

マルチフェロイック TmMn_2O_5 , YbMn_2O_5 の磁場誘起分極フロップ

Magnetic Field Induced Polarization Flop in Multiferroic TmMn_2O_5 and YbMn_2O_5

東北大・多元研 福永守, 坂本勇馬, 木村宏之, 野田幸男, 阿部伸行, 谷口耕治, 有馬孝尚
東北大・金研 高橋弘紀

M. Fukunaga¹, Y. Sakamoto¹, H. Kimura¹, Y. Noda¹, N. Abe¹, K. Taniguchi¹, T. Arima¹, K. Takahashi²

¹Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

²Institute of Material Research, Tohoku University

1. はじめに

(反)強磁性秩序と強誘電性秩序が結合している、磁場により電気分極や誘電率が大きく変化するような物質はマルチフェロイック物質と呼ばれている。TbMnO₃[1] や MnWO₄[2]など、いくつかのマルチフェロイック物質では、磁場により電気分極の向きが 90 度変化する、磁場誘起分極フロップ現象が発見されている。この現象は、基礎研究としての興味だけでなく、電場による分極の 180 度反転と、磁場による分極の 90 度フロップを組み合わせ、4つの状態をもつメモリなどへの応用が考えられて、注目されている。

希土類(R)マンガン酸化物 RMn_2O_5 は、反強磁性秩序と強誘電性が結合したマルチフェロイック物質として知られている。いくつかの R について、誘電率の異常は斜方晶の *b* 軸方向にしか見られないと報告されていたことから、これまで RMn_2O_5 の分極は *b* 軸方向にしか見れないものとして研究されてきた。しかし、我々は最近、 TmMn_2O_5 のゼロ磁場での磁気相転移に伴い、約 5 K 以下で *b* 軸方向の分極が消えると共に *a* 軸方向に分極が現れる、90 度分極フロップ現象を発見した[3]。一方、 TmMn_2O_5 の *c* 軸方向への磁場印加による相転移と、それによる *b* 軸方向の分極の変化が既に報告されており[4]、その磁場誘起相転移が分極フロップに対応していると予想された。

そこで我々は、低温で TmMn_2O_5 の *c* 軸に磁場を印加することにより、分極が *a* 軸方向から *b* 軸方向にフロップする、TbMnO₃ と同様な磁場誘起分極フロップが起こると予想し、実験を行った。また、 YbMn_2O_5 についても同様に、ゼロ磁場で温度変化による分極フロップを最近発見したことと、磁場印加による分極変化が既に報告されていた[5]ことから、同様な分極フロップが起こると予想し、同様な実験を行った。

2. 実験方法

フラックス法で作製した TmMn_2O_5 と YbMn_2O_5 単結晶について、磁場中での誘電率・分極測定を、強磁場超伝導材料研究センターの 15T-SM マグネットを用いて行った。それぞれの物質について、*b* 軸方向と *a* 軸方向に電極を付けた2つの試料を用意して、2つとも *c* 軸方向に磁場が印加されるようにマグネットに挿入し、磁場や温度を変化させつつ、一方の試料では LCR メータによる誘電率測定、もう一方ではピコアンメータによる分極測定を同時に行った。温度は 4.2 K から 50 K まで、磁場は 0 から 14.5 T までの範囲で測定を行った。

3. 実験結果

まず TmMn_2O_5 について、Fig. 1 にゼロ磁場での温度変化による分極フロップ(a)と、4.2 K における磁場誘起分極フロップ(b)の測定結果を示す。グラフの上が *a* 軸と *b* 軸それぞれの誘電率(ϵ_a , ϵ_b)、下がそれぞれの分極(P_a , P_b)の変化を示している。誘電率は変化が明確になるように、 ϵ_a と ϵ_b で縦軸を別々にして描いている。(a)では、ゼロ磁場で低温側で現れていた P_a が約 5 K 以上で消えると共に P_b が現れていて、それに応じて誘電率にも変化が見られる。(b)では、4.2 K で低磁場側で現れていた P_a が約 0.5 T 以上で消えると共に P_b が現れていて、分極も誘電率も(a)と全く同じように変化している。ただし、 ϵ_a の変化は ϵ_b の変化の 1/10 程度しかなく、他の RMn_2O_5 で同じような変化があったとしても、従来の研究では見落とされていたという可能性がある。

