

2006年11月9日  
独立行政法人 理化学研究所

## 結晶中の原子位置が磁場で段階的に変化

- 三角格子磁性体で世界で初めて観測に成功 -

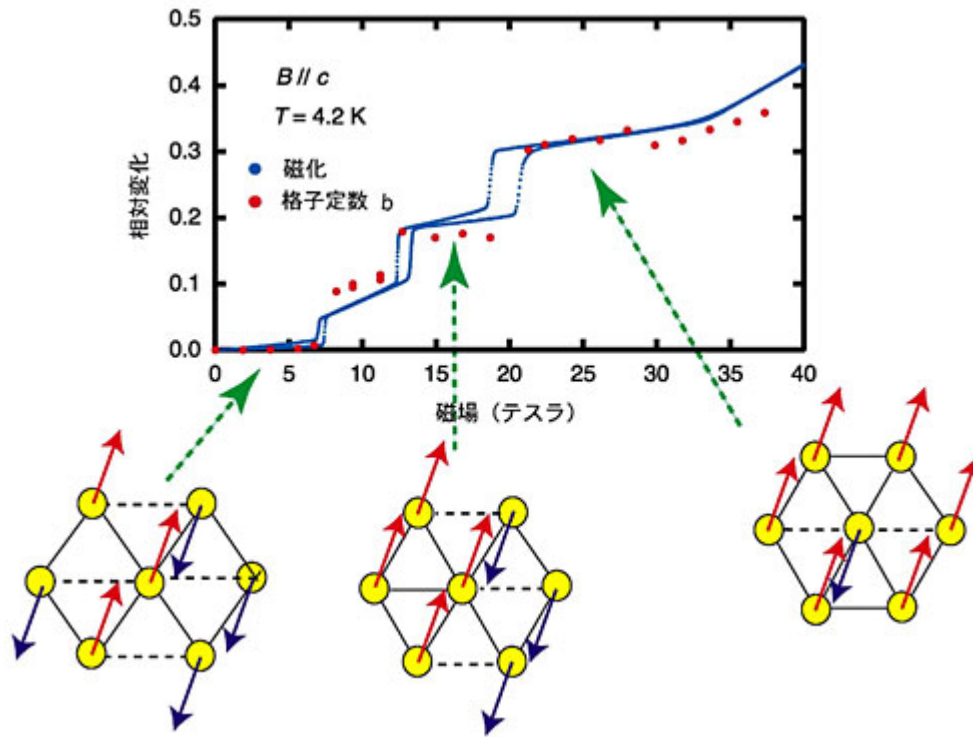
---

冬になると線路が縮んでしまう現象は、誰もが目にすることができます。これは、暑い夏には、原子が激しく振動していたものが、寒い冬にはより縮まった振動をする現象にともなう結果だということを学んだな、と思い出す方もいらっしゃるのでは？

磁気という性質を持つ磁性体では、熱の代わりに、外部から与えた磁場で同じような現象が生じます。磁性体といえば、メモリー素子や磁気ヘッドでさまざまなところで利用されていますが、磁場を加えるとどのように結晶構造が変わるのか、熱と同じように大きさをコントロールすることができるのかは、詳しく分かっていませんでした。

理研播磨研究所放射光科学総合研究センター量子材料研究グループ量子磁性材料研究チームらは、世界最強の38テスラの超強磁場内に、磁性体を置き、大型放射光施設スプリングエイトによるX線回折の測定を行いました。その結果、磁性体の結晶構造の性質を表す「格子定数」が階段状に不連続に変化するという現象を見つけました。これは、磁性体中の原子の磁気の向きである「スピン」が外部磁場に影響を受けることで、熱現象とは違って、磁性体の結晶の大きさが段階的に伸び縮みすることが明らかになったことを示します。

この結果から、結晶内の原子の位置を磁場で操作できる可能性がうまれ、新たな機能材料開発へとつながる成果と注目されます。



(図)三角格子磁性体における格子定数などの変化

2006年11月9日  
独立行政法人 理化学研究所

## 結晶中の原子位置が磁場で段階的に変化

- 三角格子磁性体で世界で初めて観測に成功 -

### ◇ポイント◇

- 世界最強の 38 テスラの超強磁場中での放射光回折で初測定
- 結晶中の原子の位置を磁場で操作することが可能に
- 新しいメモリー素子や磁気ヘッドの開発に期待

