

論文の内容の要旨

論文題目 Theoretical Studies on Spin and Electric Polarization in Helical Magnets

(和訳：らせん磁性体におけるスピンと電気分極の結合に関する理論的研究)

氏名 桂 法称

磁性体と強誘電体は、それぞれ固体物理学における主要な研究対象の一つであるが、従来の研究において磁性と強誘電性の共存する系、あるいはそれらの間の相関に関する研究はあまり行われてこなかった。その一つの大きな理由として、磁性かつ強誘電性を有する物質がほとんど存在しないことが挙げられる。また磁性と強誘電性の間の相関についても、電気磁気効果と呼ばれる外部磁場による電気分極の応答、あるいは外部電場による磁化の応答といった現象が、P. Curie によって 19 世紀末に予言されていたが、 Cr_2O_3 などの実際の物質においては非常に小さな効果としてしか観測されていなかった。しかし、近年になりマルチフェロイクスと呼ばれる磁性と強誘電性を兼ね備えた一連の物質群が相次いで発見されるようになった。これらの物質群の著しい特徴は、単に磁性と強誘電性の共存相が存在するだけでなく、それらの間に巨大な相関がある点である。また実験的には、これらの物質群の多くは磁氣的フラストレーションによりらせん磁気構造のような非共線的な構造を持つことが明らかになりつつある。これらの点を踏まえて、本博士論文ではフラストレーションにより実現されるらせん磁気構造と磁性と強誘電性の間の結合との関係を様々な観点から調べた。具体的には、(1) 磁気秩序により誘起される強誘電性の微視的理論、(2) マルチフェロイックらせん磁性体における新しい素励起、(3) 低次元マルチフェロイクスにおける量子揺らぎと磁気相転移、(4) 非整合らせん磁性体における電子状態の局在-非局在、に関する研究をおこなった。

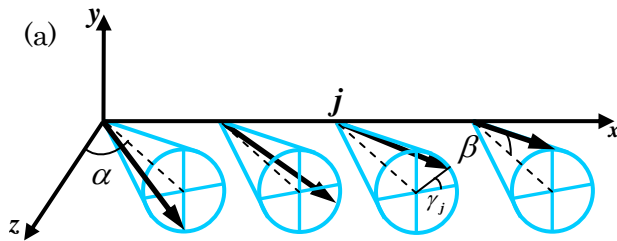
(1) 磁気秩序により誘起される強誘電性の微視的理論

従来の電気磁気効果に関する研究では、磁性と強誘電性の間の結合について群論を用いた現象論的な考察しか行われてこなかったが、本研究では量子論と相対論に立脚した微視的観点からこの結合を見直すことを試みた。磁場と電場がローレンツ変換により結び付いているのと同様に、物質中においてスピンと電気分極も相対論的効果であるスピン・軌道相互作用によって結び付いている。この点に着目して、 d, p 軌道からなる微視的なクラスターモデルにおいて、スピン・軌道相互作用を考慮することによって、磁気秩序のみが反転対称性を破っている場合にも有限の電気分極が発生することを示した。こ

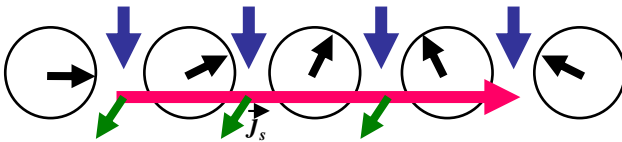
のときクラスターにおける2つのスピン (\vec{S}_i, \vec{S}_j) と電気分極 (\vec{P}) の間の関係は、

$\vec{P} \propto \vec{e}_{ij} \times (\vec{S}_i \times \vec{S}_j)$ で与えられる。ここで、 \vec{e}_{ij} は2つのスピンを結ぶ単位ベクトルである。

またこの結果が、時間・空間反転操作に関して電気分極と同じ変換性を示すスピン流というカレントが流れていると考えることにより直感的に理解できることを示した。下図は、以上の結果を用いて、非共線なスピン構造(黒矢印)に対応して発生する電気分極(青矢印)およびスピン流(緑矢印)を示したものである。(b)のようにスピンの回転が xy 面内で回転するらせん磁気構造を持つ場合にはバルクの電気分極が得られ強誘電性を示す。また、電気磁気効果は外部磁場による磁気構造の変化が電気分極の応答をもたらすことから理解できることを示した。



(b) $\alpha = 0, \beta = \pi/2$



本論文では結果の妥当性を、群論を用いた議論やその他の現象論的理論との比較を行い検討した。また、この結果とマルチフェロイクスにおける実験的研究との比較を行った。特に山崎らによる TbMnO_3 における偏極中性子散乱実験の結果と上で述べたスピンと電気分極の関係が非常に良い一致を示している点を挙げた。

(2) マルチフェロイックらせん磁性体における新しい素励起

らせん磁性体における磁性と強誘電性の結合に関する研究を、特にダイナミクスの観点から行った。具体的には、先ず(1)の微視的なモデルの結果を再現するようなスピンと分極の結合した現象論的なモデルを構成し、その古典的な基底状態を求めた。次に、永宮らによって考案されたらせん磁性体におけるスピン波近似を改良したものを、この現象論的モデルに適用し、その素励起の詳細な性質を調べた。その結果、スピン波と分極波の結合した全く新しいタイプの素励起、Electro-magnon、が存在し得ることを明らかにした。またこの素励起を介した電場によるスピン波の励起、あるいは磁場による分極波の励起といった動的かつ交差的な電気磁気効果が共鳴効果により増強される可能性を

示し、そのテラヘルツ領域での応答の具体的な評価を RMnO_3 系 ($\text{R}=\text{Tb}, \text{Dy}$) における実験結果から模型のパラメータを見積もることにより行った。

