



磁性体で「スピнкаイラリティ」由来の強誘電性を立証

—磁性と強誘電性を併せ持つ

—多機能性材料開発に新しい道筋—

1. 発表者：

三田村裕幸（東京大学物性研究所 助教）
綿貫竜太（横浜国立大学大学院工学研究院 特別研究教員）
金子耕士（日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究センター 研究副主幹）
小野崎紀道（横浜国立大学大学院工学府 元大学院博士課程前期学生）
天羽祐太（横浜国立大学大学院工学府 元大学院博士課程前期学生）
橋高俊一郎（東京大学物性研究所 助教）
小林理気（東京大学物性研究所 特任研究員）
志村恭通（東京大学物性研究所 特任研究員）
山本 勲（横浜国立大学大学院工学研究院 教授）
鈴木和也（横浜国立大学大学院工学研究院 教授）
榊原俊郎（東京大学物性研究所 教授）

2. 発表のポイント：

- ◆磁性体においてスピнкаイラリティ（図1）に由来する強誘電性（注1）を観測することに成功
- ◆従来の理論では説明できない全く新しいメカニズムによるマルチフェロイック（注2）
- ◆省エネルギーの次世代型メモリや新規の光学デバイスの開発へ

3. 発表概要：

鉄イオンなどの磁性イオンは1つ1つが小さな磁石（スピン）としての性質を持ちます。3つの磁性イオンが正三角形の頂点に配置され、お互いのスピンが反対を向こうとする力が働けば、互いに120度だけ傾いた方向を向いている状態が安定になります（図1）。これには2通りの状態があり、この違いを磁性体ではスピнкаイラリティと呼んでいます。しかしながらこの性質を物質において観測することは、理論が提唱されてから約30年の間実現されていない未解決問題でした。

東京大学物性研究所の三田村裕幸助教と榊原俊郎教授、横浜国立大学大学院工学研究院の綿貫竜太特別研究教員、日本原子力研究開発機構量子ビーム応用センターの金子耕士研究副主幹らは、磁性体において「スピнкаイラリティ」に由来する強誘電性が現れることを、横浜国立大学のパルス強磁場（注3）発生装置と米国オークリッジ国立研究所の広角中性子回折装置（注4）を用いて初めて明らかにしました。これは、スピнкаイラリティが物質の機能として現れた初めての例であり、従来の理論では説明できない全く新しいメカニズムによるものです。

本研究の成果は、省エネルギーの次世代型メモリや新規の光学デバイスの開発につながると期待されます。本成果の詳細は、Physical Review Letters（10月3日付け）に掲載されます。

4. 発表内容：

① 研究の背景・先行研究における問題点

鉄イオンなどの磁性イオンは、1つ1つが小さな磁石（スピン）としての性質を持ちます。3つの磁性イオンが正三角形の頂点に配置した時、お互いのスピンの向きが反対を向こうとする力（反強磁性相互作用）が働くと、三角形の3つの頂点の間でその作用は三つ巴に拮抗し、最終的には互いに120度だけ傾いた方向を向いている状態（120度スピン構造）が安定になります（図1）。このとき、磁性イオンを右回りに順に数えるとスピンの向きが「右回り」になる場合と「左回り」になる場合の2通りの状態ができます。この違いは「スピンのカイラリティ」と呼ばれており、磁性体では重要な概念の一つです。しかしながら、この性質を物質において観測することは、1980年代中頃に東京大学の宮下精二教授らによって理論が提唱されてから、約30年もの間実現されていない未解決問題でした。

