

X線 MCD による超磁歪材料 Mn_3CuN の磁気－構造相関解明
Correlation between magnetism and structure in
super-magnetostriction material Mn_3CuN explored by X-ray MCD

竹中 康司^a, 芝山 隆史^a, 小澤 篤^a, 稲垣 哲也^a, 渡辺 諒太郎^a,
 児玉 謙司^b, 中村 哲也^b, 木下 豊彦^b

Koshi Takenaka^a, Takashi Shibayama^a, Atsushi Ozawa^a, Tetsuya Inagaki^a, Ryotaro Watanabe^a,
Kenji Kodama^b, Tetsuya Nakamura^b, Toyohiko Kinoshita^b

^a名古屋大学, ^b高輝度光科学研究センター

^aNagoya University, ^bJASRI

巨大な負熱膨張を示すことで注目される逆ペロフスカイト型マンガン窒化物の中で、例外的に負熱膨張を示さない Mn_3CuN において、2000ppm を超える巨大な磁歪が発見された。巨大磁歪の背景にある磁気－構造相関、とりわけ結晶磁気異方性の起源を明らかにする目的で X 線 MCD 実験を行い、軌道磁気モーメントの評価や Mn と Cu の副格子磁化挙動を調べた。

Large magnetostriction over 2000ppm was discovered in antiperovskite Mn_3CuN , which exhibits exceptionally no negative thermal expansion contrary to other members of this family. In order to clarify the magnetostructural correlations, or the origin of the magnetocrystalline anisotropy, behind the large magnetostriction, we have explored contribution from the orbital magnetic moment and magnetic behavior of the Mn and Cu sublattices by means of X-ray magnetic circular dichroism (XMCD).

キーワード：逆ペロフスカイト、マンガン窒化物、磁歪、X 線 MCD

背景： 逆ペロフスカイト型マンガン窒化物 Mn_3AN における巨大負熱膨張の発見[1, 2]は、この物質群の持つ機能材料としての潜在性と現象の背景である磁気－構造相関の学術的重要性を再認識させるものである。この発見を契機として、この材料ならびに現象を熱膨張制御材料へ実用しようとする応用研究とともに、自発体積磁歪と幾何学的フラストレーションの関連性など、新たな視点に立った磁気－構造相関の基礎的研究も展開されている。

これら一連の研究で我々は、 Mn_3CuN が、多結晶焼結体でありながら、強磁性・正方晶相において、最大 2000ppm に達する顕著な強制磁歪を示すことを発見した[3, 4]。もともとこの Mn_3CuN は、 Mn_3ZnN や Mn_3GaN など化

学量論比にある他の逆ペロフスカイト型マンガン窒化物が共通して低温で反強磁性・立方晶であり、磁気相転移温度で顕著な体積変化を示す中で、特異点的に異なった物性を示すことから、この物質群の磁気－構造相関を研究する上でのキー・マテリアルと考えられてきた。この顕著な強制磁歪は、先に見出された巨大自発体積磁歪（負熱膨張）と並び、この物質群の特異な磁性と結晶格子との相関を解明する上で、鍵となる重要な現象であり、また、実用へ向けた機能制御を進める上でもそのメカニズム探求は不可欠である。

