

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月10日現在

機関番号：12601  
 研究種目：基盤研究（C）  
 研究期間：2010～2012  
 課題番号：22540347  
 研究課題名（和文）ジグザグ鎖反強磁性体の磁性由来の強誘電性の研究

研究課題名（英文）Study in magnetically-induced ferroelectricity  
 on a zigzag-chain antiferromagnet

研究代表者 三田村裕幸  
 (MITAMURA HIROYUKI)  
 東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：60282604

### 研究成果の概要（和文）：

ジグザグ鎖反強磁性体  $\text{MnWO}_4$  では磁化容易軸（x 軸）に磁場を加えると中間相を挟んで2つの強誘電相が現れるが、2つの相の分極は常に逆向きになる不思議な性質を示す。本研究ではパルス強磁場を用いた磁化および誘電分極測定を行うことにより、inverse Dzyaloshinskii-Moriya 機構をベースに、この現象の巨視的メカニズムをほぼ解明することが出来た。

### 研究成果の概要（英文）：

Zigzag-chain antiferromagnet  $\text{MnWO}_4$  has two ferroelectric phases in magnetic fields along easy axis. Surprisingly, the two ferroelectric phases have opposite spontaneous electric polarization each other without fail. In the present study, we succeed to clarify its macroscopic mechanism through the inverse Dzyaloshinskii-Moriya mechanism.

### 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,500,000円	450,000円	1,950,000円
2011年度	1,400,000円	420,000円	1,820,000円
2012年度	500,000円	150,000円	650,000円
年度			
年度			
総計	3,400,000円	1,020,000円	4,420,000円

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性II

キーワード：幾何学的スピンプラストレーション、擬1次元鎖、マルチフェロイクス、パルス強磁場

### 1. 研究開始当初の背景

近年、磁性由来の強誘電性について活発に研究が進められている。従来、磁性と誘電性は別個の現象として捉えられてきたが、スピン軌道相互作用を通じて互いに影響を及ぼし合うことが予想されていた。 $\text{DyMnO}_3$  や

$\text{TbMnO}_3$  において磁性由来の強誘電性が実際に観測されたことをきっかけに様々な物質で確認されるようになった。これにより磁場によって誘電性を制御したり、電場によって磁性を制御したりできる可能性が出てきて、応用面でも期待されるようになってきた。これ

らの発現原理はバリエーションがあり、交換磁歪、 $d$ - $p$  混成のスピ角度依存、inverse Dzyaloshinskii-Moriya 機構など複数の機構が提唱されている。しかしながら実際の物質では、磁性イオンやそのサイトが複数あるものが大部分であり、これらのモデルと対比してクリアな議論を進めるのは容易ではない。

ジグザク鎖反強磁性体のマルチフェロイック物質である  $MnWO_4$  は単一サイトの  $Mn^{2+}$  ( $3d^5$ ,  $S=5/2$ ,  $L=0$ ) のみが磁性を担っている。また軌道角運動量を持たないためハイゼンベルクスピン様として振る舞うことが期待される非常にシンプルな構成になっている。この物質の強誘電性は inverse Dzyaloshinskii-Moriya 機構に起因するものと考えられているが、この機構は隣接する2つのスピンの外積が有限の大きさを持つ場合に発現する。スピンのキャントする原因は何でも良いが、幾何学的スピンプラストラーションは非常に有力なソースであり、実際にこの物質（ジグザク鎖）の場合は最隣接と次近接の相互作用のプラストラーションによってスピンキャントが生じていると考えられる。

## 2. 研究の目的

ジグザク鎖反強磁性体  $MnWO_4$  は磁性由来の強誘電性を示すいわゆるマルチフェロイック物質で、磁化容易軸（ $x$  軸）に磁場を加えると中間相を挟んで2つの強誘電相が現れる。この2つの強誘電相の分極は常に逆向きになる不思議な性質を示す（図1参照）。また、 $y$  軸方向に磁場を加えた場合、磁場により分極の向きが  $b$  軸から  $a$  軸にスイッチする現象が報告されている。これらの現象について実験を通じて定性的か