② 研究内容

東京大学物性研究所の三田村裕幸助教と榊原俊郎教授、横浜国立大学大学院工学研究院の綿貫竜太特別研究教員、日本原子力研究開発機構量子ビーム応用センターの金子耕士研究副主幹らのグループは、正三角形を敷き詰めた格子（完全三角格子）の頂点に磁性イオン（3価の鉄イオン）が配置された構造を持つ物質、モリブデン酸鉄（III）ルビジウム $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ （図3）の強誘電性に注目しました。ただし、この物質ではスピンのカイラリティと同時に、らせん的なスピン構造によるスピンヘリシティ（平面上だけでなく、らせん階段のようにらせん型にスピンが配置する場合の、スピンの右回り・左回りの違い、図2）の要素も併せ持ち、どちらもこの強誘電性の起源である可能性がありました。同グループは中性子散乱日米協力事業に基づいて、オークリッジ国立研究所（ORNL）の広角中性子回折装置（WAND）において実験を行い、 $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ のスピンのヘリシティが3.8テスラ（注5）という磁場の値に達したときに不連続に変化していることを見いだしました。同時に横浜国立大学のパルス強磁場発生施設において、三田村助教らが日本で初めて開発した手法で電気分極（注6）測定を行い、3.8テスラという磁場においても電気分極はほとんど連続的であることを確認しました（図4）。これにより、この物質の強誘電性はスピンヘリシティとは関係がなく、むしろスピンのカイラリティに由来するものであることが明らかになりました。これらの測定結果は、スピンのカイラリティを物質の特性として初めて観測した例であり、本研究で明らかになった強誘電性を引き起こすメカニズムは従来の理論では説明できない全く新しい機構によるものです。

さらに、この現象が現れるのは反強磁性相互作用を持った完全三角格子（完全三角格子反強磁性体、注7）の中でもごく一部の結晶構造に限られており、同グループは実験だけでなくその発生条件も理論的に明らかにしました。

③ 社会的意義・今後の予定

磁性と強誘電性の性質を併せ持つマルチフェロイック物質は、磁場で電気分極を制御したり、電場で磁化を制御したりできることから、低消費電力で高速で働く機能性電子材料として近年大変期待されており、新物質が盛んに探索されています。本研究により明らかになったスピンのカイラリティの特性はマルチフェロイックの新たなメカニズムとして、多機能性材料や電子デバイスの開発に新しい道筋を示すものです。その1つは電気による磁気記録書き込み技術への応用で、省エネルギーの次世代型メモリの開発への可能性が広がります。また、ある条件のもとでマルチフェロイック物質の表から裏に光を通したときと裏から表に光を通したときでは光

の透過率が異なる性質（方向2色性）がありますが、この物質では磁場によりこの方向2色性を連続的に制御できると考えられるので新しい原理による光スイッチなどの光学デバイスへの応用の可能性も大いに期待されます。

本成果の詳細は、Physical Review Letters（10月3日付け）に掲載されます。

5. 発表雑誌：

雑誌名：「Physical Review Letters」（10月3日付け）

論文タイトル：Spin-Chirality-Driven Ferroelectricity on a Perfect Triangular Lattice Antiferromagnet

著者：H. Mitamura*, R. Watanuki*, K. Kaneko, N. Onozaki, Y. Amou, S. Kittaka, R. Kobayashi, Y. Shimura, I. Yamamoto, K. Suzuki, S. Chi, and T. Sakakibara

アブストラクト URL： <http://journals.aps.org/prl/accepted>

6. 注意事項： 特になし

7. 問い合わせ先：

東京大学物性研究所 助教 三田村裕幸

E-mail: mitamura@issp.u-tokyo.ac.jp

Tel/Fax.: 04-7136-3248

横浜国立大学大学院工学研究院 特別研究教員 綿貫竜太

E-mail: ryu-wat@ynu.ac.jp

Tel/Fax.: 045-339-3965

日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究センター 研究副主幹 金子耕士

E-mail: kaneko.koji@jaea.go.jp

Tel: 029-282-6830

Fax.: 029-282-5939

東京大学物性研究所 教授 榊原俊郎

E-mail: sakaki@issp.u-tokyo.ac.jp

Tel/Fax.: 04-7136-3245

8. 用語解説：

（注1）強誘電性

外から電場をかけなくても自発的に電気分極（注6）が生じる性質のこと。

（注2）マルチフェロイック

スピンの規則的配列（磁気秩序）による磁気特性と、強誘電性（注1）を併せ持つ性質。

（注3）パルス強磁場

大容量のコンデンサー群に電気を貯め、その貯めた電気をコイルに瞬間的に放電して大電流を流すことで、極めて短い時間だけ発生する非常に強い磁場。パルス強磁場は瞬間的ではあるが、超伝導電磁石に電流を流すことで発生する磁場に比べて、より強い磁場を発生させることができる。

(注4) 中性子回折

中性子線がもつ波の性質を利用し、結晶内で規則的に並んだ原子核やスピンの配列（構造）を決める手法。中性子はスピンをもつことから、スピンの規則的配列（磁気構造）の決定に用いられる。

