

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 30 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2012～2016

課題番号：24224009

研究課題名(和文)磁性体における創発電磁気学の創成

研究課題名(英文) Emergent electromagnetism in magnets

研究代表者

永長 直人 (Nagaosa, Naoto)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号：60164406

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 167,700,000円

研究成果の概要(和文)：実空間および運動量空間の双方における量子力学的ベリー位相に由来する「創発電磁場」の学理を、磁性体を舞台に建設した。実空間ではカイラル磁性体における渦巻状のスピン構造スキルミオンの生成、消去、駆動、読み取り、に対応した動的性質の研究が、理論・実験双方から進展し、エレクトロニクスへの展望が開けた。

運動量空間では、新しい物質群である磁性トポロジカル絶縁体における量子化異常ホール効果の実現と、関連した諸現象(磁壁に伴う非散逸電流、スキルミオン生成、新奇なアキシオン絶縁体の発見)などの他に、モノポール構造のもたらす物性を明らかにした。また、非相反応答、トポロジカル光電流生成、など新奇動的効果を解明した。

研究成果の概要(英文)：Emergent electromagnetism, which originates from the quantum mechanical Berry phase, has been developed in both real-space and momentum-space of magnets. In real-space, a swirling spin texture called skyrmion has been studied extensively. Its dynamics corresponding to creation, annihilation, motion, and read-out has been revealed, leading to the foundation of its application to electronics.

In momentum-space, we succeeded to realize the quantized anomalous Hall effect and related various novel phenomena such as dissipationless current in domain wall, skyrmion formation, and axionic insulator. Also the physics of monopole in momentum-space has been explored. New dynamical effects associated with the emergent electromagnetic fields such as nonreciprocal nonlinear responses and photo-induced topological current have been revealed.

研究分野：物性理論

キーワード：ベリー位相 創発的電磁気現象 スキルミオン モノポール トポロジカル絶縁体

1. 研究開始当初の背景

(1)異常ホール効果やスピンホール効果などの現象に、量子力学的なベリー位相が本質的に重要な役割を果たしていることが明らかになりつつあり、この概念を固体電子の感じる「電磁場」として定式化する動きが進んでいた。これを「創発電磁場」と名付けて広範囲の現象を記述する学理へと構築する準備が整っていた。

(2)運動量空間の創発電磁場には磁気単極子の構造が存在し、強い創発磁場をもたらすことが知られ、これを使うと量子化異常ホール効果が可能であることが予想されていた。また、実空間における創発磁場をもたらすスピン構造として、スキルミオンがカイラル磁性体で発見され、その運動が微小な電流で駆動できることが実験的に観測されており、微視的な機構解明が待たれていた。

2. 研究の目的

(1)上記の背景下、磁性体の創発電磁気学を、運動量空間および実空間の双方から、そのダイナミクスを含めて構築することを目的とした。理論による概念主導の下、物質設計と磁気構造・磁気励起解析の実験チームを両翼に備えて、理論・実験の緊密な連携によって研究を行う。

(2)実空間の創発電磁場研究として、金属スキルミオン系の各種輸送現象を理論・実験から明らかにし、絶縁体スキルミオン系の誘電分極の挙動を調べマルチフェロイクスとしての特性を明らかにする。これらの知見を元に、超低電力消費の「スキルミオニクス」の創成を目指す。

(3)運動量空間に関してはトポロジカル絶縁体に磁性原子をドーブして磁性体を作り、極低温遷移輸送現象の測定を行って量子化異常ホール効果の実現を目指す。また、金属酸化物超構造や界面におけるトポロジカル絶縁体・トポロジカル磁性体の理論設計、MBEによる試料作製、電気2重層トランジスター(EDLT)によるキャリア制御などを駆使してその実験的研究を行う。

(4)マルチフェロイクス物質やスキルミオン系におけるエレクトロマグノンのダイナミクスを創発電磁場の観点から研究する。光電気磁気結合効果(光ME効果)や方向2色性などの進んだ磁気光学効果がこの範疇に入る。

