物質における対称性を破って電気と磁気をつなぐ

Keyword: マルチフェロイクス

古典電磁気学の確立により、電場や磁場が時間的に変化する場合には、例えば電流の周りに磁場が発生するなど、両者が関連することは良く知られることである。それゆえ磁気記録デバイスなどにおいては、情報操作としての磁化の制御は主にエネルギー散逸を伴う「電流」によって行われている。これに対して、「電圧」という散逸の少ない電気的刺激で物質の持つ磁性を制御することが可能となれば、磁場のON-OFF制御に要するエネルギー消費を低減することが可能となり、磁気記録デバイスの低電力消費化へとつながる。しかし古典電磁気学の教えるところでは、静的な電場や磁場の場合には、両者は互いに独立で両者の間に相関は生じない。これに対し、ある種の磁性体では「電気磁気効果」と呼ばれる静的な電場と磁場の相関現象が発現する。

1. 電気磁気効果

電気磁気効果とは、物質における「電場による磁化の誘 起」または「磁場による電気分極の誘起」といった物理現 象の呼称である. その研究の発端は19世紀末のキュリー (P. Curie) による、物質に電場を印加したとき巨視的な電 流を介することなしに磁気モーメントを誘起できるか、と いう疑問提示にまで遡る. この提示に対し、ランダウ(L.D. Landau) とリフシッツ (E. M. Lifshitz) は熱力学と磁気対称 性の考察から時間反転に関して反対称である物質に電気磁 気効果の可能性があると予言し、 さらにこの予言を受けて ジャロジンスキー (I. E. Dzyaloshinskii) が候補物質 (Cr₂O₃) を提示、そして1960年に同物質において電気磁気効果が 初めて観測された.1) 当初の電気磁気効果研究の多くは, 磁場H(電場E) に対して電気分極P(磁化M) が線形に応答 する一次の電気磁気効果 (すなわち $\Delta P = \alpha H$ または $\Delta M =$ ${}^{t}\alpha E; \alpha$ は電気磁気結合係数)に着目したものであった。自 由エネルギーは系の持つ対称操作に対して不変であるとい う要請により、線形電気磁気効果の発現には時間および空 間反転対称性がともに破れている必要がある. Cr₂O₃にお ける線形電気磁気効果の起源として、電場による Cr³⁺イ オンの (1) 結晶場の変化, (2) q値の変化, (3) 超交換相 互作用の変化など、いくつかの微視的機構が初期の段階よ り提案されている。1970~90年代にかけては、螺旋(らせ ん) 磁性体における非線形電気磁気効果や磁気転移に伴う 強誘電性の観測など、現在の視点から見ても先進的な結果 が我が国から発信されている. 当時は電気磁気効果を示す 物質系は限られ、また観測される効果も小さいなどの理由 のため、同効果に関する研究は大きな広がりを見せること

はなかった.しかしながら,21世紀に入り,後述するマルチフェロイクスに関する研究の進展と相俟って,電気磁気効果をはじめとする物質中の電気と磁気の相関現象が耳目を集めるようになった.

2. マルチフェロイクス

磁場と磁化、電場と電気分極、応力と歪みの関係に履歴 現象を生じる物質はそれぞれ、強磁性体 (ferromagnetics), 強誘電体 (ferroelectrics), 強弾性体 (ferroelastics) と呼ばれ るが、履歴現象という共通性に着目し、これらの強的な性 質を持つ物質をひとまとめに表す「フェロイクス (ferroics)」という概念を最初に提唱したのは、相津敬一郎氏で ある.2) これらのフェロイクスは、強磁性体における時間 反転対称性, 強誘電体における空間反転対称性, 強弾性体 における結晶対称性、といった系の対称性の破れの観点か ら分類でき、各々の対称性の破れに起因するドメインの構 造の形成という共通項も有する. このフェロイクスという 概念に触発されて、1990年代にシュミット (H. Schmid) は、 同一相中で上述の3つのferroicな性質のうち少なくとも2 つの性質を示す物質を「マルチフェロイクス (multiferroics)」と名付けた.3) これが、マルチフェロイクスという用 語のオリジナルの定義である. 強磁性と強誘電性が共存す るタイプのマルチフェロイクスは、複数の秩序変数の独立 な制御に加えて、電気磁気効果が期待できることなどから 長く興味をもたれていたが、強磁性と強誘電性の共存とい うオリジナルの定義でのマルチフェロイクスはほとんど存 在しないということもあり、その研究はしばらくの間、大 きな展開を見せることはなかった. しかしながら, 2003 年に発表された2種類のペロブスカイト型遷移金属酸化物 における新たな発見 (BiFeO₃の巨大な強誘電分極の発現. および TbMnO3の磁気転移に伴う強誘電性と巨大な非線形 電気磁気効果の発現)4)がその状況を劇的に変えた.これ らの報告を契機として、電気と磁気の相関現象に大きな脚 光が集まることとなった. その後の研究の流れにより. 近 年では, 反強磁性を示す強誘電体や焦電体, 従来から知ら れる電気磁気効果を示す物質、さらには強磁性体と強誘電 体の混晶系といった、磁性と強誘電性が共存・相関する系 全般に対してマルチフェロイクスという用語が使われるよ うになっている.