Mn_3CuN の磁歪は強磁性形状記憶合金・ホイスラー Ni_2MnGa などと同様、熱弾性型マルテンサイト変態に由来する双晶バリエントの

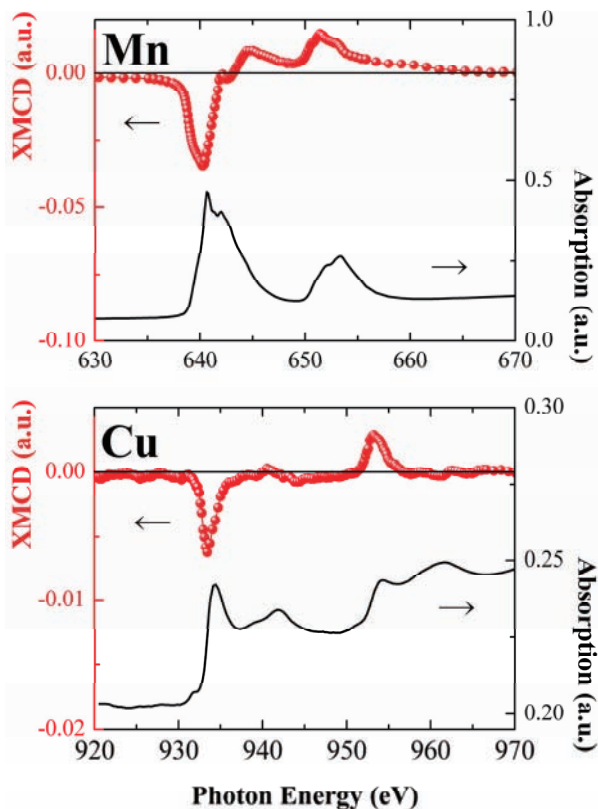


Fig. 1 Mn_3CuN の Mn および Cu $L_{2,3}$ 端 XMCD スペクトル

磁場による再配列を起源とするものと考えられるが、① d 軌道が半占有に近く大きな磁気異方性が期待できない Mn で、かつ②結晶構造の異方性 ($c/a=0.985$) もホイスラー合金 (最大で $c/a=0.9$ に達する) に比べ小さいにもかかわらず、どうして巨大な磁歪が出現するか、大きな疑問が残る。 Mn_3CuN の磁歪は、ホイスラー合金をはじめとする磁歪研究にとって大いなる刺激となっている。

実験： Mn_3CuN において巨大磁歪を生み出す結晶磁気異方性の起源を明らかにする目的で、X 線 MCD により元素選択的に Mn および Cu の磁気状態を定量評価した。具体的には、①磁気光学総和則を適用してスピン・軌道磁気モーメントを導出し、軌道磁気モーメントの寄与について情報を得る、②元素選択

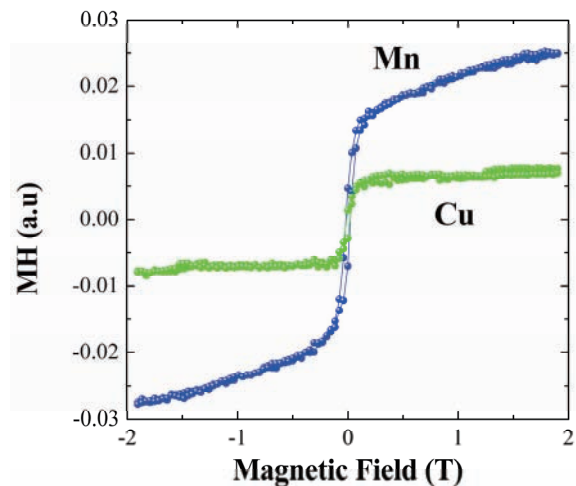


Fig. 2 元素選択ヒステリシス測定による Mn_3CuN の Mn と Cu の副格子磁化挙動

ヒステリシス測定により Mn と Cu の副格子磁化挙動を独立に評価する、の 2 つを試みた。

結果と考察： Mn_3CuN において Mn および Cu の $L_{2,3}$ 端の X 線 MCD 実験を行った。その結果、Mn、Cu ともに明瞭な XMCD 信号が得られ、Mn だけでなく、Cu も磁気モーメントを有していることが明らかになった (Fig. 1)。また、 Mn_3CuN において、元素選択ヒステリシス測定によって Mn と Cu の副格子磁化挙動が異なることを確認した (Fig. 2)。 Mn_3CuN における大きな結晶磁気異方性を説明できるほど大きな軌道磁気モーメントが Cu に誘起しているかどうかなど、定量的評価については今後より詳細に検討してゆく。

参考文献

- [1] K. Takenaka and H. Takagi, Appl. Phys. Lett. **87** (2005) 261902.
- [2] 竹中康司, 固体物理 **41** (2006) 361.
- [3] K. Asano, K. Koyama, and K. Takenaka, Appl. Phys. Lett. **92** (2008) 161909.
- [4] 竹中康司・浅野和子, あたりあ **48** (2009) 105.