

公益財団法人矢崎科学技術振興記念財団
理事長 殿

国際学術会議での研究発表を終えて帰国しましたので、下記の通り報告します。

2026年4月20日

氏名 白崎 巧

所属 上智大学大学院理工学研究科理工学専攻

職位 博士後期課程2年

1. 発表論文名

Anisotropic Magnetism and Magnetoelectric Coupling in Polar Cluster Magnets $Ba_6Ln_2Fe_4O_{15}$ ($Ln = La, Pr, Nd$)

(極性クラスター磁性体 $Ba_6Ln_2Fe_4O_{15}$ ($Ln = La, Pr, Nd$)における異方的磁気特性と電気磁気結合)

2. 国際学術会議の名称

INTERMAG2026

4. 国際学術会議の開催地(国、地名、会場名など)

マンチェスター中央会議場, マンチェスター, イギリス

5. 渡航期間

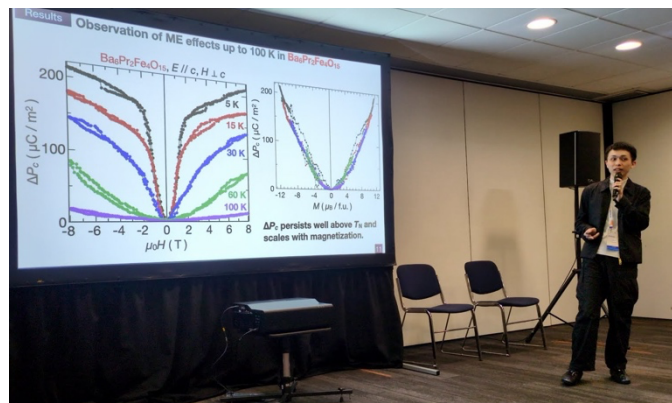
2026年4月13日 ~ 2026年4月18日

6. 国際学術会議発表の要旨

近年の生成AIやIoT技術の急速な発展に伴い、世界のデータ総量は爆発的に増大している。情報を集約するデータセンター等で用いられるHDDは、磁場を用いて情報の書き込みを行うため、原理的に省エネルギー化が困難という課題を抱えている。そこで、電場による書き込みを可能とし、超低消費電力デバイスの実現に資する“電気磁気物質”が注目を集めている。

本発表では、我々が世界で初めて単結晶合成に成功した新規電気磁気物質 $Ba_6Ln_2Fe_4O_{15}$ ($Ln = La, Pr, Nd$) の詳細な磁気特性と電気磁気特性について報告した。本物質は、4個の Fe^{3+} イオンが磁気クラスターと呼ばれる特殊な構造を取ることで、1個の大きなスピン ($S = 5$) として振る舞う特徴を持つ。この特徴のため、本物質は磁気クラスターと電気磁気特性が共存する稀有な物質となっている。一般的な電気磁気物質は、磁気相転移温度以下の限られた低温領域でしか大きな電気磁気効果を示さない。一方、本物質では磁気クラスターを形成する大きなスピン間の磁気相互作用により、磁気相転移温度よりも遥かに高温の常磁性状態においても大きな電気磁気効果が発現することを実証した。

この成果は、従来の“個々の磁性イオン”をベースとした電気磁気材料開発の枠組みを超え、“複数の磁性イオンがユニットを組むクラスター系”が室温動作可能な電気磁気デバイスの実現に向けた重要な鍵となることを示すものである。



電気磁気物質のセッションでの口頭発表の様子。

本発表は電気磁気物質に関するセッションの口頭発表に採択され、我々の新材料開発に対する関心の高さを肌で感じた。加えて、博士課程学生やポストドクターが自身の研究を幅広い聴衆に3分間でアピールする特別セッション "Young Professionals Lightning Talks" にも選出されたことは、本研究の国際的な注目度を示す客観的な成果であると言える。

