

# 斜め磁場を用いた MnWO<sub>4</sub> の強誘電分極の反転

## Electric Polarization Reversal of MnWO<sub>4</sub> by Applying Canted Magnetic Fields

東北大学多元研 谷口耕治、阿部伸行、梅津浩志、有馬孝尚

東北大学金研 竹延大志、岩佐義宏

K. Taniguchi<sup>A</sup>, N. Abe<sup>A</sup>, H. Umetsu<sup>A</sup>, T. Arima<sup>A</sup>, T. Takenobu<sup>B</sup>, Y. Iwasa<sup>B</sup>

<sup>A</sup>Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University

<sup>B</sup>Institute for Material Research, Tohoku University

### 1. はじめに

近年、RMnO<sub>3</sub> (R=Gd,Tb,Dy), RMn<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (R=Dy,Ho,Er など), Ni<sub>3</sub>V<sub>2</sub>O<sub>8</sub>, MnWO<sub>4</sub> などの長周期磁気構造を有する遷移金属酸化物系において巨大な電気磁気効果が発見され注目されている[1-4]。特に斜方晶 RMnO<sub>3</sub> では希土類の種類、温度領域、磁場の方向や強さによって電気分極が生成、消失、90度回転、反転などの多彩な変化を示すことが報告されてきた。これらの効果には希土類とマンガンの磁気モーメントの相互作用が重要な働きをしていると考えられるが、その機構を明らかにするためには、希土類のない物質で類似の現象を探索する必要がある。

本研究では、磁性イオンが結晶学的に一種類のサイトにしか存在しない MnWO<sub>4</sub> について磁場相陰の途中で磁場の方位を変化させて電気分極の向きがどのように変えるかを調べた。MnWO<sub>4</sub> は図 1 に示すような結晶構造を持つ物質である。我々は、以前、この物質について、らせん磁気秩序相が b 軸方向に電気分極を併せ持つことと、b 軸方向の磁場印加によって電気分極が a 軸方向へと 90度回転することを報告した[4]。このらせん磁性相の電気分極発現機構は桂らが提唱したスピン配列由来の電気分極発現モデル

$$p \propto e_{ij} \times (S_i \times S_j)$$

で説明できる[5,6]。すなわち、方向ベクトル  $e_{ij}$  で記述されるような2つの隣り合う磁性サイト  $i$  および  $j$  を考える。2つのサイトのスピンモーメント ( $S_i, S_j$ ) が角度をもつとき、電気双極子モーメント  $p$  が発現するというものである。らせん磁性の場合、この電気双極子モーメントの総和が巨視的な電気分極となりうる。電気分極の 90度回転はスピンの回転軸 ( $S_i$

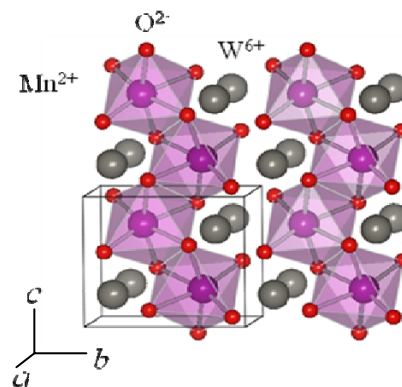


図 1 MnWO<sub>4</sub> の結晶構造

$\times S_j$ ) が  $e_{ij}$  を中心に回転した結果と捉えることが可能である。我々は、TbMnO<sub>3</sub> における電気分極の 90度回転の際には外部磁場の結晶主軸からの傾きが重要な因子となることも発見してきた[7]。しかし、その結果を解釈するためには、Tb の磁気モーメントがイジング的にふるまうことを考慮する必要があった。MnWO<sub>4</sub> で同様の実験を行うことで、電気分極の発現に直接関与しているマンガンのスピンに対する純粋な磁場効果を研究することができると考えられる。そこで、この物質の電気磁気効果と外部磁場方位依存性を調べることにした。

### 2. 実験方法

フローティングゾーン法により育成させた単結晶試料を(100)面に平行な板状に加工して、その両面に対向電極を設けた。この試料を試料回転機構付きの温度可変インサートに取り付けて、強磁場超伝導材料研究センターの 15T-SM 磁石の中で冷却した。両電極をフェムトアンペアメータ(Keithley 社)に接続しておき、電極と垂直方向の電気分極が変化する

