

La-Co 置換系 M 型 Sr フェライトの  $^{59}\text{Co}$  核 NMR

酒井宏典, 服部泰佑, 徳永陽, 神戸振作, 下田愛子\*, 和氣剛\*, 田畑吉計\*, 中村裕\*

(原子力機構, \*京大)

 $^{59}\text{Co}$  NMR study in La-Co substituted M-type Sr Ferrite

H. Sakai, T. Hattori, Y. Tokunaga, S. Kambe, A. Shimoda, T. Waki, Y. Tabata, and H. Nakamura

(JAEA, \*Kyoto Univ.)

## 1 はじめに

M 型フェライト  $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$  は、六方晶系マグネトプランバイト型 (M 型) 結晶構造を有し、Sr の一部を La で、Fe の一部を Co で同時に置換すると磁気異方性が大きく向上し、飽和磁化も大きくなることを見いだされ、磁気応用上、有用な材料となった。しかしながら、この共置換系において、磁気異方性が向上する理由についてはよく分かっていない。M 型フェライトには、5 つの結晶学的に異なる Fe サイトが存在し、Co が Fe のどのサイトと置換しているのか、価数はどうなっているのか、中性子散乱<sup>1)</sup>、Mössbauer 効果<sup>2-4)</sup>、核磁気共鳴 (NMR)<sup>5)</sup> などの微視的磁気プローブ毎に、見解が異なっているのが現状である。本研究では、 $^{57}\text{Fe}$  核 NMR 及び  $^{59}\text{Co}$  核 NMR を行い、他の微視的実験結果や第 1 原理計算結果などを相補的に考慮しながら、整合性のある解を目指している。本講演では、主に  $^{59}\text{Co}$  核 NMR の実験結果について発表する。

## 2 結果および考察

$\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$  及び、La-Co 共置換系  $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{Fe}_{12-x}\text{Co}_x\text{O}_{19}$  の粉末試料、フラックス法で育成された単結晶を用いて、ゼロ磁場 NMR 実験を行った。 $^{57}\text{Fe}$  核は、自然存在比 2.2% で核スピン  $I = 1/2$  をもち、強磁性体中の各 Fe サイトにおける内部磁場に呼応して、外部磁場ゼロで NMR を行うことが出来る。核磁気回転比が  $\gamma_n = 1.4 \text{ MHz/T}$  と低いため、NMR 敏感核ではないが、強磁性体では巨視的磁気モーメントが高周波に対して大きく応答し NMR 強度が増強する効果があり、実験可能となる。一方で、 $^{59}\text{Co}$  核は自然存在比 100% で核スピン  $I = 7/2$  をもち、NMR 感度が高いため、Co 置換量が少なくても充分観測可能である。Fig. 1 に、温度 4 K で測定した粉末試料  $x = 0.3$  の  $\text{Sr}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{Fe}_{11.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{19}$  における、ゼロ磁場  $^{59}\text{Co}$  核 NMR スペクトルを示した。低周波側 50-100 MHz と高周波側 300-400 MHz に  $^{59}\text{Co}$  核 NMR 信号を観測した。スペクトル強度は、低周波側の方が強い。従来、 $\text{La}^{3+}$  と電荷補償の結果、Co イオンは 2 価となっていると考えられており、 $^{59}\text{Co}$  核 NMR が低周波域と高周波域で同時に観測されていることは、(i) 共置換試料で  $\text{Co}^{2+}$  の低スピン状態 ( $S = 1/2$ ) と高スピン状態 ( $S = 3/2$ ) とが共存、していることを示唆しているように思える。一方で、電荷状態に関して確定的な情報がないことから、(ii) 2 価  $\text{Co}^{2+}$  (高スピン  $S = 3/2$ ) と 3 価  $\text{Co}^{3+}$  (低スピン  $S = 0$ ) との共存、というシナリオでの解釈も可能となる。現在、妥当な解釈を探るため、各 Co イオン状態における超微細磁場の大きさの検討や、他の微視的実験手段における解釈妥当性、第一原理計算による Co イオン状態安定性などを検討している。

## References

- 1) Y. Kobayashi, E. Oda, T. Nishiuchi and T. Nakagawa, *J. Cer. Soc. Jpn.* **119**, 285 (2011).
- 2) G. Wiesinger, M. Müller, R. Grössinger, M. Pieper, A. Morel, F. Kools, P. Tenaud and J. M. Le Breton and J. Kreisel, *physica status solidi (a)* **189**, 499 (2002).
- 3) A. Morel, J. M. Le Breton, J. Kreisel, G. Wiesinger, F. Kools and P. Tenaud, *J. Magn. Mater.* **242-245**, 1405 (2002).
- 4) J. M. Le Breton, J. Teillet, G. Wiesinger, A. Morel, F. Kools and P. Tenaud, *IEEE Transactions on Magnetics* **38**, 2952 (2002).
- 5) M.W. Pieper, F. Kools and A. Morel, *Phys. Rev. B* **65**, 184402 (2002).

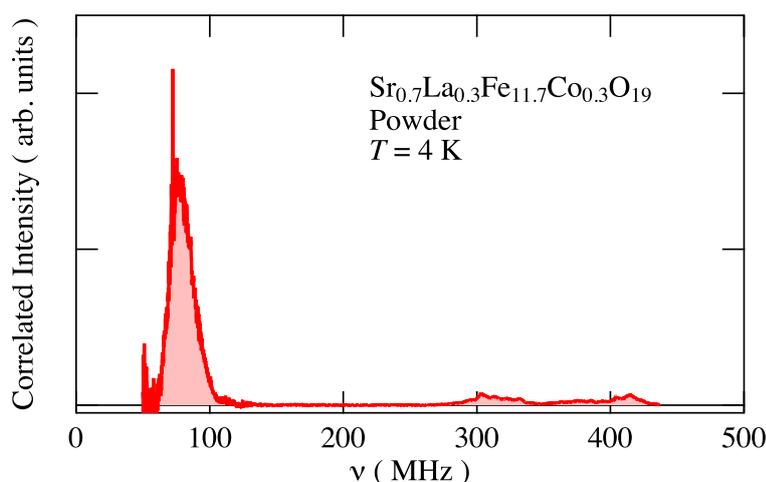


Fig. 1 温度 4 K で測定した  $\text{Sr}_{0.7}\text{La}_{0.3}\text{Fe}_{11.7}\text{Co}_{0.3}\text{O}_{19}$  の粉末試料におけるゼロ磁場  $^{59}\text{Co}$  核 NMR スペクトル。