

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 7 日現在

機関番号：12605

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K18211

研究課題名(和文) 遍歴電子強磁性体中の局在磁気モーメントの異常な振る舞いの機構解明

研究課題名(英文) Study on mechanism of anomalous behavior of localized magnetic moments in itinerant electronic ferromagnets

研究代表者

太田 寛人(OHTA, Hiroto)

東京農工大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：60546985

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：遍歴電子強磁性体の中に導入された局在磁気モーメントが通常の2副格子系では見られない振る舞いをするに着目し、機構解明を行った。その結果、局在磁気モーメントは強磁性副格子からの内部磁場と相互作用(結合)しており、これが原因で異常な磁化の温度・磁場依存を示すことが分かった。この相互作用は孤立した局在磁気モーメントと強磁性副格子磁化の結合と見ることが可能であり、局在磁気モーメントの向きにより強磁性副格子磁化の向きを間接的に制御できる可能性を示唆している。層状強磁性体の層間に局在磁気モーメントを挿入した物質で見られる強磁性-反強磁性転移はこの結合が原因と理解できることがわかった。

研究成果の概要(英文)：We found an anomalous behavior of localized magnetic moments in itinerant electronic ferromagnets, and have tried to clarify the mechanism of it. As results, we found that localized magnetic moments couple with internal field from ferromagnetic sublattice, leading to the anomalous temperature and magnetic field dependences of them. Such a coupling can be seen as the coupling of ferromagnetic moments with localized magnetic moments, and this viewpoint indicates a possibility to control ferromagnetic moments through controlling localized magnetic moments which couple with ferromagnetic moments. We found that the ferromagnetic-antiferromagnetic transition observed in layered ferromagnetic compounds can be understood by this mechanism.

研究分野：固体物理

キーワード：金属物性 強相関電子系 強相関エレクトロニクス 磁性

1. 研究開始当初の背景

遍歴電子強磁性体は強磁性を担う電子が電気伝導性も担うため、巨大磁気抵抗(GMR)効果など、スピントロニクスをはじめとする応用研究で中心的な位置を占めている。GMR効果を示す人工多層膜^{①,②}はハードディスクのデータ検知などに利用されている。これを超える GMR 効果を示す物質の開発・探索が行われているが、現時点では人工多層膜にとって変わるまでには至っていない。近年、人工多層膜と同様の層状構造を有する遍歴電子強磁性体が次々に発見されている^{③,④}。強磁性層の厚さが数原子程度と人工多層膜に比べて非常に薄く均一なので、高品質なデバイスとして応用が期待される。しかし、GMR 効果の発現には基底状態の反強磁性化が必要であり、これらの層状強磁性体の反強磁性化法の確立が実用化に向けての最初の課題であった。

強磁性層どうしの層間に局在磁気モーメントを挿入することで反強磁性化が起きる例を幾つか発見されていたが^{⑤,⑥}、局在磁気モーメントが各層の強磁性磁気モーメントの向きを支配するメカニズムは不明であった。また、局在磁気モーメントにより誘起される反強磁性状態では通常の2副格子系では見られない異常な磁化や転移温度の磁場依存などの現象が観測されていた^{⑦,⑧}。この異常現象は学術的に重要であり、これらの解明のためにもより多くの具体例の蓄積が必要であった。探索の結果、遍歴強磁性秩序と局在磁気モーメントの共存する系として $Ln_2Co_{12}P_7$ (Ln :希土類)など物質が重要であることがわかった^{⑨,⑩}。この系では反強磁性基底状態は実現しないが、局在磁気モーメントと強磁性内部磁場の結合が見られた。反強磁性化と何らかの関係があると考えられたが、詳細は不明であった。

2. 研究の目的

我々は、遍歴強磁性体中での局在磁気モーメントの異常な振る舞いを理解し、層状強磁性体において反強磁性基底状態が安定化する条件を明らかにし、それを基に新規機能性材料の創成および既存材料の改良を行い、実用に耐えるデバイスを開発する、ことを見据えている。本研究課題では、第1段階である「局在磁気モーメントの異常な振る舞いの解明」および第2段階である「層状強磁性体において反強磁性基底状態が安定化する条件の解明」を目的として研究を行った。