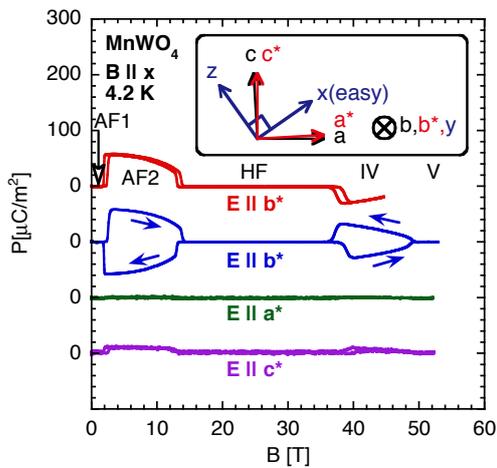


図1  $MnWO_4$  の  $B || b$  における磁場中誘電分極の結果

つ統一的に理解する。

## 3. 研究の方法

パルス強磁場中での磁化及び（研究代表者が新たに開発した）誘電分極の測定を通じ、各磁場方向に対する磁気相図を作製し各々の磁気相における強誘電性の有無と誘電分極の向きを決定することにより、その発現機構を考察する。

パルス磁場中の誘電分極測定は研究代表者が開発し、日本で初めて実際に磁性由来の強誘電性を観測することに成功している。

（図2参照）この方法では磁場掃引速度が速いため大きな焦電電流が得られるため、測定にかかる信号の積算時間の短さを充分補うことができる。また、試料の絶縁特性が充分でない場合でもその影響を非常に小さく抑えることができる長所がある。併せて、実験可能な磁場領域を定常磁場に比べて飛躍的に延ばすことができる。

