

カイラル充填 β -Mn 構造を有する強磁性スキルミオンにおける D/J 制御

D/J Control in the Chiral Filled β -Mn-type Ferromagnetic Skyrmions

強 博文、富樫 正孝、桑原 真人、伊藤 孝寛、浅野 秀文

名大院工

B.W. Qiang, N. Togashi, M. Kuwahara, T. Ito and H. Asano
(Graduate School of Engineering, Nagoya Univ.)

【はじめに】 充填 β -Mn 構造カイラル磁性体 $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ (FPMN) における重金属 Pd ドープにより、Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用 (DMI) が増強され、磁気スキルミオンが生成されることが報告された[1]。FPMN において Lorentz-TEM 顕微鏡法とトポロジカルホール効果 (THE) からスキルミオンの生成が検証され、Pd ドープの少ない領域 ($x < 0.5$) において高い T_C (600 K) を有する微小サイズスキルミオンを実現した。本研究は XMCD 法を用いて FPMN スキルミオン生成磁場領域における Fe 磁気モーメントの変化を解析し、スキルミオン生成の鍵となる DMI と強磁性交換相互作用のバランス制御の観点から $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ におけるスキルミオン生成のメカニズムを解析した。

【実験及び結果】 エピタキシャル薄膜 $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ はマグネトロンスパッタ法により c -サファイヤ基板上に成長させた。FPMN ($x = 0.32$) 薄膜サンプルにおける Fe L_3 XMCD スペクトルの薄膜面直磁場依存性を Fig. 1 に示す。青いラインで示しているのは強磁性状態のスペクトルであり、 -0.5 T から 1 T へと磁場を変化させると、 0.15 T から 0.5 T の磁場領域においては Fe L_3 端の立ち上がりが観測される励起エネルギーが高エネルギー側にシフトすることを見出した。シフトが観測される磁場領域は、Lorentz-TEM 法により磁気スキルミオンが観察される領域に対応することから、スキルミオン生成に伴う Fe の磁気状態の変化によるシフトであると考えている。Fig. 2 に T_C 及びスキルミオンサイズ λ から算出した J 及び D の Pd 置換量依存性をこれまでに報告されているスキルミオンにおけるもの[2-5]と比較して示す。本研究で得られた FPMN ($x = 0.32$) における最大値 $D = 25.4 \times 10^{-4} \text{ J/m}^2$ は、これまでにカイラル磁性体で報告されている D が全て $5 \times 10^{-4} \text{ J/m}^2$ 以下であるのに対して、10倍程度大きく見積もられていることが分かる。この結果は、カイラル強磁性体において重金属 Pd ドープによる D/J 制御により、 J と D の最適化を実現することにより、高い動作温度 ($T_C = 600$ K) と微小サイズスキルミオン ($\lambda \sim 60$ nm) が両立されることを示した結果であると考えている。講演では、 $\text{Fe}_{2-x}\text{Pd}_x\text{Mo}_3\text{N}$ における D/J 制御のメカニズムについて詳細に議論する予定である。

[1] Bowen Qiang, *et al.* Appl. Phys. Lett., **117**, 142401 (2020). [2] L. Kautzsch, *et al.*, Phys. Rev. B **4**, 024412 (2020). [3] T. Nakajima, *et al.*, Sci. Adv. **3**, e1602562 (2017). [4] S. Seki, *et al.*, Phys. Rev. B **85**, 220406(R) (2012). [5] Y. Tokunaga, *et al.*, Nat. Communi. **6**, 7638 (2015).

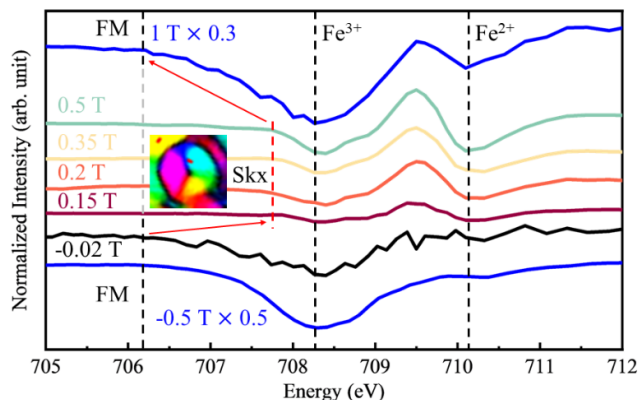


Figure 1 A series of Fe L_3 XMCD spectra with magnetic field applied perpendicular to the film plane from -0.5 T to 1 T. The black and red dashed lines show the peak position and edge shift.

