

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 5 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800189

研究課題名(和文)パルス強磁場を用いた電気磁気効果の研究と新規電気磁気効果材料の探索

研究課題名(英文) Study of magnetoelectric effect in pulsed high magnetic field and exploration of novel magnetoelectric materials

研究代表者

赤木 暢 (Akaki, Mitsuru)

大阪大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：60610904

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：室温での巨大な電気磁気効果など実用化に対し有利な振る舞いを示すオケルマナイト物質において、パルス強磁場下での物性測定を軸にした実験から、その効果の機構・発現条件の解明を目的としたものである。研究対象のCa₂CoSi₂O₇は、250K以下の低温では、通常のオケルマナイト構造の3倍の超格子構造を持つことが知られていた。本研究により、超格子構造の対称性としてはP21212の方が妥当であるという結果を得た。また、1.4Kでの強磁場磁化過程において新奇の磁化プラトー状態を観測した。

研究成果の概要(英文)：The magnetic and dielectric properties of akermanite were investigated in pulsed high magnetic fields. In magnetic fields along the c-axis, Ca₂CoSi₂O₇ shows a magnetization plateau in a wide field range below saturation. Magnetization processes for fields along the a- and b-axes show multiple anomalies and different traces, indicating the breaking of four-fold symmetry. Measurements of the magnetoelectric effect exhibit changes in electric polarization depending on changes in the spin system. The experimentally determined quadratic magnetoelectric tensor is consistent with that expected in the crystal symmetry of orthorhombic P21212.

研究分野：固体物理

キーワード：マルチフェロイクス 反強磁性 誘電性 磁性 電気磁気効果

1. 研究開始当初の背景

近年、大きな電気磁気効果として TbMnO₃ における磁場誘起電気分極フロップが発見された。これを契機に、様々な物質で巨大な電気磁気効果が観測され基礎・応用両面から注目を集めている。巨大な電気磁気効果を示す物質群は、磁気秩序と分極秩序が同時に発現し相関していることからマルチフェロイックの一分野として盛んに研究が進められ、微視的には横滑り螺旋磁性などといった特殊な磁気構造が電気分極を誘起している機構(磁気誘起電気分極モデル)から理解できることがわかってきた。しかしながら、磁気構造や結晶構造が複雑であることもあり、上述した磁気対称性を考えた電気磁気テンソルとの比較研究は困難である。さらに、実用化に向けた研究は、あまり発展しているとは言えない。その原因の一つは、上記した横滑り螺旋磁性など特殊な磁気構造を発現する場合、磁気転移温度が下がってしまう事が多いことである。実用化には、「室温で大きな ME 効果を示す物質」の探索が必要であり、実際多くの研究者が螺旋磁性をキーワードに新物質探索を行っているが、実用に耐えうる物質の発見には至っていない。

そこで、新物質探索の鍵としてオケルマナイト構造を持つ物質でみられる特異な電気磁気効果に注目した。オケルマナイト物質は、磁気転移温度以上の常磁性状態においても磁場印加により電気分極が発現するため、磁気転移温度に左右されず動作できるという利点がある。また、室温においても高い絶縁性を示す。この他にも他の物質比べ多くの特異な点が見受けられることから基礎的にも重要な研究対象である。

2. 研究の目的

種々のオケルマナイト物質の合成を行い、パルス強磁場を用いた実験を軸にした物性測定からオケルマナイト物質の電気磁気効果の機構・発現条件の解明を目的とした。

3. 研究の方法

実験に用いた単結晶試料は浮遊帯域溶融法(FZ法)を用いて作成した。これらは、粉末X線解析から良質な単結晶であることを確認した後、Laue法により結晶軸の切り出しを行った。誘電率・電気分極・磁化・比熱などの物性を定常磁場及びパルス磁場下で測定した。

