

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 11 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740224

研究課題名(和文) 新奇な電気磁気効果・エレクトロマグノンの解明

研究課題名(英文) Novel magnetoelectric effect and electromagnon

研究代表者

左右田 稔 (Soda, Minoru)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：40463905

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：マルチフェロイック物質Ba₂CoGe₂O₇では、電気分極がスピン・ネマティック演算子と等価であり、磁気異方性がスピン・ネマティック相互作用によって決定されていることが明らかになった。relaxor magnetである三角格子系LuFeCoO₄では、中性子回折実験において核散漫散乱と磁気散乱に明瞭な相関が観測され、PNRを起源とした超常磁性が発現していることを発見した。スピン・ネマティック相互作用による磁気異方性、PNRを起源とした超常磁性とともに、新たな磁性と誘電性の関係であり、新規電気磁気効果も期待される。

研究成果の概要(英文)：Spin nematic interaction has been found in an easy-plane type antiferromagnet Ba₂CoGe₂O₇ by measuring the magnetic anisotropy and spin dynamics. In this system, the spin nematic operator is equivalent to the polarization. The in-plane anisotropy is induced by an antiferro-type interaction of the spin nematic operator. In our elastic neutron study of relaxor magnet LuFeCoO₄, the strong coupling between the nuclear and magnetic correlations has been found. The observed magnetization with superparamagnetic component can be explained by "multiferroic nano region" (MNR) model; the polar nano-regions (PNRs) and superparamagnetic domains grow simultaneously. These results show the possibility of new type of magnetoelectric effect.

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：マルチフェロイック リラクサー磁性体 スピン・ネマティック 超常磁性 電気磁気効果

1. 研究開始当初の背景

磁気秩序と電気分極が同時に発現するマルチフェロイック現象は、スピン・軌道相互作用を起因とした物理現象の1つであり、ここ10年間の物性物理の大きな興味の一つとなっている。サイクロイダル磁気構造をもつ TbMnO_3 、プロパースクリュー磁気構造をもつ CuCrO_2 等の様々な系に対して実験・理論両面から研究がなされ、スピン構造と電気分極の関係についていくつかのモデルが提案されている。この方向での物質開発が進められている一方で、新たな誘電性と磁性の関係を探索することも重要である。

2. 研究の目的

スパイラル磁気構造とは異なる起源の新奇電気磁気効果、エレクトロマグノン进行を明らかにするため、単純な collinear 磁気構造をもつマルチフェロイック物質 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ 、磁性イオンをもつリラクサー誘電体(relaxor magnet) LuFeCoO_4 に注目し、新たな磁性・誘電性の関係を探索した。

3. 研究の方法

マルチフェロイック物質 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ 単結晶、relaxor magnet LuFeCoO_4 単結晶に対して誘電率や磁化測定、中性子散乱実験を行った。

4. 研究成果

4.1. マルチフェロイック物質 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$
 二次元反強磁性体 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ は、単純な collinear 磁気構造をもつにもかかわらず、特徴的な CoO_4 四面体局所構造が存在することによって、興味深い磁性と誘電性の関係を示すマルチフェロイック物質となっている。[1] $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ では、磁性を

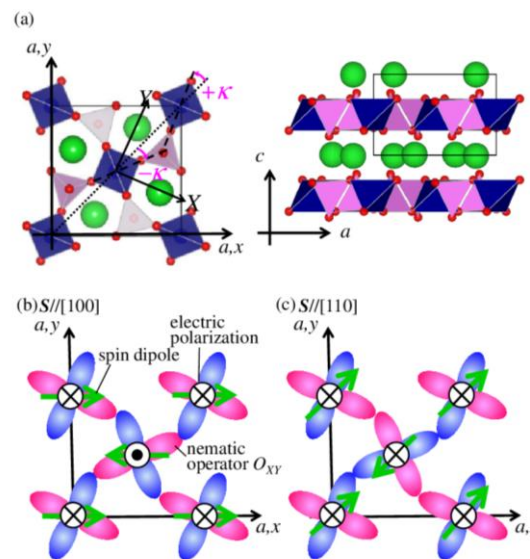


図1 (a) $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ の結晶構造。(b),(c) Co サイトにおける磁気異方性、電気分極、およびスピン・ネマティック演算子の関係。

