

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 2 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2012～2013

課題番号：24684020

研究課題名(和文)磁性強誘電体デバイスの高速動作に向けた磁気誘電ドメイン壁動力学の解明

研究課題名(英文) Study of multiferroic domain wall dynamics towards high-speed operation of magnetoferroelectric devices

研究代表者

賀川 史敬 (Kagawa, Fumitaka)

独立行政法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・ユニットリーダー

研究者番号：30598983

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 21,700,000円、(間接経費) 6,510,000円

研究成果の概要(和文)：磁気秩序と強誘電性が共存する磁性誘電体(マルチフェロイクスと呼ぶ)における、トポロジカルな構造であるドメイン壁やスキルミオン(スピンの渦状に巻く構造)の高速動作を目指し、研究を行なった。スキルミオンを有するマルチフェロイック物質であるCu₂OSeO₃に着目し、マイクロ波領域における高速電気磁気効果の検出に成功した。マイクロ波の透過率を精密に測定し、スキルミオンが磁気共鳴を起こす際に吸収されるマイクロ波の量がマイクロ波の伝搬方向によって変わるという現象を観測した。これは非相反方向二色性と呼ばれる現象で、マイクロ波領域においては初めての発見である。

研究成果の概要(英文)：I studied topological textures such as domain walls and skyrmion (spin-swirling object) in magneto ferroelectrics, called multiferroics, where magnetic order and ferroelectricity coexists, to operate them at a fast rate. I focused on a multiferroic, Cu₂OSeO₃, which host the skyrmion and succeeded in detecting a high-speed magnetoelectric effect. I measured microwave transmittance in detail and observed a phenomenon in which microwave absorption depends on the incident direction of microwaves. This effect is known as a directional dichroism and a first experimental observation in a microwave regime.

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学、物性、

キーワード：マルチフェロイック ドメイン壁 誘電スペクトロスコープ ペロフスカイト 有機導体 電荷秩序
スキルミオン

1. 研究開始当初の背景

強誘電体は、圧電素子や強誘電体メモリ等、用途が広範にわたる重要な電子機能材料である。強誘電分極発現の従来のメカニズムは格子の自発的変位によるものであり、また、例えばペロプスカイト型強誘電体は磁性を持たないのが通常であった。これは磁性の起源である不対電子が、格子の変位に対してエネルギー的に不利に働くという事情のためである。ところが2003年に磁性と強誘電性を併せ持つ物質群“マルチフェロイクス”(以下マルチフェロと略記)が発見されて以来 [Kimura et al., Nature 426 (2003)]、これまでの常識から外れた新奇な強誘電体として一気に注目を集め、現在も精力的な研究が行われている。マルチフェロにおいては、磁性と誘電性が量子力学的な機構(たとえばスピン軌道相互作用)によって結びついており、特異な磁気秩序が強誘電分極を誘起するという点で、従来型のものとは一線を画している。この特異性が故に、磁場による誘電性の制御や [T. Goto et al., Phys. Rev. Lett. 92 (2004)]、電場による磁性の制御 [Y. Tokunaga et al., Nat. Mat. 7 (2009)]といった新奇な機能性が発現しており、強誘電体研究の歴史は、マルチフェロという新メンバーを加え新たな局面を迎えたと言っても過言ではない。

2. 研究の目的

従来型の非磁性強誘電体における強誘電ドメイン壁のダイナミクスの研究は、その学術的興味・応用上の重要性から半世紀以上にも及ぶ歴史を有するが、一方マルチフェロイクスにおける磁気誘電ドメイン壁のダイナミクスの研究はほぼ未開拓である。本研究では、磁気誘電ドメインの動的挙動を明らかにすることで、磁気誘電ドメイン壁の動力学的構築し、ドメイン壁制御を基盤とするマルチフェロイクデバイス的高速動作化へ向けた学術基盤を築くことを目指す。

(1) 磁性体中に生じるナノスケールのスピン渦「スキルミオン」が近年マルチフェロイクス中において観測され、次世代メモリの情報担体としての可能性が活発に議論されている。スキルミオンはそのトポロジカルな磁気構造に起因して多彩な電磁気応答を示すことが知られているが、特にマイクロ波領域におけるスキルミオンの新奇機能性に関しては未開拓であった。本研究では、スキルミオン相を有するマルチフェロイク物質 Cu_2OSeO_3 に着目し、スキルミオンがマイクロ波の磁場成分のみならず電場成分にも同時に応答することによって、マイクロ波の入射方向に依存して吸収係数が異なる非相反方向二色性という現象を観測することを目的とした。