3. 研究の方法

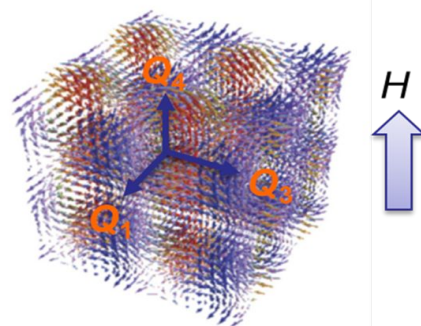
(1)場の理論に基づく概念形成と第一原理計算を援用した理論設計を起点に、物質設計・試料作製、物性測定のグループと、中性子散乱を主としたスピン構造、スピンダイナミクスの研究を行うグループを両翼として、3者の密接な連携のもとに磁性体の創発電磁気学を建設する。

(2)理論では、LLG方程式の数値解、第一原理電子状態計算、などの電子計算機による研究と、非摂動的場の理論の手法を合わせて解析を進める。実験では、高圧合成のバルク合成、MBE、Lorentz顕微鏡によるスキルミオン実空間観測、偏極中性子を用いた小角散乱および高角領域散乱測定による構造決定、さら

に中性子スピンエコー等を用いた低周波数領域での揺らぎ相関測定を行う。

4. 研究成果

(1)「実空間構造によるトポロジカル磁性体」のテーマとしては、(i)多数のスピンからなるトポロジカルスピネクスタであるスキルミオンの動的性質をLLG方程式の大規模数値計算によるシミュレーションによって解明し、実験グループを主導した。具体的には、スピントランスファートルクによる電流駆動運動をピン止め力の存在下で調べ、強磁性体中の通常の磁壁の場合に比べ桁違いに小さい閾値電流密度でスキルミオン結晶が動くこと、そしてその電流速度特性は系の詳細に依らない普遍的なものとなることを見出し、それがスキルミオン特有のカイラルダイナミクス(回転を基本とする運動形態)に起因することを突き止めた。さらに、ナノワイアに閉じ込められたスキルミオンの電流駆動運動を調べ、ワイア方向の電流では磁壁の場合と同じ電流速度特性に戻ってしまうのに対して、ワイアに垂直方向の電流によると普遍的な電流速度特性のさらにおよそ100倍にも及ぶ早い速度で動かすことができることを発見した。また、熱揺動を加えて有限温度のスキルミオンのブラウン運動を調べ、電子線照射による温度勾配の下で、マグノン流の流れによるスキルミオンのマイクロ結晶がラチェット的な回転運動を起こすことを見出し、ローレンツ電子顕微鏡による観測結果を説明した。また、熱運動、電流駆動運動、磁場駆動運動の3つの場合に、スキルミオンの質量が異なる値をとることを発見し、特に電流駆動の場合にはほとんど無視できることを示した。また、熱拡散がほとんど起こらないことも示した。このように、磁性体中の新しいトポロジカルな粒子であるスキルミオンが特異なダイナミクスを持つことを明らかにし、さらにこれを受けて、電流駆動を用いたスキルミオンデバイスの設計学、光照射によるスキルミオンの生成・消去法の構築に進み、16件の基本特許を申請した。さらに、2層系スキルミオンのシミュレーションを行い、層間の相互作用の符号によって多彩なダイナミクスが実現することを見出した。3次元におけるスキルミオンとモノポール構造の研究も推進し、実験グループにより観測されたMnGeの輸送現象や超音波吸収に現れる特異な物性を、磁場下でのトポロジカル相転移として捉えることに成



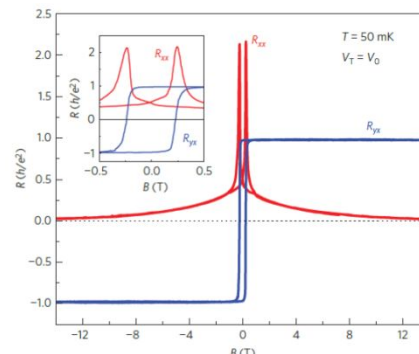
3次元のモノポール結晶状態

功した。(下図)第一原理電子状態計算では、ジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用の強さを評価する方法論を開発し、 $Mn_{1-x}Fe_xGe$ に応用して、 x に関してDM相互作用の符号反転を観測した実験を再現するとともに、その微視的原因を突き止めた。さらに、歪によって大きなDM相互作用の異方性が誘起されることを実験、理論双方から見出した。