独立行政法人理化学研究所（野依良治理事長。以下「理研」）は、38 テスラ<sup>\*1</sup>という超強磁場中に磁性体において放射光 X 線回折<sup>\*2</sup>測定を行い、結晶格子定数<sup>\*3</sup>が階段状に変化する現象を観測しました。すなわち、磁性体の原子の位置を磁場で操作できるという可能性を得ることができました。これは、播磨研究所放射光科学総合研究センター量子材料研究グループ量子磁性材料研究チームの勝又紘一チームリーダーと、国立大学法人東京大学物性研究所金道浩一教授、国立大学法人大阪大学極限量子科学研究センター萩原政幸教授、スイス放射光施設 SWISS LIGHT SOURCE（以下「SLS」）、財団法人高輝度光科学研究センター（以下「JASRI」）との共同研究による成果です。

観測は、三角格子磁性体で知られる銅と鉄の酸化物（ $\text{CuFeO}_2$ ：デラフォサイト）を磁性体のモデル材料として使いました。この化合物は正三角形の頂点に磁性原子の鉄（Fe）が並んでいる構造をしています。正三角形の頂点に磁性原子が並ぶと、磁石「スピン<sup>\*4</sup>」の向きを決めることができずに、スピンの向きが「フラストレーション」が生じます。「フラストレーション」は、新奇な磁性や超伝導発現などの原因として、さまざまな研究が行われていますが、そのメカニズムについては明らかになっていませんでした。

磁場がないときに、フラストレーションを解消するためには、結晶格子を歪ませて、スピンの向きが揃うようにしなければなりません。研究グループは、世界最強の 38 テスラの磁場を使い、フラストレーションを磁場で解消させる様子を放射光 X 線回折測定で観測しました。その結果、結晶格子が磁場に応じて連続的に変化するのではなく、ある程度の強度の磁場になると急に变化する様子を世界で初めて観測しました。つまり、結晶内のスピンの向きに磁場をかけることによって、原子の位置を操作出来る可能性が得られたのです。磁場中における異なる結晶歪みの状態を利用すれば、新しいメモリー素子の開発に繋がると期待されます。また、結晶格子が磁場で特異的に変化する性質を利用すれば、新しい磁気ヘッドの開発にも繋がるでしょう。

本研究成果は、アメリカの学術雑誌『*Physical Review B*』に近く掲載予定です。

### 1. 背景

正三角形の頂点に磁性原子が並んだ磁性体において、2つの磁性原子のスピンの互いに反対の方向を向こうとする場合には、残りの磁性原子のスピンの向きがどの方向を

向けば安定になるのか解らずに、いわば、スピンの苛々する「フラストレーション」が生じます (図 1(a))。フラストレーションのある磁性体では、絶対零度までスピンのばらばらな状態となり、磁気秩序を確保できないと理論的には予想されています。ところが、現実の三角格子磁性体では、ある温度で磁気秩序が起こります。これは、図 1(b)のように、自ら結晶格子を歪めることで、スピン間の相互作用がアンバランスになり、フラストレーションが解消されるからです。フラストレーションが生じている状態に外部から強磁場をかけると、スピンは磁場方向に揃うようになり、フラストレーションが解消され、歪んでいた結晶格子は元に戻ります。

スピンのフラストレーションは、超伝導を引き起こしたり、物質の磁性を逆転させたりするなど、興味深い物理現象を引き起こすことが知られていました。このように、スピンのフラストレーションは物質の構造が生み出す現象であり、現代の物性物理において注目を集めている現象ですが、構造とスピンのフラストレーションの関係は、明らかにされていませんでした。

## 2. 研究の手法

測定に用いた試料は、代表的な三角格子磁性体で知られる銅と鉄の酸化物 ( $\text{CuFeO}_2$ : デラフォサイト) で、その結晶構造を図 2 に示します。この磁性体は、磁性を持った原子の鉄 (Fe) が、結晶の特定面内で三角格子状に並んでいます。この物質は、マイナス  $259^\circ\text{C}$  (14 ケルビン) で磁気秩序を示し、それ以下の低温では、磁場中で磁気構造が多段階に変化することが知られています。磁場による結晶構造の変化を観測するためには、X線や中性子線を使った回折実験で結晶構造の形を表す「格子定数」を測定します。ところがこれまでは、20 テスラ以上の強磁場中で正確に格子定数を知ることができる回折実験は成功していませんでした。