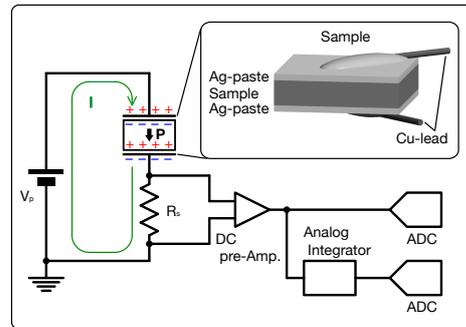


図2 パルス磁場中での焦電法による誘電分極測定の模式図

## 4. 研究成果

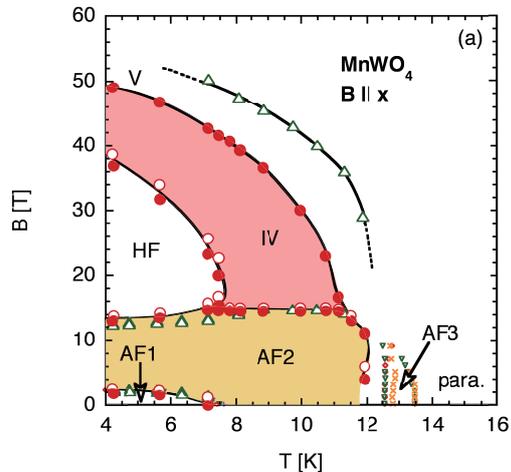


図3  $MnWO_4$  の  $B || x$  の磁気相図

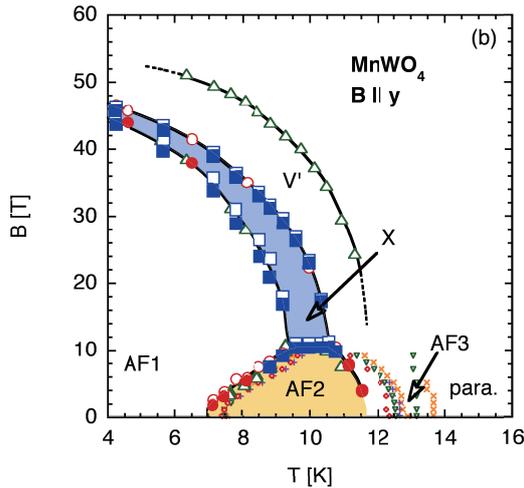


図4 MnWO<sub>4</sub>の B || y の磁気相図

y 軸方向に磁場を加えた場合、B || x 軸と類似の相図が見られる (図3、4参照)。特に B || y 軸については磁場により分極の向きが b 軸から a 軸にスイッチする現象が報告されていたが、この磁場誘起の強誘電相が低温高磁場まで存在しており B || x 軸において分極の逆転する部分と領域が良く似ていることが判った。両方の相図の間を埋めるために x 軸と y 軸の中間方向に磁場を加え詳細な相図 (図5参照) を作成した

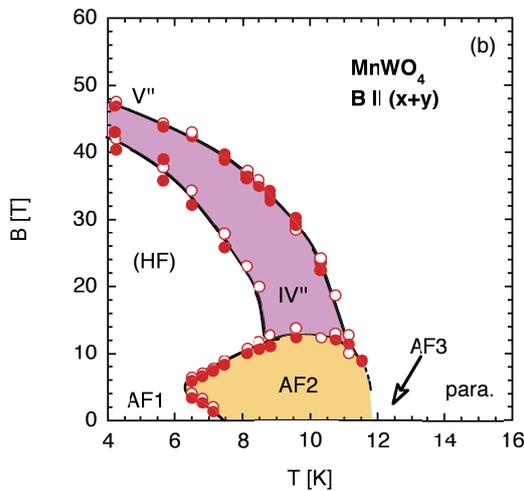


図5 MnWO<sub>4</sub>の B || (x+y) の磁気相図

ところ B || x 軸で見られた高磁場の分極逆転相と B || y 軸で見られた高磁場の分極ス

イッチ相が連続的に繋がっている可能性が強くなってきた。これによりこれまで別々に考えていた磁場誘起の強誘電相が実は同じ起源であることが判った。また B || x 軸で見られた分極の逆転はクロスオーバーではなく相転移である可能性も高まった。更に、磁場の回転に対し高磁場では分極の向きが回転するのにに対し低磁場磁場では分極が回転しないのはなぜかという疑問が新たに生まれた。そこで、B || x 軸のオーバーか相転移問題になっている低磁場部分について磁化の精密測定を行った (図6参照)。その結

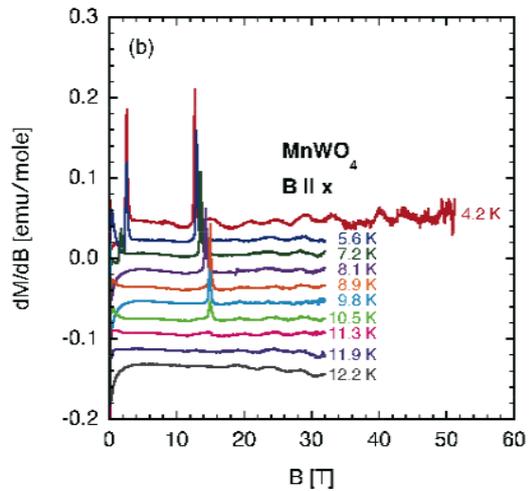


図6 MnWO<sub>4</sub>の B || x の磁化の微分

果磁化に不連続が見られ、この部分が相転移であることが明らかになった。総じて磁場中でのこれらの現象は inverse Dzyaloshinskii-Moriya 機構をベースに、隣接スピンの外積の方向とボンドの向きを考慮することにより、ほぼ解明することが出来た。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計4件)

- 1) Probing Spin Chirality of the Equilateral Triangular-Lattice Antiferromagnet RbFe(MoO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> through Multiferroicity  
Mitamura H, Wtanuki R, Onozaki N, Shimura Y, Kittaka S, Sakakibara T, Suzuki K  
 J. Phys.:Conf. Ser. 391(2012)012099. 査読あり 4 pages

DOI: 10.1088/1742-6596/391/1/012099

2)Multiferroicity on the Zigzag Chain Antiferromagnet  $MnWO_4$  in High Magnetic Fields

