

令和 5 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2021～2022

課題番号：21K18595

研究課題名(和文) マグノンシフト電流を利用した新しい環境発電原理の開拓

研究課題名(英文) Exploration of novel energy harvesting approach with magnon shift current

研究代表者

関 真一郎 (Seki, Shinichiro)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授

研究者番号：70598599

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 5,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、空間反転対称性の破れた磁性体で期待されるマグノンシフト電流を、GHz帯域の磁気共鳴を介して実験的に観測することを目指して研究を行った。具体的な対象物質として、キラル・極性構造を持つ磁性絶縁体であるCu<sub>2</sub>SeO<sub>3</sub>とVOSe<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を選定し、その磁気共鳴ダイナミクスの詳細を明らかにすることに成功した。また、磁気共鳴を強励起した環境下で電流信号を観測するための測定系の立ち上げを行い、マイクロ波吸収に付随して生じる電流信号を観測することができた。今後は温度依存性の詳細な解析や、理論的に予想される電流波形との比較を行う等のアプローチを通じて、マグノンシフト電流成分の抽出を試みる予定である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の対象である空間反転対称性の破れた磁性体は、磁気スキルミオン・らせん磁気構造といった、特殊な幾何学的性質によって特徴付けられたスピン配列を有することが知られている。本研究では、こうした磁気相における複数の固有振動モードの実験的な同定を行い、さらにシミュレーションを通じてその理論的な再現を行うことに成功した。これらは、トポロジカルスピントロニクスダイナミクスの統一的理解に向けた重要なステップであると考えられる。また、マグノンシフト電流は、GHz帯の電磁波を利用した環境発電原理として利用できる可能性が期待され、今後はその確実な分離方法の確立と、効率の向上にも取り組む予定である。

研究成果の概要(英文)：In this study, we have investigated the magnon shift currents expected in magnetic materials with broken space-reversal symmetry, aiming to experimentally observe them via magnetic resonance in the GHz frequency range. We have selected magnetic insulators Cu<sub>2</sub>SeO<sub>3</sub> and VOSe<sub>2</sub>O<sub>5</sub> (characterized by the chiral and polar crystal structures, respectively) as the target materials, and their magnetic resonance dynamics were investigated in detail. We have also constructed a measurement system to observe current signals under strong excitation of magnetic resonance, and were able to observe current signals associated with microwave absorption. We will attempt to extract magnon shift current components by analyzing their detailed temperature dependence and current waveforms with theoretical models.

研究分野：物性物理

キーワード：スピントロニクス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

近年、対称性やトポロジという系の幾何学的な性質が、革新的な電子物性・機能を実現するための鍵として大きな注目を集めている。例えば、空間反転対称性の破れた磁性体においては、隣接するスピンを傾けようとする Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用と呼ばれる力がはたらくことで、磁気スキルミオン(トポロジカルに安定な粒子としての性質を持ったナノサイズの渦状スピン構造)・らせん磁気構造といった、特殊なスピン配列が実現することが知られている。こうした新しいタイプのスピントクスチャは、情報担体としての活用の可能性が盛んに議論されており、そのダイナミクスの理解が大きな課題となっている。

一方で、こうした空間反転対称性の破れた物質においては、電場に対する非線形な応答として「シフト電流」と呼ばれる現象が生じることが知られている。シフト電流は、もともと強誘電体中の光起電力を説明するために2012年に理論的に提案された概念である[Young *et al.*, Phys. Rev. Lett. **109**, 116601 (2012)]。一般に、反転対称性の破れた結晶構造のもとでは、価電子帯から伝導帯に電子を光励起した際に、波動関数の位相シフト(量子ベリー接続)が生じ、これが電子の重心位置を変化させることによって、エネルギー非散逸な分極電流(シフト電流)が生じる。同様の現象は、様々な素励起過程に対して生じることが予測されており、例えば反転対称性の破れた結晶構造を持つ磁性体中で磁気共鳴を起こすと、マグノンの生成に伴って電子スピンの反転の際に有限の量子ベリー接続が生じ、やはり同様のシフト電流が生じることが理論的に提案されている[Morimoto *et al.*, Phys. Rev. B **100**, 235138 (2019)]。後者の現象は、実験的にはまだ全く未開拓であるものの、WiFi無線通信などで一般的なGHz帯域の電磁波によって大きな起電力を生み出せるため、モバイル機器のためのコピキタス電源として活用できるポテンシャルを秘めていると考えられる。