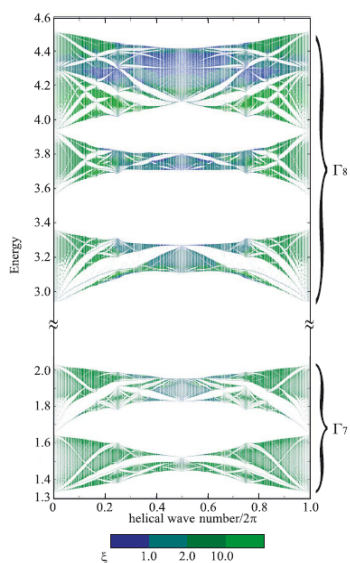
(3) 低次元マルチフェロイクスにおける量子揺らぎと磁気相転移

近年、従来見つけていた RMnO_3 系 ($\text{R}=\text{Tb}, \text{Dy}$) や RMn_2O_5 系 ($\text{R}=\text{Tb}, \text{Y}$) などの Mn 酸化物の系のマルチフェロイクス以外にも、積層三角格子の系である CuFeO_2 , カゴメ格子系 $\text{Ni}_3\text{V}_2\text{O}_8$, $S=1/2$ の一次元スピン系 LiCuVO_4 , LiCu_2O_2 など多岐に渡る系において実験的に自発電気分極と磁気秩序の非自明な関係が確認されている。現在までに見つけているマルチフェロイクスの物質は次元性 (1, 2, 3 次元)、スピンの大きさ ($S=1/2, 1, 3/2, \dots$)、フラストレーションの構造などは様々である。これらの様々な要素のうち何が量子揺らぎの効果を増強し、従来のらせん磁性体における古典的な描像との差異を与えるかという点は興味深い問題である。これを調べるにあたり、非摂動的な手法である **Schwinger boson** 平均場理論を用いて、数値的に基底状態・有限温度の性質を調べその結果、系の次元性が低いときにはスピンの量子性が顕著に効くが 3 次元の場合には従来のスピン波的な描像とコンシステントになることを見出した。またこのことから、量子揺らぎの効果が重要となる低次元の場合について、鎖間・面間平均場近似と上述の **Schwinger boson** 法を組み合わせる有限温度の磁気相図を調べ、高温の常磁性相と低温のらせん磁気相の間に共線的な磁気相が存在することを発見した。これは最近の 1 次元マルチフェロイクス LiCu_2O_2 における実験結果とも整合的である。またこの **Schwinger boson** の描像から中性子散乱および誘電応答などの動的性質を調べ、**2-boson** 過程に対応する連続的なスペクトルが表れることを明らかにした。

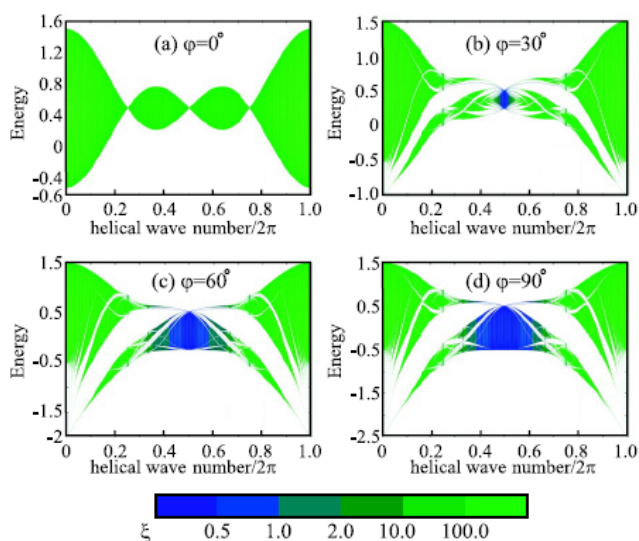
(4) 非整合らせん磁性体における電子状態の局在-非局在

ランダム系や非整合系などの非周期系における電子状態の局在-非局在性は、その特異な伝導性などに対する興味から、古くから多くの研究がなされてきた。本研究では、らせん磁気構造をもつ遷移金属酸化物系において、らせん周期の結晶構造に対する非整合性に起因する電子状態の局在-非局在性を調べた。解析は、①非整合らせんスピン構造による平均場、②スピン・軌道相互作用、③立方対称配位子場、④酸素を介しての電子の飛び移りの 4 つの微視的効果を取り込んだ多軌道の電子模型を用いて行った。局在長の計算は、**MacKinnon** の手法と呼ばれる **Green** 関数を再帰的に計算する手法を、上の模型に適用することにより行った。その結果スピン軌道相互作用が強い場合には、①軌道の種類、②らせんのピッチ、③スピン回転面の方向などに依存して、電子状態はらせん軸方向に局在-非局在の複雑な様相を示すことが明らかになった(左下図はエネルギースペクトルおよび局在長をらせんのピッチに対して示したものである)。また、この軌道に依存した局在-非局在性の起源を探るため、有効的なスピン軌道多重項ごとの模型を導出した。その結果、ある種のゲージ変換によって非整合ポテンシャルの効果を

消せるか否かが、電子状態の局在－非局在性に大きな違いを与えていることを明らかにした。右下図は局在が強く見られる軌道に対する有効モデルの、スピンの回転面に依存したスペクトルおよび局在長を示したものである。また、以上の結果から、もし上で述べた条件を満たす系が実現した場合には、i) 整合－非整合転移にともなう抵抗率の大きな異方性、ii) 磁場によりスピンの回転面を変化させたときに起こる局在－非局在転移の2点が観測にかかる可能性があることを提唱した。



(a) 多軌道模型のエネルギーおよび局在長



(b) 有効模型の局在長の回転面依存性