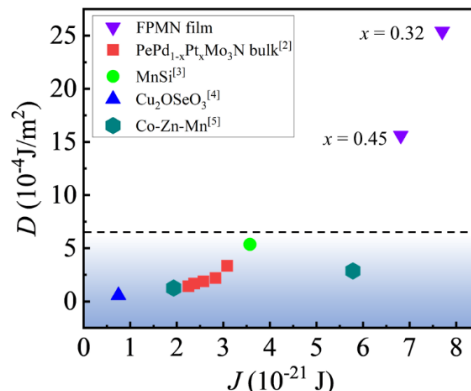


Figure 2 Comparison of magnetic exchange interactions (J) and Dzyaloshinskii-Moriya interactions (D) of skyrmion between host chiral magnets.

Mn(Nb_{1-x}Ta_x)₂O₆ 反強磁性体における スピンプラストラーションの混晶効果

後藤颯樹¹, 北條大輝¹, 小林悟¹, 寺田典樹²
(¹岩手大, ²物材機構)

Mixed effects on spin frustration in Mn(Nb_{1-x}Ta_x)₂O₆ antiferromagnets

S. Goto¹, H. Hojo¹, S. Kobayashi¹, N. Terada²

(¹Iwate Univ., ²NIMS)

はじめに

Mn(Nb_{1-x}Ta_x)₂O₆はコロンバイト構造を持つ化合物である。Mn スピンが c 軸に沿った反強磁性 1 次元鎖を形成し、これらの鎖が a-b 面内に二等辺三角格子状に配列し、幾何学的フラストラーションを生み出す。MnNb₂O₆ と MnTa₂O₆ は同一の結晶構造を持つにも関わらず、異なる磁気構造[1]や、磁気相図と交換相互作用定数の著しい変化が報告されている [2,3]。これら観測結果は Nb と Ta のイオン半径の違いによる二等辺三角格子内のスピンプラストラーション状態の変化に起因すると考えられるが、その様相の系統的变化は明らかになっていない。本研究では、Mn(Nb_{1-x}Ta_x)₂O₆ において x を系統的に変化させたときの磁気特性変化を調査したので報告する。

実験方法

MnO₂, Nb₂O₅, Ta₂O₅ を混合・ペレット化し、1200°C24h で焼結した。粉碎後、再度、混合・ペレット化し、1250°C36h で焼成し Mn(Nb_{1-x}Ta_x)₂O₆ を得た。本研究では、x = 0, 0.25, 0.5, 0.75, 1 の 5 試料を作製した。粉末 X 線回折(XRD)により結晶相同定、格子定数を決定した。SQUID 磁力計(MPMS)を用いて T = 2~350 K, H = ±50 kOe の範囲で磁化測定、物理特性測定システム(PPMS)を用いて零磁場中、T = 2~300 K の範囲で比熱測定を行った。

実験結果

XRD により焼結試料が単相であること、x の増加に伴い格子定数が増加することを確認した。磁化率の温度依存性 (Fig. 1) から、x の増加に伴い磁化率が低下し、ネール温度 T_N が単調増加 (Fig. 1 挿入図) することが分かった。また、T_N 以下の磁化曲線で 20 kOe 近傍で磁化の傾きの変化が観測された (Fig. 2 挿入図)。Fig. 2 に示す微分磁化率の磁場依存性から、x = 0, 1 ではピークが一つであるのに対し、x = 0.25, 0.5, 0.75 では 2 つのピークが観測された。x の増加とともに、低磁場側ピークは減少する一方、高磁場側ピークは増加すること、ピーク間の磁場範囲が拡大することが分かった。これは混晶系において、新たな磁場誘起スピンプラストラーション相の発現を示唆している。