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。このため、当該物質では誘電的性質をスピン・ハミルトニアン of 枠組みの中で解析することが可能である。Co イオンの局所的及び非局所的対称性の考察から、たとえば電気分極の Z 成分は、スピン四極子(スピン・ネマティック演算子) $O_{XY} = S^X S^Y + S^Y S^X$ と等価であることがわかる。したがって、電気分極相関をスピン・ネマティック相関と結びつけることができ、磁性と誘電性の両方をスピン・ハミルトニアンにより記述することが可能である。さらに、このスピン・ネマティック演算子 $O_{XY} = S^X S^Y + S^Y S^X = \cos(2\kappa)\{S^X S^Y + S^Y S^X\} - \sin(2\kappa)\{(S^Y)^2 - (S^X)^2\}$ 間の相互作用[2]が、ab 面内の磁気異方性を決める最低次項であることも導かれる。ここで、X,Y,Z は四面体上に局所的に定義された座標であり、x,y,z は非局所的な座標である。図1(b)、1(c)に Co サイトにおける磁気異方性、電気分極、スピン・ネマティック演算子の関係を示す。

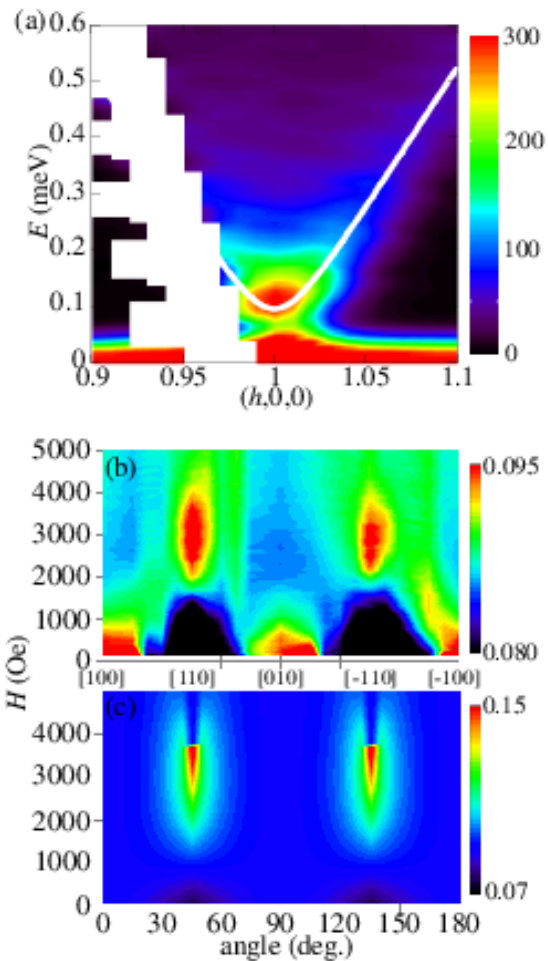


図2 (a) $Q=(1,0,0)$ 近傍での中性子非弾性散乱強度マップ。白線は、スピン・ネマティック相互作用を考慮したモデル計算を示す。(b) c 面内における静磁化率の方向依存性の実験結果。(c) c 面内における静磁化率の方向依存性の計算結果。

反強誘電的相互作用あるいは反強的ネマティック相互作用が働いている場合、図 1(b)のように異方性軸は $\langle 100 \rangle$ 方向となり、強誘電的相互作用あるいは強的ネマティック相互作用の場合は図 1(c)のように $\langle 110 \rangle$ 方向となる。このことは、スピン・ネマティック相互作用定数と電気分極の誘電エネルギーが、電気分極のみならず磁気異方性エネルギーの測定によっても検出可能であることを意味する。

中性子非弾性散乱実験による磁気励起測定と SQUID 磁束計による磁化測定を行うことによって、スピン・ネマティック相互作用の検出を試みた。中性子非弾性散乱実験によって観測された、反強磁性スピン波について、 $Q=(1,0,0)$ 近傍の低エネルギー励起を図 2(a)に示す。0.1 meV 程度の明瞭な磁気異方性ギャップが存在することがわかる。この磁気励起スペクトルを、スピン・ネマティック相互作用 - $J_p^{\text{eff}} \sum \mathbf{O}_{XY}(i) \mathbf{O}_{XY}(j)$ を考慮したスピン・ハミルトニアンで解析すると、図 2(a)の白線のように実験結果がよく説明される。この実験で得られるスピン・ネマティック相互作用定数は $J_p^{\text{eff}} = 0.198 \mu\text{eV}$ であり、これは電気分極の静電エネルギーにもなっている。

c 面内の様々な方向に磁場を印加した場合の静磁化率を図 2(b)に示す。[110]及び[-110]方向に磁場を印加した場合に、スピンフロップ転移による磁化率の増大が $H=3000 \text{ Oe}$ 付近に観測される。[110]と[-110]方向のみで転移が観測される 4 回対称な振る舞いから、スピン・ネマティック相関は図 1(b)で示すように反強ネマティック的であることが示される。 $J_p^{\text{eff}} = 0.198 \mu\text{eV}$ とした場合の $T=0 \text{ K}$ における静磁化率の計算値は図 2(c)のようになり、実験結果を再現することがわかる。以上のように、磁気励起と磁化率の測定により、スピン・ネマティック相互作用の存在が明らかにされた。また、スピン・ネマティックエネルギーと電気分極の静電エネルギーを定量的に見積もることが出来た。

