

磁気冷凍材料 Ho_5Pd_2 の結晶および磁気構造解析

Neutron Scattering Study on Magnetic Refrigerant Material Ho_5Pd_2

利用者 河村 幸彦¹⁾、北澤 英明¹⁾、鈴木 博之¹⁾、寺田 典樹¹⁾、間宮 広明¹⁾、
目時 直人²⁾、井川 直樹²⁾、金子 耕士²⁾

Yukihiko KAWAMURA, Hideaki KITAZAWA, Suzuki HIROYUKI, Noriki TERADA, Hiroaki MAMIYA,
Naoto METOKI, Naoki IGAWA, Koji KANEKO

所属 1)物質・材料研究機構、 2)日本原子力研究開発機構

キーワード 磁気冷凍材料、 磁気熱量効果、 Ho_5Pd_2

1. 目的

磁気冷凍材料はフロンなどの環境破壊物質を使わず、かつ高い冷却効率を期待できるため、クリーンエネルギー材料として注目されている。磁気冷凍効果の原理を考えると、強磁性秩序をする方が磁気熱量効果は大きくなる事が期待されるが、Samata等は、 Ho_5Pd_2 は反強磁性的な振る舞いをしているにも関わらず大きなMCEを示すと報告をしている¹⁾。そこで我々は、粉末中性子回折実験を行い Ho_5Pd_2 が大きなMCE効果を示す起因について調べる。

2. 方法

Ho と Pd をモル比5:2でアーク炉にて溶解し合金を作成し、石英管に封入して72時間800℃でアニールした試料をメノウ乳鉢で粉末状にしたものを用いた。実験装置は、MUSASIでまずピークパターンの変化を冷凍機を用いて観測し、HRPDで100Kと5Kで構造解析用のデータを収集した。また、LTASで5K冷凍機を用いて通常の回折計では測定できない低角のピークについて2.5meV(4.96 Å)の波長で温度変化を観測した。

3. 実験結果

結晶構造

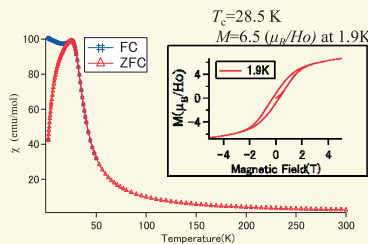


Fig.1 磁化測定および履歴曲線

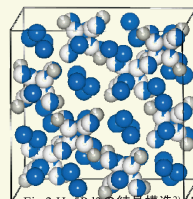
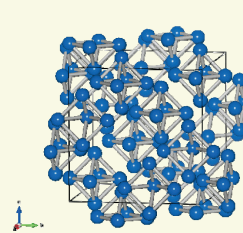
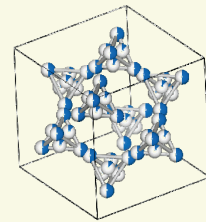


Fig.2 Ho_5Pd_2 の結晶構造。空間群 $Fd-3m$, $a=13.45(\text{Å})$

それぞれの原子を抜き出すと、Ho1が作る八面体とHo2がつくる四面体で構成されている。また、Ho3がdisorder的な配置をとっている。



Ho1 Siteが作る八面体



Ho2が作る四面体

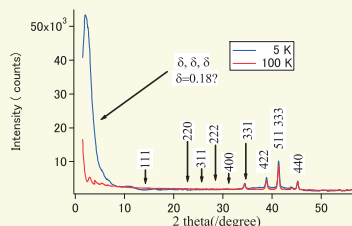


Fig.3 HRPDによる中性子粉末回折パターン

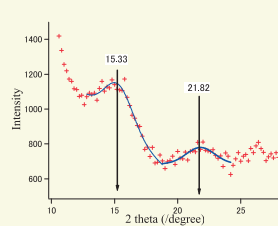


Fig.4 低温相において現れる111反射まわりの磁気散乱 (MUSASI)

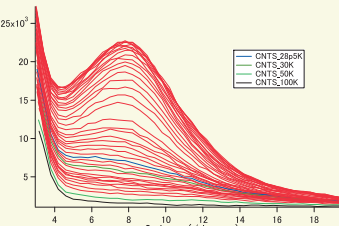


Fig.5 HRPDにおいてダイレクト付近に急激に立ちあがるピークをLTASを用いて測定。

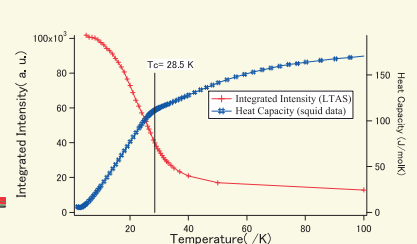


Fig.6 積分強度の温度依存性と比熱

4. まとめ

磁化測定の結果は強磁性的な振る舞いをするように見える (Fig.1)。もし、低温において (反) 強磁性秩序が起こってれば、中性子粉末解析パターンを測定すると、それを示す非常に強度の強い磁気散乱が観測されるはずであるが、非常に弱い散漫散乱的なピークのみが観測された (Fig. 3)。核反射 111 付近にある弱いピークについて指数付けをしたところ、このピークは $(1 \pm \delta, 1 \pm \delta, 1 \pm \delta)$ で説明することができた (Fig. 4)。また、Low-Qにおいて急激に立ちあがるピークの温度変化について調べたところ、転移温度 (28.5 K) 以下で急激に立ちあがっており、これは指数 $(\delta \ \delta \ \delta)$ で示される磁気反射であることが分かった (Fig. 5)。総合すると、非常に弱い磁場で磁気モーメントの向きが揃いやすいために強磁性的な振る舞いを示すが、磁気構造の \mathbf{k} -ベクトルは $\mathbf{k}=(0.18 \ 0.18 \ 0.18)$ で示される長周期構造をとっていると思われる。これは、おそらく Ho3 原子のランダムネスに起因していると思われる (Fig. 2)。単純に Ho 原子の磁気モーメントが大きいだけでなく、Ho 原子のランダムネスにより、転移点よりはるかに高い温度 (100 K) からショートレンジオーダーが発達し、巨大磁気熱量効果を示す原因であると考えられる。

5. 引用 (参照) 文献等

- 1) Tapas Samanta, I. Das, and S. Banerjee, APL, **91**, 082511 (2007)
- 2) M. L. Fornasini and A. Palenzona, J. Less-Common Metals, **38** (1974) 77-82
- 3) K. Momma and F. Izumi, J. Appl. Crystallogr., **41**:653-658, 2008.