

完全三角格子反強磁性体におけるスピнкаイラリティの巨視的観測

新物質科学研究部門 三田村 裕幸、榊原 俊郎

【研究の背景】

3つのスピンの正三角形の頂点に配置した状態で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(a)-(b))。このときスピンの面内容易性を持つならば、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нкаイラリティ」と呼ばれており、スピンフラストレーションの分野では古くから重要な概念の一つです。(一方で、らせん磁性体におけるスピンの右回り・左回りの違いは「スピンヘリシティ」と呼んで区別しています(図1(c)-(d))。)正三角形を辺共有で敷き詰めた格子(完全三角格子)においてもやはり隣同士のスピンの向きが120度だけ傾いた状態が安定で、このときも2通りの状態(図1(e)-(f))ができることが予想されていてその違いもやはりスピнкаイラリティと呼んでいます[1]。しかしながら、この2通りの状態の違いを実際の物質において巨視的に観測することは、本学大学院理学研究科の宮下精二先生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。

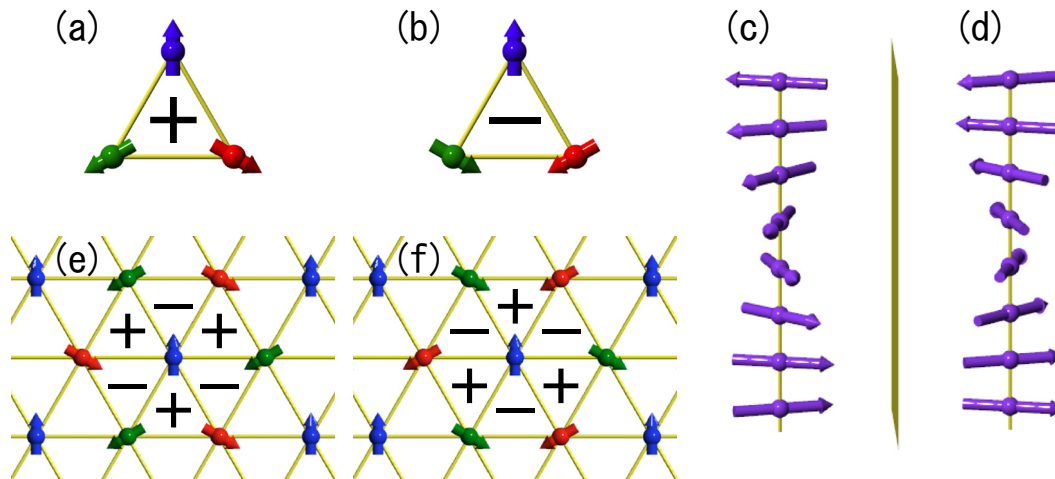


図1 スピнкаイラリティとスピンヘリシティ。三角クラスター反強磁性体のスピнкаイラリティの(a)正と(b)負の状態。らせん磁性のスピンヘリシティの(a)左巻きと(b)右巻きの状態。完全三角格子反強磁性体のスピнкаイラリティの(e)正と(f)負の状態。

近年、磁性由来の強誘電性を示すいわゆるマルチフェロイック物質の研究が盛んに行なわれています。その出発点となったスピнкаレント機構[2]による電気分極の表式がスピнкаイラリティの表式と類似していたため、当初から電気分極測定によって完全三角格子のスピнкаイラリティの観測が可能であるかもしれないと指摘されていました。しかしながらスピнкаレント機構で発生する電気分極は完全三角格子全体で和をとると消えてしまうため、この機構による観測は実現には至りませんでした。一方でスピнкаレント機構とは別のスピнкаイラリティ類似の電気分極発現機構があることもデラフォサイト化合物等の研究で判ってきました[3-5]。デラフォサイト化合物のひとつ CuCrO_2 は三角格子反強磁性体のマルチフェロイック物質として知られています[5]。残念なことにこの物質はスピンの回転面が三角格子面と平行でないため3回対称が破れてしまいます。そうすると「格子が歪んだことで分極が現れたのではないか」との指摘に反駁するのが容易でなくなります。またスピン間のなす角も必然的に120度からずれてきてしまい[6]、「理想的な三角格子反強磁性体の基底状態」とも言い難くなります。



