

平成 30 年 6 月 14 日現在

機関番号：82401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05123

研究課題名(和文)新規電気磁気効果の探索と中性子散乱による起源解明

研究課題名(英文) Neutron scattering study of novel electromagnetic effect

研究代表者

左右田 稔 (Soda, Minoru)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・研究員

研究者番号：40463905

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)：スピン・ネマティック相互作用を持つマルチフェロイクス物質Ba₂CoGe₂O₇、似た構造を持つCa₂CoSi₂O₇やBa₂CoSi₂O₇を取り上げ、スピン・ネマティック相互作用の本質を調べた。各単結晶に対する磁化測定や中性子散乱実験を行い、スピン・ネマティック相互作用を通じた新規電気磁気効果の発見、collinear磁気構造をもつマルチフェロイクス物質におけるエレクトロマグノンについて解明した。

研究成果の概要(英文)：The origins of the spin-nematic interaction and the electromagnon were examined in the multiferroic system Ba₂CoGe₂O₇ by the unpolarized and polarized neutron scattering measurements. The systems Ca₂CoSi₂O₇ and Ba₂CoSi₂O₇, which have the similar crystal structures, have been also studied to compare those with Ba₂CoGe₂O₇. As results, we have found the unique electromagnetic effect through the spin-nematic interaction. The origin of the electromagnon in the multiferroics having the collinear magnetic structure was also clarified.

研究分野：固体物理

キーワード：マルチフェロイック エレクトロマグノン スピン・ネマティック相互作用 電気磁気効果

1. 研究開始当初の背景

電気と磁気の交差相関が、近年精力的に研究されている。電場印可による磁性の変化、磁場印可による誘電性の変化といった電気磁気効果は、基礎・応用両面において重要な研究テーマである。特に微小消費電力のデバイス開発等において、電場印可によって磁性を制御できる物質が必要とされている。大きな電気磁気効果を示す物質として、(反)強磁性と(反)強誘電が共存するマルチフェロイクスが挙げられる。我々は以前より中性子散乱を用いたマルチフェロイクスの研究を行っており、螺旋スピンの右巻き・左巻きカイラリティーが電場によって制御可能である事を直接的に明らかにした。しかし、マルチフェロイクスにおけるスピンのカイラリティーの制御は、ドメイン比のみが変化しており、マクロな磁化は変化しない。螺旋磁気構造起源の電気分極に注目した物質開発が進められている一方で、ドメイン比の電場制御とは異なる新規電気磁気効果を探ることが重要となる。

2. 研究の目的

本申請研究では、スピン・ネマティック相互作用(スピン四極子相互作用)の本質を明らかにし、スピン・ネマティック相互作用を通じた電気磁気効果の解明を目的とした。さらにエレクトロマグノンにも注目した。中性子散乱実験を行うことによってスピン・ネマティック相互作用やエレクトロマグノンの微視的機構を調べた。

3. 研究の方法

以前までの研究でスピン・ネマティック相互作用を持つことが明らかになったマルチフェロイクス物質 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ 、似た構造を持つ $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ や $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ を取り上げ、スピン・ネマティック相互作用の本質を調べた。研究方法として、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ 、 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ の単結晶をそれぞれ作成し、各単結晶に対する磁化測定や中性子散乱実験を行った。

4. 研究成果

(a) $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$

二次元反強磁性体 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ は、磁場下において ab 面内の collinear 反強磁性秩序と c 軸方向の自発的誘電分極が同時に出現するマルチフェロイクス物質であり、その強誘電分極は spin-dependent $d-p$ hybridization モデルによって説明される[1]。さらにテラヘルツ時間領域分光測定においてエレクトロマグノンが 4 meV 付近に観測されているが[2]、このエネルギー励起は通常のスピン波では説明できない。以前我々は、当該物質の中性子散乱実験を行い、エレクトロマグノンに対応する磁気励起に加え、~0.1 meV 程度の特異な磁気異方性ギャップを観測した[3]。この異方性ギャップは、2 次の項までを考慮した通常の

スピン・ハミルトニアンでは説明されない。 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ では、磁性を担う CoO_4 四面体に反転中心が存在しないことから、Co サイトのスピン四極子は電気分極と等価となる。また、Co イオンの局所的及び非局所的対称性の考察から、 ab 面内の磁気異方性の最低次は、スピン・ネマティック相互作用であることが導かれる。我々は、スピン・ネマティック相互作用を通じた電気磁気効果を明らかにするため、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ の c 軸方向に電場印可し電場中偏極中性子実験を行った。電場中偏極中性子実験は PSI・SINQ の TASP を用いて行った。