Mitamura H, Sakakibara T, Nakamura H, Kimura T, Kindo K

J. Phys. Soc. Jpn. 81(2012)054705. 査読あり 7 pages

DOI: 10.1143/JPSJ.81.054705

3)Magnetic Properties of  $Ce_3Pd_{20}Si_6$  at Very Low Temperatures

Mitamura H, Sakuraba T, Tayama T, Sakakibara T, Tsuduku S, Ano G, Ishii I, Akatsu M, Nemoto Y, Goto T, Kikkawa A and Kitazawa H

J. Phys.:Conf. Ser. 200(2010)012118. 査読あり 4 pages

DOI: 10.1088/1742-6596/200/1/012118

4)Low Temperature Magnetic Properties of  $Ce_3Pd_{20}Si_6$

Mitamura H, Sakuraba T, Tayama T, Sakakibara T, Tsuduku S, Ano G, Ishii I, Akatsu M, Nemoto Y, Goto T, Kikkawa A and Kitazawa H

J. Phys. Soc. Jpn. 79(2010)074712. 査読あり 6 pages

DOI: 10.1143/JPSJ.79.074712

[学会発表] (計 7 件)

1)京大基研研究会「量子スピン系の物理」

平成 24 年 11 月 14 日

完全三角格子反強磁性体におけるスピнкаイラリティ由来の強誘電性

三田村裕幸、綿貫竜太、天羽祐太、小野崎紀道、志村恭通、橘高俊一郎、榊原俊郎、鈴木和也、山本勲

2)日本物理学会 2012 年秋季大会 19pCD7

平成 24 年 9 月 19 日

完全三角格子反強磁性体  $RbFe(MoO_4)_2$  のパルス磁場中誘電分極測定

三田村裕幸、綿貫竜太、天羽祐太、小野崎紀道、志村恭通、橘高俊一郎、榊原俊郎、山本勲、鈴木和也

3)日本物理学会 2012 年秋季大会

18aPSA61

平成 24 年 9 月 18 日

完全三角格子反強磁性体における磁性由来強誘電性の発生条件

三田村裕幸、綿貫竜太、天羽祐太、小野崎紀道、志村恭通、橘高俊一郎、榊原俊郎、山本勲、鈴木和也

4)日本物理学会 2011 年秋季大会 22aPS76  
平成 23 年 9 月 22 日

$RbFe(MoO_4)_2$  の磁場中誘電分極測定 III

三田村裕幸、綿貫竜太、小野崎紀道、志村恭通、橘高俊一郎、榊原俊郎、鈴木和也

5)Strongly Correlated Electron Systems (SCES2011)

平成 23 年 8 月 30 日

Probing Spin Chirality of the Equilateral Triangular-Lattice Antiferromagnet

$RbFe(MoO_4)_2$  through Multiferroicity

H. Mitamura, R. Watanuki, N. Onozaki, S. Kittaka, Y. Shimura, T. Sakakibara and K. Suzuki

6)日本物理学会第 66 会年次大会 26pPSA33

平成 23 年 3 月 26 日

$RbFe(MoO_4)_2$  の磁場中誘電分極測定 II

三田村裕幸、綿貫竜太、小野崎紀道、榊原俊郎、鈴木和也

7)日本物理学会 2010 年秋季大会 25aWP11

平成 22 年 9 月 25 日

$RbFe(MoO_4)_2$  の磁場中誘電分極測定

三田村裕幸、綿貫竜太、小野崎紀道、榊原俊郎、鈴木和也

[その他]

ホームページ等

[http://sakaki.issp.u-tokyo.ac.jp/user/mitamura/san\\_tian\\_cun\\_yu\\_xingno\\_bu\\_wu/Top.html](http://sakaki.issp.u-tokyo.ac.jp/user/mitamura/san_tian_cun_yu_xingno_bu_wu/Top.html)

6. 研究組織

(1)研究代表者

三田村裕幸 (MITAMURA, Hiroyuki)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：60282604

(2)研究分担者

該当無し

(3)連携研究者

該当無し