

平成 21 年 5 月 22 日現在

研究種目：基盤研究 (C)
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19540377
 研究課題名 (和文) デラフォサイト型三角格子磁性体における磁気フラストレーションと誘電分
 研究課題名 (英文) Magnetic frustration and electric polarization in triangular lattice magnet with Delafossite structure

研究代表者
 満田 節生 (Mitsuda Setsuo)
 東京理科大学・理学部 物理・准教授

研究成果の概要：

ノンコリニアな磁気構造が電気分極を誘起するマルチフェロイック物質として交差相関物性研究の場で興味を持たれ始めたデラフォサイト結晶構造を持つ酸化物CuFeO₂における自発電気分極の起源の解明を目指した。強誘電相の磁気構造、偏極中性子回折によるスピンヘリシティと分極の対応関係、放射光 x 線解析による格子変調等を調べることにより、ノンコリニアなスピン対によるスピン流が作り出す誘導電場により電気分極が起こるスピン流モデルではなく、同じくスピン軌道相互作用に起因する機構であるが、有馬により提案された、metal-ligand 間の *d-p* hybridization に起因する機構が、酸化物CuFeO₂では本質的であることを明らかにした。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007 年度	1800000	540000	2340000
2008 年度	1700000	510000	2210000
年度			
年度			
年度			
総計	3500000	105000	4550000

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：強相関系, マルチフェロイックス

1. 研究開始当初の背景

磁性と強誘電性が共存した物質系 (multiferroics) は磁場による電気分極の制

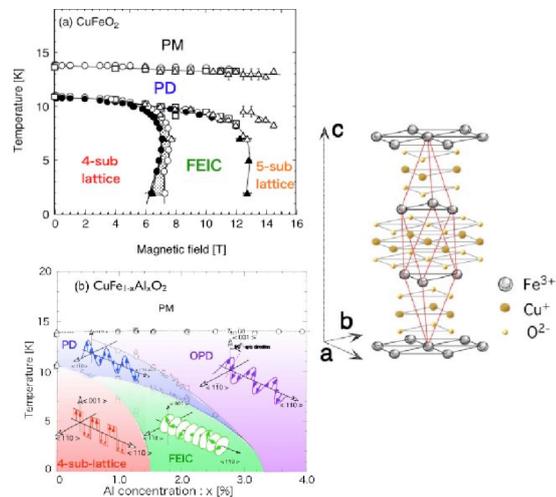
御や 電場による磁化の制御の可能性を持つ機能性物質群として、新しいエレクトロニクス開拓の視点ばかりでなく交差相関物性の基礎物理的研究の視点からも注目が集まり始め

ていた。それまでは、いわゆる磁性誘電体では交換磁歪を交差相関の起源とするものが主であったが、近年、長周期の磁気構造に伴った自発電気分極を示す系 (T. Kimura et al.) が見いだされ、N. Nagaosaらのグループにより交差相関の新しい起源として「スピン流モデル」(H. Katsura et al.)が提唱された。これは、螺旋磁性に見られる不整合磁気構造をなすスピンの隣接する(exchange-pathにより結ばれている)スピンとなすnon-collinearityにより生成されるスピン流により(固体のなかでenhanceされた)電磁気学効果として作られる局所電場により電気分極が局所的に引き起こされるものであり、「Aharonov-Casher effect enhanced in solid」と位置づけられ興味深い。磁気フラストレーション系は、スピン縮退を解くためにnon-collinear磁気構造がスピン自由度だけで実現するため、DM相互作用の逆過程を通して格子系に空間反転対称性の破れを引き起こす「スピン流モデル」を適用できる交差相関物性研究を行なう対象として興味深く、そのような視点で、活発な研究がTbMnO₃等で進んでいた (T. Arima et al.)。

2. 研究の目的

本研究の舞台となるデラフォサイト結晶構造を持つ酸化物CuFeO₂は、Fe³⁺磁性イオンがなす三角格子面がc軸に積層した三角格子反強磁性体であり、そのスピンフラストレーションに起因する多彩な磁気秩序相が磁場誘起・微量希釈誘起され、さらには磁気弾性効果を通して各磁気秩序相に応じた格子歪みが生じる系である。2006年に、基底状態4sub相から第1磁場誘起相として出現する強誘電相が発見されてから、ノンコリニアな磁気構造が電気分極を誘起するマルチフェロイック物質として交差相関物性研究の場

