

CRYOPAD によるマルチフェロイック CuFeO₂ の磁気相転移の探査Investigation of magnetic phase transition of Multiferroic CuFeO₂ by CRYOPAD

満田 節生¹⁾ 金子 周史¹⁾ 吉富 啓祐¹⁾ 中島 多朗¹⁾、
 Setsuo MITSUDA Chikafumi KANEKO Keisuke YOSHITOMI Taro NAKAJIMA
 寺田 典樹²⁾ 脇本 秀一³⁾ 武田 全康³⁾ 加倉井 和久³⁾
 Noriki TERADA Shuichi WAKIMOTO Masayasu Takeda Kazuhisa KAKURAI

¹⁾ 東京理科大学 ²⁾ 物材機構 ³⁾ 原子力機構

(概要)

近年、磁性や誘電性等における複数の秩序が一つの物質の中に共存するマルチフェロイックス（多重強秩序系）と呼ばれる物質群が、磁場による電気分極の制御や電場による磁化の制御といった交差相関を持つ機能性物質群として、応用ばかりでなく基礎物理の視点からも盛んに研究されるようになってきている。その中でも特に強磁性と強誘電性の偶発的な共存状態と明確に区別されるべき、磁気秩序が系の反転対称性を破ることにより強誘電性を創出する「スピン誘導型強誘電体」と呼ばれる新型のマルチフェロイックスに興味が集まっている。Delafossite 結晶構造を持つ三角格子反強磁性体 CuFeO₂ は、d-p 軌道混成機構が本質的であると考えられるスピン誘導型強誘電体であるが、同時に磁気フラストレーションの解消に格子の自由度を巻き込むスピン・格子系であるため、比較的低い一軸応力により磁気秩序を経由した、言わば磁気ピエゾ効果と呼ぶべき電気分極の応力制御が可能な交差相関が期待できる系である。本研究は、我々が CuFeO₂ の強誘電相で見いだした、一軸応力により 10% 程度の電気分極の増大を示す磁気ピエゾ効果が、強誘電性を生み出している螺旋磁気構造のどのような変化から生じているかを解明する一連の研究のなかで、磁気構造のスピン方位に関して詳細な情報を与える CRYOPAD 3 次元偏極解析実験を行ったものである。

キーワード : Spin frustration、Multiferroic、CuFeO₂、Polarimetry under the uniaxial stress

1. 目的

(概要) で述べた背景に沿って、以下の (1) ~ (3) を目的として実験を行った。

- (1) CuFe_{1-x}GaxO₂ with x=0.035 試料を用いて、基底状態として実現する強誘電相の一軸応力下での磁気構造（特に楕円性の変化、磁気伝播軸に対するらせん面の傾き）の変化の探査
- (2) CuFe_{1-x}GaxO₂ with x=0.018 試料を用いて、一軸応力により初めて低温相側に誘起された強誘電相（大局的には螺旋磁気構造）の磁気構造の詳細決定
- (3) CuFe_{1-x}AlxO₂ with x=0.05 試料を用いて、これまで探査が残っていた「微量希釈誘起されるオブリーク部分無秩序 (OPD) 相」の磁気構造の詳細決定

2. 方法

TAS-1 分光器において CRYOPAD を用いた三次元偏極中性子解析実験を行った。一軸応力装置については自前のもを持ち込み、5 MPa の小さな固定バイアス応力を室温から印可し、散乱実験でアクセスできる (110) 磁気ドメインの体積分率をほぼ偏らせて、三方晶に起因する磁気（誘電）ドメインの再分配にみられるような「磁気ドメイン構造」の変化の効果を排除し、その上で、低温で 100MPa 程度まで可変一軸応力を加算して、応力変化を調べた。

3. 研究成果

(1) $\text{CuFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_2$ with $x=0.035$ 試料を用いて、基底状態として実現する強誘電相の一軸応力下での磁気構造（特に楕円性の変化、磁気伝播軸に対するらせん面の傾き）の変化の探査を行ったが、これらの磁気構造パラメータには実験精度のなかで変化は見られなかった。この変化が見られなかった結果は、螺旋磁気構造における位相の遅れパラメータの応力変化に敏感な別の中性子回折実験と組み合わせて議論することにより、概要で述べた磁気ピエゾ効果の起源が、磁気構造自身の変化ではなく、むしろd-p混成機構に置けるcoupling constantの応力変化に由来することを示唆する結果を得ている。

(2) $\text{CuFe}_{1-x}\text{Ga}_x\text{O}_2$ with $x=0.018$ 試料を用いて、一軸応力により初めて低温相側に誘起された強誘電相（大局的には螺旋磁気構造）の磁気構造の詳細決定を行ったが、応力誘起された螺旋磁気構造は楕円率が1.04程度の横長であり、 $x=0.035$ 試料の基底状態として現れる楕円率 ~ 0.93 の縦長螺旋磁気構造とは異なることがわかった。

(3) 微量希釈誘起される OPD 相については、以前に行った四軸回折実験よりも詳細に、かつ低温まで調べることができ、確かに傾いたコリニア-sin 波変調構造が最低温度まで存在し続けることがわかった。この結果から OPD 相は PD 相のようにエントロピー効果の産物ではないことが明らかになったが、微量希釈により初めて誘起されるこの磁気相の正体はまだわかっていない。

4. 結論・考察

CRYOPAD 3次元偏極解析実験は、中性子スピンのスピノールとしての自由度を最大限に活用した中性子散乱技術であり、試料の磁気モーメントの大きさを評価することはできないが、散乱前後の中性子スピン状態を詳細に測定することでスピン配列などの磁気構造を調べることができ、既知の磁気構造の相対的な変化（応力変化や温度変化など）を調べるには非常に強力な装置であると言え、本実験においてもこれらの特性を活用できたと考えている。さらには、実験（1）において偏極度 Matrix 要素に現れる (q,q,L) 反射と $(0.5-q,0.5-q,L)$ 反射の系統的な変化の違いを見いだしており、共鳴 x 線回折実験において示唆されている Fe サイトの電荷再配分を考慮した2種類の磁気サイトを前提とした磁気構造を現在考察中である。

5. 引用(参照)文献等