(注5) テスラ

磁場（厳密には磁束密度）の単位。1テスラ（=1万ガウス）は地磁気の約2～3万倍。

(注6) 電気分極

電気を通さない絶縁体を電場の中に置くと、それぞれの原子や分子中の電子が、クーロン力（静電気力）を受けて電場とは逆の方向に引き寄せられる。結果として、絶縁体の電場方向の面は正電荷に、逆の面には負電荷に偏る。この電荷の偏りの大きさを電気分極という。

(注7) 完全三角格子反強磁性体

原子やイオンが正三角形の頂点に配置され、その正三角形で平面を埋め尽くした結晶格子を完全三角格子と呼ぶ。完全三角格子に磁性イオンが配置され、それぞれの隣り合う磁性イオンのもつ微小磁石（スピン）の間に互いに反対を向こうとする力（反強磁性相互作用）が働く磁性体を、完全三角格子反強磁性体と呼ぶ。

9. 添付資料：

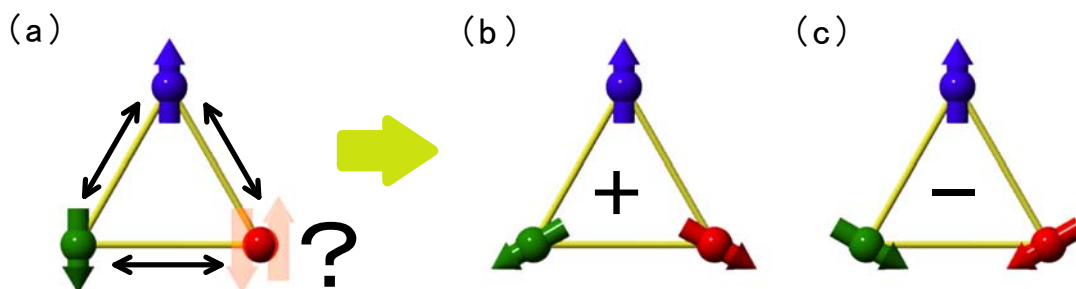


図1 正三角形上のスピンの状態。それぞれのスピンの間には互いに反対向きにしようとする力（反強磁性相互作用）が働いている。(a)それぞれのスピンが上か下の2方向しか向けられない場合。青と緑のスピンの向きが決まっても、残りの赤のスピンは上下どちらを向いていいかわからない。(b)(c)スピンのどの方向を向いても良いとする場合。互いに反対向きにしようとする力が三つ巴に拮抗するため、隣接するスピンが120度だけ傾いた状態が安定になる。この状態は2つある。正三角形の頂点について右回りに順にスピンを見た場合の (b)の「右回り」に120度傾いているプラス状態と、(c)の「左回り」に120度傾いたマイナス状態である。このプラスとマイナスの違いをスピнкаイラリティと呼ぶ。