研究グループは、大型放射光施設 SPring-8<sup>※5</sup> で発生する強力な X線とパルス磁場を組み合わせ、世界最強の 38 テスラまでの超強磁場中の回折実験に成功しました。X線回折測定は、SPring-8 の理研ビームライン BL19LXU に整備した、超強磁場中で行いました。磁場を発生させるために使ったパルス磁石は、東大・物性研、阪大・極限センターと理研との共同研究により開発しました (図 3)。試料から回折された X線は、SLS と JASRI により共同開発した、二次元高速検出器 PILATUS100K で検出しました。

## 3. 研究成果

X線回折データの解析から、結晶の構造を表す「b 軸方向の格子定数」と呼ばれる数値が、磁場と共に、階段状に変化する現象を観測しました (図 4)。連続して格子定数が変化するのでなく、ある磁場で急に变化して段階状の変化を示すという現象を見つけたのです。この物質では、磁気構造が外部から与えた磁場で変化し、それに伴って磁化 (磁石の強さを表す量) が増加します。この磁化の変化に同期して格子定数が階段状に変化する様子が分かりました。つまり、結晶の格子が、磁場に依じて連続的に変化するわけではなく、ある程度の強度になって初めて、形を変えることが明らかになったのです。

#### 4. 今後の期待

この結果から、結晶格子構造、つまり結晶内の原子の位置を磁場で操作出来る可能性が得られました。磁場中における、異なる結晶歪みの状態を利用すれば、新しいメモリー素子の開発に繋がると期待されます。また、結晶の長さが磁場で階段状に変化する性質を利用すれば、新しい磁気ヘッドの開発にも繋がるでしょう。

<報道担当・問い合わせ先>

(問い合わせ先)

独立行政法人理化学研究所

放射光科学総合研究センター 量子磁性材料研究チーム

チームリーダー 勝又 絃一

Tel : 0791-58-2916 / Fax : 0791-58-2923

播磨研究推進部 猿木 重文

Tel : 0791-58-0900 / Fax : 0791-58-0800

(報道担当)

独立行政法人理化学研究所 広報室 報道担当

Tel : 048-467-9272 / Fax : 048-462-4715

Mail : koho@riken.jp

#### <補足説明>

##### ※1 テスラ

「磁界 (磁束密度)」の単位。1 テスラ = 10,000 ガウス。

##### ※2 X 線回折

X線は電磁波の一種なので、波の性質を持つ。そのため、X線の波長と同程度の距離に規則正しく並んだ散乱体があれば、回折現象を起こし特定の方向にX線の強いスポットが現れるはずである。これを、結晶を使って実証したのがブラッグ父子であり、現在、結晶構造解析の手法として広く使われている。

##### ※3 格子定数

結晶を構成する最小のユニットの大きさを表すための単位。最小ユニットの辺の長さ  $a, b, c$  と、角度  $\alpha, \beta, \gamma$  の6個の定数を用いる。

##### ※4 スピン

電子は原子核の周りを回転運動していると共に、自転していると考えられている。この自転に対応する物理量をスピンとよぶ。電荷を帯びた物体が動くと磁気が発生するので、スピンにより電子は小さな磁石となる。

## ※5 大型放射光施設 SPring-8

兵庫県にある大型共同利用施設。ほぼ光速で進む電子が、その進行方向を磁石などによって変えられると接線方向に電磁波が発生する。これが「放射光（シンクロトロン放射）」と呼ばれるものであり、電子のエネルギーが高く進む方向の変化が大きいほど、X線などの短い波長の光を含むようになる。特に第三世代の大型放射光施設と呼ばれるものには、世界に SPring-8、APS（アメリカ）、ESRF（フランス）の3つがある。SPring-8（電子の加速エネルギー：80億電子ボルト）の場合、遠赤外から可視光線、真空紫外、軟X線を経て硬X線に至る幅広い波長域で放射光を得ることができ、国内外の研究者の共同利用施設として、物質科学・地球科学・生命科学・環境科学・産業利用などの幅広い分野で利用されている。