7. 国際学術会議の動向

INTERMAG は IEEE Magnetics Society が主催する、磁性物理学分野において最大規模の国際会議であり、基礎物理からデバイス応用まで極めて広範囲なトピックスが議論される。近年の特筆すべき動向として、2020年頃から脚光を浴びた第3の磁性体 "Altermagnet (交代磁性体)" が、一過性の流行にとどまらず確固たる研究分野として確立し、本会議でも特別シンポジウムではなく通常のオーラルセッションとして定着していた点が挙げられる。

私の専門分野である電気磁気効果のセッションは、磁気スキルミオン等を含む "交差相関現象" として磁性物理学の一大分野を形成しており、基礎物性の探求から新物質探索、デバイス応用に至るまで活発な議論が交わされていた。また、基調講演では、2次元物質グラフェンの研究で2010年にノーベル物理学賞を受賞した Kostya Novoselov 教授により、2次元物質における最新の磁気特性に関する講演が行われ、多くの聴衆を魅了していた。

さらに本会議では、学術的なセッションに留まらず、若手研究者向けのネットワーキングや女性研究者の交流会など多様なスペシャルセッションが企画されており、磁性物理学コミュニティ全体を活性化させようとする運営側の強い意志を感じた。

開催地であるイギリス北部の都市マンチェスターは、産業革命発祥の地としての歴史的建造物と近代的なビルが調和する美しい街であった。マンチェスター大学を擁するこの落ち着いた環境は、世界中の研究者が集い、議論を深める場として非常に適していると感じた。懇親会 (Plenary Reception) は National Football Museum で開催され、サッカーの聖地という都市の特色を最大限に活かしたユニークで素晴らしい運営であった。

次回の INTERMAG 2027 は韓国の済州島で開催される予定である。末筆ながら、今後のキャリアを見据えるこの重要な時期に、世界最大規模の国際会議で自身の成果を発表し、国際的な知見を広める貴重な機会を与えてくださった矢崎科学技術振興記念財団に、深く感謝申し上げます。



(左) Kostya Novoselov 教授(2010年ノーベル物理学賞)による基調講演。(右) National Football Museum で開催された Plenary Reception の様子。

Anisotropic Magnetism and Magnetoelectric Coupling in Polar Cluster Magnets $\text{Ba}_6\text{Ln}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ ($\text{Ln} = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$)

Takumi Shirasaki, Taichi Ishikawa, and Hideki Kuwahara

Sci. and Technol., Sophia University, Tokyo, 102-8554, Japan, t-shirasaki-dxx@eagle.sophia.ac.jp

We report on the single-crystal growth and magnetoelectric properties of the polar cluster magnets $\text{Ba}_6\text{Ln}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ ($\text{Ln} = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$). These single crystals enable us to clarify the intrinsic magnetic anisotropy and magnetoelectric response of this polar cluster system, which remained elusive in previous polycrystalline studies [1]. Magnetization measurements reveal that the magnetic anisotropy strongly depends on the Ln ion; the Pr system exhibits Ising-like anisotropy, while the Nd and La systems behave as Heisenberg-like magnets. Additionally, in $\text{Ba}_6\text{La}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$, we discovered a significant magnetic-field-induced change in spontaneous electric polarization. This electric polarization change emerges continuously with the magnetic phase transition from the cluster-antiferromagnetic to the cluster-ferromagnetic phase. These findings demonstrate a sizeable magnetoelectric effect in a magnetic cluster system whose spin structure can be readily tuned by an external magnetic field.

Index Terms—Crystal growth, Magnetoelectric effect, Polar magnet, Spin cluster

I. INTRODUCTION

POLAR MAGNETS, whose crystal structures break spatial inversion symmetry even in the paramagnetic phase, have attracted significant attention as candidate materials for multiferroics and topological materials [2]. In this context, cluster magnets composed of isolated magnetic units, such as GaV_4S_8 , offer a unique platform [3]. These systems exhibit complex magnetic responses originating from the hierarchy of strong intra-cluster and weak inter-cluster interactions. When such magnetic clusters reside within a polar crystal structure, non-trivial magnetoelectric responses are anticipated.

