

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14529

研究課題名（和文）磁気回転効果とNMRを用いた磁性体の角運動量物性の研究

研究課題名（英文）The study of angular momentum in ferrimagnet by using Barnett effect and NMR

研究代表者

今井 正樹 (Imai, Masaki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 先端基礎研究センター・研究職

研究者番号：10796329

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：希土類鉄ガーネット等の一部のフェリ磁性体では反強磁性的に結合した異なる磁性イオンにおいて、それぞれの秩序変数の温度変化が異なることから磁化が全体で消失する磁気補償温度や角運動量が消失する角運動量補償温度を示す。角運動量と直接結合する力学回転を用いれば、角運動量補償温度が求められる。当研究ではバーネット効果を利用し希土類鉄ガーネットの角運動量補償温度を決定した。また、NMR測定において信号強度が角運動量補償温度で増強される現象を確認した。これは角運動量補償での磁壁移動度の増大によるものと解釈される。NMR測定から角運動量補償温度が推定可能であることを示す結果である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピントロニクス的重要な材料である希土類鉄ガーネット等のフェリ磁性体において、磁化の運動が早くなる角運動量補償温度近傍では磁気デバイスへの様々な応用が期待される。今回我々は、バーネット効果測定装置の感度および温度変化測定装置の改良を行い、さまざまなフェリ磁性体での角運動量補償の観測を可能にした。また、NMR測定の信号強度から角運動量補償温度を推定する手法を使えば、原理的により微小な試料かつ単結晶、粉末など試料形状を問わず測定可能であり、角運動量補償を示すフェリ磁性体の探索がより容易になる。

研究成果の概要（英文）：Some ferrimagnetic materials, such as rare earth iron garnets, exhibit magnetic and angular momentum compensation temperatures due to the temperature dependence of the magnetization and angular momentum of antiferromagnetically coupled magnetic ions. The angular momentum compensation temperature can be obtained by using the mechanical rotation directly coupled to the angular momentum. In this study, the angular momentum compensation temperature of rare earth iron garnets was determined using the Barnett effect. In NMR measurements, we confirmed that the signal intensity is enhanced at the angular momentum compensation temperature. This is interpreted to be due to the increase in the magnetic wall mobility in angular momentum compensation, indicating that the angular momentum compensation temperature can be estimated from the NMR measurements.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：フェリ磁性 角運動量補償 磁気回転効果 バーネット効果 NMR

1. 研究開始当初の背景

複数の磁性イオンの磁気モーメントが反強磁性的に結合しているフェリ磁性体では、副格子磁化の大きさが異なるため、全体として磁気モーメントを示す。N型のフェリ磁性体では副格子磁化の温度変化が異なり、副格子磁化の大きさが釣り合い全体として磁化が消失する磁気補償温度が存在する。この磁気補償温度は磁化測定で容易に測定可能であった。一方で、副格子のg因子がそれぞれ異なる場合、この磁気補償温度とは異なる温度にて副格子の角運動量が釣り合う場合があり、これを角運動量補償温度と呼ぶ。磁性体中の正味の角運動量が消失する角運動量補償温度では磁気応答や磁壁移動度が高速化されることから、磁気デバイスの性能向上に向けた研究対象として近年注目されている。角運動量補償温度は1950年代から理論的に提唱され研究が行われているが、角運動量補償をもつ物質例が少ないことやその存在を確かめる容易な測定手法がなかったため未解明の点も多い。当該研究グループではバーネット効果(磁性体を回転させることで内部の角運動量が回転軸方向にそろう)を利用した角運動量測定装置を開発した[1]。本装置を使用することで角運動量補償温度を決定することが可能となった。

2. 研究の目的

フェリ磁性体の角運動量補償温度での磁気ダイナミクスを統一的に理解するために、絶縁体や金属の種々のフェリ磁性体において角運動量補償温度の決定を行う。力学回転と磁性体中の角運動量の相互作用によって引き起こされるバーネット効果を用いて、無磁場下における角運動量補償温度を決定する。また、低エネルギーの磁気ダイナミクスが測定できるNMRを用いて、フェリ磁性体の角運動量補償近傍での磁気ダイナミクスの解明を目的とした。

3. 研究の方法

(1) 角運動量補償物質の探索

角運動量補償温度を効率よく探索するために長時間自動測定化と測定感度向上を行う。研究実施以前に構築したバーネット効果測定装置では120-300Kの温度範囲で角運動量補償温度を探ることが可能であった。ただし、試料回転用のエアモーターの吹き付けガスに乾燥窒素ポンプを使用しており、窒素ポンプの消費が1-2h毎に1本であり、ポンプ更新のために連続測定は困難であった。また、窒素ポンプ中の僅かな水分が熱交換用の銅管内で閉塞を起こし測定中に試料回転が停止してしまう問題も抱えていた。本研究ではコンプレッサーで窒素を回収、循環させるシステムを新たに組み、また自作の窒素乾燥装置を導入することで長時間の連続運転を可能にする。バーネット効果の測定は回転中している試料からの漏れ磁場を近傍に取り付けられた磁気センサーで読み取っている。研究実施以前の装置では取り付けられた磁気センサーの感度が数100pTであるため、測定には6*10mm程度の大きさの試料が必要であり、バルクの磁性体試料でしか測定できなかった。数十fT感度の光ポンピング磁力計を利用することで、感度を向上させ、より少量の試料、および磁化の小さな試料での測定を目指した。測定対象の希土類鉄ガーネット試料は固相反応で作成した。金属系の材料としてバルクの Mn_4N 及び部分置換試料を測定対象とした。