参考文献

- 1) W. Scharf, H. Weitzel, *Solid State Commun*, **18**, 249-252 (1976)
- 2) R. Maruthi et, al. *J. Phys.: Condens. Matter* **33**, 345801 (2021)
- 3) R. Maruthi et, al. *J. Phys.: Condens. Matter* **34**, 155801 (2022)

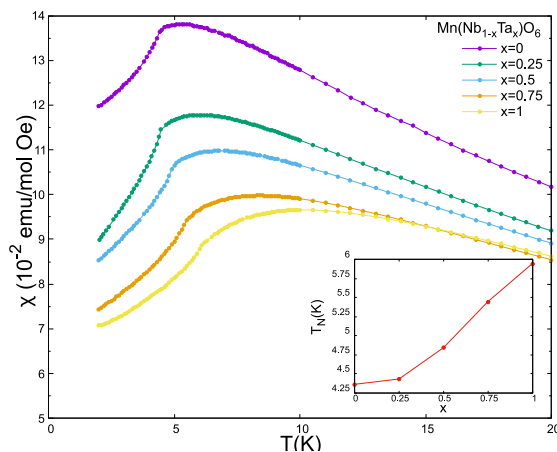


Fig.1 Temperature dependence of magnetic susceptibility (χ). Inset shows T_N vs x , calculated from χ vs T .

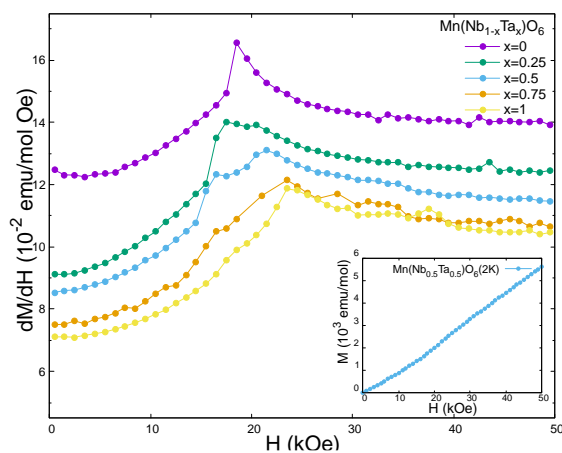


Fig.2 dM/dH vs H determined from $M-H$ curves. Inset shows $M-H$ curve at 2 K for $x = 0.5$.

マグネシウムフェライト薄膜における磁気特性の結晶化温度依存性

安達信泰・近藤達也 (名古屋工業大学)

Crystalized Temperature Dependence of Magnetic Properties for Mg Ferrite Films

N. Adachi, T. Kondo (Nagoya Institute of Technology)

1. 緒言

我々は、有機金属分解(MOD)法を用いて、反強磁性体 ZnFe_2O_4 を部分的に逆スピネル構造にしてフェリ磁性化し、500 nm 付近の短波長領域で、大きな磁気光学効果を示すことを報告した[1]。しかしながら、キュリー点が $T_c=190$ K 程度と低温でのみ強磁性を示し、スパッタ法等による研究報告[2]にあるような室温強磁性を示すまでにはいたっていない。本研究では、室温強磁性を示すことで知られる MgFe_2O_4 に関して MOD 法による合成を試み、合成条件による磁気特性の違いについて評価を行った。この物質系も不完全な逆スピネル構造によりフェリ磁性が生じることから、室温強磁性の知見を得られると考えた。

2. 実験方法

薄膜は、有機金属溶液(高純度化学)をシリカガラス基板上にスピコーティングし作製した。溶液滴下後は、 100°C で乾燥し、 300°C で仮熱処理を行った。必要な膜厚までこの工程を繰り返した後、熱処理結晶化させた。焼成温度は焼成温度を 500°C から 900°C 、焼成時間は2時間として行った。作製した試料に対し、XRD(RIGAKU: MiniFlex)による結晶の評価、FE-SEM(JEOL:JES7000F)による微構造観察、SQUID(Quantum Design: MPMS-7 & X7)による磁化測定、強磁性共鳴(FMR)の測定を行った。