To develop novel polar cluster magnets, we focused on $\text{Ba}_6\text{Ln}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ ($\text{Ln} = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$). This system crystallizes in the polar space group $P6_3mc$ at room temperature, forming isolated Fe_4O_{15} clusters consisting of one FeO_6 octahedron and three FeO_4 tetrahedra (see Fig. 1). Due to the intra-cluster super-exchange (J_1) and super-super-exchange (J_2) interactions, Fe^{3+} spins ($S = 5/2$) form a total cluster spin $S_T = 5$ within the Fe_4O_{15} cluster. Consequently, a cluster-antiferromagnetic (AFM) phase is realized, where the S_T moments align collinearly in the c -plane [4]. Furthermore, since the inter-cluster interactions are weaker than the intra-cluster coupling, the cluster-AFM phase is easily destabilized by an external magnetic field, leading to a cluster-ferromagnetic (FM) phase with aligned S_T moments [5]. Symmetry analysis predicts that while the linear magnetoelectric tensor vanishes in the cluster-AFM phase, a finite off-diagonal component α_{31} emerges in the cluster-FM phase. Although magnetocapacitance effects have been observed in polycrystalline $\text{Ba}_6\text{Nd}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ [1], the intrinsic magnetoelectric properties remain unclear. We synthesized single crystals of $\text{Ba}_6\text{Ln}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ to investigate the detailed magnetic and magnetoelectric properties of this unique system hosting both polar crystal structure and magnetic clusters.

II. EXPERIMENTAL

Polycrystalline samples of $\text{Ba}_6\text{Ln}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ ($\text{Ln} = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$) were prepared by a solid-state reaction method. Stoichiometric

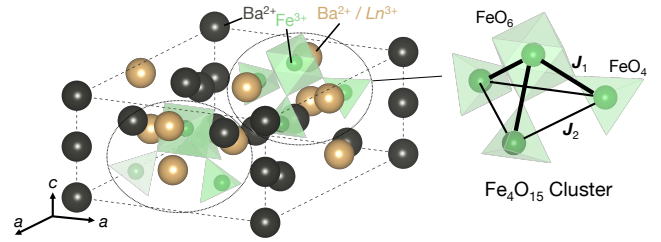


Fig. 1. Crystal structure of $\text{Ba}_6\text{Ln}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ ($\text{Ln} = \text{La}, \text{Pr}, \text{Nd}$) drawn using VESTA [6]. The Fe_4O_{15} cluster (circled by the dashed line) consists of one FeO_6 octahedron and three FeO_4 tetrahedra. J_1 and J_2 denote the nearest-neighbor and next-nearest-neighbor exchange interactions, respectively.

amounts of BaCO_3 , Ln_2O_3 ($\text{Ln} = \text{La}, \text{Nd}$), Pr_6O_{11} , and Fe_2O_3 were mixed and sintered at 1000°C for 72 h with intermediate grindings every 24 h. The powder was pressed into a rod and then calcined at 1000°C for 24 h. Single crystals were grown by the optical floating-zone technique. The growth rate was 2 mm/h in a 3 atm N_2 atmosphere. The feed rod speed was maintained at 3 mm/h to stabilize the molten zone. Powder X-ray diffraction measurements (D8 Advance, Bruker AXS) and Rietveld analysis confirmed that the obtained crystals are single-phase, with no detectable impurity peaks. Crystal orientation was determined by the back-reflection Laue method (IPX-YGR, IPX). Magnetic properties were measured using the Vibrating Sample Magnetometer (VSM) option of a Physical Property Measurement System (PPMS, Quantum Design). The magnetic field dependence of electric polarization was evaluated by integrating the displacement current measured using a picoammeter (6487, Keithley).

