

XMCD分光によるホイスラー合金における巨大磁気熱量効果の発現機構の研究

Origin of giant magnetocaloric effect of Heusler-type alloys revealed by XMCD spectroscopy

叶 茂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 YE¹⁾, Akio KIMURA¹⁾, Masaki TANIGUCHI¹⁾,

Yukiharu TAKEDA²⁾, Yuji SAITOH²⁾, Takeshi KANOMATA³⁾

¹⁾ 広島大学 ²⁾ 原子力機構 ³⁾ 東北学院大

(要約) 軟X線内殻吸収磁気円二色性分光により、巨大磁気熱量効果を示すホイスラー型強磁性体 $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1+x}\text{Sn}_{1-x}$ のマルテンサイト変態に伴う Ni 3d 電子の磁気モーメントの温度依存性を詳細に調べた。その結果、マルテンサイト変態温度近傍でヒステリシスを明確に観測した。このことは、Ni 3d 電子がマルテンサイト変態に大きく関わっていることを示す。

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

1. 目的

温度を変えずに磁性体に磁場を加えると磁気モーメントが揃ってエントロピーが減少する。一方、断熱状態で磁場を取り除くと温度が低下する。これは**磁気熱量効果**として良く知られる。磁気冷凍は磁気熱量効果を用いた冷凍法で、環境に優しく省エネルギーの冷凍法として大きな注目を集めている [1]。

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 $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1+x}\text{Z}_{1-x}$ (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 °C も低下する事が明らかにされた[2]。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[2]。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[3]。これら一連の $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1+x}\text{Z}_{1-x}$ (Z= In, Sn, Sb) の特徴として、高温相（オーステナイト相）から出発して、温度を下げて行くとマルテンサイト変態に伴って磁化が大きく減少し常磁性状態になる。このような大きな磁化の減少が、エントロピーの大幅な増加につながり、特異な逆磁気熱量効果を示すことで最近注目を集めている。このように $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1+x}\text{Z}_{1-x}$ (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、巨大磁気熱量効果の機構についてはいまだ良く分かっていない。本研究では、 $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1+x}\text{Sn}_{1-x}$ について内殻吸収磁気円二色性 (XMCD) 分光を行い Ni 3d のスピン磁気モーメントの温度依存性を詳細に調べ、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 分光実験は、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 1-7 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 $\text{Ni}_2\text{Mn}_{1+x}\text{Sn}_{1-x}$ の $x=0.42$ 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) の温度領域で XMCD スペクトルの観測を行った。図 1 に Ni L₂₃ 吸収端における XMCD スペクトルの温度依存性を示す。図 1 を見ると、室温を出発点として温度を降下させると、マルテンサイト変態の始まる温度 230K まで XMCD 強度は増大するが、230K-180K の範囲では減少する。また 180K を超えると再び増加する。230K-180K までの温度領域における XMCD シグナルの減少はまさにマルテンサイト変態に伴う磁化の減少に寄与していると思われる。さらにこれを明確にするために図 1 (b)には、Ni L₃ 端における XMCD 強度を温度の関数としてプロットしている。図 1 (b)を見て明らかな様に、マルテンサイト変態にともない、XMCD 強度にヒステリシスが観測された。

4. 結論・考察

今回の Ni L₂₃ 吸収端における XMCD 分光測定から、Ni₂Mn_{1+x}Sn_{1-x} のマルテンサイト変態に伴う XMCD 強度の温度依存性が明確に観測された。このことは、マルテンサイト変態に伴って Ni 3d 電子が大きく関わっていることを示している。

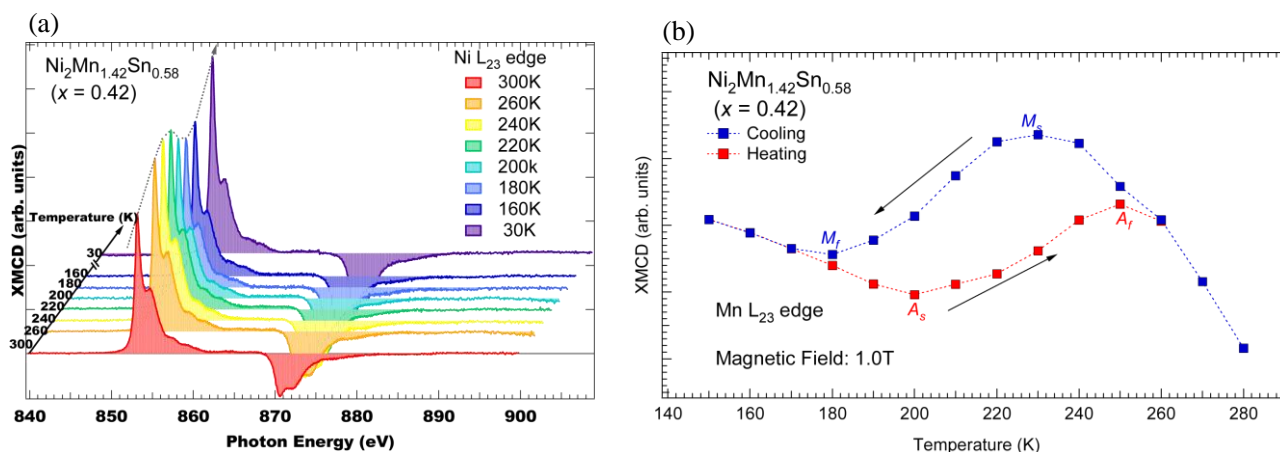


図 1 : (a)測定温度 T=300-30K における Ni₂Mn_{1+x}Sn_{1-x} (x=0.42) の Ni L₂₃ 吸収端スペクトル。

(b) Ni L₃ 吸収端の XMCD 強度の温度依存性。

5. 引用(参照)文献等

- [1] A. Planes et al., J. Phys.: Condens. Matter **21** (2009) 233201.
- [2] R. Kainuma et al., Nature **439** (2006) 957.
- [3] K. Koyama et al., Appl. Phys. Lett. **89** (2006) 182510.