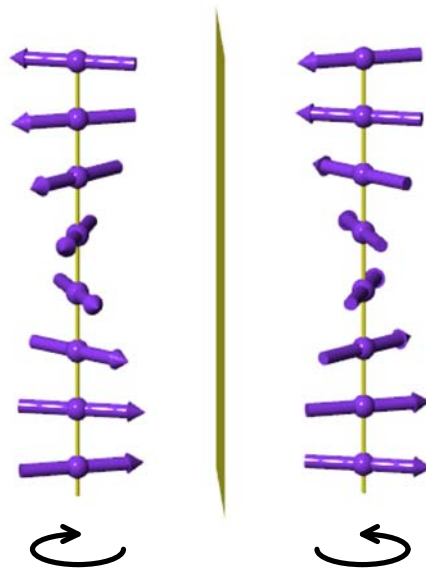


図2 直線上のらせん的なスピンの配置。ネジと同じく進行方向に対し(a)左回りと(b)右回りがあり、この違いをスピンヘリシティと呼ぶ。

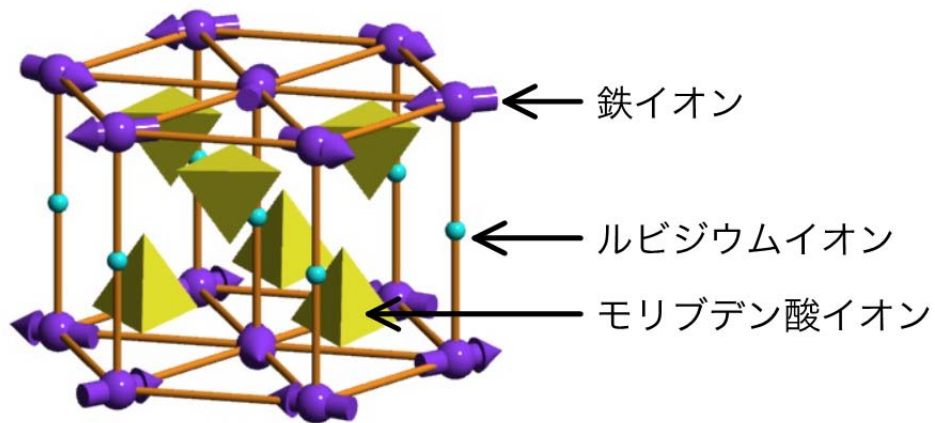


図3 モリブデン酸鉄 (III) ルビジウム $\text{RbFe}(\text{MoO}_4)_2$ の結晶構造。3 価の鉄イオンが正三角形で平面を埋め尽くした完全三角格子を形成しており、これが磁性を担っている。絶縁体である。

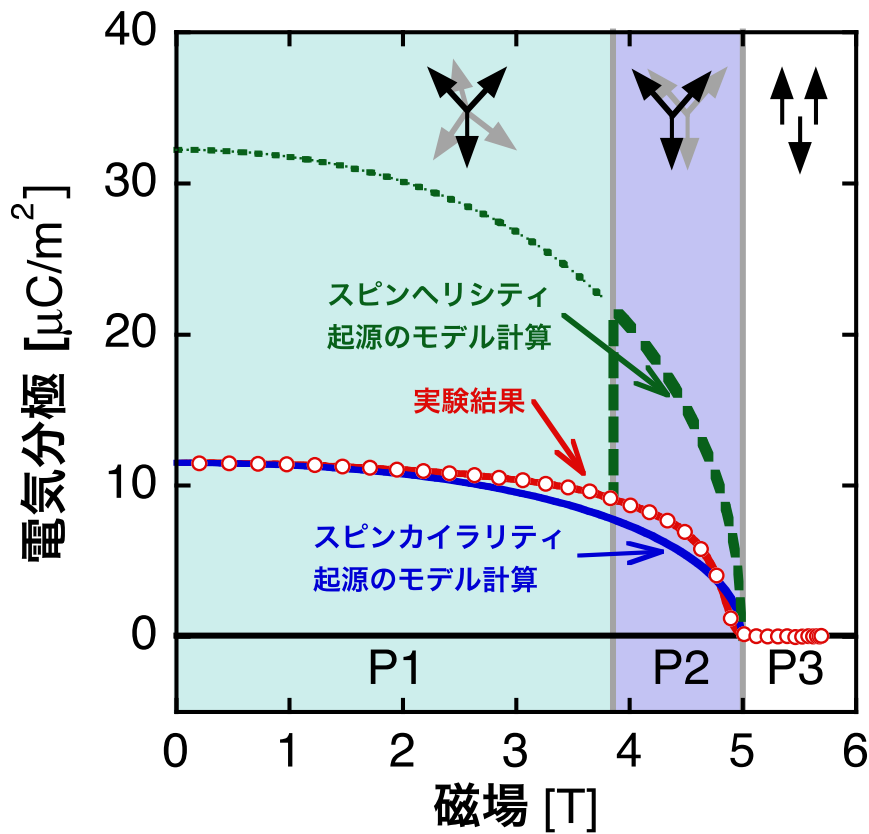


図4 電気分極の磁場による変化。図上部の矢印はある磁場の強さでのスピンの状態を示し、重なり合う黒と灰色の矢印は上下に隣り合う2つの面の間を示す。同じスピン状態である磁場の領域を「相」と呼び、図ではP1相からP3相を表示している。P1相(水色)からP2相(紫色)へスピンの状態が変化する際に、実験結果の電気分極の磁場による変化は連続的に変化している。電気分極の起源をスピンヘリシティで説明するモデル計算(スピンヘリシティ起源のモデル計算)は大きな跳びがあり実験結果を説明できないが、電気分極の起源をスピンのカイラリティで説明するモデル計算(スピンのカイラリティ起源のモデル計算)は実験結果を良く再現する。従ってこの実験結果はスピンのカイラリティの振る舞いを直接反映したものと言える。