における結晶構造は orthorhombic となっており、Mn-Mn 原子間距離が立方晶（高温相）における距離よりも平均的には小さくなっている[8]。このような反強磁性的な磁気構造の存在は、Mn L_{23} 端における XMCD スペクトル強度の減少と矛盾しない。

５．引用(参照)文献等

[1] P.J.Webster et al., Philos. Mag. B 49 (1984) 295.

[2] K.Ullakko, J.K.Huang, C Kantner, C.O' Handley, and V.V. Kokorin., Appl. Phys. Lett. 69 (1996) 1966.

[3] A.Sozinov, A.A. Likhachev, N.Lanska, and K.Ullakko., Appl. Phys. Lett. 80 (2002) 1746.

[4] R. Kainuma et al., Appl. Phys. Lett. 88 (2006) 122507.

[5] R. Kainuma et al., Nature 439 (2006) 957.

[6] K. Koyama et al., Appl. Phys. Lett. 89 (2006) 182510.

[7] T. Kanomata et al., Mater. Sci. Forum 583 (2008) 119.

[8] P. J. Brown et al., J. Phys. Condens. Matter 18 (2006) 2249.

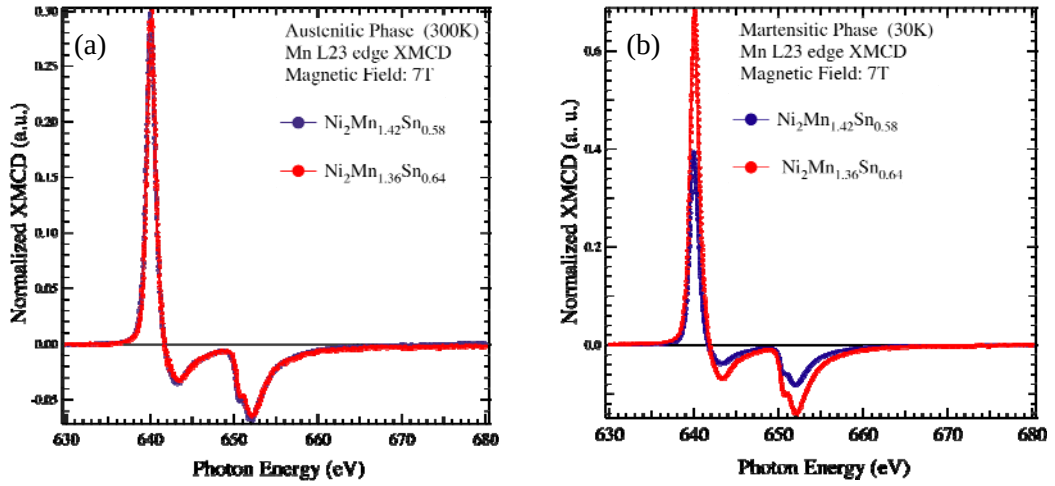

図 1: (a)室温および (b)30K での $Ni_2Mn_{1+x}Sn_{1-x}$ の Mn L_{23} 吸収端における XMCD スペクトル。