同様にして、 YbMn_2O_5 について測定した結果を Fig. 2 に示す。(a)では、ゼロ磁場で低温側で現れていた P_a が約 5.5 K 以上で消えると共に P_b が現れていて、それに応じて誘電率にも変化が見られる。(b)では、4.3 K で低磁場側で現れていた P_a が約 1.5 T 以上で消えると共に P_b が現れていて、分極も誘電率も(a)と全く同じように変化している。変化が起こる磁場、誘電率や分極の大きさは異なるが、定性的には TmMn_2O_5 と全く同じように変化している。

本実験により得られた温度-磁場相図を Fig. 3 に示す。磁場は *c* 軸方向である。(a)が TmMn_2O_5 、(b)が YbMn_2O_5 の相図である。どちらも挿入図は分極フロップが起こる範囲を拡大したもので、塗りつぶしの濃淡は P_a の大きさを示している。誘電率がピークとなる温度と磁場から相境界を決定し、中性子回折と誘電率・分極同時測定による磁気秩序状態と誘電性との対応[3]に合わせている。CM 相(格子整合磁気相)と FE 相(強誘電相)、LT-2DICM 相(低温2次元変調不整合磁気相)と WFE 相(弱い強誘電相)などが対応する。ただし TmMn_2O_5 の分極フロップについては、磁場中中性子回折実験により 1.5 K までの相境界が得られているため、それも描いている。 TmMn_2O_5 の分極フロップに関する相図は、Kohn らによる電気磁気効果の温度-磁場相図[4]と一致した。

磁場による変化について、他の RMn_2O_5 、例えば HoMn_2O_5 では約 10 T 以上で CM 相が誘起され分極が大きくなった[6][7]、 ErMn_2O_5 では約 2 T 以上で CM 相が抑えられて分極が小さくなった[6][8]のに対して、 TmMn_2O_5 も YbMn_2O_5 も分極フロップ以外には、誘電

率・分極とも 14.5 T まで目立った変化は見られなかった。分極フロップはかなり小さな磁場で起こっているが、ゼロ磁場で温度変化だけでも起こっていることから、R の違いによりフロップが起こりやすくなっているものと考えられる。相図全体を比較すると、 TmMn_2O_5 は CM/FE 相があるのに対して、 YbMn_2O_5 はその相がないという大きな違いがあるが、分極フロップは CM 相に関係なく、LT-2DICM 相だけで起こっていると考えられる。

4. まとめ

TmMn_2O_5 と YbMn_2O_5 について、温度変化に加えて磁場誘起による分極フロップ現象を発見した。これまで b 軸方向にしか現れないと思われていた分極が、 a 軸方向にも現れる場合があることが明らかになったため、他の RMn_2O_5 についても、改めてその可能性を探る必要がある。また、磁気構造解析などにより、 RMn_2O_5 の分極の発現やそのフロップ現象の微視的起源を明らかにす

ることも、今後の課題であるが、分極が b 軸方向だけでなく a 軸方向にも現れるという事実は、そのためにも有用である。

参考文献

- [1] T. Kimura *et al.*: Nature **426** (2003) 55.
- [2] K. Taniguchi *et al.*: Phys. Rev. Lett. **97** (2006) 097203.
- [3] M. Fukunaga *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **77** (2008) 094711.
- [4] M. Uga *et al.*: Ferroelectrics **219** (1998) 55.
- [5] Y. Koyata *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **65** (1996) 1383.
- [6] D. Higashiyama *et al.*: Phys. Rev. B **72** (2005) 064421.
- [7] H. Kimura *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **75** (2006) 113701.
- [8] H. Kimura *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **78** (2009) 034718.