実験では様々な物質合成法による物質開拓と多角的な物性測定を用いることによって(ii)薄膜作製法や微細加工法を用いたスキルミオン形成機構についての系統的な研究、(iii)超音波吸収やマイクロ波の方向二色性応答といった未開拓物性の観測、(iv)スキルミオン候補物質 $SrFeO_3$ 薄膜作製の成功や $MnGe$ における3次元スキルミオン状態や層状マンガン酸化物 $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ におけるスキルミオン分子状態といった新規トポロジカルスピントクスチャの開拓、(v)スキルミオンを情報担体として利用した「スキルミオニクスデバイス」の要素の実現、に成功した。例えば(ii)では、微細加工法による試料厚さ・元素置換によるスピン軌道相互作用などの系統的制御によってスキルミオンの安定的形成に必要な磁気異方性などの物理パラメータが明らかになり、今後のスキルミオニクスデバイス作製の大きな指針を提供できた。実際に(v)では、スキルミオニクスへの実現に向けて、例えば $FeGe$ の細線回路を作製し、そのデバイス中において創発電磁場を利用した単一スキルミオン検出に成功している。(iii)では、カイラル磁性体の磁場下で現れるヘリカル相、スキルミオン相、強磁性相、それぞれにおいてマグノンの伝播の方向依存性を実験的に明らかにした。さらに(iv)では、 $MnGe$ の3次元スキルミオン状態における創発電磁場の分布は実空間の磁気モノポールのそれと同一となることを見出し、それに伴う創発電磁場の、ホール効果、磁気抵抗、熱電効果などに現れる効果を実験的に明らかにした。(vi) 金属磁性体 $MnSi$ のスキルミオン格子相において非弾性中性子散乱実験を行った。その結果、まずヘリカル相と比べてスキルミオン格子相では散乱中性子強度が三倍近く増強されることがわかった。また、スキルミオン格子相から温度を上げ、中間(IM)相のデーとの比較から、スキルミオン格子相由来の磁気励起シグナルを同定することに成功した。カイラル磁性体中の磁気励起の波数依存性(分散関係)に関して、マグノンに対するラシュバ分裂効果を、反転対称をもたない $MnSi$ や $a-Cu_2V_2O_7$ にて実験的に検出した。 $MnSi$ の電流下中性子小角散乱実験を実施し、十分に制御された温度勾配下で電流によるスキルミオン格子変形を確認した。また、反強磁性スキルミオン物質と期待される $CaBaCo_7Fe_2O_7$ の磁場中中性子散乱実験を行い、一樣磁化方向と格子非整合磁気ピークの関連を明らかにした。(vii)スキルミオン相を持つ唯一の絶縁体磁性体 Cu_2OSeO_3 においてスキルミオンの電場効果を調べた。実験はJ-PARCの小角散乱装置TAIKANを用いて行った。 Cu_2OSeO_3 ではスキルミオン相に二つの状態が存在する。鉛直方向に磁気反射を持つSkX(1)とそこから30度回転したSkX(2)である。実験の結果、より低磁場のSkX(2)相に電

場を印加していくことでSkX(1)への完全スイッチングが極めて低い外部電場印加により起きることを見出した。また Cu_2OSeO_3 の磁場温度相図や高調波成分等を、中性子小角散乱を用いて明らかにした。(viii)カイラル結晶である $MnSb_2O_6$ の低温磁気構造を、中性子回折実験を用いて解明した。他のグループの報告とは異なり、我々の実験からスパイラル磁気秩序面がc軸から傾いている事が判明した。この傾きにより磁場の僅かな回転でスパイラル磁気秩序面の傾きを選択する事ができるが、この時電気磁気効果を通してマクロな分極が反転し、このような極めて低磁場での分極反転現象は電気磁気効果の応用に更なる可能性をもたらすものと考えられる。(ix)スキルミオン系における高周波共鳴現象や方向二色性、一軸圧や急冷による生成消滅制御、3次元スキルミオン構造やスキルミオンの室温形成の実空間観測などに成功した。(x)過冷却により、低温までスキルミオン結晶状態がトポロジカルな保護により保たれることを見出し、さらに三角/四角格子間の結晶制御に成功した。