### 2. 研究の目的

そこで本研究では、こうしたマグノンシフト電流による環境発電の可能性を検証するため、空間反転対称性の破れた結晶構造を伴う様々な磁性絶縁体における、磁気共鳴ダイナミクスの実験的な解明  
GHz帯域の電磁波やパルス電磁場が誘起するスピンドイナミクスに起因した、マグノンシフト電流の実験的な検証  
の2点を目的として研究を行った。

### 3. 研究の方法

本研究では、空間反転対称性の破れた磁性体の具体例として、キラル構造を持つ磁性絶縁体  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  および極性構造を持つ磁性絶縁体  $\text{VOSe}_2\text{O}_5$  を選定し、その単結晶試料における磁気共鳴ダイナミクスの詳細を明らかにした。磁気共鳴の実験的検出にあたっては、超伝導マグネットを備えたクライオスタット中に、GHz帯域に対応した高周波ケーブルを導入し、振動電磁場照射用のマイクロストリップラインを接続して、その中に測定対象となる試料を挿入した。ケーブルのもう一方をネットワークアナライザに接続し、外部磁場の値を変化させながら、マイクロ波の透過係数のスペクトルを測定することで、磁気共鳴に起因した吸収スペクトルの測定を行った。また、上記の実験的なセットアップに加えて、電流計測用のケーブルを別途導入することで、磁気共鳴を強励起した環境下で生じるマグノンシフト電流の観測を試みた。

### 4. 研究成果

まず最初に、空間反転対称性の破れた結晶構造を伴う磁性絶縁体  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  (キラル構造) と  $\text{VOSe}_2\text{O}_5$  (極性構造) に対して、それぞれ温度・磁場の関数として詳細な磁気共鳴スペクトルの解析を行った。

キラル構造を持つ立方晶  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  は、磁場下で Bloch 型のスキルミオンを生じることが知られている。過去の研究から、この物質のスキルミオン相では、Clockwise, Counter-clockwise, Breathing の3つの固有振動モードが存在することがわかっており、これらは振動磁場によって励起することが可能である。一方、本研究では新たに、振動磁場に対して不活性な octupole, sextupole モードを、前述の振動磁場活性なモードとの hybridization を通じて、実験的に初めて観測することに成功した。詳細な理論解析の結果、これらのモード間の hybridization は、立方対称な磁気異方性を起源として生じていることが明らかになり、同理論に基づいて、観測された磁気共鳴スペクトルを定量的に再現することができている(図1)。

