

**磁場・圧力下における
遍歴電子メタ磁性体 MnSi の磁氣的・電氣的性質**

**Magnetic and electric properties of
an itinerant electron metamagnet MnSi
under high pressures and high magnetic fields**

山田 将貴

MnSi は磁気転移温度が $T_C = 29$ K で、Mn サイトに約 $0.4 \mu_B$ の磁気モーメントを持つ典型的な弱い 3d 遍歴電子磁性体である。結晶構造は B20 型であり、その対称性からモーメント間には Dzyaloshinski-Moriya 相互作用が働く。この相互作用のため、磁気構造は [111] 方向に長周期 ($\lambda = 180$ Å) のヘリカル構造となっている。MnSi に磁場を印加すると、磁気構造はコニカル構造に変化し、さらに磁場が $B_f = 0.62$ T 以上になると強制強磁性構造をとることが知られている。一方、MnSi に圧力を加えるとキュリー温度 T_C は急激に減少し、臨界圧力 $P_c \sim 1.5$ GPa で磁性を失うことが報告されている。 T_C における磁気相転移の型は、低圧側では 2 次であるが、 $P_t \sim 1.2$ GPa 以上で 1 次に変化する。 P_c 以上の非磁性領域では、低温で電気抵抗は非フェルミ液体的振舞いをすることが見出されている。また、高圧下の交流磁化率の測定によると、 $P > P_t$ の圧力領域において、常磁性磁化率は緩やかな極大を示すことが報告されている。これらの異常な現象は遍歴電子メタ磁性体の示す特徴的な性質であり、MnSi は $P > P_t$ の圧力下でメタ磁性を示すことが示唆されていた。実際、Koyama らによって臨界圧力直上でメタ磁性が観測されたが、メタ磁性の詳細はほとんど研究されていない。

MnSi は、Mn 化合物において初めて見出された遍歴電子メタ磁性体であるが、磁気モーメント間に Dzyaloshinski-Moriya 相互作用が働いているという点で他のメタ磁性体と大きく異なっている。本研究では、MnSi のメタ磁性の性質を明らかにするとともに、磁氣的および電氣的性質とメタ磁性との関係を解明するために、磁場、圧力下においてこれらの性質を詳細に調べた。

測定に使用した MnSi の試料は、チョックラルスキー法で作製した良質な単結晶で室温の抵抗と残留抵抗との比は $RRR = 95.2$ である。

MnSi の磁化と電気抵抗の精密な測定は $T \geq 0.6$ K, $B \leq 9$ T, $P \leq 2.0$ GPa の多重極限環境下で行った。高圧下における磁化測定では、非磁性 CuTi 合金製のピストンシリンダー型の高圧クランプセルと引き抜き型の磁化測定装置が用いられるが、これまで発生圧力は $P = 1.2$ GPa が限度であった。本研究では、CuTi 合金を鍛造→熱処理→自緊の処理を行うことによって、最高圧 $P = 2.0$ GPa の圧力発生に成功した。この圧力セルの開発により MnSi の磁化測定が $P = 2.0$ GPa まで可能となった。一方、電気抵抗の測定では、CuBe 製のピストンシリンダー型高圧クランプセルを用い、縦抵抗を直流 4 端子法で測定した。磁化、電気抵抗の測定ともに、外部磁場の方向は $B // [111]$ である。

初めに、磁化率の結果について述べる。 T_C は、圧力の増大と共に低温側に移動し、 $P_c = 1.50$ GPa で磁性は完全に消失した。低圧側では、磁化率は T_C 近傍で 2 次転移に見られる特徴的な温度変化であるカスプを示す。圧力の増大と共にこのカスプは小さくなり、 $P = P_t = 1.2$ GPa で完全に潰れた。 $P_t < P < P_c$ の領域では、磁化率は T_C 以上で急激に小さくなり、1 次転移の振舞いが観測された。

3 つの圧力領域 $P < P_t$, $P_t < P < P_c$, $P_c < P$ における B - T 磁気相図を決定するために、 $P = 0, 1.47, 1.68, 2.0$ Pa において、磁化曲線の温度依存性、磁化温度曲線の磁場依存性を測定した。常圧 $P = 0$ GPa では、過去に報告されているように、MnSi は低温では $B_f = 0.62$ T 以上で強制強磁性状態が発現した。弱磁場 $B_c = 0.08$ T で磁化曲線に小さな折れ曲がりが見られ、これはヘリカルからコニカル状態への転移に対応すると解釈される。 B_c と B_f は温度上昇と共に徐々に減少し、 T_C でゼロになる。また、1 次転移の領域内 $P_t < P < P_c$ にある $P = 1.47$ GPa では、 $T < T_C = 2.8$ K における磁化過程は常圧の場合と同様な振舞いを示すが、 T_C 直上において弱場中でヒステリシスが観測された。例えば $T = 4.2$ K の場合、 $B_{m1} = 0.075$ T から $B_{m2} = 0.27$ T の間でヒステリシスが観測され、 $B_{m1} < B < B_{m2}$ の間で常磁性からコニカル状態にメタ磁性転移することが判明した。さらに磁場を上げると B_f で強制強磁性状態に転移する。温度が上昇するとヒステリシスは減少し、メタ磁性転移は $T_0 = 10$ K で完全に消失する。一方、磁性が消失する圧力領域内 $P > P_c$ にある $P = 1.68$ GPa では、常磁性(非磁性)状態からコニカル状態へのメタ磁性転移が最低温度から観測された。さらに高い圧力 $P = 2.0$ GPa では、非磁性状態から強制強磁性状態へのメタ磁性転移が生じた。