(2)「運動量空間でのベリー位相効果」としては、(xi)第一原理計算によって巨大ラシュバ $BiTeI$ の電子状態を明らかにし、実験グループとの協力を通じて、巨大な軌道磁性および磁気光学効果の予言・発見、磁気抵抗振動効果の解析によるベリー位相の検出、などに成功した。(xii)マグノンの運動量空間におけるベリー位相から生じるマグノンホール効果(熱勾配に垂直方向に熱流が生じる現象)の理論を、種々の結晶構造へと拡張し、十倉グループの実験結果を説明することに成功した。(xiii)遷移金属酸化物の薄膜超構造で現れるトポロジカル絶縁体における電子相関効果を動的平均場近似で調べ、遷移金属種によって反強磁性秩序が発生してトポロジカルに自明な状態になってしまう場合と、トポロジカル相が安定に存在する場合があることを見出した。(xiv)トポロジカル磁性/非磁性絶縁体薄膜における表面状態と量子ホール効果の実験的観測を行い、中心課題の一つであるトポロジカル磁性絶縁体 $Cr_{0.22}(Bi_{0.2}Sb_{0.8})_{1.78}Te_3$ における外部磁場なく誘起される量子化異常ホール効果の観測に成功した。(下図 J.G. Checkelsky et al., Nature Phys. 10, 731 (2014)より転載)特にフェルミ準位や温度依存性の系統的な測定により、量子化異常ホール効果の縦伝導度と横伝導度の量子化則が、外部磁場で誘起



ゼロ磁場量子化異常ホール効果

される量子ホール効果と同様のスケーリング則を示すことを見出し、両ホール効果が本質的に同一の現象であることを明らかにした。これにより、無磁場での表面エッジ電流を利用した省電力素子の実現といった応用へつながる成果である。これに対応して、理論では磁性不純物をドーブしたトポロジカル絶縁体のモデルを厳密対角化して、その強磁性状態とそこでの磁壁構造を調べた。その結果、磁性原子と交換相互作用を持つ軌道の種類によって、表面状態での磁性が大きく異なること、磁壁を電場によってその構造・運動を制御できることを見出した。また、スキルミオン構造もある条件を満たすと安定化することを予言し、これは実験によって実証された。また、表面自由度を制御した量子ホール効果や超構造作製による量子化異常ホール状態の安定化にも成功した。(xv)パイロクロア Ir 酸化物におけるワイル半金属相の実現と表面伝導の観測に成功した。新たなトポロジカル物質として提唱されたワイル半金属状態がパイロクロア Ir 酸化物の磁気転移に伴って現れることを光学スペクトル・電気伝導測定などによって示すことができた。特にトポロジカル物質固有の表面状態が、磁壁電気伝導として現れることを、輸送特性、マイクロ波イメージング、光学応答などで明らかにした。(xvi)モノポールとして振る舞うバンド交差によるスピンドイナミクスの異常を、SrRuO₃において観測することに成功し、ホール伝導度との関連を理論的に基礎づけた。(xvii)カイラル量子異常によって起きるワイル半金属における非相反電流特性を理論的に予言した。

(3)最後にベリー位相のダイナミクスとしては、(xviii)エレクトロマグノン由来のテラヘルツ光の巨大な方向二色性が観測できた。らせん磁性体 CuFe_{1-x}Ga_xO₂ においてそのカイラルな磁性に起因した磁気カイラル効果がエレクトロマグノンを媒介とすることで、光の進行方向に依存して吸収係数が最大 400% 変化させることに成功した。(xix)磁性トポロジカル絶縁体の積層構造デバイスでのアクシオン状態の発見に加え、スピン偏極した表面状態に由来する電流の方向二色性、光電流発生、磁気光学効果などの動的物性を観測した。(xx)外部電場によってベリー位相を動的に揺らすことで、創発電場を発生させる機構を理論的に明らかにした。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 174 件)

M. Mogi, M. Kawamura, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, Y. Kozuka, N. Shirakawa, K. S. Takahashi, M. Kawasaki and Y. Tokura, A magnetic heterostructure of topological insulators as a candidate for an axion insulator, Nature Mater., 査読有、16、2017、516-521
DOI:10.1038/nmat4855