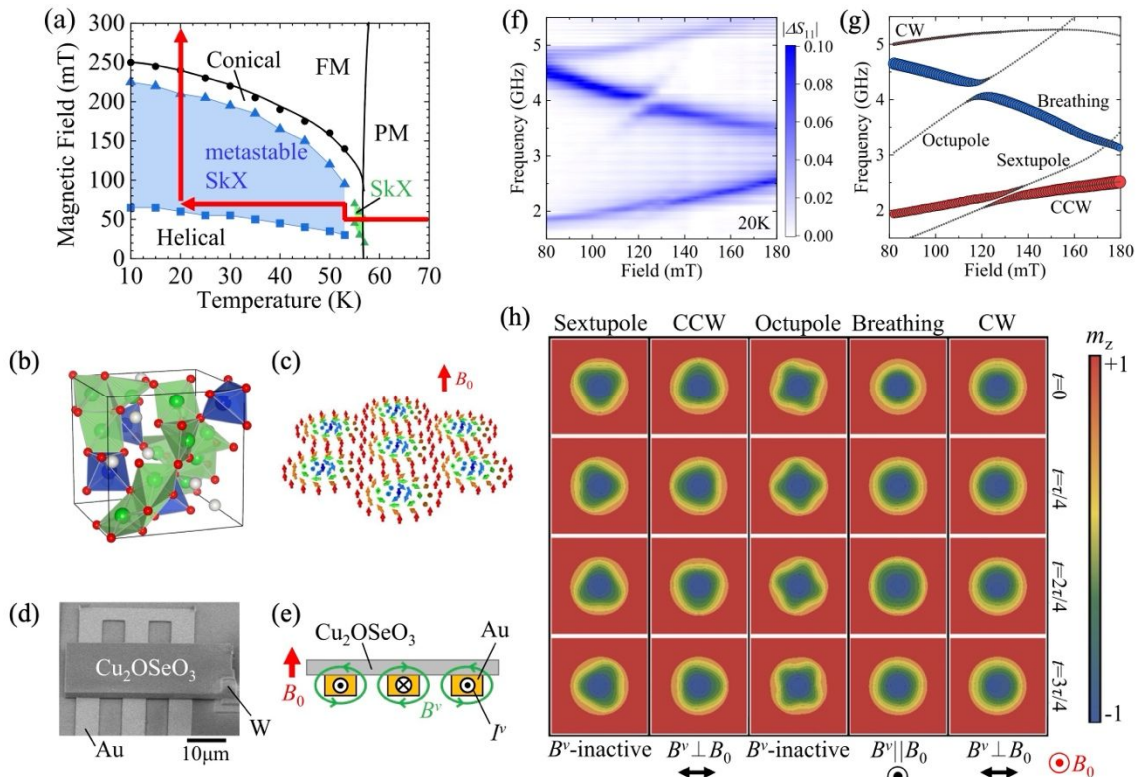


図 1 :  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  の(a)温度磁場相図と(b)結晶構造。(c)Bloch 型スキルミオン格子。(d),(e)磁気共鳴測定のための実験配置。(f)20 K における準安定スキルミオン相における磁気共鳴スペクトルの磁場依存性 (実験データ)。背景色はマイクロ波吸収強度を表している。(g)対応する理論シミュレーションの結果。実験データを定量的に非常に良く再現できていることが読み取れる。(h)各振動モードにおけるスキルミオンテクスチャの時間発展の模式図。Sextupole モードと Octupole モードは振動磁場に対して不活性だが、他の振動磁場に活性なモードとの hybridization を通じて、実験的な観測が可能となった。

また、極性構造を持つ正方晶  $\text{VOSe}_2\text{O}_5$  は、基底状態で Cycloid 型らせん磁気構造を、磁場下で Neel 型のスキルミオンを生じることがわかっている。この物質の磁気共鳴モードはこれまで未知であり、本研究で詳細な測定を行った結果、スキルミオン相・らせん磁気相の下で、それぞれ 3 つの固有振動モードが存在することが明らかになった。らせん磁性相の共鳴モードは、 $x, y, z$  軸周りのらせんスピン面の振動モード (うち 1 つは Phason に対応) に、スキルミオン相の共鳴モードは Clockwise, Counter-clockwise, Breathing モードに、それぞれ対応しており、一軸磁気異方性を考慮した理論モデルによって、その共鳴スペクトルの磁場依存性を非常に良く再現することに成功した。前述の  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  (立方晶) 比べると、 $\text{VOSe}_2\text{O}_5$  (正方晶) におけるスキルミオン相では、Breathing モードの励起エネルギーが低くなっているという特徴があり、この違いは一軸異方性の有無によってよく説明できることが明らかになった (図 2)。

さらに、磁気共鳴を強励起した環境下で電流信号を観測するための測定系の立ち上げも行い、実際にマイクロ波吸収に付随して生じる電流信号を観測することに成功した。これらの信号は、マグノンシフト電流による寄与と、発熱による熱起電力・焦電流の寄与の両方を含む可能性があるため、その切り分けを行うために、サブナノ秒幅の超高速パルス電圧源とサンプリングオシロスコープを組み合わせた、時間分解測定を可能とする実験系の構築を行った。後者の手法により、原理的には応答の遅い熱起電力の寄与を排除することが可能であると考えられるが、焦電流の寄与については完全には排除できていない可能性があり、今後は温度依存性の詳細な解析や、理論的に予想される電流の時間波形との比較を行う等のアプローチを通じて、マグノンシフト電流成分の確実な抽出を試みる予定である。

