

Title	遍歴反強磁性体 BaMn2Pn2 (Pn = As, Sb, Bi)の異常 な巨大磁気抵抗効果
Author(s)	木田,孝則;萩原,政幸
Citation	大阪大学低温センターだより. 2021, 171, p. 9-12
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/81810
rights	
Note	

# Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

# 遍歴反強磁性体 $BaMn_2Pn_2$ (Pn = As, Sb, Bi)の 異常な巨大磁気抵抗効果

理学研究科附属先端強磁場科学研究センター木田孝則\*,萩原政幸(\*内線:6687)

#### 1. はじめに

重い電子系化合物のCeCu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>や鉄ニクタイド超伝導体 の母物質であるBaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>に代表されるように,ThCr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub> (122)型の正方晶系の結晶構造をもつ物質はその磁性や 輸送特性において興味深い物性を示すことが多いことか ら広く研究されている。本稿で取り上げるMnニクタイド BaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub> (Pn = As, Sb, Bi) もその一つであり,図1に示 すようにMn<sup>2+</sup> (S = 5/2)サイトの磁気モーメントがチェッ カーボード型に配列した,いわゆるG型の反強磁性秩序(ネ ール温度はPn = As, Sb, BiでそれぞれT<sub>N</sub> = 625,443,400 K)を示す[1-3]。従って,BaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>では空間反転対称性 (Space Inversion Symmetry : SI)と時間反転対称性 (Time Reversal Symmetry : TR)が同時に破れている。近年の物



図1. BaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>(Pn = As, Sb, Bi)の結晶構造 と磁気構造.

性物理学において,空間反転(パリティ)対称性と時間反転対称性を結合させたPT(=SI×TR)対称性および広義の意味での多極子秩序による物質の統一的理解が試みられている[4]が,その観点からするとBaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>はPT対称性が保持されており,磁気モーメントがz方向を向いていることから,磁気十六極子が主要成分である「奇パリティ磁気多極子物質」に分類される[5]。このような物質群では,電流を流すことによって弾性歪みが生じる磁気圧電効果[6]などの創発電磁応答や非相反応答[7]が期待され,盛んに研究がなされている。本稿では,奇パリティ磁気多極子秩序をもつBaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>で観測された特異な磁気輸送特性について紹介する。

### 2. 実験方法

BaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>の単結晶試料は, Pn = Asでは MnAsを, Pn = Sb, Biでは過剰なニクトゲン原材料を 用いた自己フラックス法により合成された[8-10]。構造解析と化学分析はそれぞれX線回折(XRD) とエネルギー分散型X線分析(EDX)で行い,ほぼ化学量論比組成の単結晶試料であることを確認 した。電気抵抗測定は,従来のDC/AC四端子法およびDC二端子法により $T = 1.4 \sim 300$  Kの温度 範囲で行った。磁場の発生には,東北大学金属材料研究所の超伝導マグネット(最大磁場:18 T) と我々の所有する非破壊型パルスマグネット(最大磁場:55 T,パルス幅:約35 msec)を用いた。 磁気抵抗の角度依存性測定は,9 Tまでの定常磁場下ではPPMS(カンタムデザイン社製)の試料回 転オプションを使用し,パルス強磁場下では最大 磁場40 Tのワイドボアパルスマグネット(パル ス幅:約40 msec)とPEEK 樹脂製の差動ギア式 二軸回転機構[11]を使用して行った。

#### 3. 結果と考察

図2(a)にBaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>の電気抵抗率の温度依存性 を示す。いずれの試料も室温では金属的な伝導 を示すが、Tminで金属-絶縁体(MI)転移が生じ、 さらに低温のT\*で本物質系の多数キャリアであ る正孔の移動度の減少に起因すると考えられる 別の異常も観測される。本稿では示さないが、 T<sub>min</sub>近傍で比熱や磁化率に目立った変化はなく,  $T^* < T < T_N$ の温度領域で正孔のキャリア密度が 一定であることを考慮すると、このMI転移はキ ャリアの散乱機構の温度依存性が重要であり, これらの物質の電子状態が温度低下とともに遍 歴的から局在的へと移り変わっていることが示 唆される。図2(b)にT = 4.2 K, j || H || [100]の 磁気抵抗の結果を示す。類似物質のBaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>が マルチキャリア系ディラックバンドを反映した線 形の正の磁気抵抗を示すこと[12]と大きく異なり, BaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>では磁場の上昇とともに正から負へと 符号反転する巨大な磁気抵抗が共通して観測され た。驚くべきことに、Pn = As, Biの試料では強 磁場で磁気抵抗比  $(\Delta \rho / \rho_0 = \rho (H) / \rho (0) - 1)$ が-98%に達している。この負の磁気抵抗は、



図2. BaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>(Pn = As, Sb, Bi)の(a)電気抵抗率と (b)強磁場磁気抵抗[8].