電場印可による磁性制御に注目した電気磁気効果の研究は、基礎・応用両分野で重要になっている。今回の研究において、 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ では電気分極がスピン・ネマティック演算子と等価であり、磁気異方性がスピン・ネマティック相互作用によって決定されていることが明らかになった。基底状態は、図 1(b)に示すように、反強誘電/反強ネマティック的秩序が存在し、スピンは $\langle 100 \rangle$ 方向を向く状態が実現している。ここでもし、 $\langle 001 \rangle$ 方向に電場を印可して電気分極の方向を揃え、図 1(c)に示す強誘電/強的ネマティック状態が実現されれば、スピンは 90 度回転し、 $\langle 110 \rangle$ 方向を向く。すなわち、スピンの方向を電場によってコントロールできることが期待され、新しい電気磁気効果の可能性が示唆されている。ス

ピン・ネマティック相互作用の大きさを示す J_p^{eff} は、スピンが $\langle 100 \rangle$ 方向を向いた状態と $\langle 110 \rangle$ 方向を向いた状態とのエネルギー差を表しており、その値が小さいほどスピンをコントロールしやすい。したがって、 J_p^{eff} はこの電気磁気効果の特徴的なパラメーターとなっている。今後は、当該物質における磁気モーメントの方向を電場で制御する研究や、 J_p^{eff} の大きさが異なるマルチフェロイック物質の系統的な探索が重要である。

[1] H. Murakawa, Y. Onose, S. Miyahara, N. Furukawa, & Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. **105**, 137202 (2010).

[2] J. Romhányi, M. Lajkó, & K. Penc. Phys. Rev. B **84**, 224419 (2011).

4.2. relaxor magnet LuFeCoO_4

マルチフェロイック物質のような homogeneous な系では、誘電性と磁性の関係について多くの研究がなされ、その機構についていくつかのモデルが提案されている。一方、我々は inhomogeneous な系である磁性イオンをもつリラクサー誘電体に注目し、誘電性と磁性の新たな関係を探索した。リラクサー誘電体(relaxor)は、広い温度領域で大きな誘電率(ϵ)を示すとともに、その誘電率がゆるやかな温度(T)変化と顕著な周波数(f)依存性をもつ物質群である。[3]その物性は、polar nanoregion (PNR)と呼ばれる自発分極を持ちながらランダムな方向を向いた局所領域を考えることによって説明されている。

本研究では、磁性イオンをもつリラクサー誘電体の一つである三角格子系 LuFeCoO_4 を取り上げる。 LuFeCoO_4 は、三角格子を形成し、同じサイトに Fe^{2+} と Co^{2+} がランダムに配置される構造を持つ。図3に示すように誘電率には、リラクサー誘電性が観測され、 Fe^{3+} (and Co^{2+}) が磁性を担っているため、 LuFeCoO_4 は BiFeO_3 - $1/3\text{BaTiO}_3$ [4] と同様な relaxor magnet であると言える。

LuFeCoO_4 単結晶に対する中性子回折実験を行った結果、構造と磁性に明瞭な相関が観測された。190 K 以下で出現する磁気反射を詳細に測定したところ、その幅は分解