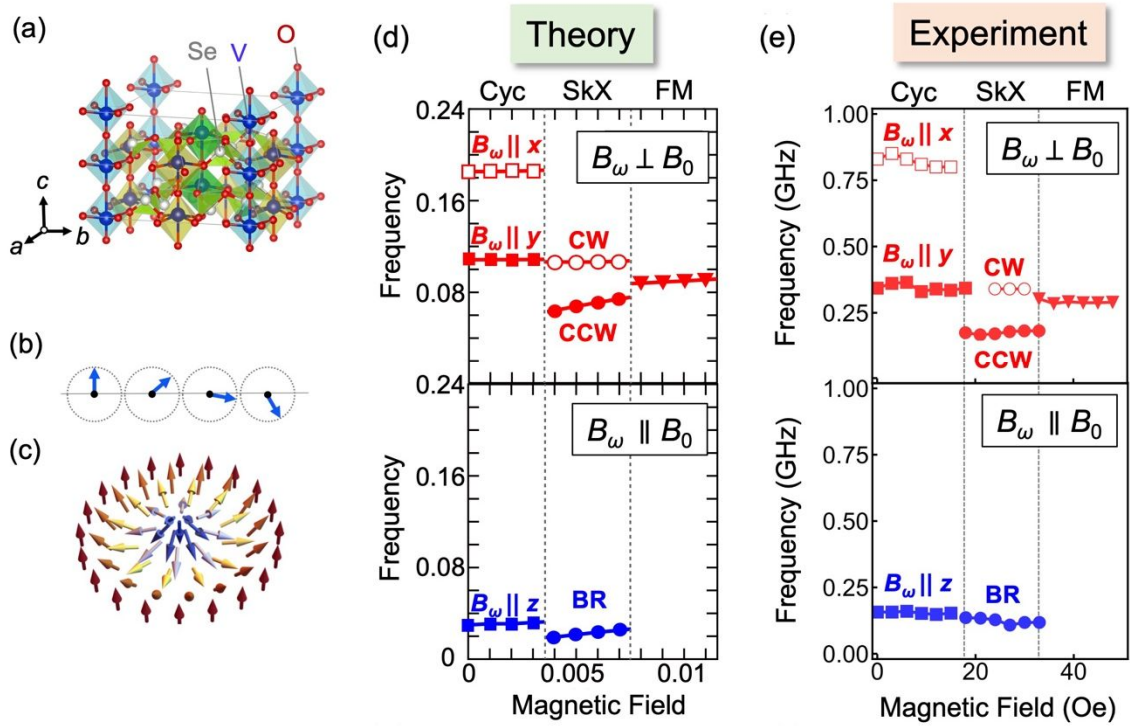


図 2 : (a)VOSe<sub>2</sub>O<sub>5</sub> の結晶構造。(b)Cycloid 型らせん磁気構造と(c)Neel 型スキルミオンの模式図。(d)理論計算と(e)実験によって得られた、Cycloid 型らせん磁気相 (Cyc) とスキルミオン格子相 (SkX) における磁気共鳴モードの共鳴周波数の磁場依存性。両者は非常に良く一致していることがわかる。CW, CCW, BR はそれぞれ Clockwise, Counter-clockwise, Breathing モードを指している。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Takagi H., Takagi R., Minami S., Nomoto T., Ohishi K., Suzuki M.-T., Yanagi Y., Hirayama M., Khanh N. D., Karube K., Saito H., Hashizume D., Kiyanagi R., Tokura Y., Arita R., Nakajima T., Seki S.	4. 巻 -
2. 論文標題 Spontaneous topological Hall effect induced by non-coplanar antiferromagnetic order in intercalated van der Waals materials	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nature Physics	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41567-023-02017-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nomura T., Zhang X.-X., Takagi R., Karube K., Kikkawa A., Taguchi Y., Tokura Y., Zherlitsyn S., Kohama Y., Seki S.	4. 巻 130
2. 論文標題 Nonreciprocal Phonon Propagation in a Metallic Chiral Magnet	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 176301
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.130.176301	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Reim Johannes D., Matsuzaka Shinnosuke, Makino Koya, Aji Seno, Murasaki Ryo, Higashi Daiki, Okuyama Daisuke, Nambu Yusuke, Gilbert Elliot P., Booth Norman, Seki Shinichiro, Tokura Yoshinori, Sato Taku J	4. 巻 106
2. 論文標題 Higher-order modulations in the skyrmion lattice phase of $\text{Cu}_{2}\text{OSeQ}_{3}$	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104406
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.106.104406	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gen Masaki, Takagi Rina, Watanabe Yoshito, Kitou Shunsuke, Sagayama Hajime, Matsuyama Naofumi, Kohama Yoshimitsu, Ikeda Akihiko, ?nuki Yoshichika, Kurumaji Takashi, Arima Taka-hisa, Seki Shinichiro	4. 巻 107
2. 論文標題 Rhombic skyrmion lattice coupled with orthorhombic structural distortion in $\langle \mathbf{m} \rangle$ xmlns:mml="http://www.w3.org/1998/Math/MathML"><mml:msub><mml:mi>EuAl</mml:mi><mml:mi><mml:mn>4</mml:mn></mml:mn></mml:msub></mml:math>	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L020410
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.107.L020410	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takagi Rina, Matsuyama Naofumi, Ukleev Victor, Yu Le, White Jonathan S., Francoual Sonia, Mardegan Jos? R. L., Hayami Satoru, Saito Hiraku, Kaneko Koji, Ohishi Kazuki, ?nuki Yoshichika, Arima Taka-hisa, Tokura Yoshinori, Nakajima Taro, Seki Shinichiro	4. 巻 13
2. 論文標題 Square and rhombic lattices of magnetic skyrmions in a centrosymmetric binary compound	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 1472
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-022-29131-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Seki S., Suzuki M., Ishibashi M., Takagi R., Khanh N. D., Shiota Y., Shibata K., Koshibae W., Tokura Y., Ono T.	4. 巻 21