磁場印加による低温絶縁体相から高温金属相へのリエントラントな絶縁体-金属転移現象と捉える こもできる。磁気抵抗の大きさがニクトゲン(*Pn*)の種類に大きく依存していることから,スピ ン-軌道相互作用およびMnの3*d*軌道と*Pnのp*軌道との間の*p-d*混成軌道の形成がこの巨大磁気抵 抗の発現に深く関わっていると考えられる。

図3にBaMn<sub>2</sub>Bi<sub>2</sub>の面内磁気抵抗の磁場方位依存性の結果を示す。電流は[100]方向に印加し,電流と磁場の向きのなす角度として*ac*面内で[100]から[001]へ向かう方位角を*θ*,*ab*面内で[100]から[010]へ向かう方位角を*φ*と定義した。磁気抵抗の大きさは、磁場が*ab*面内にある場合は方向に依らず最大となり,*ab*面に垂直な場合に最小となる異方性を示した。BaMn<sub>2</sub>*Pn*<sub>2</sub>の磁気抵抗は、反強磁性スピンの配向方向に対して垂直な磁場を印加した場合に顕著に観測され、一般的な磁気抵



図3. (a) ac 面内での電流と磁場の向きのなす方位角 (θ) の関係, (b) 磁気抵抗のθ依存性のポーラープロット, (c) ab 面内での電流と磁場の向きのなす方位角 (φ) の関係, (d) 磁気抵抗のφ依存性のポーラープロット, (e),(f) BaMn<sub>2</sub>Bi<sub>2</sub> の面内磁気抵抗の磁場方位依存性[8,10].

抗とは異なる対称性を有している。Hall効果測定[8], バンド計算[13]および角度分解光電子分光 (ARPES) 測定[14]の結果によると, BaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub>の磁気輸送現象に関わる主要な遍歴キャリアは, Mnの3d軌道とPnのp軌道で構成されるp-d混成軌道の価電子帯に占有された非常に少数の正孔で ある。 $T_N$ より温度が下がっていくと, xy, yz,  $z^2$ 軌道に存在するキャリアは電子相関のために反強 磁性相互作用を受けたPT対称性を有する基底秩序状態へと近づいていく。しかし,高温領域( $T_{min}$ < $T < T_N$ )の有限温度では,電子スピンの配向に熱揺らぎが存在しており,観測量としての磁気モ ーメントは温度平均値としての有限な値をとる。温度が $T_N$ から十分に離れた低温領域では,熱揺 らぎが抑えられ反強磁性的にスピン配向した基底状態へと遷移する。低温で実現される基底状態 はPT対称性を有しているために,遍歴状態と局在状態が拮抗するバンド端近傍で電子干渉による アンダーソン局在に似た電子の局在化が顕在化すると考えられる。一方,磁場をスピン配向と垂 直に印加すると,磁場のエネルギーのためにスピン配向は、 $\mu_BH \sim k_BT$ の関係で高温領域の金属状 態へとリエントラントに戻ることが可能となる。対称性の観点からすると,磁場による時間反転 対称性の破れのために電子干渉による局在性が抑制され、遍歴性が復活したリエントラント金属 状態が安定化すると考えられる。

#### 4. まとめ

本研究ではPT対称性を有する遍歴反強磁体のMnニクタイドBaMn<sub>2</sub>Pn<sub>2</sub> (Pn = As, Sb, Bi)の 強磁場輸送現象について調べた。本物質群では、低温で正から負へと変化する磁場誘起リエント ラント金属化による巨大磁気抵抗が観測された。この磁気抵抗は従来の物質では報告されていな い磁場対称性を示しており、PT対称性の観点からすると、スピン-軌道相互作用に起因する「奇パ リティ磁気多極子秩序」が波数空間の非自明な変形を誘起し、*p-d*混成価電子バンドに遍歴性が生 じた結果であると解釈できる。

## 謝辞

本研究は東北大学材料科学高等研究所の谷垣勝己教授,K.-K.Huynh博士,松下ステファン悠博 士,同大学大学院理研究科の小笠原拓磨氏および本学大学院理学研究科の田原学大夢氏との共同研 究による成果である。パルス強磁場実験については,東京大学物性研究所の共同利用制度を利用し て,本学大学院理学研究科附属先端強磁場科学研究センターで実施された。最後に、平素よりヘリ ウム液化業務および寒剤の安定供給ご尽力頂いてる低温センター職員の皆様に感謝致します。

# 参考文献

- [1] Y. Singh *et al.*, Phys. Rev. B **80**, 100403 (R) (2009).
- [2] J. An et al., Phys. Rev. B 79, 075120 (2009).
- [3] B. Saparov and A. S. Sefat, J. Solid State Chem. 204, 32 (2013).
- [4] S. Hayami. et al., Phys. Rev. B 98, 165110 (2018).
- [5] H. Watanabe and Y. Kusunose, Phys. Rev. B 96, 064432 (2017).
- [6] Y. Shiomi et al., Phys. Rev. Lett. 122, 127207 (2019).
- [7] P. Wadley et al., Science 351, (2016).
- [8] K.-K. Huynh et al., Phys. Rev. B 99, 195111 (2019).
- [9] K.-K. Huynh et al., New J. Phys. 16, 093062 (2014).
- [10] T. Ogasawara et al., Phys. Rev. B 103, 125108 (2021).
- [11] T. Kida et al., J. Phys. Soc. Jpn. 81, SB067 (2012).
- [12] K.-K. Huynh et al., Phys. Rev. Lett. 106, 217004 (2011).
- [13] J. An. An et al., Phys. Rev. B 79, 075120 (2009).
- [14] W. -L. ZhangL et al., Phys. Rev. B 94, 155155 (2016).