4. 研究成果

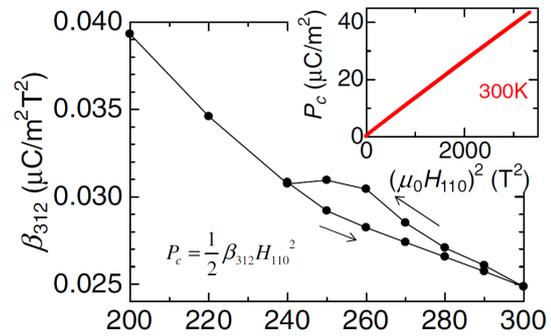


図 1. Ca₂CoSi₂O₇ における電気磁気効果テンソル β_{312} の温度依存性

Ca₂CoSi₂O₇ では、結晶格子の整合 - 不整合相転移が 250K 付近に見られ、低温では通常のオケルマナイト構造の 3 倍の超格子構造を持つことが知られている。この相の結晶の対称性は、過去の構造解析の研究から 2 種類(正方晶 $P-4$ と斜方晶 $P2_12_12$)のものが報告されている。本研究では、この 2 種類の構造に対し、それぞれの 2 次の電気磁気効果テンソルを考え、2 次の電気磁気効果の発現する磁場と電気分極の配置を予想し、測定結果と比較して低温での結晶の対称性の決定を試みた。実験は、まずパルス強磁場中で試料を回転することのできる $\Phi 10\text{mm}$ の回転プローブを非金属材料で作成した。非金属材料を用いることでパルス強磁場発生時の誘導電流による発熱の影響を排除できる。これを用い 200K において ab 面内で様々な方向の磁場印加を行い、 c 軸方向の電気分極の振る舞いを観察した。その結果、低温の対称性としては斜方晶の $P2_12_12$ の方が妥当であるということがわかった。

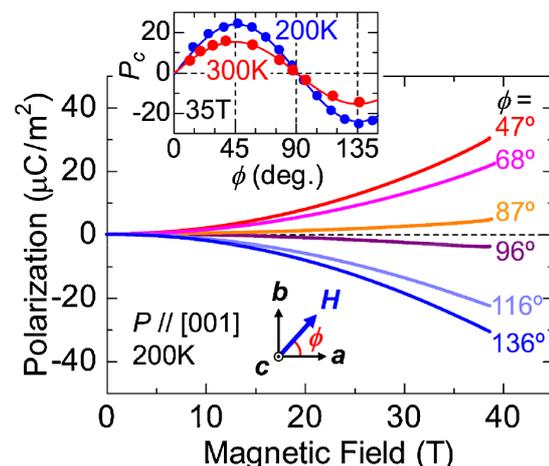


図 2. Ca₂CoSi₂O₇ における電気分極の磁場依存性

さらに、磁気転移温度 5.7K 以下の 1.4K

での強磁場磁化過程の観察から磁場を a 軸方向に印加した場合と b 軸方向に印加した場合とで異なっていることがわかった。このことから正方晶の $P-4$ ではなく斜方晶の $P2_12_12$ を考えたほうが自然である。さらに、構造相転移温度前後で磁場誘起電気分極を精密に測定することで、構造変化に伴う電気磁気効果係数 β_{312} ($P_c = \beta_{312} H_{110}^2$) の変化も観測することができた。

また、この研究に際し開発したパルス磁場下での試料回転が可能なプローブは、 BiFeO_3 におけるマルチフェロイック特性の研究にも利用され、新しい電気分極成分の発見やその機構解明に役立っている。

さらに、パルス強磁場を用いた 75T までの磁化測定から、磁場を c 軸方向に印加した場合に 18~50T の広い範囲で磁化プラトーが観測された。プラトー内での磁化の大きさは、飽和磁化の 85% 程度になっており、その磁気状態を想像することは困難であるため、今後の研究により明らかにしていく。