T. Ideue, K. Hamamoto, S. Koshikawa,

M. Ezawa, S. Shimizu, Y. Kaneko, Y. Tokura, N. Nagaosa and Y. Iwasa, Bulk rectification effect in a polar semiconductor, Nat. Phys., 査読有、Online、2017、1-7

DOI:10.1038/nphys4056

K. Yasuda, R. Wakatsuki, T. Morimoto, R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. S. Takahashi, M. Ezawa, M. Kawasaki, N. Nagaosa and Y. Tokura, Geometric Hall effects in topological insulator heterostructures Nat. Phys., 査読有、12、2016、555-559
DOI:10.1038/nphys3671

A. S. Mishchenko, N. Nagaosa and N. Prokof'ev, Diagrammatic Monte Carlo Method for Many-Polaron Problems, Phys. Rev. Lett. 査読有、113、2014、166402-1-5
DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.166402

Y. Nii, A. Kikkawa, Y. Taguchi, Y. Tokura, and Y. Iwasa, Elastic Stiffness of a Skyrmion Crystal, Phys. Rev. Lett., 査読有、113、2014、267203-1-5
DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.267203

R. Yoshimi, A. Tsukazaki, K. Kikutake, J. G. Checkelsky, K. S. Takahashi, M. Kawasaki and Y. Tokura, Dirac electron states formed at the heterointerface between a topological insulator and a conventional semiconductor, Nature Mater., 査読有、13、2014、253-257
DOI:10.1038/nmat3885

M. Mochizuki, X. Z. Yu, S. Seki, N. Kanazawa, W. Koshibae, J. Zang, M. Mostovoy, Y. Tokura and N. Nagaosa, Thermally driven ratchet motion of a skyrmion microcrystal and topological magnon Hall effect, Nature Mater., 査読有、13、2014、241-246
doi:10.1038/nmat3862

J. Iwasaki, M. Mochizuki and N. Nagaosa, Universal current-velocity relation of skyrmion motion in chiral magnets, Nat. Commun., 査読有、4、2013、1-8
doi:10.1038/ncomms2442

M.S. Bahramy, P.D.C King, A. de la Torre, J. Chang, M. Shi, L. Patthey, G. Balakrishnan, Ph. Hofmann, R. Arita, N. Nagaosa, F. Baumberger, Emergent quantum confinement at topological insulator surfaces, Nat. Commun., 査読有、3、2012、1-7
doi:10.1038/ncomms2162

[学会発表](計 75 件)

N. Nagaosa, Interaction effects in Weyl and Dirac fermions, SCES2016、2016年5月10日、Hangzhou, Zhejiang, China

N. Nagaosa, Manipulation of skyrmions in chiral magnets, "Spin-orbit coupling

in surface or interface states"
Workshop(SOCSIS2015)、2015年6月10日、
Spetses、Greece

Y. Tokura、Topology and Magnetism、
59th Annual Magnetism and Magnetic
Materials Conference、2014年11月3日
-11月7日、Honolulu、Hawaii、USA

Y. Tokura、Magnetism as the emergent
phenomena、APS March Meeting 2014、2014
年3月3日、Denver、CO、USA

N.Nagaosa、Beller Lectureship:
Dynamics of skyrmions under electric
current、APS March Meeting 2013、2013
年3月18日、Baltimore、Maryland、USA

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://park.itc.u-tokyo.ac.jp/nagaosa-lab/kibanS/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

永長 直人 (NAGAOSA, Naoto)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：60164406

(2) 研究分担者

十倉 好紀 (TOKURA, Yoshinori)
東京大学・大学院工学系研究科・教授
研究者番号：30143382

モハマド バハラミー (BAHRAMY,
Mohammad)
東京大学・大学院工学系研究科・講師
研究者番号：10587463

佐藤 卓 (SATO, Taku)
東北大学・多元物質科学研究所・教授
研究者番号：70354214

H26年度のみ

岡 隆史 (OKA, Takashi)
東京大学・大学院工学系研究科・講師
研究者番号：50421847

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()