

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 関 真一郎

近年、電子スピン間の相互作用が競合する磁性体（いわゆるフラストレーション磁性体）において、らせん磁気秩序をはじめとする複雑な磁気秩序が、しばしば強誘電性を誘起しうることが発見され、大きな関心を集めている。こうした強い電気磁気結合を利用すると、磁場による誘電性の制御、あるいは電場による磁性の制御といった、非自明な外場応答が可能となることから、特にスピンエレクトロニクス分野における新たな基幹材料として、応用の可能性が期待されている。本論文では、磁氣的なフラストレーションを実現するための最も基本的な単位構造として、特に三角格子と擬一次元鎖に着目し、それらが示す磁性と誘電性の相関現象と、電子論的機構について研究について述べている。本論文は5章から構成されており、以下にその概要を述べる。

第1章・第2章では、本研究の背景、特に、らせん磁性と強誘電性の結合機構として提案されている逆 Dzyaloshinskii-Moriya(D-M)モデルと実験手法について述べている。

第3章では、三角格子反強磁性体を対象とし、その格子上で実現する様々な磁気秩序がどのような電気磁気応答を示すのか詳細に調べている。特に、デラフォッサイト構造を持つ酸化物（ CuFeO_2 , CuCrO_2 ）において、(1)三角格子上で最も普遍的に見られる 120° 磁気秩序が磁気異方性によらず強誘電性を誘起しうること、(2)三角格子上でプロパースクリュー磁気構造が実現している場合、格子の三回対称性に起因したドメイン構造を利用することで、磁場によって不揮発スイッチ可能な電気分極ベクトルの方向を、最大6通りまで多値化できること、(3)三角格子上の常誘電・共線磁気相において、スピン軌道相互作用に由来したエレクトロマグノン（振動電場で励起されるマグノン）がテラヘルツ領域に存在することなどを明らかにした。以上の振る舞いは、三角格子を伴う物質に普遍的な性質であると考えられ、実際に(1), (2)については、 MX_2 の組成を持つ三角格子ハロゲン化物（ MnI_2 , VCl_2 など）においても観測することが成功している。三角格子上では従来提案されていた逆 D-M モデルだけでなく、スピン軌道相互作用を通じた金属・配位子イオン間の軌道混成の変調が強誘電性の起源となりうる可能性が理論的に指摘されているが、今回観測された電気磁気相関現象の多くは、基本的に後者に由来するものであると考えられる。

第4章では、 $S=1/2$ のスピンを伴う擬一次元らせん磁性体の電気磁気応答について調べた。らせん磁気秩序を伴う1次元鎖は、逆 D-M モデルによる強誘電性発現の予測を検証するための、理想的な系であると考えられる。しかし、最初に発見された擬1次元強誘電らせん磁性体である LiCu_2O_2 においては、報告された磁気構造と電気分極方向の対応関係が逆 D-M モデルの予測と矛盾しており、その電気磁気結合の起源が大きな問題となっていた。特に、 $S=1/2$ を伴う1次元物質では量子ゆらぎの効果が非常に大きいことが予想され、これが観測された矛盾の起源となっている可能性が指摘されていた。本論文研究では偏極中性子散乱を用いて、(1)従来報告されていた磁気構造は改訂を要し、らせんスピン面は異なる方向を向いていること、(2)電場を加えて電気分極ベクトルを反転させることで、らせんスピンのカイラリティ（右巻き・左巻きの自由度）も反

転できること、を確認し、古典スピン系で確立されていた電気磁気結合機構である逆 D-M モデルが、強い量子ゆらぎの下でも依然として有効に機能していることを証明した。また、新たに CuCl_2 が $S=1/2$ を伴う擬 1 次元強誘電らせん磁性体であることを発見し、その磁場下での誘電応答が逆 D-M モデルの予測と完全に一致することも確認した。

第 5 章では、本研究によって得られた成果についての総括を行っている。

以上をまとめると、本論文では、磁気的なフラストレーションを実現するための最も基本的な単位構造として、特に三角格子と擬一次元鎖に着目し、それらが示す磁性と誘電性の相関現象の観測と、電子論的機構の解明を行った。本研究の結果は、フラストレーション磁性体における多彩な電気磁気効果（磁場による分極ベクトルの多値間不揮発スイッチ、電場によるスピンの高速制御など）が、従来考えられていたよりも広く普遍的に観測できる可能性を強く示唆しており、今後こうした現象をメモリデバイス・光学素子などに応用していく上でも、非常に重要な知見が得られたといえる。今回得られた成果は、物性科学・物理工学の発展に大きく寄与すると期待され、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。