

## 長周期螺旋磁気構造を持つ NiBr<sub>2</sub> のマルチフェロイックス特性 Multiferroicity in NiBr<sub>2</sub> with long-wavelength cycloidal spin structure

奥山大輔<sup>\*</sup>, 徳永祐介<sup>1</sup>, 車地崇<sup>2</sup>, 有馬孝尚<sup>3</sup>, 中尾裕則<sup>4</sup>, 村上洋一<sup>4</sup>, 田口康二郎<sup>1</sup>, 十倉好紀<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>理研-CMRG/CERG 〒351-0198 和光市広沢 2-1

<sup>2</sup>東大物工 〒113-8656 文京区本郷 7-3-1

<sup>3</sup>東大新領域 〒277-8561 柏市柏の葉 5-1-5

<sup>4</sup>物質構造科学研究所-CMRC 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

### 1 はじめに

(反)強磁性と強誘電性が強く結合しているマルチフェロイックス物質は、本来電場でしか制御できない強誘電分極の符号や方向を磁場でコントロール出来ることから、その発現機構や応用に向けての研究が盛んに行われている。本研究の対象物質である NiBr<sub>2</sub> は、 $T_{N1}=44$  K 以下で共線的な反強磁性秩序を形成し、更に  $T_{N2}=22.8$  K 以下では  $(\delta\delta\ 3/2)$  方向へ伝播する非常に周期の長いサイクロイド磁気秩序が起きる事が報告されている(4.2 K では  $\delta=0.027$ ) [1]。我々は、最低温相でサイクロイド磁気秩序が形成されている事より、磁気秩序由来の強誘電性が発現している可能性があると考え研究を始めた [2]。

### 2 実験結果および考察

図 1(a)と(b)は、それぞれ磁化の温度変化と焦電流測定より求めた強誘電分極の温度変化である。磁化に異常が観測されている  $T=23$  K 以下より、主に  $[1 - 1 0]$  方向に強誘電分極の発生が観測されている。また、 $[0 0 1]$  方向にも  $[1 - 1 0]$  方向に比べて 1/20 程度の分極値が観測されている。サイクロイド磁気転移と同じ温度で発生した強誘電分極が、磁気弾性効果により生ずる格子歪みに起因しているかどうかを確かめるため、放射光 X 線を用いた回折実験を行った。

実験は、PF-BL3A に設置されている 4 軸回折計と He 循環型冷凍機を用いて行った。図 1(d)は実際に  $T=5.3$  K で観測された磁気弾性効果由来の格子歪みによる等価な  $(-1-q\ 2-q\ 12)$  と  $(-1+q\ 2+q\ 12)$  の超格子反射である。 $(-1+q\ 2+q\ 12)$  反射の温度変化を詳細に観測したところ、図 1(e)のように温度に対して大きく伝播波数を変化させている事が分かった。各温度の超格子反射のプロファイルをガウス関数でフィッティングして得られた伝播波数  $\delta_s$  の温度変化と、中性子回折で観測されている磁気反射の伝播波数  $\delta_m$  [1] の温度変化を比較すると、ほぼ  $\delta_s=2\times\delta_m$  の関係が成り立っていた。これは放射光回折で観測されている超格子反射が、磁気弾性効果由来の格子歪みを観測している事を意味していると考えられる。以上より、NiBr<sub>2</sub> のサイクロイド磁気秩序相では、磁気秩序が起因となって格子が歪み強誘電分極が発生しているマルチフェロイックス特性が実現している事を示す結果を得た。詳細な議論及び実験データは、論文[3]を参照していただきたい。

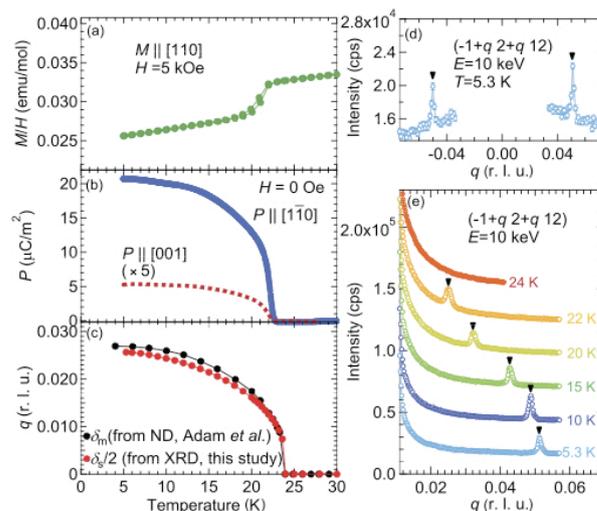


図 1: (a)磁化の温度変化。  $T=23$  K 付近にサイクロイド磁気秩序による異常が観測されている。(b)焦電流測定から求めた強誘電分極値の温度変化。主に  $[1 - 1 0]$  方向に電気双極子モーメントを持つ強誘電分極が発生している。(c-e) X 線回折より観測された  $(-1\pm q\ 2\pm q\ 12)$  超格子反射。それぞれ、観測された伝播波数の温度変化と中性子回折で得られた磁気伝播波数[1]との比較(c)、等価な  $(-1-q\ 2-q\ 12)$  反射と  $(-1+q\ 2+q\ 12)$  反射のプロファイル(d)、  $(-1+q\ 2+q\ 12)$  反射の温度変化(e)、を示している [3]。

### 3 まとめ

低温でサイクロイド磁気秩序を示す NiBr<sub>2</sub> で、磁気転移と同じ温度で強誘電分極が発生している事を示した。更に、放射光回折実験より、磁気弾性効果に伴う格子歪みが発生している事を発見した。これらの実験結果より、NiBr<sub>2</sub> がマルチフェロイックス特性を有している事を示した。

### 参考文献

- [1] A. Adam *et al.*, Solid State Commun. **35** (1980) 1.  
[2] T. Arima *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **76** (2007) 023602.  
[3] Y. Tokunaga *et al.*, Phys. Rev. B **84** (2011) 060406(R).

\* okuyama@riken.jp