

反強磁性金属 Mn_3Si における局所電荷・結晶構造の研究Study on local charge and crystal structure in antiferromagnetic metal Mn_3Si 平賀 晴弘¹⁾松村 大樹²⁾

Haruhiro HIRAKA

Daiju MATSUMURA

¹⁾東北大学²⁾原子力機構

Mn_3Si において、異常に滑らかなXANES/EXAFS信号を観測した。Fe置換によってピーク構造が回復することから、 Mn_3Si の異常物性がMn（特に Mn_{II} サイト）における特異な局所電荷・結晶構造に起因している可能性がある。

キーワード : Mn_3Si , XANES, EXAFS, 反強磁性金属

1. 目的

金属間化合物 Mn_3Si はホイスラー型 $[(Mn_{II})_2(Mn_I)Si]$ の立方晶結晶構造を取り、 $T_N = 21$ K以下で三次元長距離反強磁性秩序を示す[1]。そのワイス温度の絶対値 $(|\theta_p| \sim 650$ K)は T_N に比べ遥かに高く[2]、電子比熱係数 $(\gamma = 69$ mJ/K² mol)も3d遷移金属化合物にしては大きめの値を示す[3]。一方、比熱と電気抵抗の磁場依存性が極度に弱い[3]ことから、スピン以外の自由度（電荷や格子）がこの系の異常な物性を支配している可能性が高い。

本研究では、Mn周りの局所電荷・結晶構造の観点から Mn_3Si における異常物性の解明を目指す。特に、Mnを一部Feで置換することで、 $|\theta_p| \sim T_N$ および $\gamma \sim 5$ mJ/K² molと通常の局在スピン系・金属状態に近づく[2]ことから、Fe置換効果を比較参照し議論する。

2. 方法

試料は、4種類の粉末多結晶 $Mn_{3-x}Fe_xSi$ ($x = 0, 0.6, 1, 1.5$)。それぞれ2 mg程度をBN粉末20 mgと良く混ぜ合わせ、薄いdisc状にプレス成形し標準冷凍機にセット。BL14B1にて、Mn-KからFe-K吸収端に亘るエネルギー（波数）範囲で透過吸収スペクトルを計測。温度範囲は、最低温度（約15 K）から室温まで。

3. 研究成果

Mn-K吸収端近傍で測定した最低温度におけるXANESを、図1に示す。6.540 keV以上で観られる Mn_3Si の滑らかな構造が特徴的である。また、図2に最低温度におけるEXAFS振動から抽出したフーリエ変換 $\chi(R)$ を示す。 Mn_I が主に寄与する2.2 Å付近のピーク強度が、 Mn_3Si では異常に弱い。XANES/EXAFS共に、 Mn_3Si では滑らかな構造となっており、その原因ははまだ分かっていない。

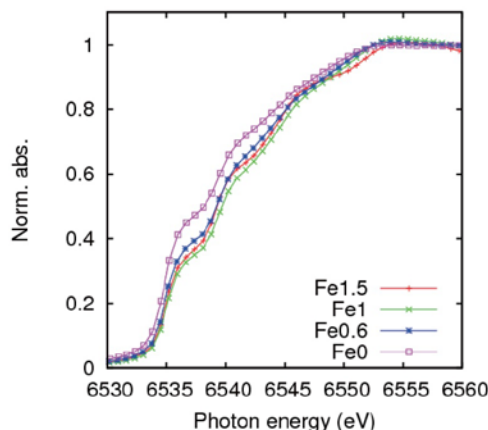


図1. Mn-K吸収端における最低温度でのXANESスペクトル。

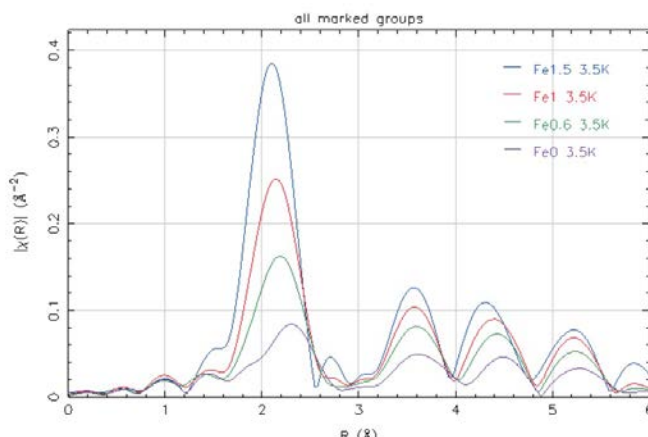


図2. Mn-K吸収端近傍での最低温度におけるEXAFS信号から抽出したフーリエ変換 $\chi(R)$ 。

図には示していないが、 $x=0$ 以外の 3 組成に対する Fe- K 吸収端の XANES/EXAFS には、normal なピーク構造が観測された。また、図 1・2 に示したような Mn- K 吸収端での顕著な Fe 濃度依存性も、Fe- K 吸収端では観られなかった。

現在、EXAFS 振動の温度変化から、原子間距離とデバイワラー因子の温度依存性を解析しているところである。

4. 結論・考察

Fe 置換と共に Mn- K 吸収端での XANES/EXAFS ピーク構造 (コヒーレンシー) が回復することから、 Mn_3Si の異常物性が Mn 周りにおける局所電荷 and/or 結晶構造の乱れと関連している可能性がある。結晶学的には、Mn が占める位置には Mn_I と Mn_{II} の 2 サイト有り、今回実験に用いた試料の Fe 濃度範囲において、Fe は Mn_{II} サイトへ選択的に置換される [4]。このことから、 Mn_{II} の電荷状態あるいは Mn_{II} の絡む局所構造が Mn_3Si の物性に異常をもたらしていると推測される。

なお、 Mn_I と Mn_{II} ではスピン状態が大きく異なっており、磁気モーメントで言えば、 $\mu_I \sim 2\mu_B$ 、 $\mu_{II} \sim 0.2\mu_B$ と一桁大きさが違う [1]。つまり、局在スピンの Mn_I スピンに対し、 Mn_{II} スピンは遍歴電子的な磁気特性を示す。 Mn_{II} の不対磁性電子が広く空間に分布するために、①隣接する Mn_I から見た $\chi(R)$ のピーク構造が弱い、②Mn- K 吸収端の高エネルギー側で XANES が平坦になる、と実験事実を解釈できる。

磁性電子の局在-遍歴性を XAFS で評価できれば、金属磁性研究に新たなアプローチを与え得る。今後は、中性子磁気散乱により、遍歴的な Mn_{II} スピンの空間分布を直接決定し、上記の考察を検証したい。

5. 引用 (参照) 文献等

- [1] S. Tomiyoshi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **39**, 295 (1975).
- [2] 崔, 平賀 他, 日本物理学会秋季大会 2011 年 9 月.
- [3] C. Pfleiderer *et al.*, Phys. Rev. B **65**, 172404 (2002).
- [4] H. Miki *et al.*, Physica B **213 & 214**, 360 (1995).