その結果、電場印可によって磁気モーメントが c 面内で回転することを発見した。Figure 1(a)に測定した Q 点と磁気モーメントの関係、Figure 1(b)に磁気反射強度の電場依存性を示す。さらに Figure 1(c)に磁気反射強度から見積もった磁気モーメントの回転角の電場依存性を示す。

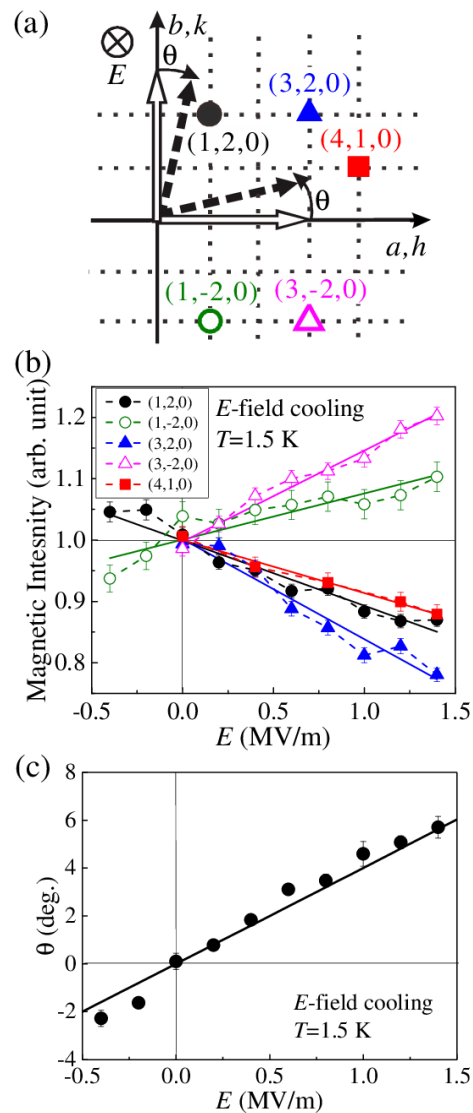


Figure 1. (a) 測定した Q -points と磁気モーメントの関係。(b) 磁気反射強度の電場依存性。(c) 磁気モーメントの回転角の電場依存性。[Cited from ref. 4.]

存性を示す。この変化は、基底状態である $S//\langle 100 \rangle$ の反強誘電状態から励起状態である $S//\langle 110 \rangle$ の強誘電状態に移り変わっていることを意味しており、新規な電気磁気効果である。この電気磁気効果は、スピン・ネマティック相互作用を含めたスピン・ハミルトニアンによって定量的に説明できることも大きな特徴である。

$\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ におけるエレクトロマグノン を明らかにするため、偏極中性子散乱実験を行い、磁気励起モードを解析した。Figure 2(a) に示すような面内揺らぎの横モード (transverse, T_1 モード)、面外揺らぎの横モード (transverse, T_2 モード)、縦モード (longitudinal, L モード) に分類される磁気励起を偏極中性子によって直接的に解析した。偏極中性子散乱実験は PSI・SINQ の TASP を用いて行った。また、非偏極中性子散乱実験を ORNL・SNS の HYSPEC で行った。

