

マルチフェロイックス  $\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$  の第一原理計算

First-principles calculations of multiferroic  $\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$

西田美穂<sup>1</sup>, 石井史之<sup>2</sup>, 斎藤峯雄<sup>2</sup>

M. Nishida, F. Ishii, and M. Saito

<sup>1</sup>金沢大学大学院自然科学研究科数物科学専攻, <sup>2</sup>金沢大学理工研究域数物科学系  
 Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University, Kanazawa,  
 920-1192

<sup>2</sup>Faculty of Mathematics and Physics, Institute of Science and Engineering, Kanazawa  
 University, Kanazawa, 920-1192

マルチフェロイックスとは、強誘電性と磁性を併せ持つ物質である。近年、マルチフェロイックスはスピントロニクスデバイスに応用できると期待されている。図1に示すマルチフェロイックス  $\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$  は、擬一次元的な Co-Mn 鎖のイジングスピン鎖をもっており、スピン間の相互作用のフラストレーションにより  $\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow$  のスピン配置が安定となることが実験により報告されている[1]。また、イジング鎖同士は三角格子を形成している(図1)。実験から 2K で電気分極  $310 \mu\text{C}/\text{m}^2$  をもつ反強磁性体である[2]とされているが、理論計算では電気分極  $17700 \mu\text{C}/\text{m}^2$ [3]と大きく見積もられていること、最安定磁気構造が  $\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow$  である[4]といった矛盾が解明されていない。本研究では、 $\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$ における三角格子のスピン自由度に着目し、磁性と強誘電性の相関について明らかにする。そのために密度汎関数法に基づく第一原理電子状態計算をおこない、交換相互作用の計算から磁気的安定性の議論をし、複数の磁気構造について電気分極を見積もった。

交換相互作用の計算結果より、鎖内の第二近接 Mn-Mn 間の交換相互作用  $J_{\text{Mn-Mn}}^2 = 0.13\text{meV}$ , 鎖間の第二近接 Mn-Mn 間の交換相互作用  $J_{\text{Mn-Mn}}^2 = -0.23\text{meV}$  であった。 $J > 0$  で強磁性的交換相互作用,  $J < 0$  で反強磁性的交換相互作用である。これまで鎖間(三角格子間)の相互作用は考慮されていなかったが、鎖間の相互作用を考慮することが重要であることが明らかとなった。鎖間を考慮すると、 $\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow$  構造は、64通りの磁気構造が可能である。そのうち、周期性や対称性を考慮することで6通りにわけられる。その中で最安定構造を  $E_0$ , 準安定構造  $E_1$  とする。 $E_1$  の磁気構造が実験で観測されている構造である。第一原理計算よりエネルギー差は  $0.06\text{meV}/\text{f.u.}$  であり、ほぼ縮退している。この2つの磁気構造について電気分極を計算した結果、 $E_0$  は  $1201 \mu\text{C}/\text{m}^2$ ,  $E_1$  は  $3592 \mu\text{C}/\text{m}^2$  と見積もられた。電気分極は Co-Mn 鎖の磁気構造によって c 軸正方向か負方向を示すため、 $E_0$  は鎖1本が c 軸負方向の電気分極を示しているのに対し、 $E_1$  は鎖3本とも c 軸正方向の電気分極を示すために、計算結果で約3倍異なった。これらの結果より、実験と理論計算で電気分極が異なる理由として、実験では 2K の観測であり、 $E_0$  と  $E_1$  は 1K 以下のエネルギー差でほぼ縮退しているために完全に秩序化していない可能性があり、さらに低温で電気分極が大きくなることが期待できる。

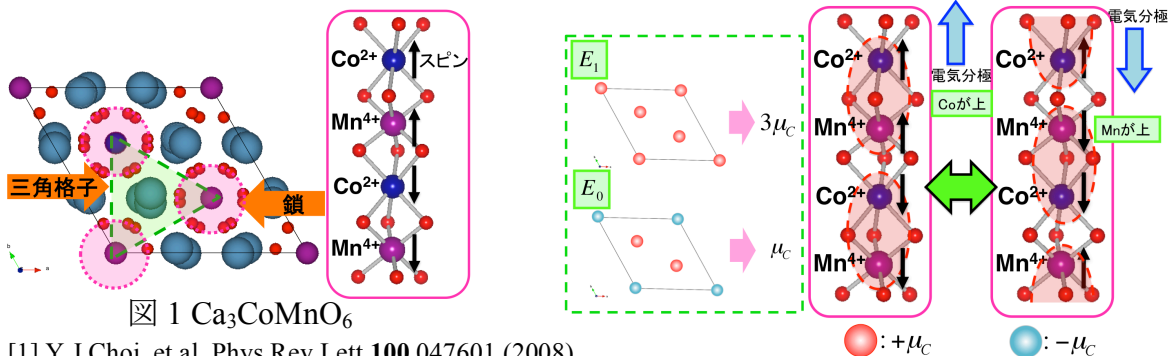


図1  $\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$

図2 磁気構造と電気分極の相関

[1] Y.J.Choi, et al, Phys.Rev.Lett **100**,047601 (2008).

[2] Y.J.Jo et al, Phys.Rev.B **79**,012407 (2009).

[3] Y.Zhang et al, Phys.Rev.B **79**,054432(2009)

[4] H.Wu,T.Burnus et al, Phys.Rev.Lett. **102**, 026404 (2009).