以上の結果から、圧力に対応し MnSi には 4 種類の B - T 磁気相図が存在すること

が明らかになった。さらに、上記の実験結果から P - T 磁気相図も決定され、この相図がスピンの揺らぎを取り入れた遍歴電子メタ磁性の理論から決定された相図と定性的に良く一致することが分かった。

電気抵抗 ρ は、 $P < P_c$ の圧力領域では、 $T < T_c$ においてフェルミ液体的振舞い $\rho - \rho_0 \propto T^2$ が見られる。しかし、 $T > T_c$ の非磁性領域では、低温で非フェルミ液体的振舞い $\rho - \rho_0 \propto T^{5/3}$ が観測された。ここで、 ρ_0 は $T = 0$ に外挿した抵抗値（いわゆる残留抵抗）である。 ρ_0 の値は磁性が消失する量子臨界点 P_c に近づくと急激に上昇し、 P_c で最大値をとる。この現象は、量子臨界揺らぎによるスピン散乱が ρ_0 に寄与し、臨界点で最大となるためと考えられる。 $P < P_c$ では、負の磁気抵抗が観測され、 $B = B_f$ で抵抗は折れ曲がる。しかし、 $P > P_c$ の圧力下 ($P = 1.55, 1.69$ GPa) では、弱磁場中で正の磁気抵抗を示し、電気抵抗はブロードな極大をとる。さらに磁場を上げると、負の磁気抵抗が見られた。ブロードな極大の近傍において、電気抵抗の磁場依存性にヒステリシスが見出された。ヒステリシスが現れる磁場領域は磁化測定から決定されたメタ磁性転移の領域 $B_{m1} < B < B_{m2}$ と一致し、温度が上昇にするとヒステリシスは小さくなっていく。以上の結果から、観測されたヒステリシスはメタ磁性によるものであると結論される。電気抵抗の極大は以下の様にして説明される。 $B < B_{m1}$ では Mn は非磁性の状態にあるので、抵抗値は磁場によらずほぼ一定である。しかし、 $B_{m1} < B < B_{m2}$ では、メタ磁性転移のために非磁性と磁性を持つ Mn が共存するためにスピン揺らぎが増大し、スピンによる散乱が著しく大きくなる。また、メタ磁性転移が完了する $B > B_{m2}$ の領域では、磁気秩序が形成されるため負の磁気抵抗が観測される。磁気抵抗の極大はメタ磁性転移に伴いスピン揺らぎが増大した結果であると考えられる。

$P > P_c$ の非磁性領域において、非フェルミ液体的振舞いが見られる。しかし、 $B = 1.0$ T $> B_f$ の磁場を加えると、フェルミ液体的振舞いに変化した。 $\rho - \rho_0 \propto T^\alpha$ と表すと、弱磁場 ($B < B_{m2}$) の領域では α は一定値 $5/3$ をとるが、 $B > B_f$ の領域では $\alpha = 2$ の値をとる。しかし、中間の磁場領域 $B_{m2} < B < B_f$ では、磁場の増加と共に α の値は $5/3 \rightarrow 2$ に連続的に変化する。この結果は、磁場によって MnSi が $\alpha = 5/3$ の非フェルミ液体的状態から $\alpha = 2$ のフェルミ液体的状態にクロスオーバーする事を示している。磁気抵抗の振舞いは次のようにして理解される。 $P > P_c$ では、強い量子スピン揺らぎのため MnSi は非フェルミ液体的振舞いを示す。磁場を印加し、メタ磁性転移領域に入ると、更にスピン揺らぎは増大する。しかし、メタ磁性転移終了後は、磁性秩序が生じて急

激にスピン揺らぎは抑制される。その為、非フェルミ液体的振舞いから、フェルミ液体的振舞いへのクロスオーバーが起こる。更に磁場が強くなると、スピン揺らぎは抑制され、磁気抵抗も減少していく。つまり、MnSi の非フェルミ液体的挙動は、強いスピンの揺らぎによるものであると解釈される。

上記のように、磁場、圧力、低温の多重極限下における MnSi の磁気的および電氣的性質の詳細な研究から、MnSi のメタ磁性の性質、メタ磁性と磁氣的・電氣的な性質との関係が初めて明らかにされた。

MnSi には Dzyaloshinski-Moriya 相互作用が存在するために、 B - T 磁気相図は複雑で圧力によって相図が異なる。しかし、MnSi のメタ磁性の性質は他の 3d 遍歴電子メタ磁性体で観測されているものと本質的に一致する。仮に Dzyaloshinski-Moriya 相互作用が無ければ、MnSi は典型的な遍歴電子メタ磁性の一つであるといえよう。