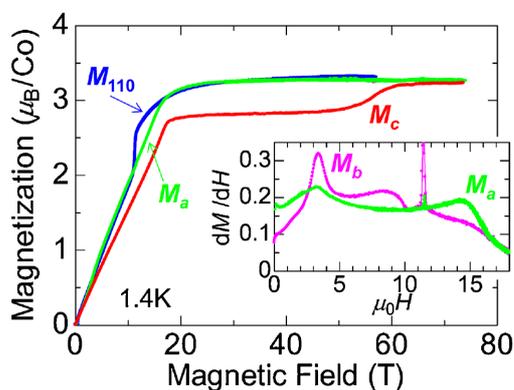


図3. $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ における強磁場磁化過程

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)

M. Tokunaga, M. Akaki, T. Ito, S. Miyahara, A. Miyake, H. Kuwahara, and N. Furukawa:

"Magnetic control of transverse electric polarization in BiFeO_3 ",
Nature Communications **6**, 5878 (2015).
査読有

M. Akaki, H. Kuwahara, A. Matsuo, K. Kindo, and M. Tokunaga:

"Successive Magnetic Transitions of

$\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ in High Magnetic Fields",
Journal of the Physical Society of Japan
83, 093704-1-4 (2014). 査読有

[学会発表](計8件)

M. Akaki, A. Okutani, D. Yoshizawa, H. Kuwahara, and M. Hagiwara:

「Magnetic properties of quasi one-dimensional antiferromagnet $\text{BaCo}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ 」

『20th International Conference on Magnetism (ICM2015)』

2015年7月、Barcelona, Spain

M. AKAKI, Y. AOKI, D. YOSHIZAWA, A. OKUTANI, and M. HAGIWARA

「High-field magnetic properties of åkermanite $(\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ single crystals」

『11th International

Conference "Research in High Magnetic Fields" (RHMF2015)』

2015年7月、Grenoble, France

赤木暢:

「パルス強磁場を用いた電気磁気特性」

『キラル物性研究拠点および日本学術振興会先端拠点形成事業「スピニラリティを軸にした先端材料コンソーシアム」共同研究会 キラル物性トピカルミーティング』

2015年4月、広島大学

梶原凌, 仁科康佑, 小田涼佑, 赤木暢, 桑原英樹:

「 ABaM_4O_7 ($A=(\text{Ca}, \text{Y})$, $M=(\text{Co}, \text{Fe})$) 単結晶における電気磁気特性」

『日本物理学会第70回年次大会』

2015年3月、早稲田大学

赤木暢, 奥谷顕, 吉澤大智, 桑原英樹, 萩原政幸:

「一次元磁性体 $\text{BaCo}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ の強磁場磁化過程」

『日本物理学会第70回年次大会』

2015年3月、早稲田大学

青木勇磨, 赤木暢, 吉澤大智, 奥谷顕, 萩原政幸:

「 $(\text{Ca}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ の磁気異方性」

『強磁場科学研究会「強磁場が切り拓く物質科学のフロンティア」』

2014年12月、大阪大学

赤木暢, 奥谷顕, 吉澤大智, 桑原英樹,
萩原政幸:

「一次元磁性体 $\text{BaCo}_2\text{Si}_2\text{O}_7$ の強磁場
物性」

『強磁場科学研究会「強磁場が切り拓
く物質科学のフロンティア」』

2014年12月、大阪大学

赤木暢, 小濱芳允, 桑原英樹, 松尾晶,
金道浩一, 徳永将史:

「 $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ 結晶の強磁場磁化過程と
電気磁気特性」

『日本物理学会第69回年次大会』

2014年3月、東海大学

赤木暢, 小濱芳允, 桑原英樹, 徳永将
史:

「 $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ の強磁場磁化過程」

『東京大学物性研究所 短期研究会「極
限強磁場科学 - 場、物質、プローブの
リンクから融合へ」』

2013年10月、東京大学物性研究所

6. 研究組織

(1) 研究代表者

赤木 暢 (AKAKI, Mitsuru)

大阪大学・理学研究科・助教

研究者番号: 60610904