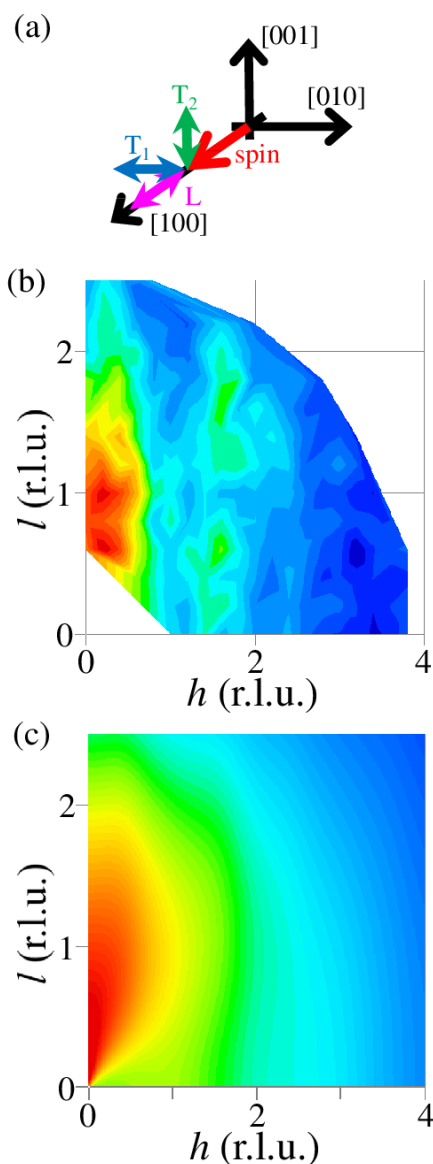


Figure 2. (a) 磁気励起モードの概略図。(b) エレクトロマグノンに対応する 4meV の中性子強度マップ。(c) 拡張スピン波理論での計算値。

その結果、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ におけるエレクトロマグノンが主に縦モード(L モード)に対応することを明らかにした。Figure 2(b)、2(c)にエレクトロマグノンに対応する 4 meV の磁気励起の中性子強度マップの実験値と計算値を示す。観測された磁気励起のエネルギー分散、中性子強度、揺らぎの方向すべてを、拡張スピン波理論によって定量的に解析することに成功した。

[1] H. Murakawa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **105** 137202 (2010).

[2] I. Kezsmarki, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 057403 (2011).

[3] M. Soda, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014).

[4] M. Soda, *et al.*, Phys. Rev. B **94**, 094418 (2016).

(b) $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$

$\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ と似た結晶構造をもつ $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ を取り上げた。 $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ に対して粉末中性子回折実験を、単結晶中性子回折実験を行い、 $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ における磁気異方性の起源を明らかにし、スピン・ネマティック相互作用の有無を調べた。粉末中性子回折実験を ECHIDNA (ANSTO) で、低磁場中単結晶中性子回折実験を TriCS (SINQ/PSI) で行った。

中性子回折実験を行った結果、格子起源の超格子反射とともに $T_N=6$ K 以下で(1,0,0)の propagation vector をもつ磁気反射が観測された。磁気構造解析の結果、磁気モーメントが a 軸(or b 軸)に向けた collinear 反強磁性秩序が実現していることが分かった。これは、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ と同様に反強誘電状態が実現していることを示し、その強誘電分極は spin-dependent $d-p$ hybridization モデルによって説明される。しかし、磁化測定では、スピン・ネマティック相互作用に起因するスピンフロップは観測されていないことから、 $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ の磁気異方性は、別の起源であると考えられる。

(c) $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$

$\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ では、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ のような CoO_4 と SiO_4 の 2 次元ネットワークを持つが、正方格子ではなく、monoclinic に歪んだ結晶構造を形成する。磁化率測定より $T=5$ K での磁気転移が報告されているが、強誘電性は観測されていない[4]。 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ の磁性を明らかにし、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ との比較を行うため、歪んだ格子系 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ に対する磁化、中性子散乱測定を行った。粉末中性子回折実験を ANSTO の ECHIDNA で、単結晶中性子散乱実験は ORNL・HFIR の CTAX を用いて行った。

中性子回折実験を行ったところ、 $T=6$ K 以下で(1/2,1/2,1/2)の磁気伝搬ベクトルをもつ磁気反射が観測された。磁気構造解析の結果、[10-1]に平行なコバルトスピニングが、[101]方向に反強磁性的、[10-1]方向に強磁性的に並ぶことがわかった。さらに中性子非弾性散

乱実験では、強度が[101]方向のみに周期的に変化し、ほとんど分散を持たない磁気励起が観測された。これらの結果は、 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ が[101]方向に反強磁性相関をもつ擬一次元のイジングスピン系であることを示している。さらに、磁化測定の結果も、擬一次元のイジングスピン系モデルによって説明される。 $\text{Ba}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ では、マルチフェロイック特性やエレクトロマグノンが観測されておらず、 CoO_4 と SiO_4 のネットワークの繋がりが物性に大きな影響を与えていると考えられる。
[5] M. Akaki *et al.*, J. Phys.: Conf. Ser. **150**, 042001 (2009).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 6件)