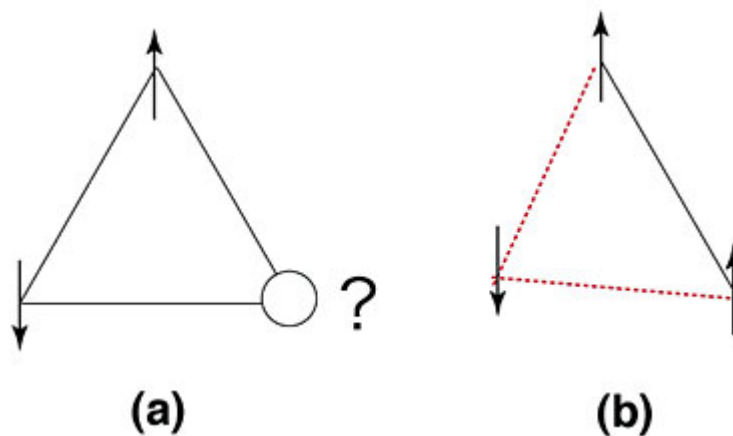


図1 三角格子磁性体におけるフラストレーション

- (a) 正三角形のある頂点のスピンは、残り二つのスピンの影響を受け、向きが定まらない。
- (b) 結晶を歪ませて、磁気相互作用のバランスを崩し、フラストレーションを解消する

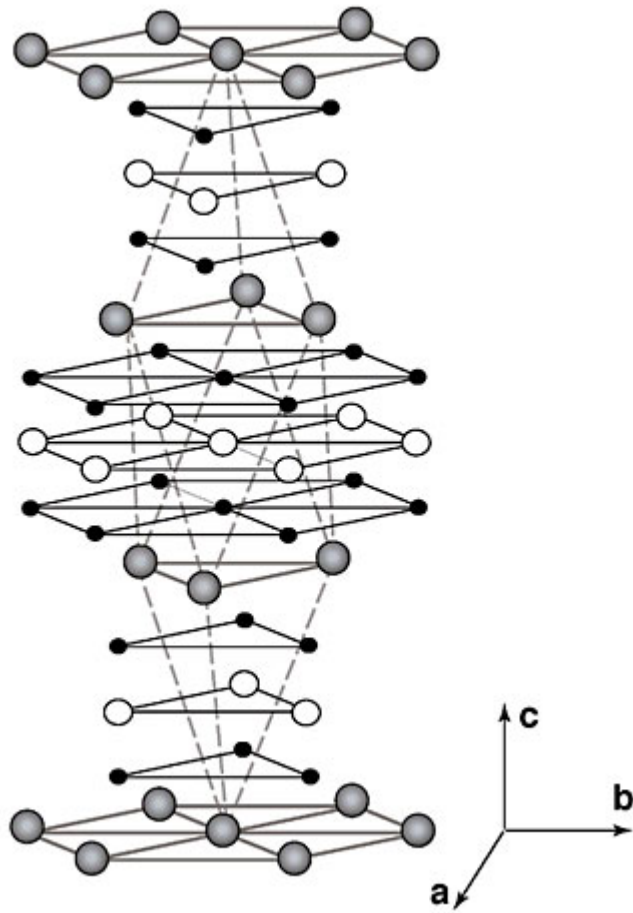


図2 代表的な三角格子磁性体CuFeO<sub>2</sub>の結晶構造

陰を付けた丸は磁性原子である Fe を表し、これらが結晶の c 面内（水平面）で三角格子状に並んでいる。黒丸は酸素原子を、白丸は一価の銅イオン（磁性を持たない）を表す。