3. 結果と考察

焼成温度 500°C 以上でスピネル構造に由来する XRD 回折ピークが得られ、 900°C で鋭い回折ピークが観測された。飽和磁化 M_s と保磁力 H_c は、焼成条件に強く依存する。Fig.1 に示すように 4K の温度において、 500°C 付近の焼成温度で作製した膜では、 M_s が小さいものの H_c が 2 kOe を超える大きな値を示した。逆に 900°C 付近の焼成温度で作製した膜では、 M_s が 40 emu/g と増大したが、 H_c は 200 Oe と減少した。また、 M_s が大きくなるにつれて、FMR の共鳴磁界は、常磁性共鳴の共鳴磁界付近から低磁界側にシフトし、異方性磁界の増大が認められた。8 面体配位の B サイトにある Fe^{3+} のみの存在では、反強磁性を示すはずだが、 ZnFe_2O_4 と同様に一部が 4 面体配位の A サイト位置することにより強磁性成分が現れ、焼成温度が高いほど A サイトの占める割合が大きくなると考えられる。また、zero-field cooling と field-cooling の磁化の温度依存性を測定すると、低温側で焼結した試料に関して、 150 K 以下で異なる挙動が観測され、何らかの磁気転移が生じていることが示唆された。

謝辞：本研究の一部は文部科学省ナノテクノロジープラットホーム事業<分子・物質合成>[課題番号] JPMXP1222MS1057 の支援により自然科学研究機構 分子化学研究所で実施された。

参考文献

[1]N.Adachi et.al. 02PC1 日本磁気学会第 45 回学術講演会予稿集

[2] K. Tanaka et.al. J. Phys. Condens. Matter. 15L469 (2003)

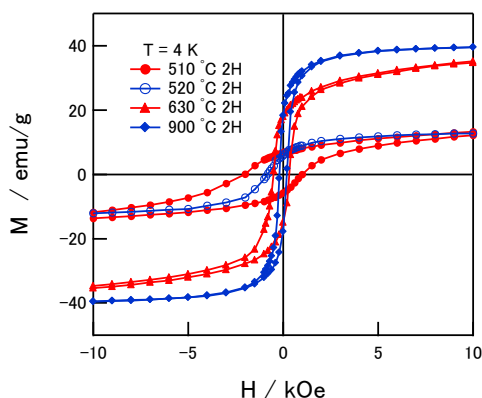


Fig.1 Magnetization curves of MgFe_2O_4 annealed at different temperatures.

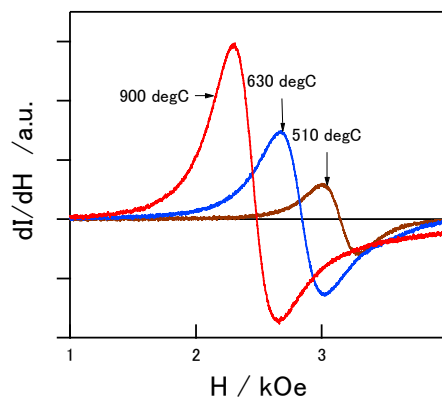


Fig. 2 FMR spectra of MgFe_2O_4 annealed at different temperatures.

桂皮酸誘導体有機層を含む層状金属水酸化物の磁性

本多善太郎、安田有智、木田孝則*、萩原政幸*
(埼玉大院理工、*阪大強磁場)

Magnetic properties of layered metal hydroxides incorporating cinnamate derivative organic layers