1. M. Soda, S. Hayashida, T. Yoshida, M. Akaki, M. Hagiwara, M. Avdeev, O. Zaharko, and T. Masuda, Magnetic Structure and Dielectric State in the Multiferroic $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$, J. Phys. Soc. Jpn. **86** (2017) 064703., 査読有
10.7566/JPSJ.86.064703
2. M. Soda and T. Masuda, Dielectric Property and Diffuse Scattering in Relaxor Magnet LuFeCoO_4 , Journal of Physics: Conference Series **828** (2017) 012001., 査読有
10.1088/1742-6596/828/1/012001
3. M. Soda and T. Masuda, Dielectric and Magnetic Properties in Relaxor Magnet LuFeCoO_4 , J. Phys. Soc. Jpn. **85** (2016) 034713., 査読有
10.7566/JPSJ.85.034713
4. M. Soda, Y. Honma, S. Takamizawa, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, and T. Masuda, Spin Model of O_2 -based Magnet in a Nanoporous Metal Complex, J. Phys. Soc. Jpn. **85** (2016) 034717., 査読有
10.7566/JPSJ.85.034717
5. M. Soda, S. Hayashida, B. Roessli, M. Månsson, J. S. White, M. Matsumoto, R. Shiina, and T. Masuda, Continuous control of local magnetic moment by applied electric field in multiferroics $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$, Phys. Rev. B **94** (2016) 094418., 査読有
10.1103/PhysRevB.94.094418
6. 益田隆嗣、左右田稔、マルチフェロイック物質におけるスピン・ネマティック相互作用の観測、固体物理 **50** (2015) 111., 査読有

[学会発表] (計 10件)

1. 左右田稔, 他 7 名, カゴメ・三角格子積層系 RBaCo_4O_7 ($\text{R}=\text{Y}$ and Lu) における磁気散漫散乱, 日本物理学会, 2018/3/23, 東京理科大学(千葉県・柏)
2. M. Soda, 他 11 名, Magnetic Anisotropy and Magnetoelectric Effect with Spin-Nematic Interaction, 第 16 回日韓中性子科学会, 9

Jan. 2018, 東大物性研(千葉県・柏)

3. 左右田稔, 他 8 名, マルチフェロイック物質 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ における磁気励起モード, 日本物理学会, 2017/9/23, 岩手大学(岩手県・盛岡)
4. M. Soda, Superparamagnetism induced by Polar Nano Region in Relaxor Magnet, Deutsche Physikalische Gesellschaft (DPG) Spring Meeting, 20 Mar. 2017, Dresden(Germany)
5. 左右田稔, 中性子散乱による磁性と誘電性の新奇関係の研究, 日本中性子科学会, 2016/12/2, 名古屋大(愛知県・名古屋)
6. 左右田稔, 他 4 名, リラクサー磁性体 LuFeCoO_4 における磁気励起, 日本中性子科学会, 2016/12/1, 名古屋大(愛知県・名古屋)
7. 左右田稔, 他 3 名, リラクサー磁性体 LuFeCoO_4 における中性子散乱研究, 日本物理学会, 2016/9/13, 金沢大(石川県・金沢)
8. 左右田稔, 磁性と誘電性の新奇関係, 日本物理学会, 2016/3/21, 東北学院大(宮城県・仙台)
9. 左右田稔, 他 8 名, マルチフェロイック物質 $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ の磁気構造, 日本物理学会, 2016/3/19, 東北学院大(宮城県・仙台)
10. 左右田稔, 他 4 名, カゴメ・三角格子積層系 YBaCo_4O_7 における中性子散乱研究, 日本中性子科学会, 2015/12/11 和光市民文化センター(千葉県・柏)

[図書] (計 0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0件)

○取得状況 (計 0件)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

左右田 稔 (SODA Minoru)
国立研究開発法人 理化学研究所・創発物性科学研究センター・研究員
研究者番号: 40463905

(2) 研究分担者

益田 隆嗣 (MASUDA Takatsugu)
東京大学・物性研究所・教授
研究者番号: 90313014
(平成 27-28 年度)

浅井 晋一郎 (ASAI Shinichiro)
東京大学・物性研究所・特別研究員
研究者番号: 0074810
(平成 27-28 年度)

(3) 連携研究者
なし

(4) 研究協力者
なし