

CuFeO₂——フラストレーションが生み出す多彩な磁性と交差相関



寺田 典樹

物質・材料研究機構
terada.noriki@nims.go.jp



中島 多朗

東京大学物性研究所
taro.nakajima@issp.u-tokyo.ac.jp

物質の磁気的性質の多くは各原子（イオン）の磁気モーメント、つまり原子が持つ小さな棒磁石の配列によって決まっている。磁気モーメントが1対だけの場合、基底状態は単純に決まるが、物理学の諸問題と同様に三体問題以上になると状況は複雑になる。最もよく知られた例として、正三角形の3つの頂点に磁気モーメントを配置し、それぞれの間に**反強磁性相互作用**が働く系が挙げられる。3つの磁気モーメントのうち2つは互いに反平行になることができるが、残り1つは上向きでも下向きでもエネルギー的に等しく、配列が一意に決まらない。このように、相互作用を全ての原子間にわたって満足させることができないことを「フラストレーション」と呼ぶ。

磁性体におけるフラストレーションの研究は、1970年代後半からフラストレーションに起因する特異な現象が実験的に発見されて以降、理論・実験の両面から盛んに研究されている。実際の物質では当初理論モデルでは想定されていなかった形でフラストレーションを解消して、より安定な基底状態を実現しようとする。前述の三角格子を例に出すと、理論は常に理想的な正三角形を要求するが、実際の物質は自発的に格子を歪めることでフラストレーションを解消しようとする。これはさらに豊かな物理現象を生み出し、フラストレーション磁性がスピン以外の自由度と結合する**交差相関物性**の研究の舞台に発展していった。現在では、磁気秩序と強誘電性や格子歪み、軌道秩序などの複数自由度の結合による新しい物性創成の試みは、一般化されつつある。

三角格子反強磁性体 CuFeO₂ は先に例として述べた「正三角形の3つの頂点に磁気

モーメントを配置した系」を実現した物質のひとつである。この物質は、1990年頃からフラストレーション研究の舞台を長年提供してきた。例としては、温度を下げていったときに基底状態にたどり着く前の中間状態として、一部のスピンの秩序化していない**部分無秩序状態**が現れることが挙げられる。また、CuFeO₂の最低温度相は三角格子レイヤーの特定の方向に↑↑↓の順にスピンの配列した構造を取るが、これは結晶構造が元々持っていた三角形の対称性を破っている。この秩序の起源を詳しく調べてみると、磁気秩序の過程で結晶が三角格子から不等辺格子に自発的に格子変形し、フラストレーションを解消していることが明らかになった。

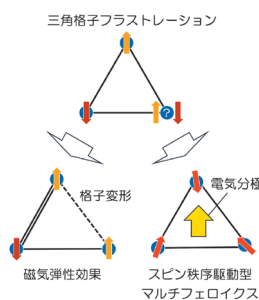
CuFeO₂のFeサイトを僅かに非磁性不純物で置換すると基底状態が↑↑↓から、らせん構造に変化する。すなわち、フラストレーションを化学的に制御することも可能である。また、CuFeO₂のらせん磁性相では、磁気配列が空間反転対称性を破るため、スピン軌道相互作用を通じて結晶の反転対称性が破れ、巨視的な強誘電分極が出現する（**スピン秩序駆動型マルチフェロイクス**と呼ばれる）。

このようにCuFeO₂では純粋なフラストレーションの研究に端を発し、そこから格子との結合、磁気的反転対称性の破れによる強誘電性など多彩な現象が多数見つかり、この研究分野で長年研究されてきた典型的な物質である。また、銅と鉄と酸素という身の回りの元素だけでできた物質であっても、結晶の幾何学によって、多彩な磁性や交差相関物性を示すという大変興味深い例でもある。

用語解説

反強磁性相互作用：
磁気モーメントの間に働く相互作用。2つの磁気モーメントに対して両者が平行な配置の時にエネルギー的に安定なものを強磁性相互作用、反平行が安定なものを反強磁性相互作用と呼ぶ。

交差相関物性：
スピン、誘電分極、結晶格子といったそもそもの対称性が異なる自由度が物質内部の相互作用によって結合し、微視的、および巨視的な応答として現れる物性。三角格子フラストレーションでは、結晶の対称性を低下させてフラストレーションを解消したり、複雑なスピン秩序によって結晶の反転対称性が破れ、電気分極が発生する場合がある。



部分無秩序状態：
主にフラストレーション系磁性体の熱誘起状態として現れる。一部のスピンの常磁性的で秩序化していない状態。

スピン秩序駆動型マルチフェロイクス：
サイクロイドらせん秩序のようにスピン秩序が極性を持つ構造をとるとき、スピン軌道結合を通じた物質内部の相互作用によって結晶が強誘電性を示す現象。