III. RESULTS

Figure 2 shows the temperature dependence of magnetization. Antiferromagnetic transitions were observed at $T_N = 13$ K (La), 17 K (Nd), and 22 K (Pr), which are consistent with previous studies on polycrystalline samples [4]. In the $\text{Ba}_6\text{Nd}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$, a subtle anomaly was observed at 12 K for

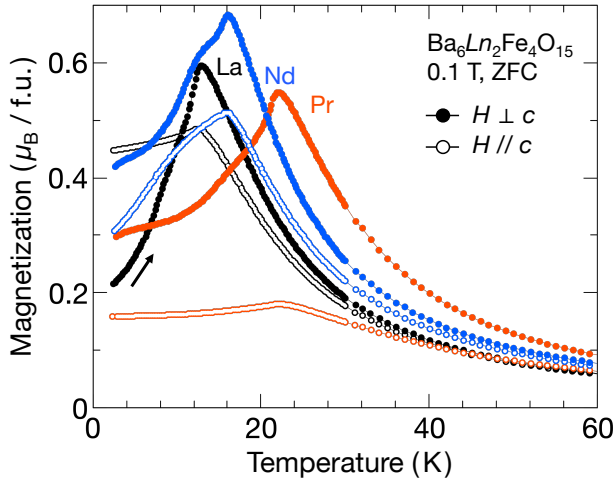


Fig. 2. Temperature dependence of magnetization for single-crystalline $\text{Ba}_6\text{Ln}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ measured under zero-field-cooled (ZFC) conditions. Solid and open symbols correspond to $H \perp c$ and $H \parallel c$, respectively.

$H \perp c$. A similar anomaly was reported in the previous polycrystalline study, but its origin remains unclear [1]. A significant magnetic anisotropy was observed between the magnetization along the c -axis ($H \parallel c$) and the c -plane ($H \perp c$). This anisotropy is most pronounced for $\text{Ln} = \text{Pr}$, indicating that the Ln ion species strongly influences the magnetic anisotropy. Furthermore, a divergence between zero-field-cooled (ZFC) and field-cooled (FC) magnetization was observed for $H \perp c$ (not shown here), suggesting the presence of a weak ferromagnetic component or the coexistence of cluster-AFM and cluster-FM phases.

Figure 3 displays the magnetic field dependence of magnetization and electric polarization change (ΔP) for the $\text{Ba}_6\text{La}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ with $H \perp c$. As shown in the upper panel, the magnetization exhibits a non-linear increase below 3 T, attributed to the reorientation of the cluster spins from the AFM to the FM state. Crucially, this magnetic phase transition is accompanied by a non-linear change in spontaneous electric polarization (lower panel). Unlike a metamagnetic transition often seen in anisotropic antiferromagnets, the present magnetic-field-induced transition is accompanied by a continuous change in ΔP . This continuous evolution suggests that the transition from the cluster-AFM to the cluster-FM phase is not a sharp first-order transition but rather exhibits a crossover-like behavior involving continuous spin reorientation. Furthermore, in the high magnetic field region above 2 T, ΔP exhibits a linear dependence on the magnetic field. This behavior is consistent with the presence of the off-diagonal linear magnetoelectric tensor component α_{31} , as allowed by the magnetic point group symmetry of the magnetic-field-induced cluster-FM phase. The magnitude of ΔP reaches approximately $80 \mu\text{C}/\text{m}^2$ at 8 T, and the magnetoelectric coefficient is estimated to be $\alpha_{31} = 4.8(4) \text{ ps}/\text{m}$ in the field range above 2 T at 5 K. Unlike typical collinear antiferromagnets, the magnetic structure of this system can be easily modulated by a magnetic field due to the weak inter-cluster interactions, enabling non-linear control of the electric polarization via the magnetic field.

