

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 山崎 裕一

近年、強磁性や強誘電性などの複数の強的な秩序を有する物質群「マルチフェロイクス」を舞台に、磁場によって電気分極が、もしくは電場によって磁化が変化する電気磁気効果が、状態制御のエネルギー散逸を最小化するエレクトロニクス観点からも、盛んに研究されている。特に磁気秩序が誘起する強誘電秩序を有するマルチフェロイクスでは、磁場印加によって電気分極が回転・反転することが発見され、巨大な電気磁気応答が実現することから注目を浴びている。本博士論文は、らせん磁気構造が誘起する強誘電秩序に着目し、その電場や磁場に対する応答や微視的な起源に関して研究を行った結果をまとめたものである。本論文は全7章からなり、以下で各章について概説する。

第1,2章ではマルチフェロイクスの序論と実験手法について述べている。

第3章ではペロブスカイト型  $R\text{MnO}_3$  に着目し、磁場による電気分極のフロップ現象の発現機構を解明した研究結果が記述している。ペロブスカイト型マンガン酸化物  $\text{TbMnO}_3$  は、 $bc$  面内でスピンの回転するサイクロイド磁気構造への相転移に伴って電気分極  $P_c$  が発現し、磁場を  $b$  軸方向に印加すると電気分極が  $P_c$  から  $P_a$  へと90度回転する電気分極のフロップ現象が発現することが知られている。本論文では、 $\text{TbMnO}_3$  の磁場中強誘電  $P_a$  相と同じ磁気構造を有すると考えられる  $\text{Gd}_{0.7}\text{Tb}_{0.3}\text{MnO}_3$  において、偏極中性子散乱実験と磁気構造解析実験を行い、強誘電  $P_a$  相では  $ab$  面でスピンの回転するサイクロイド磁気構造をとることを明らかにしている。これにより、マルチフェロイクス巨大電気磁気効果の代表例としての電気分極のフロップ現象は、 $bc$  面サイクロイド磁気構造から、磁場印加によって  $ab$  面サイクロイド磁気構造へと変化するることによって発現することが明らかになった。

第4章ではサイクロイド磁性体である  $\text{TbMnO}_3$  において、電場によってスピンのカイラリティが制御できることを偏極中性子散乱実験によって実証している。本論文では、電気分極を単一ドメインするために電場を印加しながら冷却し、サイクロイド磁性体となる強誘電相において入射中性子スピンのアップとダウンの時の磁気散乱強度を測定している。その磁気散乱強度の解析から、冷却電場の符号を反転させるとサイクロイド磁気構造におけるスピンのカイラリティが反転することを明らかにした。また磁気散乱強度の温度・電場依存性の解析から、電気分極の温度依存性が理論的に予測される振る舞いと一致していることを明らかにした。

第5章ではスピンの円錐状に変調するコニカル磁性体であるスピネル型クロム酸化物  $\text{CoCr}_2\text{O}_4$  において、強誘電性とその磁場応答について研究した結果が述べられている。コニカル磁気構造への磁気相転移に伴って強誘電性の電気分極が発現することを初めて確認し、コニカル磁気構造では磁化と電気分極が同時に発現することを実証している。また、コニカル磁気構造では磁場によって磁化を反転させるのと同時に、電気分極も反転するこ

とを発見している。この結果から、コニカル磁気構造の磁壁ではスピンヘリシティも反転しており、磁化と電気分極のドメイン壁が結合するという、電気磁気相互制御を達成する上でのきわめて重要な基礎的知見を得た。

第6章ではイットリウム鉄ガーネット (YIG) において磁場制御可能な量子常誘電性について記述している。YIG において13%を超える巨大なマグネトキャパシタンス効果が発現すること発見し、この効果が磁場によって誘電緩和の強度が変化することに由来することを明らかにしている。この誘電緩和強度の温度・磁場依存性を測定し、二準位モデルを用いて解析を行うことにより、双極子モーメントが量子トンネル効果によって緩和し、二準位間のエネルギー差が外部磁場の方位に依存していることを明らかにした。これらの現象を理解するために、酸素欠損などが誘起する過剰電子が鉄イオン間を量子トンネルすることにより誘電緩和が発現しているとするモデルを提唱しており、鉄イオンのスピン軌道相互作用によって生じるエネルギー差が磁場方位依存性を生じさせることを解明している。

第7章では、本論文の成果をまとめている。

以上をまとめると、本博士論文は磁気秩序が誘起する強誘電分極をもつマルチフェロイクスにおいて、磁場や電場に対する応答を明らかにした。特に電場によるスピンカイラリティの制御や磁場による電気分極の反転、磁化方位による量子常誘電性の制御といった現象は、本研究において初めて発見・実証した現象であり、固体の電気磁気制御の今後の研究展開を図る上でも、基礎的に重要な知見である。

よって本論文は物性科学・物理工学の発展に寄与するところ大であり、博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。