3. 研究の方法

次の2つの計画を通じ、遍歴強磁性磁気モ

ーメントと局在磁気モーメントの間の相互作用および反強磁性相における異常現象が実現するメカニズム解明を目指した。

(1) 該当する既存の物質に関して多結晶・単結晶試料合成、巨視的・微視的な物性測定から電子状態の解明、物質の電子状態からのメカニズムの解明、の三段階で研究を実行していく。

(2) 遍歴電子強磁性と局在磁気モーメントの関係の普遍性の検証を遍歴電子強磁性体に局在磁気モーメントが導入された物質の合成、巨視的な物性測定による電子相図の作成、の二段階で研究を実行していく。

4. 研究成果

層状遍歴強磁性体 Sr_2ScO_3CoAs の Sc を V に部分置換することで反強磁性基底状態を誘起することができる。温度が上昇すると強磁性状態に相転移するが、この転移温度(T_N)は Sc への V の置換量にはほぼ依存しないことが分かった(図1)。これは V の局在磁気モーメントが強磁性内部磁場と1イオンの結合していることを示している。このことから、どのように強磁性-反強磁性転移を示す $LnCoAsO$ でも Ln^{3+} の 4f 磁気モーメントが CoAs 層の強磁性内部磁場と結合していることを示している。

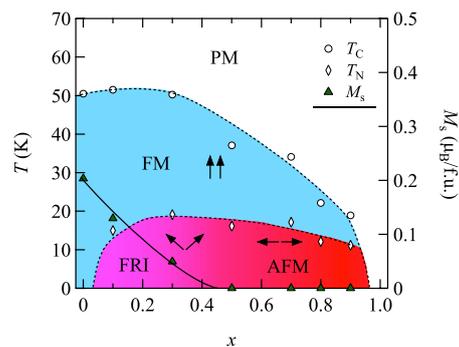


図1 $Sr_2Sc_{1-x}V_xO_3CoAs$ の電子相図。

筒状構造を有する遍歴強磁性体 $Ln_2Co_{12}P_7$ (Ln :希土類)でみられた Ln^{3+} の 4f 電子局在磁気モーメントと Co 副格子強磁性との結合に関して、様々な Ln の場合の磁化測定結果をもとに解析を行った。その結果、 Ln イオン上ではネオジム磁石の母材と同様のメカニズムにより 5d-4f 結合がおきていることが分かって来た。4f 磁気モーメントと強磁性内部磁場との結合の符号が二つの系では逆であるが、 $Ln_2Co_{12}P_7$ では間に P を介していることから、超交換相互作用と同様な間接結合が起きることが原因と考えられる。

反強磁性基底状態が実現する層状化合物

NdCoAsO においても、反強磁性転移温度以上の強磁性状態では $\text{Nd}_2\text{Co}_{12}\text{P}_7$ と同様な自発磁化の減少が観測されている。このことは、層状構造・非層状構造によらず局在磁気モーメントは強磁性内部磁場と結合していることを示しており、また結合のメカニズムは間に As や P が挟まれる場合は共通であることも分かっている。これらの結果から、 LnCoAsO に見られる相転移を伴う反強磁性基底状態は、各強磁性層の内部磁場と個別に結合した局在磁気モーメントが、温度の低下とともにある温度で安定方向に向きを変えることが発現の原因と考えられる。局在磁気モーメントが向きを変える際に結合している強磁性層の自発磁化も強制的に向きを変えられ、全体として最も安定な反強磁性状態が実現すると考えられる。また向きを変える反強磁性転移温度と向き（磁気構造）は強磁性磁気モーメントと局在磁気モーメントの異方性エネルギーの差で決まっていると考えられる。

今回の研究の結果から、層状強磁性体において層間の局在磁気モーメントの強磁性内部磁場との結合およびその異方性が反強磁性化の起源であることが分かっている。この結果は、局在磁気モーメントの向きを制御することで、強磁性層の自発磁化を制御できる可能性を示している。この性質を利用することで、磁場以外の外場による反強磁性-強磁性転移の誘起が期待でき、新しい機能性材料の開発に繋がると考えられる。