Z. Honda, A. Yasuta, T. Kida*, and M. Hagiwara*
(Saitama Univ. *AHMF Osaka Univ.)

はじめに

層状金属水酸化物の層間に有機層が貫入した構造の有機無機層状物質は有機化合物と金属の多様な組み合わせが可能であり、遷移金属上に局在した磁気モーメントと有機分子上の電気双極子による磁性、誘電性の発現が期待される。特に有機層が桂皮酸(CA)の化合物の場合 (Fig. 1)、無機層が水酸化銅の場合強磁性が、水酸化コバルトの場合、巨大保磁力を伴うフェリ磁性を示すことが明らかにされており興味もたれる。そこで我々は桂皮酸層状水酸化物の層間距離と磁気特性との関連を明らかにすることを目的に、有機層を各種桂皮酸誘導体(X-CA)で置換した一連の化合物 TM(X-CA)(OH), TM = Co, Cu 合成し、その磁性を調べた。

実験方法

金属源に硝酸コバルト及び硝酸銅、水酸化剤に水酸化ナトリウム、有機層原料に各種桂皮酸誘導体 (X = CH₃, Cl, OH 等) を用い、それらを所定の比で混合した後テフロン容器に密閉し、100 °Cから 130 °Cで加熱することにより各種層状物質を合成した。熱重量分析により化学式を同定し、粉末 X 線回折法により層間距離を調査した。また、磁気測定には SQUID 磁束計 (Quantum Design 社 MPMS-XL) を用いた。

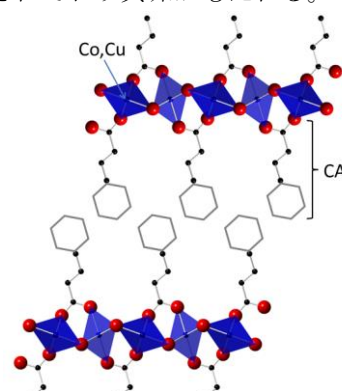


Fig. 1. Sheet structure of the Co(CA)(OH) .

実験結果

各種層状物質の粉末 X 線回折パターンには層状構造を示唆する高次反射が見られ、回折角から無機層間隔を算出したところ、最短 15.7 Å (有機層 : スチリル酢酸)、最長 22.5 Å (有機層 : 4-トリフルオロメチル桂皮酸) と広く分布していることが分かった。水酸化物層間には桂皮酸分子 2 層で構成された有機層が挟まれており、その間隔は各種桂皮酸誘導体の分子長を反映しているものと思われる。一連の層状水酸化銅はいずれも強磁性を示し、層間距離のちがいに問わず、キュリー温度は 15 K 程度であった (Fig. 2)。また、キュリー温度以下の磁気モーメントの温度依存性には 3 次元磁性体の特徴 ($T^{3/2}$ 則及び臨界指数 $\beta = 0.347$) がみられ、水酸化物間の弱い磁気相互作用が磁気秩序形成に寄与することを示唆するものであった。一方、一連の層状水酸化コバルトはキュリー温度以下で自発磁化を生じたが (Fig. 3)、磁化率を解析したところ、いずれもワイス温度は負であった。また、銅化合物同様、層間距離のちがいにも関わらずキュリー温度は狭い温度範囲 (44.0 K から 57.0K) に分布していた。

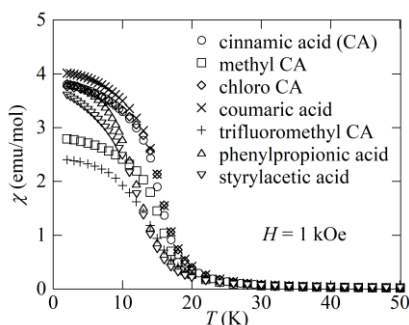


Fig. 2. Magnetic susceptibilities vs. temperature curves of the Cu(X-CA)(OH).

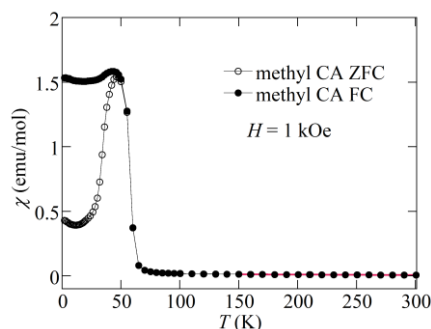


Fig. 3. Magnetic susceptibilities vs. temperature curves of the Co(CH₃-CA)(OH).