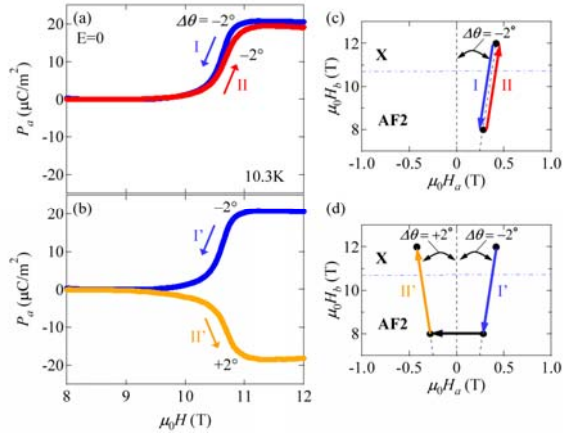


図2 MnWO<sub>4</sub>で(c)あるいは(d)のように磁場を掃引した時の a 軸方向の電気分極の変化をそれぞれ(a),(b)に示す[8]。

ときに流れる電流を記録する。それを時間について積分することで電気分極を測定することができる。低温での電気分極の値を磁場の強さと方向の関数として測定した。なお、磁場方位は c 軸と垂直な面内で回転させた。具体的には、図 2 (c),(d)に示すように、初めに b 軸から少し a 軸に傾いた方向の磁場と a 軸方向の電場を印加して、+a 方向に電気分極のそろった単ドメイン状態を作っておく。そこから、磁場を少し弱めて電気分極を b 軸方向に 90 度回転させ、その後、磁場の角度を変化させて再び磁場を強くしていった。この一連の過程で a 軸方向の電気分極の変化を観測した。

### 3. 結果と考察

図 2(a)および(c)に示すように、磁場方位を変えずに高磁場相から低磁場相へ移行し、再び高磁場相へ戻ると、電気分極の値はほぼ元通りになることが分かる。ところが、(b)および(d)に示した通り、行きと帰りの磁場の方位をわずかに 4 度ずらしただけで、電気分極が反転した。この振る舞いをさらに詳細に調べたものが図 3 である。電気分極フロップを起こす際の磁場方位の b 軸からのずれが +a 軸側か -a 軸側に依存していることが分かる。このような振る舞いを説明するためには、電気分極フロップという一次相転移での 2 相の境界 (90 度分域壁) の振る舞

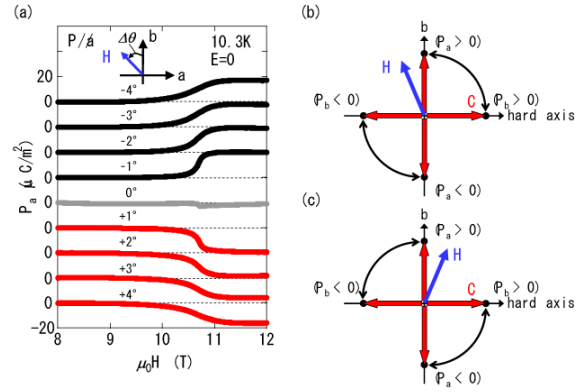


図3 P//a 相から $\Delta\theta=-2$ 度方向の磁場の掃引のもとで P//b 相へと転移させ、その後磁場方向を変化させて P//a 相へと再び転移させたときの電気分極の変化[8]。

いに着目する必要がある。すなわち、P//b の相と P//a 相はともにらせん磁性相であり、スピンらせん面の方向だけが異なると考えられる。このとき、90 度分域壁ではらせん面が 90 度回転することになる。斜め磁場のもとではらせん面の回転の正負によってエネルギーが異なることが期待される。したがって、生成エネルギーのより安定な分域壁が選択的に生成するだろう。その結果、斜め磁場のもとではその方向 ( $\Delta\theta$ ) に応じて電気分極が +90 度回転するか -90 度回転するかが決まると考えるのである。

### 参考文献

- [1] T. Kimura et al., Nature **426**, 55 (2003).
- [2] N. Hur et al., Nature **429**, 392 (2004).
- [3] G. Lawes et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 087205 (2005).
- [4] K. Taniguchi et al., Phys. Rev. Lett. **97**, 097203 (2006).
- [5] H. Katsura et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
- [6] H. Sagayama et al., Phys. Rev. **B77**, 220407R (2008).
- [7] N. Abe et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 227206 (2007).
- [8] K. Taniguchi et al., Phys. Rev. Lett. **101**, 207205 (2008).