また、 $\text{Ln}_2\text{Co}_{12}\text{P}_7$ では遍歴強磁性を担う Co と局在性の強い Co に分かれていると報告されている。局在性の強い Co は P_5 ピラミッドの間隙を占有するが、この Co を Fe や Mn に置き換えることで強磁性転移温度や自発磁化が増大することを発見した。一方で、遍歴強磁性を担う Co は P_4 四面体の間隙を占めるが、こちらの元素置換は一般的な遍歴強磁性体と同様に強磁性を弱める効果があることが分かった。ピラミッドサイトの Co の元素置換と強磁性強化の関係は、本研究で対象とした局在磁気モーメントと強磁性内部磁場の結合と異なる性質を示しており、学術的にも応用の観点からも今後の研究の中で解明が期待される。

<引用文献>

- ① M. N. Baibich 等, "Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices", *Physical Review Letters*, Vol. 61, 1988, p. 2472.
- ② G. Binasch 等, "Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with

antiferromagnetic interlayer exchange", *Physical Review B*, Vol. 39, 1989, p. 4828.

③ H. Yanagi 等, "Itinerant ferromagnetism in the layered crystals LaCoOX ($X = \text{P, As}$)", *Physical Review B*, Vol. 77, 2008, p. 224431.

④ Y. L. Xie 等, "Structure and physical properties of the new layered oxypnictides $\text{Sr}_1\text{Sc}_2\text{O}_6\text{M}_2\text{As}_2$ ($M = \text{Fe and Co}$)", *el-p*, Vol. 86, 2009, p. 57007.

⑤ M. Reehuis and W. Jeitschko, "Structure and Magnetic Properties of the Phosphides CaCo_2P_2 and LnT_2P_2 with ThCr_2Si_2 structure and LnTP with PbFCl structure ($\text{Ln} = \text{lanthanoids}$, $T = \text{Fe, Co, Ni}$)", *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, Vol. 51, 1990, pp. 961-968.

⑥ H. Ohta and K. Yoshimura, "Magnetic properties of LCoAsO ($L = \text{La-Gd}$)", *Physical Review B*, Vol. 80, 2009, p. 184409.

⑦ H. Ohta 等, "Large magnetoresistance effects in LnCoAsO ($\text{Ln} = \text{Nd, Sm}$) with a ferromagnetic-antiferromagnetic transition", *Physical Review B*, Vol. 84, 2011, p. 134411.

⑧ H. Ohta 等, "Magnetic properties of layered compounds LnCoAsO ($\text{Ln} = \text{lanthanoids}$) with itinerant-electron ferromagnetism", *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 344, 2012, p. 012025.

⑨ W. Jeitschko 等, "Phosphides with $\text{Zr}_2\text{Fe}_{12}\text{P}_7$ -Type Structure", *Journal of Solid State Chemistry*, Vol. 25, 1978, pp. 309-313.

⑩ M. Reehuis 等, "Magnetization and neutron diffraction studies of the magnetic order in the compounds $\text{Pr}_2\text{Co}_{12}\text{P}_7$, $\text{Nd}_2\text{Co}_{12}\text{P}_7$, $\text{Ho}_2\text{Co}_{12}\text{P}_7$ and $\text{Lu}_2\text{Co}_{12}\text{P}_7$ ", *Journal of Alloys and Compounds*, Vol. 261, 1997, pp. 1-11.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 6 件)

- ① A. Suzuki, H. Ohta and H. Aruga Katori, "Synthesis and study of electronic state of $\text{Sr}_2\text{CrO}_2\text{Co}_2\text{As}_2$ with CoAs conduction layers", *Journal of Physics: Conference Series*, 査読有り, 採択決定.

② Y. Watanabe, H. Ohta, H. Aruga Katori, A. Miyake and M. Tokunaga, "Anomalous antiferromagnetic state in $Nd_2Co_{12}P_7$ ", Journal of Physics: Conference Series, 査読有り, 採択決定.

