# マルチフェロイック物質におけるスピン・ネマティック相互作用の観測

中性子科学研究施設 左右田 稔、益田 隆嗣

## 研究の背景と経緯

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。[1-4] その中で、二次元反強磁性体  $Ba_2CoGe_2O_7$ 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。[5]

Ba2CoGe2O7では、磁性を担う CoO4四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・ハミルトニアンの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)  $O_{XY} = S^XS^Y + S^YS^X$  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  $O_{XY} = S^XS^Y + S^YS^X = \cos(2\kappa)\{S^XS^Y + S^YS^X\} - \sin(2\kappa)\{(S^X)^2 - (S^Y)^2\}$  間の相互作用[6]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 2(c) 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。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 2(b)のように異方性軸は<2(c)のように、2(c)のようにく110>方向となり、強誘電的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。

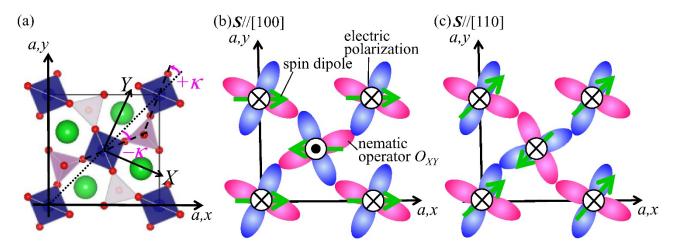


図 1 (a) Ba<sub>2</sub>CoGe<sub>2</sub>O<sub>7</sub>の結晶構造。(b),(c) Co サイトにおける磁気異方性、電気分極、およびスピン・ネマティック演算子の関係。

#### 実験結果

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。 $0.1\,\mathrm{meV}$  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  $-J_\mathrm{p}^\mathrm{eff} \Sigma \mathrm{Oxy}(i)\mathrm{Oxy}(j)$ 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  $J_\mathrm{p}^\mathrm{eff} =0.198~\mu\mathrm{eV}$ 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 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。  $J_p^{\rm eff}=0.198 \mu {\rm eV}$  とした場合の T=0 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。

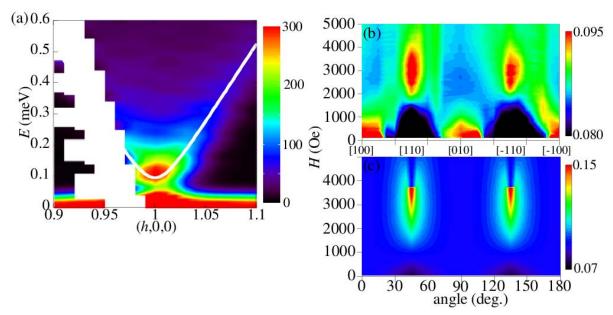


図 2 (a) Q=(1,0,0)近傍での中性子非弾性散乱強度マップ。 白線は、スピン・ネマティック相互作用を考慮したモデル計算を示す。 (b) c 面内における静磁化率の方向依存性の実験結果。 (c) c 面内における静磁化率の方向依存性の計算結果。

## 今後の展開

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、 $Ba_2CoGe_2O_7$ 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<100>方向を向く状態が実現している。ここでもし、<001>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、<110>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<100>方向を向いた状態と<110>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。

なお、本研究の詳細な内容は、M. Soda, M. Matsumoto, M. Månsson, S. Ohira-Kawamura, K. Nakajima, R. Shiina, and T. Masuda, Phys. Rev. Lett. **112**, 127205 (2014).で閲覧することができます。

### 謝辞

本研究成果は、松本正茂教授(静岡大学)、椎名亮輔准教授(新潟大学)、Martin Månsson 博士(PSI)、河村聖子博士(日本原子力研究開発機構)、中島健次博士(日本原子力研究開発機構)との共同研究によるものです。また、Andrey Zheludev 教授(ETH)、Severian Gvasaliya 博士(ETH) から中性子実験等において有益なコメントを頂きました。本研究の一部は、文科省科研費(24340077, 20740171, 24740224, and 23540390)の支援を受けて行われました。

#### 参照文献

- [1] T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima and Y. Tokura. Nature 426, 55-58 (2003).
- [2] S. Seki, Y. Onose and Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. 101 067204 (2008).
- [3] H. Katsura, N. Nagaosa, & A. V. Balatsky. Phys. Rev. Lett. 95, 057205 (2005).
- [4] C. Jia, S. Onoda, N. Nagaosa, & J. H. Han. Phys. Rev. B 76, 144424 (2007).
- [5] H. Murakawa, Y. Onose, S. Miyahara, N. Furukawa, & Y. Tokura. Phys. Rev. Lett. 105, 137202 (2010).
- [6] J. Romhányi, M. Lajkó, & K. Penc. Phys. Rev. B 84, 224419 (2011).