も興味を持たれ始め、従来の交換磁歪の機構に加え、提唱されたスピン流の機構も念頭に置き、この系の交差相関の起源の解明を目指し研究を開始した。



3. 研究の方法

本研究は、(1) 中性子回折実験による第1磁場誘起相および微量希釈誘起された強誘電相の磁気構造の解明 (2) 放射光x線回折実験による電気分極の出現に伴う1 Qmおよび2 Qmの伝搬波数を持つ格子変調の探査 (3) 電場によるスピンhelicityの制御の偏極中性子回折による検証を行い、強い磁気フラストレーションを持つ三角格子酸化物磁性体CuFeO₂におけるスピン自由度、格子自由度の結合に起因する誘電性について、その交差相関の起源の解明を目指した。

4. 研究成果

磁気フラストレーション系である三角格子酸化物磁性体CuFeO₂における磁気秩序が駆動する強誘電性の発現機構の解明を目的として研究を開始し、

(1) CuFeO₂の磁場誘起強誘電相の探査を高磁場〜40 Tまで拡張し[論文6]、強誘電相は磁場誘起されるばかりでなく、微量希釈により誘起されることを明らかにし[論文8]、

さらに、この磁気構造がスピントカレントモデルで必要とされるサイクロイド型ではなく、プロパーヘリカル型であることを明らかにし[論文7]、この系における交差相関機構が、代表物質TbMnO₃を良く説明するスピントカレントモデルではない別種のものである可能性を示唆した。

(2) 交換磁歪でもスピントカレントモデルでもない第3のスピントカレント-分極結合の微視的機構が有馬[T. Arima: JPSJ 76(2007)073702]により提唱されたが、そこで予言されている性質 (i) スピントカレントモデルではサイクロイドらせん軸と垂直方向に分極が誘起されることと対照的に、プロパーヘリカル構造の[110]らせん軸と平行に分極ベクトルが生じること、(ii) スピントカレントヘリシティに対応して分極ベクトルの極性も反転することを、JRR3での偏極中性子回折実験により確かめた。[論文5]

(3) さらに、有馬による理論的考察により指摘されていた「誘起される局所的な電気双極子はマクロな電気分極Pを与える一様な成分ばかりでなく2q, 4qの波数で変調されている成分を持つ」ことを、SPRING-8放射光x線により探査し、磁気弾性効果を通して誘起される2q格子変調[論文4]と区別が可能で、有馬の理論的考察に固有な2q変調を観測した。[論文3]

以上により、ノンコリニアなスピントカレントによるスピントカレントが作り出す誘導電場により電気分極が起こるスピントカレントモデルではなく、同じくスピントカレント軌道相互作用に起因する機構であるが、有馬により提案された、metal-ligand間のd-p hybridizationに起因する機構が、酸化物CuFeO₂では本質的であることを明らかにした。

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 8 件)

(1) Evidence for large electric polarization from collinear magnetism in TmMnO₃, V. YuPomjakushin, M Kenzelmann, A Dönni, A B Harris, T. Nakajima, S. Mitsuda, M Tachibana, L Keller, J Mesot, H Kitazawa and E Takayama-Muromachi, NEW JOURNAL OF PHYSICS, 11(2009), 043019,

(2) Ga-substitution-induced single ferroelectric phase in multiferroic CuFeO₂, N. Terada, T. Nakajima, S. Mitsuda, H. Kitazawa, K. Kaneko, and N. Metoki, PHYSICAL REVIEW B, 78(2008)014101

(3) Identification of microscopic spin-polarization coupling in the ferroelectric phase of magnetoelectric multiferroic CuFe_{1-x}Al_xO₂, Taro Nakajima, Setsuo Mitsuda, Toshiya Inami, Noriki Terada, Hiroyuki Ohsumi, Karel Prokes, and Andrei Podlesnyak, PHYSICAL REVIEW B, 78, 024106

(4) Field-Induced Incommensurate Lattice Modulations in the Delafossite CuFeO₂, Noriki Terada, Setsuo Mitsuda, Yoshikazu Tanaka, Yoshikazu Tabata, Koichi Katsumata, Akiko Kikkawa, J.P.S. JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN, 77(2008), 054701

(5) Electric polarization induced by a proper helical magnetic ordering in a delafossite multiferroic CuFe_{1-x}Al_xO₂, T. Nakajima, S. Mitsuda, S. Kanetsuki, K. Tanaka, and K. Fujii, N. Terada, M. Soda, M. Matsuura and K. Hirota, PHYSICAL REVIEW B, 77(2008)052401