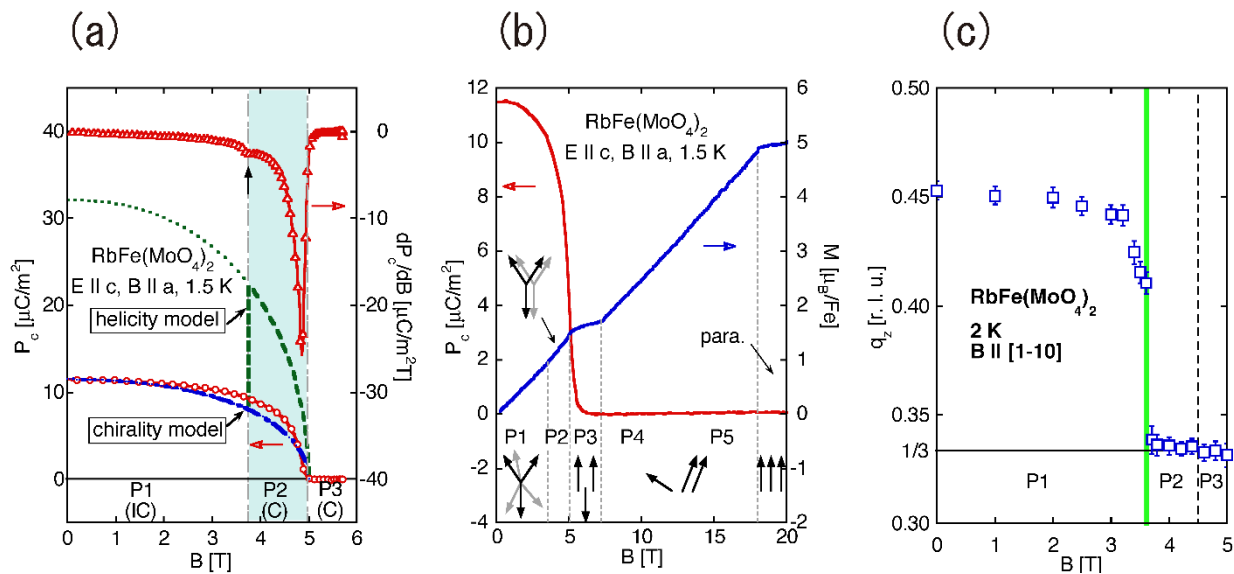


図 3 (a)低磁場側での磁場掃引による電気分極測定の結果。微分で見ると P2-P3 相境界では大きな変化があるが P1-P2 相境界の変化は非常に小さい。電気分極の起源をスピンヘリシティで説明するモデル計算は大きな跳びがあり実験結果を説明できないが、電気分極の起源をスピカイラリティで説明するモデル計算は実験結果を良く再現する。従ってこの実験結果はスピカイラリティの振る舞いを直接反映したものとと言える。(b)高磁場側までの磁場掃引による電気分極と磁化の測定結果。磁化は平坦部である P3 相を除いて飽和直前まで線形的な増加を示す。有限な大きさの電気分極が現れるのは P1, P2 相のみで P3~P5 相には電気分極は現れない。P1, P2 相⇒低磁場ノンコリニア相、P3 相⇒中間コリニア相、P4, P5 相⇒高磁場ノンコリニア相と読み替えれば、2 次元ハイゼンベルグ三角格子反強磁性体の磁場中でのスピカイラリティの理論予想による振る舞いと良く一致している。(c)定常磁場中中性子散乱実験による q_z の磁場依存性の測定結果。P1-P2 相境界で q_z が不連続的に変化している一方で、P2-P3 相境界には目立った異常はない。

我々の実験では P1-P2 相境界では電気分極に大きな跳びは無くほとんど連続的であることが確認されました(図 3(a)) [14]。これにより、この物質の強誘電性は q_z すなわちヘリシティとは関係がなく、むしろカイラリティに由来するものであると我々は結論づけました。2 次元ハイゼンベルグスピン三角格子反強磁性体の基底状態は 120 度スピンを保ったままでも面内スピンの回転自由度があります。この物質は 2 次元性が比較的良好いため、P1-P2 相境界ではカイラリティと磁化は大きな異常を示さず、面内スピンの回転の初期位相(すなわち積層の仕方)だけが大きく変化していると理解して良さそうです。従ってこれらの測定結果は、120 度スピン構造のカイラリティを巨視的に観測した初めての例といえます。我々は、加えて磁化が飽和する磁場までの電気分極測定を行ないました(図 3(b))。その結果、電気分極が現れるのは P1 相と P2 相のみで P3~P5 相には自発電気分極がないことが明らかになりました。これは、低磁場ノンコリニア相はカイラリティが有限で、中間コリニア相と高磁場ノンコリニア相ではカイラリティが消失しているとの川村先生らの理論予測 [11] を実験的に初めて示したことになります。

ここまでの結果をまとめ、2014 年 2 月、PRL に投稿したところ、2 名のレフェリー双方から「過去の中性子散乱の実験では P1-P2 相境界に異常は出ておらず、 q_z の跳びはむしろ P2-P3 相境界にあるのではないか」とのコメントが返って来ました。特に 1 人のレフェリーには、“the authors have made a significant mistake in understanding previous literature” とまで書かれました。様々な状況証拠から我々の結論に自信はありましたが、これでは反論しても埒があかないと考え、急遽我々は単結晶試料を用いた定常磁場中中性子散乱実験を行なって q_z の磁場依存性を確認することにしました。その結果、P1-P2 相境界で q_z が不連続的に大きな変化をしていて P2 相と P3 相の境界では変化が無いことを見いだしました(図 3(c)) [14]。これは前述の中性子散乱の結果 [7] を否定し NMR の結果 [12] と整合するものです。この結果はカイラリティが強誘電性の主たる起源であることを決定づけるものでした。新しい中性子実験の結果を含めて再投稿したところ、2014 年 10 月 1 日付けで無事掲載されました。