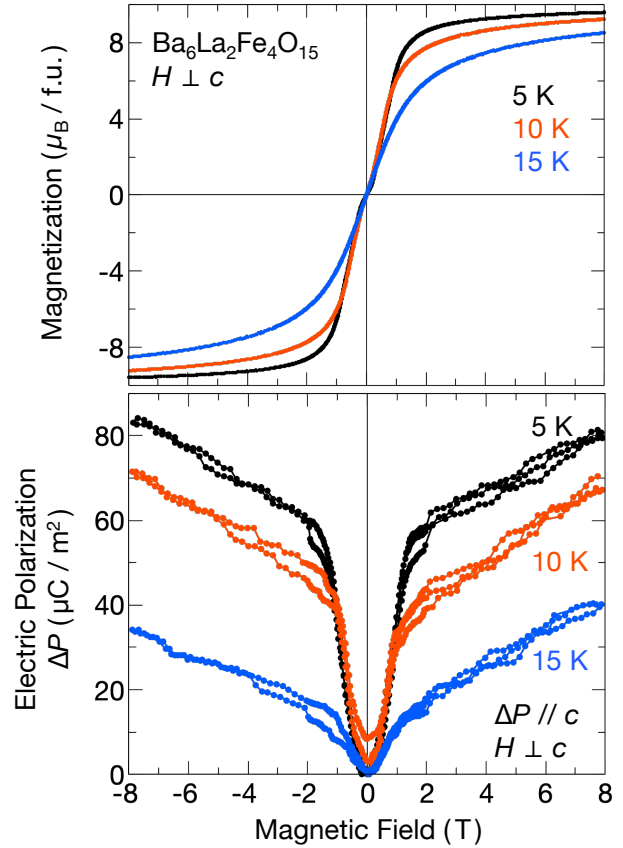


Fig. 3. Magnetic field dependence of (upper panel) magnetization and (lower panel) electric polarization change for single-crystalline $\text{Ba}_6\text{La}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ with $H \perp c$.

ACKNOWLEDGEMENT

We thank A. Haga for his assistance with sample preparation. This work was partly supported by JST SPRING, Grant Number JPMJSP2169.

REFERENCES

- [1] Y. K. Lin, A. Tiwari, C. W. Wang, J. Y. Lin, M. J. Hsieh, T. W. Yen, Y. C. Chuang, Y. C. Lai, A. Pal, H. D. Yang, and D. C. Kakarla, "Interplay of $S = 5/2$ spin-tetramer cluster magnetism and magnetodielectric effect in polar $\text{Ba}_6\text{Nd}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$," *Phys. Rev. Mater.*, vol. 9, p. 114407, Nov 2025.
- [2] Y. Tokura and N. Kanazawa, "Magnetic Skyrmion Materials," *Chem. Rev.*, vol. 121, p. 2857, Nov 2021.
- [3] I. Kézsmárki, S. Bordács, P. Milde, E. Neuber, L. M. Eng, J. S. White, H. M. Rønnow, C. D. Dewhurst, M. Mochizuki, K. Yanai, H. Nakamura, D. Ehlers, V. Tsurkan, and A. Loidl, "Néel-type skyrmion lattice with confined orientation in the polar magnetic semiconductor GaV_4S_8 ," *Nat. Mater.*, vol. 14, p. 1116, Sep 2015.
- [4] K. Abe, Y. Doi, Y. Hinatsu, and K. Ohoyama, "Structural and magnetic properties of the quaternary oxides $\text{Ba}_6\text{Ln}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$ ($\text{Ln} = \text{Pr}$ and Nd)," *J. Solid State Chem.*, vol. 182, p. 273, Feb 2009.
- [5] K. Abe, Y. Doi, Y. Hinatsu, and K. Ohoyama, "Magnetic Properties of the Spin Tetramer Compound $\text{Ba}_6\text{La}_2\text{Fe}_4\text{O}_{15}$," *Chem. Mater.*, vol. 18, p. 785, Jan 2006.
- [6] K. Momma and F. Izumi, "VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data," *J. Appl. Cryst.*, vol. 44, p. 1272, Sep 2011.