(6) Dielectric Polarization Measurements on the Antiferromagnetic Triangular Lattice System CuFeO₂ in Pulsed High Magnetic Fields, Hiroyuki Mitamura, Setsuo Mitsuda, Shunsuke Kanetsuki, Hiroko Aruga Katori, Toshiro Sakakibara, and Koichi Kindo, JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN, 76(2007)094709

(7) Spin Noncollinearity in Multiferroic Phase of Triangular Lattice Antiferromagnet CuFe_{1-x}Al_xO₂ Taro Nakajima, Setsuo Mitsuda, Shunsuke Kanetsuki, Karel Prokes, Andrei Podlesnyak, Hiroyuki Kimura and Yukio Noda, JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN, 76(2007)043709

(8) Field-induced ferroelectric state in frustrated magnet CuFe_{1-x}Al_xO₂, S Kanetsuki, S Mitsuda, T Nakajima, D Anazawa, H A Katori and K Prokes, JOURNAL OF PHYSICS-CONDENSED MATTER, 19(2007)145244

〔学会発表〕(計 9 件)

4 軸中性子回折と 3 次元中性子偏極解析を相補的に用いたマルチフェロイック Cu(Fe, Ga)O の磁気構造解析
中島多朗, 満田節生, 高橋慶一郎, 吉富啓祐, 寺田典樹, 北澤英明, 松田雅昌, 加倉井和久, 野田幸男, 木村宏之, 日本物理学会, 2009 年 3 月 28 日

マルチフェロイック CuFeO₂ のスピン分極結合における非磁性不純物効果, 中島多朗, 満田節生, 山野元義, 山崎裕恵, 左右田稔, 松浦直人, 廣田和馬, Karel Prokes
日本物理学会, 2009 年 3 月 27 日

Electric polarization memory effect in a magnetoelectric multiferroic CuFe_{1-x}GaxO₂, Setsuo Mitsuda, Taro Nakajima, Motoyoshi Yamano, Keiichirou Takahashi, Hiroe Yamazakia, Kazuya Masudaa, Yoshiaki Kanekoa, Noriki Terada, Karel Prokes, Klaus Kiefer, PNCMI2008, 2008 年 9 月 1 日 ~ 9 月 5 日

プロパーヘリカル磁気秩序により誘起される電気分極に固有な格子変調, 満田節生, 中島多朗, 稲見俊哉, 寺田典樹, 大隅寛幸, K. Prokes, A. Podlesnyak
第二回トピカルミーティング「フラストレーションとマルチフェロイクス」, 2008 年 6 月 6 日 ~ 6 月 7 日

マルチフェロイック CuFe_{1-x}AlxO₂ の強誘電相に固有な格子変調の探査, 中島多朗, 満田節生, 稲見俊哉, K. Prokes, 日本物理学会, 2008 年 3 月 23 日

三角格子反強磁性体 CuFe_{1-x}AlxO₂ の焦電測定 2, 高橋慶一郎, 山野元義, 伊藤竜成, 岩本隼輔, 兼古佳明, 吉田幸彦, 中島多朗, 満田節生, 日本物理学会, 2008 年 3 月 23 日

マルチフェロイック CuFeO₂ (プロパーヘリカル磁気秩序により誘起される電気分極), 満田節生, 中島多朗, 第一回トピカルミーティング「フラストレート新規物質」, 2008 年 1 月 11 日

マルチフェロイック CuFeO₂ の微量希釈誘起強誘電相における異方的な自発分極の磁場変化
満田節生, 中島多朗, 金築俊介, 三田村裕幸, 榊原俊郎, 金道浩一, 日本物理学会, 2007 年 9 月 24 日

プロパーヘリカル磁気構造を持つマルチフェロイック CuFe_{1-x}AlxO₂ における自発電気分極とスピンヘリシティの相関, 中島多朗, 満田節生, 金築俊介, 田中響子, 藤井航介, 寺田典樹, 左右田稔, 松浦直人, 廣田和馬, 日本物理学会, 2007 年 9 月 24 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者 満田 節生

(2) 研究分担者 なし

(3) 連携研究者 なし

(4) 研究協力者

本研究の申請時には「連携研究者」の項目はなく、研究協力者として

- 三田 村裕幸; 東京大学 物性研究所
- 寺田 典樹; 物材機構 (申請時の 2007 年度は理化学研究所[播磨研究所])
- Karel Prokes; ドイツ Helmholtz-Zentrum Berlin
- 中島 多朗; 東京理科大学 大学院生 (満田研究室)

を挙げた。

よって、「主な発表論文等の連携研究者には下線」に準じて、これらの研究協力者に下線を付けた。