

マルチフェロイック物質 RMn_2O_5 における圧力誘起磁気秩序と誘電性

研究代表者名

東北大学・多元物質科学研究所・木村宏之

研究分担者名

東北大学・多元物質科学研究所・野田幸男, 福永守, 東北大学・大学院理学研究科・坂本勇馬

1. はじめに

マンガン酸化物 RMn_2O_5 (R は Bi, Y, 希土類) は巨大な電気磁気効果を示す物質として知られ、盛んに研究されている。この物質の特徴は、強誘電性と反強磁性が共存し、その秩序変数が互いに強く結合しており、R サイトを様々な希土類元素に置き換える事で多彩な磁気誘起誘電性 (磁場印加による電気分極の増大, 減少, 向きの 90 度回転等) を示す事である。この系では長周期磁気秩序が起これ、その磁気伝播ベクトルの温度変化と強誘電電気分極の変化と密接に関係している。しかし、強誘電性と反強磁性が微視的にどのように結びついているのか、即ちスピンと電気分極 (原子変位) の相互作用の起源はまだ明らかにされていない。

2. 研究経過

これまでの研究で、磁場誘起誘電転移は、磁気相転移によって引き起こされる事が分かって来た。この系は結晶構造に起因する多数の競合する磁気相互作用が存在する。その為複数の磁気基底状態がエネルギー的に拮抗し、複雑な磁気相転移を示す。前年度の研究で、圧力により $HoMn_2O_5$ の磁気相転移が制御でき、その結果誘電相転移が誘起される事を見いだした。今年度は物理的圧力の代わりに、元素置換による化学的圧力を用いて、この系の磁性と誘電性がどのように変化するかを調べた。選んだ物質は $YMn_{2-x}Ga_xO_5$ である。Ga 置換量の異なる数種類の単結晶を育成し、中性子回折と誘電分極測定を行い、磁性と誘電性の Ga 置換相図を明らかにした。(図 1 参照)

3. 研究成果とまとめ

YMn_2O_5 は単位格子内に Mn^{3+} と Mn^{4+} のサイトが独立して存在し、それぞれのスピンの相互作用し合って磁気的なフラストレーションが生まれ、温度の低下とともに長周期磁気秩序が逐次的に起こる。本研究で $YMn_{2-x}Ga_xO_5$ の中性子結晶構造解析を行った結果、 Mn^{3+} サイトのみが Ga^{3+} イオンに置換されている事が分かった。 Ga^{3+} は非磁性イオンである事から、Ga 置換により Mn^{3+} サイトのスピンの希釈される。東北大学金属材料研究所所有の中性子三軸分光器 AKANE を用いて $YMn_{2-x}Ga_xO_5$ における磁気伝播ベクトルの測定を行った結果、Ga 置換が進むにつれて、中間温度で現れる格子整合磁気秩序相が抑制され、Ga 置換濃度 0.12 付近で完全に消失する事が分かった。この相では大きな電気分極が現れる事から、この相の強誘電発現において、 Mn^{3+} サイトのスピンの重要な役割を担っている事が分かった。来年度の共同利用では、この系の磁気構造を明らかにして、強誘電相発現に最も重要な磁気相互作用が何かを明らかにしたい。

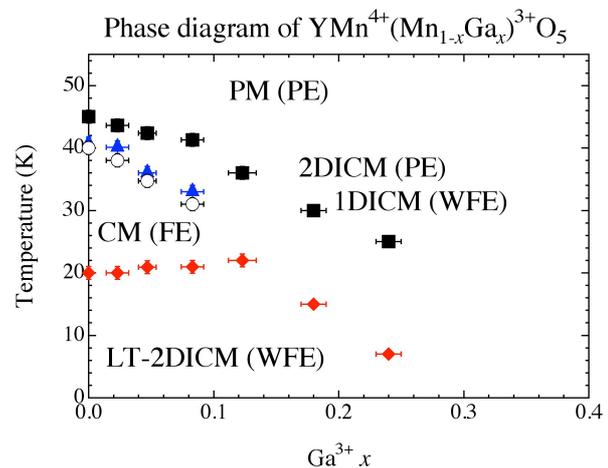


図 1: $YMn_{2-x}Ga_xO_5$ の Ga 濃度依存性の磁性—誘電性相図。図中の略称は PM:常磁性相, 2DICM:二次元変調格子不整合磁気相, 1DICM:一次元変調格子不整合磁気相, CM:格子整合磁気相, LT-2DICM:低温二次元変調格子不整合磁気相, PE:常誘電相, WFE:弱強誘電相, FE:強誘電相に対応。