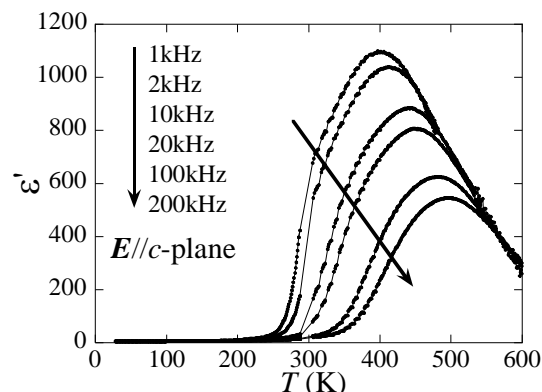


図 3 様々な周波数で測定した誘電率の温度依存性。

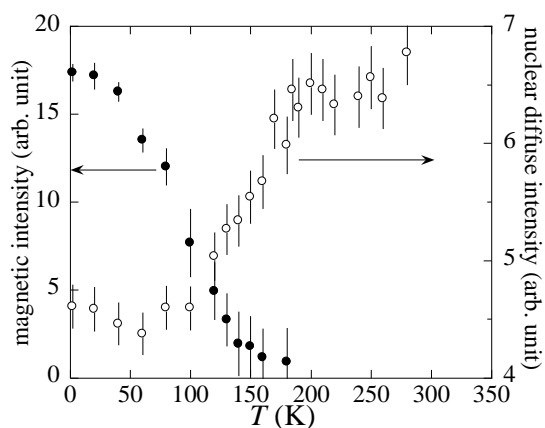


図 4 核散漫散乱と磁気散乱強度の温度依存性。

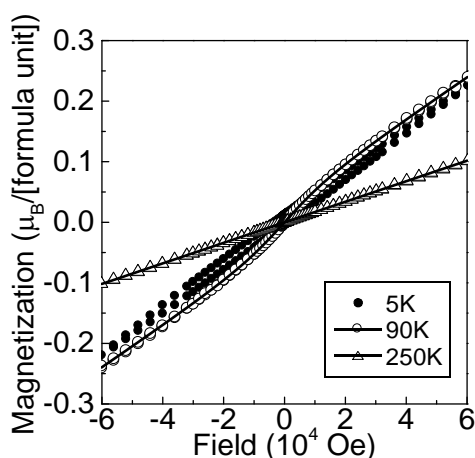


図 5 LuFeCoO₄ 単結晶で測定された磁化の磁場依存性。実線は、fitting 曲線を示す。

能より幅広い。この結果は、LuFeCoO₄の反強磁性相関は短距離秩序になっており、小さな磁気ドメインができていていることを示す。磁気相関長から見積もられるドメインサイズは、190 Kにおいて7 nm程度である。一方、典型的なリラクサー誘電体で観測されるPNR起源の核散漫散乱も存在し、その相関長は磁気反射と同じ7 nmと見積もることができる。この核散漫散乱は、磁気反射が出現する190 Kにおいて、その強度が急激に減少する。(図4)これらの中性子実験の結果から、我々は“multiferroic nano region” (MNR) モデルを提案する。190 K以下では、磁気モーメントと電気分極がMNR内のみで発達する。また、MNR内の強磁性成分をもった磁気モーメントは、超常磁性の振舞いを示す。LuFeCoO₄で観測されている磁化の磁場依存性のグラフを図5に示すが、実線のようにMNRモデルによって説明される。さらに、fittingによって得られた粒子サイズは、中性子回折実験で得られたドメインサイズと一致する。[5] PNR 起源の超常磁性はBiFeO₃-1/3BaTiO₃でも観測されているため、relaxor magnetにおける共通な性質であると

期待される。

- [3] A.A. Bokov and Z.-G. Ye, J. Mater. Sci. **41**, 31 (2006).
- [4] M. Soda *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **80** 043705 (2011).
- [5] M. Soda *et al.*, to be published.

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 2件)

1. Spin-Nematic Interaction in the Multiferroic Compound Ba₂CoGe₂O₇, M. Soda, M. Matsumoto, M. Månsson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shiina, and T. Masuda, Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014). 査読有
<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.127205>
2. Quantum - Phase - Transition - Induced Multiferroics and Higgs Mode in Integer Spin Systems in Noncentrosymmetric Lattice with Strong Single-Ion Anisotropy, M. Matsumoto, M. Soda, and T. Masuda, J. Phys. Soc. Jpn. **82** 093703 (2013). 査読有
<http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.093703>

[学会発表] (計 7件)

1. 左右田稔, 林田翔平, Bertrand Roessli, Martin Månsson, Jonathan White, 松本正茂, 椎名亮輔, 益田隆嗣, マルチフェロイック物質 Ba₂CoGe₂O₇における磁気モーメントの電場制御, 日本物理学会 2014年3月29日, 東海大学
2. M. Soda, M. Matsumoto, S. Gvasaliya, M. Månsson, A. Zheludev, S. Kawamura, K. Nakajima, and T. Masuda, Neutron Scattering Study of Magnetic Excitations in Multiferroics Ba₂CoGe₂O₇, The international conference on strong correlated electron systems (SCES 2013), Aug. 5~8 2013, Ito International Research Center Conference, The University of Tokyo, Japan
3. 左右田稔, 益田隆嗣, LuFeCoO₄におけるナノ磁性とリラクサー的誘電性の関係, 日本物理学会, 2013年3月27日, 横浜国立大学
4. M. Soda, T. Masuda, M. Matsumoto, S. Gvasaliya, M. Månsson, A. Zheludev, Neutron Scattering in Multiferroics Ba₂CoGe₂O₇, APS, March 19 2013, Baltimore, USA

[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]
特に無し

6. 研究組織

(1) 研究代表者

左右田 稔 (SODA MINORU)
東京大学・物性研究所・助教
研究者番号：40463905