③ H. Ohta, S. Ido, S. Hashizume and H. Aruga Katori, "Study of itinerant electronic ferromagnetism in layered compounds Ae_2ScO_3CoPn ($Ae = Sr, Ba, Pn = P, As$)", Journal of Physics: Conference Series, 査読有り, 採択決定.

④ H. Ohta, Y. Watanabe, A. Miyake, M. Tokunaga and H. Aruga Katori, "Anomalous Behavior of Localized Magnetic Moments in Itinerant Ferromagnets $Ln_2Co_{12}P_7$ ($Ln = Y, Pr, Nd, Sm, Gd$ and Dy)", Journal of Japan Society of Powder and Powder metallurgy, 査読有り, Vol. 63, 2016, pp. 652-656.

⑤ Hiroto Ohta Eisuke Akabane and Hiroko Aruga Katori, "Electron doping effect on $AeCo_2As_2$ ($Ae = Ca, Sr$ and Ba)", Physica Procedia, 査読有り, Vol. 75, 2015, pp. 552-556.

[学会発表] (計 22 件)

① 加藤優典, "遍歴電子強磁性体 $Ln_2Co_{12}P_7$ ($Ln = \text{lanthanoid}$) の磁性および $Ln-Co$ 間相互作用の研究", 日本物理学会, 2017年3月18日, 大阪大学豊中キャンパス.

② 鈴木敦, "CoAs 層を有する層状化合物の局所的構造と磁性の関係の研究", 日本物理学会, 2017年3月17日, 大阪大学豊中キャンパス.

③ 加藤優典, " $Y_2Co_{12}P_7$ における Co の選択的部分置換による強磁性の強化", 日本物理学会, 2016年9月13日, 金沢大学角間キャンパス.

④ 鈴木敦, "層状遍歴電子磁性体 $Ae_4Sc_3O_{7.5}Co_2Pn_2$ ($Ae = Sr, Ba, Pn = P, As$) の探索と磁性", 日本物理学会, 2016年9月13日, 金沢大学角間キャンパス.

⑤ 鈴木敦, "CoAs 層を含む新規層状化合物 $Sr_3Sc_2O_5Co_2As_2$ の磁性", 日本物理学会, 2016年3月19日, 東北学院大学泉キャンパス.

⑥ H. Ohta, "Anomalous behavior of localized magnetic moments in itinerant ferromagnets $Ln_2Co_{12}P_7$ ($Ln: \text{Lanthanoid}$)", the 3rd International Conference on Powder Metallurgy in Asia (APMA2015), 2015年11月9日, 京都大学吉田キャンパス.

⑦ H. Ohta, "Study of itinerant electro-

nic ferromagnetism in layered compounds Ae_2ScO_3CoPn ($Ae = Sr, Ba, Pn = P, As$)", International Workshop on Itinerant-Electron Magnetism, September 2015, 2015年9月26日, 京都大学北部キャンパス.

⑧ A. Suzuki, "Synthesis and study of electronic state of $Sr_2CrO_2Co_2As_2$ with CoAs conduction layers", International Workshop on Itinerant-Electron Magnetism, September 2015, 2015年9月26日, 京都大学北部キャンパス.

⑨ Y. Watanabe, "Anomalous antiferromagnetic state in $Nd_2Co_{12}P_7$ ", International Workshop on Itinerant-Electron Magnetism, September 2015, 2015年9月26日, 京都大学北部キャンパス.

⑩ H. Ohta, "Electron doping effect on $AeCo_2As_2$ ($Ae = Ca, Sr$ and Ba)", 20th International Conference on Magnetism (ICM), 2015年7月7日, Barcelona.

[その他]

ホームページ等

<http://web.tuat.ac.jp/~katori/researchoutcome.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

太田 寛人 (OHTA, Hiroto)

東京農工大学・大学院工学研究院・助教
研究者番号: 60546985

(4) 研究協力者

香取 浩子 (ARUGA KATORI, Hiroko)

東京農工大学・大学院工学研究院・教授

渡辺 悠介 (WATANABE, Yusuke)

鈴木 敦 (SUZUKI, Atsushi)

加藤 優典 (KATO, Yusuke)