研究課題名

電荷揺らぎを持つ幾何学的スピンプラストレーション系のスピンの励起と格子振動の中性子散乱研究

研究代表者名

富安啓輔

東北大学 大学院理学研究科 物理学専攻

研究分担者名

藤田全基

東北大学 金属材料研究所

1. はじめに

幾何学的スピンプラストレーション系は新奇な常磁性相を引き出す概念として非常に興味を持たれている。プラストレート系では正三角形や正四面体に基づく原子配置がスピン基底状態に巨視的な縮退を引き起こすため、向きの自由度だけを持つ古典スピン近似は破綻する。その結果、系内のプラストレーションを解消するために何らかの特別な現象や機構が具現化すると期待されている。

これまで絶縁体についてはかなりの研究が行われて来たが、電気伝導を示す幾何学的プラストレーション系はまだあまり理解が進んでいない。しかし、例えば YMn_2 や LiV_2O_4 が重い電子（ゾンマーフェルト係数は数 100 倍）を示すこと、 AlV_2O_4 が七量体スピン三重項という特殊現象を示すかもしれないことが報告されている。おそらくスピン系のプラストレーションを解消するため、電荷の自由度に著しい影響をもたらした結果だと思われる。そこで、本研究では、キャリアドーブを行った幾何学的スピンプラストレーション系の中性子散乱に向けた萌芽研究を行った。

2. 研究経過

(A) 絶縁体ではあるが、キャリアドーブに伴う置換試料の実験に関する感触をつかむべく $(\text{Zn}_{1-x}\text{Co}_x)\text{Cr}_2\text{O}_4$ の合成、磁化測定、中性子実験を行った [K. Tomiyasu *et al.*, *JPSJ* **78**, 084704 (2009)]。

(B) 伝導体であることが期待される $(\text{Zn}_{1-x}\text{Ge}_x)\text{Co}_2\text{O}_4$ の合成を試みた。

(C) 別の導電性プラストレート系の調査を行った。

3. 研究成果

(A) 本固溶体のエンドメンバーである ZnCr_2O_4 は典型的な幾何学的スピンプラストレート現象であるスピン分子というスピン相関を示し、もう一方のエンドメンバーである CoCr_2O_4 は円錐らせん型の磁気構造を示すので、両者のスピン相関を関係づけることは難しいように思われる。しかし、実験の結果、磁化と中性子回折パターンが共に系統的な系統を示すこと、特に、Zn ドープによってらせん型スピン相関がスピン分子から螺旋へ徐々に変化することを発見した。

(B) 今のところ固溶体が合成できていない。通常の固相反応法に加え、FZ 法による融解合成も試みたが、X 線回折プロファイルが ZnCo_2O_4 と GeCo_2O_4 の重ね合わせになってしまう。

(C) 大型単結晶の育成が可能な金属間化合物 Mn_3Pt を探し出すことに成功した。弾性散乱成分と準弾性散乱成分の測定から、すでに強い幾何学的スピンプラストレート系であることが証明されている。しかし、スピンプラストレート系で最も重要と期待されるスピン揺らぎの全体像、すなわち幅広い (\mathbf{Q}, E) 空間の非弾性散乱成分が未だ測定されていない。

4. まとめ

スピネルにおいて A サイト置換がプラストレーション研究に有効な手法であることを実証した。しかし同時に、固溶体が出来やすい系とそうでない系が存在することも明らかとなった。来年度は、合成条件の工夫と、新たな金属間化合物 Mn_3Pt とその周辺物質の研究を進めて行く予定である。