3. 磁気的相互作用が生み出す強誘電性

BiFeO₃やTbMnO₃をはじめとしてマルチフェロイクスの



多くは3dの磁性イオンを含む酸化物であるが、その強誘電性発現の機構は様々であり、磁気秩序と強誘電秩序の起源が無関係なものもあれば、磁気秩序が空間反転対称性を破ることにより強誘電性が発現するものもある。磁気誘起型強誘電性を示すタイプのマルチフェロイクス(例えば、TbMnO₃)においては、その強誘電性は系の電荷分布が磁気秩序の影響を受けシフトすることに起因する。電荷分布のシフトは、磁気秩序によって隣接するスピン間に働く「交換相互作用」によって生じる場合もあれば、磁気秩序が「スピン軌道相互作用」を介して軌道角運動量に影響を与え、それが電荷分布に反映されるという場合もある。5)これらの磁気的相互作用による電荷分布のシフトにより、磁気秩序相における結晶・磁気対称性が低下し、極性構造をとる場合には、マクロな自発分極、さらに強誘電性が発現する.

磁気誘起型強誘電性を示すマルチフェロイクスの多くは、磁場の印加で生じるメタ磁性転移などにより磁気対称性が変化することで、強誘電性が消失したり、電気分極の向きがフロップ的に変化するなどの劇的な非線形の電気磁気効果を示す。これは、銅酸化物超伝導体研究以降に発展してきた強相関電子系における多自由度系の相転移・相制御という視点に立脚したものであり、現代的なマルチフェロイクス研究はこの視点から大きく進展したと捉えられる。

4. スピンテクスチャーが破る対称性

線形電気磁気効果発現の必要条件は時間および空間反転対称性がともに破れることであったが、磁気誘起の強誘電性発現には磁気秩序による空間反転対称性の破れ、かつ電荷分布のシフトをマクロに偏極させる必要がある。そのような状態を生み出す最もポピュラーな磁気構造の一つが、図1(a) に示すスピンSの螺旋構造である。この構造はvector spin chirality ($S_i \times S_j$) と呼ばれる空間反転に関して反対称であるスピンテクスチャー(複数スピンで構成される複雑構造)によって特徴付けられ、スピン軌道相互作用を通じて隣接するスピン間で誘起される局所分極 [$p_{ij} \propto e_{ij} \times (S_i \times S_j)$; e_{ij} は S_i と S_j を結ぶ方向ベクトル]が打ち消しあうことなく、マクロな電気分極Pを生み出し、さらに螺

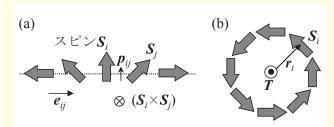


図 1 (a) 磁気誘起型強誘電性および (b) 線形電気磁気効果を引き起こすスピンテクスチャー.

旋の巻き方を反転させること(すなわち空間反転操作)によりPの符号が反転することが、モデル計算により導かれている.5)

また、線形電気磁気効果を時間反転と空間反転を破るスピンテクスチャーの観点から理解することもできる. 6 例えば、図 $_{1}$ (b) に示すスピンテクスチャーにおいては時間反転と空間反転がともに破れるが、この構造では $_{1}$ $_{2}$ $_{3}$ $_{4}$ $_{5}$ $_{6}$ $_{7}$ $_{7}$ $_{8}$ $_{1}$ $_{8}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{2}$ $_{3}$ $_{4}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{2}$ $_{3}$ $_{4}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{2}$ $_{3}$ $_{4}$ $_{5}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{1}$ $_{2}$ $_{3}$ $_{4}$ $_{5}$ $_{5}$ $_{5}$ $_{1}$ $_{5}$ $_$

5. 多彩な物性制御へ

バルクの性質として、そのもの自体が電気磁気結合現象 を示すことが、マルチフェロイクスの特徴といえるが、そ れだけでなくマルチフェロイクスを磁気記録に使われる強 磁性体に接合することで,交換バイアス効果(反強磁性体 と強磁性体の接合界面のスピン間の結合効果)を介して強 磁性体の磁化を電場で制御するといった試みも展開されて いる。また、いくつかの系では、電磁波の照射により、そ の交流磁場成分だけでなく交流電場成分でエレクトロマグ ノン(electromagnon)と呼ばれるマグノンが励起され. 劇 的な動的電気磁気現象や光・マイクロ波機能をも発現する. これら多彩な物性制御の可能性を秘めた点がマルチフェロ イクスの魅力であろう. さらに. 近年では. トロイダルモー メントが一様(すなわち強的)に揃った磁気構造を持つ系 を ferrotoroidics と呼び、 ferroelectrics などと同格の ferroics の1つとして位置付けるようになってきた. 今後, さらに 新規なフェロイック状態の提案・実現、それを使った物性 制御などへの展開も期待される.

参考文献

- T. H. O'Dell: The Electrodynamics of Magnetoelectric Media (North-Holland, 1970).
- 2) K. Aizu: Phys. Rev. B 2 (1970) 754.
- 3) H. Schmid: Ferroelectrics 162 (1994) 317.
- J. Wang, et al.: Science 299 (2003) 1719; T. Kimura, et al.: Nature 426 (2003) 55
- 5) Y. Tokura, S. Seki and N. Nagaosa: Rep. Prog. Phys. 77 (2014) 076501.
- 6) 有馬孝尚:『マルチフェロイクス;物質中の電磁気学の新展開』(共立 出版, 2014).

木村 剛〈大阪大学大学院基礎工学研究科 〉

(2015年8月24日原稿受付)