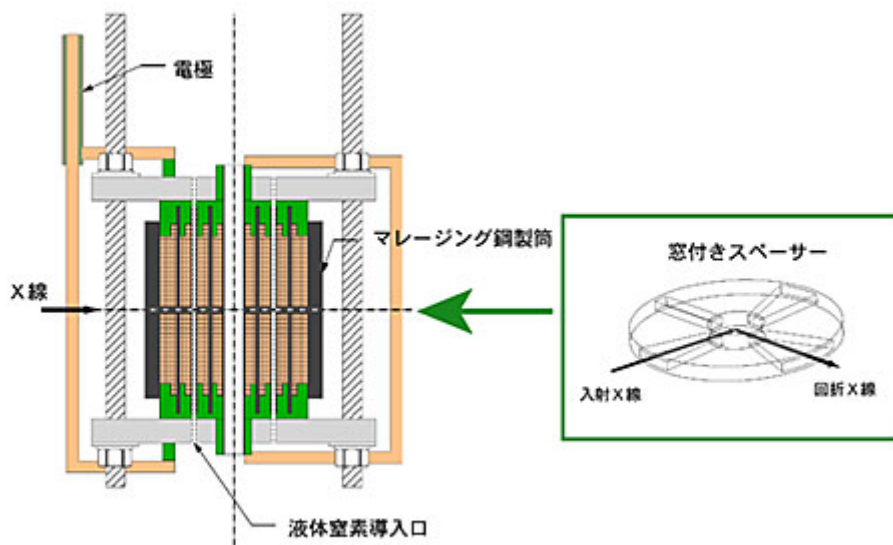


図3 X線回折測定用パルス磁石

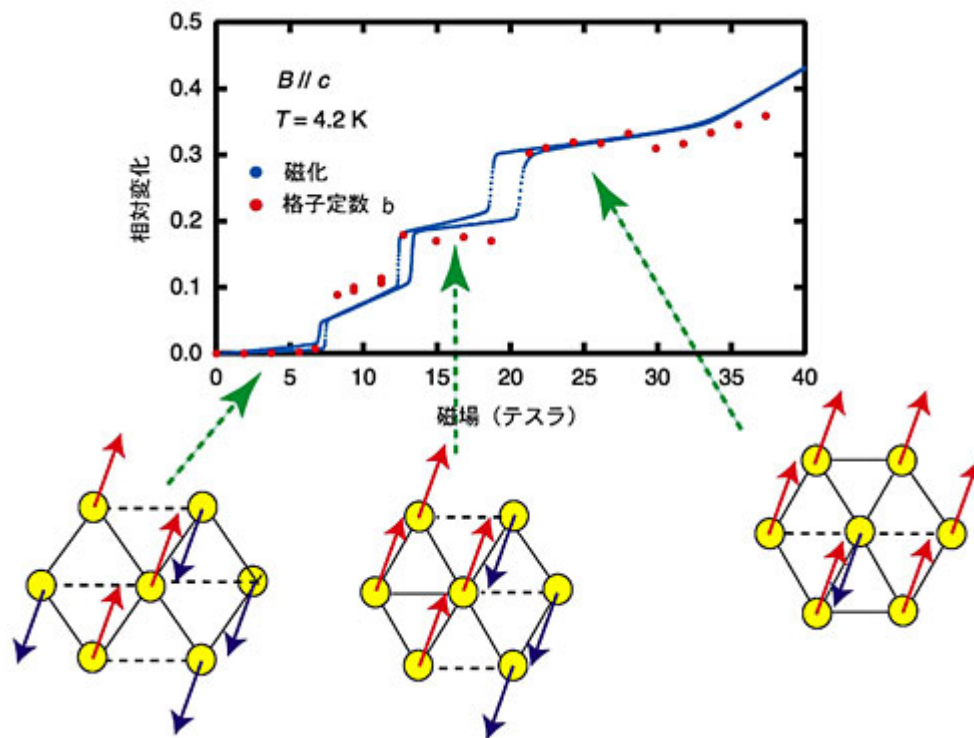


図4 三角格子磁性体CuFeO<sub>2</sub>における格子定数bの磁場依存性と結晶格子の状態

磁化（青丸）の磁場依存性も同時に示している。結晶格子は、通常ではスピンのフラストレーションのために格子構造が歪んだものとなるが、強磁場中ではスピンのフラストレーションが解消されて点線部分の結晶格子が伸びるため、歪みから解放される。黄球は磁性原子、赤い矢印は磁場方向のスピンの向きと青い矢印は磁場と反対方向のスピンの向きを示す。38 テスラでの格子定数は、ゼロ磁場と比べて約 37% 変化する。