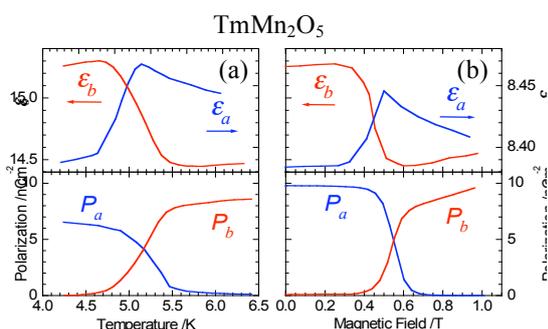


Fig. 1. (a) Temperature dependence in 0 T and (b) magnetic field dependence at 4.2 K of the permittivity ϵ_a and ϵ_b , and the polarization P_a and P_b of TmMn_2O_5 .

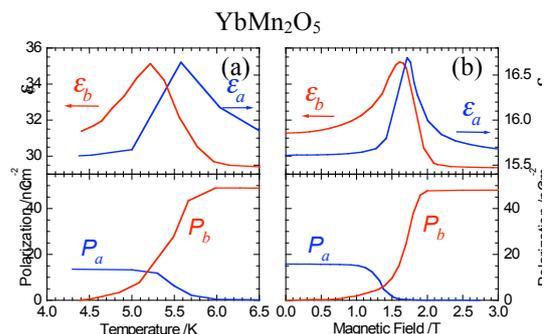


Fig. 2. (a) Temperature dependence in 0 T and (b) magnetic field dependence at 4.3 K of the permittivity ϵ_a and ϵ_b , and the polarization P_a and P_b of YbMn_2O_5 .

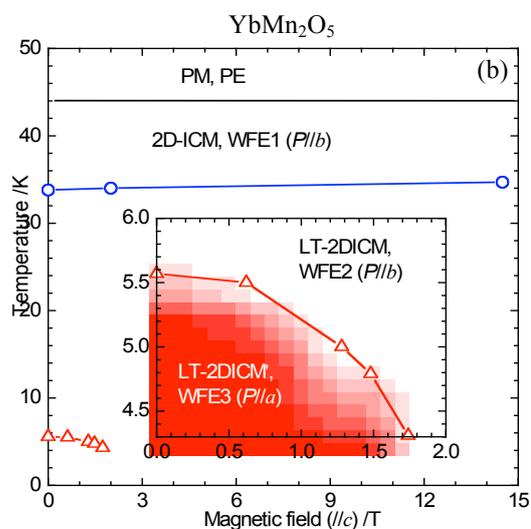
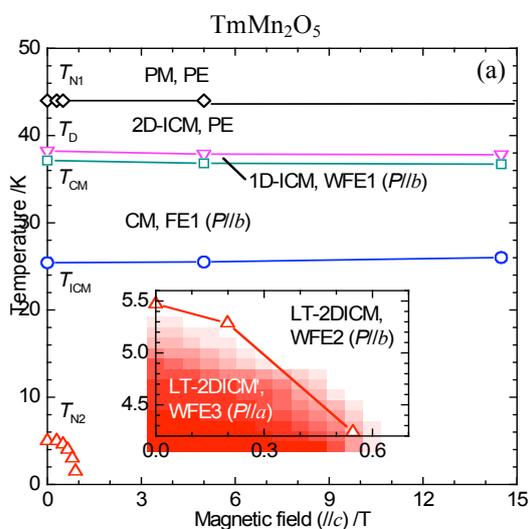


Fig. 3. Magnetic field-temperature phase diagrams of (a) TmMn_2O_5 and (b) YbMn_2O_5 . PM: paramagnetic, 2(1)D-ICM: two (one) dimensionally modulated incommensurate magnetic, CM: commensurate magnetic, LT-2DICM: low temperature 2D-ICM, PE: paraelectric, WFE: weak ferroelectric, FE: ferroelectric. The gradation of the shaded WFE3 phases in the insets indicates the magnitude of P_a .