2. 論文標題 Direct visualization of the three-dimensional shape of skyrmion strings in a noncentrosymmetric magnet	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Materials	6. 最初と最後の頁 181 ~ 187
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41563-021-01141-w	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Khanh Nguyen Duy, Nakajima Taro, Hayami Satoru, Gao Shang, Yamasaki Yuichi, Sagayama Hajime, Nakao Hironori, Takagi Rina, Motome Yukitoshi, Tokura Yoshinori, Arima Taka hisa, Seki Shinichiro	4. 巻 9
2. 論文標題 Zoology of Multiple $\langle \mathbf{Q} \rangle$ Spin Textures in a Centrosymmetric Tetragonal Magnet with Itinerant Electrons	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Science	6. 最初と最後の頁 2105452 ~ 2105452
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/advs.202105452	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Takagi Rina, Garst Markus, Sahliger Jan, Back Christian H., Tokura Yoshinori, Seki Shinichiro	4. 巻 104
2. 論文標題 Hybridized magnon modes in the quenched skyrmion crystal	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 144410
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.144410	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 5件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 関真一郎
2. 発表標題 JRR-3を利用した非共面磁気構造とトポジカル輸送現象の解明
3. 学会等名 本中性子科学会 第22回年会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 関真一郎
2. 発表標題 時間反転対称性の破れた反強磁性体の新物質開拓
3. 学会等名 日本磁気学会第86回スピントロニクス専門研究会 (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Seki
2. 発表標題 Novel materials with magnetic skyrmions and their three-dimensional dynamics
3. 学会等名 Workshop on Topology in Magnetic Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 S. Seki
2. 発表標題 Direct Visualization of the Three-dimensional Shape of Skyrmion Strings
3. 学会等名 Materials Research Society (MRS) Spring Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 荒木那巨, 車地崇, 十倉好紀, 高木里奈, 関真一郎
2. 発表標題 極性スキルミオン物質VOSe205における磁気共鳴モードの観測
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高木寛貴, 高木里奈, 齋藤開, Nguyen Duy Khanh, 大石一城, 鬼柳亮嗣, 野本拓也, 見波将, 鈴木通人, 柳有起, 平山元昭, 軽部皓介, 橋爪大輔, 十倉好紀, 有田亮太郎, 中島多朗, 関真一郎
2. 発表標題 異常ホール反強磁性体CoM3S6 (M=Nb, Ta)の偏極中性子散乱による磁気構造解析
3. 学会等名 日本物理学会 2022年年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岡村嘉大, 林悠大, カーンヌイエン, 関真一郎, 十倉好紀, 高橋陽太郎
2. 発表標題 カイラル反強磁性体CoNb3S6の異常ホール効果の磁気光学分光
3. 学会等名 日本物理学会 2022年年次大会
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 関真一郎, 鈴木基寛, 石橋未央, 高木里奈, Nguyen Duy Khanh, 塩田陽一, 柴田基洋, 小椎八重航, 十倉好紀, 小野輝男
2. 発表標題 磁気スキルミオンストリングの3次元形状の観察
3. 学会等名 日本物理学会 2022年年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 関真一郎
2. 発表標題 磁気スキルミオンの物質設計と3次元ダイナミクス
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会(招待講演)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ドイツ	Karlsruhe Institute of Technology	Technische Universität München		
スイス	Paul Scherrer Institute (PSI)	EPFL		