(2) NMRによる角運動量補償温度での磁気ダイナミクスの評価

古くから強磁性(フェリ磁性)体のNMRではラジオ波によって磁壁が揺さぶられ、核スピンの歳差運動に追従して磁壁が動くことで信号が増強されることが知られていた。この増強効果はNMR信号を 10^4 - 10^6 倍にするため体積的には僅かな磁壁の信号を選択的に観測することが可能である。これまで、磁壁移動による増強効果では磁壁の移動度の変化による影響が考えられてこなかった。信号増強効果は磁壁の厚みや断面積など試料形状の影響を受ける。新たに単結晶や薄膜試料の測定を行い、増強効果を比較することでNMR信号強度と磁壁移動度の関係を定式化する。NMRでは信号の縦緩和 T_1 や横緩和 T_2 を通じて磁気ゆらぎの評価を行うことができる。 T_1 は核スピン系から電子スピン系にNMR周波数程度のエネルギー移行を伴う緩和を検知する。また、 T_2 は核スピン間の電子スピンのマグノンを紹介した間接相互作用による核スピンの位相の乱れを検知する。これらの情報から角運動量補償でのマグノンの励起エネルギーや寿命などを解明する。角運動量補償での磁気ゆらぎ、磁気緩和を考察する。

4. 研究成果

温度可変型バーネット効果測定装置に窒素回収用のエアバッグ及びコンプレッサーを導入することでエアモーター用の窒素ガスを循環型にした。循環に伴い混入する水分はモレキュラーシーブスを利用した自作の乾燥機を通すことで除去し、また熱交換器のパイプ径を太くすることで長期間安定測定が可能になった。本装置に関する論文がReview of Scientific Instrumentsに掲載された。

室温用のバーネット効果測定装置に感度が15fT/Hzの光ポンピング磁力計を導入した。周囲の磁場変動や温度変化を適切にコントロールすることで、漏れ磁場の測定感度が50fTまで向上

した。今後は光ポンピング磁力計を用いた温度可変測定の実現を目指していきたい。

希土類ガーネット試料(RIG: R= 希土類)や窒化マンガン(Mn₄N)などのフェリ磁性体試料のパーネット効果測定を行い、HoIG や ErIG の角運動量補償温度を決定した。ErIG は磁気補償温度が83KとHoIGの135Kより低いため、角運動量補償温度も低温にあることが予想されていた。低温での試料回転の安定性および温度安定性が向上したことによりErIGの角運動量補償温度が測定可能となった。

角運動量補償近傍における磁気ダイナミクスの解明のため、パーネット効果にて角運動量補償温度を決定したHoIGやErIGに対してdサイトの⁵⁷Fe信号のNMR測定を行った。スペクトル、 T_1 および T_2 の温度依存性を測定した。HoIGでは角運動量補償温度でスペクトル強度が最大となった。これは角運動量補償温度での磁壁移動度の向上で説明される。磁壁の移動に伴う磁化変化の分だけNMR信号が増強される。従来から知られている磁壁の振動によるNMR信号強度の増加のモデル[2]では、入力交流磁場によって磁壁が移動する際に粒子内の反磁場との平衡位置で決まる位置まで磁壁が移動すると考えられていた。本研究で使用したHoIGでは磁壁の移動速度が比較的遅く、平衡位置で決まる移動距離まで移動出来ないと考えられる。その場合、移動距離は磁壁の移動度で決まっており、角運動量補償温度付近で磁壁の移動度が大きくなると磁壁の移動距離も大きくなり、信号強度が大きくなる。一方で、 $1/T_1$ および $1/T_2$ の温度変化において角運動量補償温度での明確な異常は見られなかった。今回FeサイトのNMR測定しか行えなかったが、今後、希土類サイトでも同様に $1/T_1$ および $1/T_2$ の温度変化を調べて異常がないか検証する必要があると考えている。

ErIGでは $1/T_2$ の温度変化にピークが見られたが磁気補償温度や角運動量補償温度とは異なる温度であった。このピーク温度は磁場を加えるとシフトすることが明らかになった。ErIGの結晶構造や磁気構造の変化に起因しているものと推測される。

<参考文献>

1. M. Imai, Y. Ogata, H. Chudo, M. Ono, K. Harii, M. Matsuo, Y. Ohnuma, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Appl. Phys. Lett.* **113**, 052402 (2018).
2. A. M. Portis and A. C. Gossard, *J. Appl. Phys.* **31**, S205 (1960).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Maki Umeda, Chudo Hiroyuki, Imai Masaki, Nana Sato, Saitoh Eiji	4. 巻 94
2. 論文標題 Temperature-variable apparatus for measuring Barnett field	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0142318	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Chudo Hiroyuki, Imai Masaki, Matsuo Mamoru, Maekawa Sadamichi, Saitoh Eiji	4. 巻 90
2. 論文標題 Observation of the Angular Momentum Compensation by Barnett Effect and NMR	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 81003
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/jpsj.90.081003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 M. Imai, H. Chudo, S. Maekawa, M. Matsuo, E. Saitoh
2. 発表標題 Observation of the Angular Momentum Compensation by Barnett Effect and NMR
3. 学会等名 The 67th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials(MMM 2022)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022年～2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------