

|               |   |
|---------------|---|
| Title         | Magnetoelectric Properties of Olivine-type Mn <sub>2</sub> GeO <sub>4</sub> with a Multicomponent Magnetic Structure  |
| Author(s)     | 本田, 孝志  |
| Citation      |   |
| Issue Date    |   |
| oaire:version |   |
| URL           | <a href="https://hdl.handle.net/11094/34503">https://hdl.handle.net/11094/34503</a>   |
| rights        |   |
| Note          | やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed</a> 大阪大学の博士論文について <a href="#"></a> をご参照ください。 |

*Osaka University Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

## 論文内容の要旨

氏名 ( 本田 孝志 )

論文題名

Magnetoelectric Properties of Olivine-type  $Mn_2GeO_4$   
 with a Multicomponent Magnetic Structure  
 (多成分磁気構造を持つオリビン型マンガン酸化物 $Mn_2GeO_4$ における電気磁気特性)

## 論文内容の要旨

物性物理分野において2000年以降、磁場（電場）で分極（磁化）を誘起するような電気磁気的な結合、電気磁気効果を示すマルチフェロイクス（磁気秩序や誘電秩序などの強制的秩序が同時に2つ以上存在する物質）の研究が再燃している。本研究では、最近マルチフェロイクスであることが報告されたオリビン型マンガン酸化物 $Mn_2GeO_4$ における特異なマルチフェロイック特性の起源を解明することを目的とした。そこで、電場・磁場・圧力といった種々の摂動下で、マクロ測定手法（磁化測定・比熱測定・誘電測定）とマイクロ測定手法（中性子回折・放射光X線回折）を組み合わせ、同物質の構造および電気的・磁気的物性の詳細を調べた。

はじめにフローティングゾーン法で作製した $Mn_2GeO_4$ 単結晶試料に対して電場下偏極中性子回折実験を行い、同物質のマルチフェロイック相における磁気構造が、強磁性特性を担う格子整合な弱強磁性構造成分と強誘電特性を担う格子非整合ならせん磁気構造成分の両者の成分を持つことを確定した。さらに同物質における強誘電特性の電場に対する応答を詳細に調べた結果、単一の強誘電ドメインを実現するためには、これまで報告のある如何なるらせん磁気構造由来のマルチフェロイクスよりもはるかに大きな電場が必要であることを発見した。この特異なマルチフェロイック特性に関して、強誘電性を担うらせん磁気構造と強磁性を担う格子整合な磁気構造が強く結合した同物質特有の磁気構造に起因するものと議論した。

また磁気構造及び誘電特性に対する物理的・化学的圧力効果を詳細に調べた。物理圧力効果に関しては、 $Mn_2GeO_4$ において6GPa以上で非整合-整合磁気転移が生じ、強誘電性が消失することを見出した。一方、化学的圧力効果に関しては、 $Mn_2GeO_4$ のGeサイトに対するSi置換効果を調べ、イオン半径の小さいSiで置換することで生じる化学的圧力によりらせん磁気構造由来の強誘電性が連続的かつ大きく変化することを観測した。物理的及び化学的圧力効果の結果を比較・検討することにより、磁気相互作用制御の観点からマルチフェロイック特性の発現機構を考察した。

## 論文審査の結果の要旨及び担当者

| 氏 名 ( 本 田 孝 志 ) |     |     |        |
|-----------------|-----|-----|--------|
|                 | (職) | 氏 名 |        |
| 論文審査担当者         | 主 査 | 教 授 | 木村 剛   |
|                 | 副 査 | 教 授 | 関山 明   |
|                 | 副 査 | 教 授 | 小口 多美夫 |
|                 | 副 査 | 教 授 | 萩原 政幸  |

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、オリビン構造を持つ遷移金属酸化物の1つである $Mn_2GeO_4$ において観測される稀有の強磁性と強誘電性の共存現象（すなわち、マルチフェロイック特性）の起源の解明を目的とした研究をまとめたものである。具体的な成果としては、 $Mn_2GeO_4$ 単結晶試料に対して偏極中性子線回折測定を行い、同物質におけるマルチフェロイック特性の起源ともいべき磁気構造を明らかにし、さらに磁気・強誘電特性に対する物理的および化学的圧力効果の詳細を調べ、磁気相互作用制御の観点から、同物質におけるマルチフェロイック特性の起源を検討した。本論文の内容を要約すると以下のとおりである。

- (1) 第1章では、序論として、電気磁気効果、マルチフェロイクス、磁気秩序誘起型強誘電体、オリビン型遷移金属酸化物、さらには本論文で取り扱ったオリビン型マンガン酸化物 $Mn_2GeO_4$ についてのこれまでの研究の沿革を記載したうえで、本研究の目的を述べている。
- (2) 第2章では、研究手法の説明を行っている。まず、フローティングゾーン法を用いての単結晶の育成に関して説明した後、磁化・誘電率・電気分極といったマクロ物性測定の詳細を述べ、放射光X線回折測定および結晶構造解析の説明を行っている。さらに物理的および化学的圧力印加の手法に関して述べ、また、磁気構造決定のための中性子線散乱測定に関する原理および手順の詳細を説明している。
- (3) 第3章では、 $Mn_2GeO_4$ 単結晶試料に対する電場下偏極中性子回折実験に関する結果を示し、同物質のマルチフェロイック相における磁気構造が、強磁性特性を担う格子整合な弱強磁性構造成分と強誘電特性を担う格子非整合ならせん磁気構造成分の両者の成分を持つことを確定した。さらに同物質における強誘電特性の電場に対する応答を詳細に調べた結果、単一の強誘電ドメインを実現するためには、従来のらせん磁気構造由来のマルチフェロイクスよりもはるかに大きな電場が必要であることを見出した。
- (4) 第4章では、物理的圧力印加により、 $Mn_2GeO_4$ において6GPa以上で非整合-整合磁気転移が生じ、強誘電性が消失することを見出した。一方、化学的圧力効果に関しては、 $Mn_2GeO_4$ のGeサイトに対するSi置換効果を調べ、イオン半径の小さいSiで置換することで生じる化学的圧力によりらせん磁気構造由来の強誘電性が大きく変化することを観測した。物理的及び化学的圧力効果の結果を比較・検討することにより、磁気相互作用制御の観点からマルチフェロイック特性の発現機構を考察している。
- (5) 第6章では、本研究論文が総括されている。

以上のように、本論文研究では、電場・磁場・圧力といった種々の摂動下で、マクロ測定手法とマイクロ測定手法を組み合わせ、オリビン型マンガン酸化物 $Mn_2GeO_4$ の構造および電氣的・磁氣的物性の詳細を調べた。その結果、同物質におけるマルチフェロイック特性は、強誘電性を担うらせん磁気構造と強磁性を担う格子整合な磁気構造が強く結合した同物質特有の磁気構造に起因するものであることを明らかにした。本研究の結果は、従来報告されたことのない強磁性と強誘電性の結合現象の機構の解明の一助となるものであり、さらに、オリビン型遷移金属化合物における新たなマルチフェロイック物質群発見といった展開を期待させるものである。よって本論文は博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。