(2) 電荷秩序と強誘電性が共存する、広義のマルチフェロイクスも近年同様に注目を浴びている。電荷秩序を示す典型的な物質

群の1つに有機導体が挙げられる。幾何学的にフラストレートした格子を持つスピン系はしばしば長距離秩序を示さず、基底状態において、秩序が量子融解したスピン液体や、または無秩序のまま凍結したスピングラスなど、非自明な状態が発現する。同様に、フラストレーションは電荷整列現象に関しても長距離秩序を妨げ、代わりに新奇な電子状態が発現する可能性があるものの、そのような報告例はこれまでになかった。本研究において我々は、三角格子を有する擬2次元有機導体 $\theta\text{-(ET)}_2\text{RbZn(SCN)}_4$ に着目し、電荷のガラス的凍結のダイナミクスを明らかにすることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) スキルミオン相を有するマルチフェロイク物質 Cu_2OSeO_3 をコプレナー線路上に配置し、ネットワークアナライザを用いてマイクロ波透過測定を行った [図 1(a)]。57 K, 300 Oe においてスキルミオンの磁気励起が 1-2 GHz 程度の周波数において現れることを確認した [図 1(b)]。低周波側のピークがスキルミオンの反時計回りモード (CCW モード)、高周波側のピークがスキルミオンのブリージングモード (Breathing モード) に対応している。

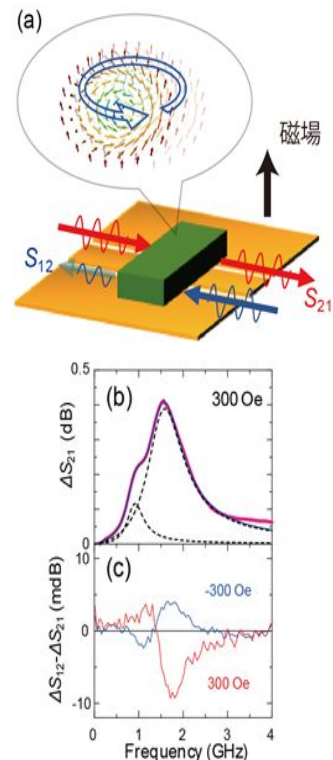


図 1: (a) 実験配置の概念図。コプレナー線路上に試料を配置して、マイクロ波を互いに異なる二方向から入射し、それぞれの場合における透過係数を測定した。マイクロ波の入射によってスキルミオンが磁気共鳴を起こす。(b) スキルミオン相(57 K, 300 Oe)におけるマイクロ波吸収スペクトル (c) 入射方向を変えたときの透過係数の差。

(2) 電気抵抗の揺らぎ測定及び、放射光施設を用いて x 線散漫散乱実験を行い、時間相関・空間相関の両面から、電荷の不均一な構造体のダイナミクスを調べた。電気抵抗の揺らぎ測定には低雑音電源を用いて、一定の電流を試料に流し、その際生じる電圧を、低雑音プリアンプを用いて増幅したのち、FFTアナライザにて周波数解析をした。また、観測された雑音が接触抵抗由来のものではないことを確認するため、電流バイアスには2種類の異なる値のものを用いた。

4. 研究成果

(1) スキルミオンの磁気励起に伴うマイクロ波の吸収量がマイクロ波の伝搬方向に依存していること、また磁場を反転させると、マイクロ波入射方向と吸収量の相対関係が反転することを明らかにした(図1c)。これは非相反方向二色性の観測に成功したことを示している。さらに、非相反方向二色性の大きさの磁場依存性を測定することにより、磁気構造が方向二色性に密接に関連していることを明らかにした[図2(a)]。また、他の偏光配置においても同様の測定を行い、方向二色性の偏光選択則を明らかにした。

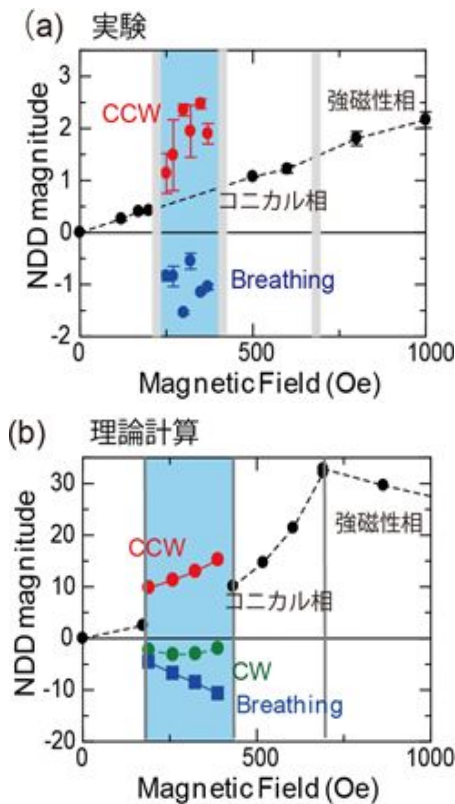


図2：実験(a)、理論計算(b)から求めた方向二色性の大きさの磁場依存性。青色で示した磁場領域はスキルミオン相が発現している領域を表す。

実験と理論の整合性を確認するため、モンテカルロシミュレーションを用いて理論的に方向二色性の大きさを計算し、実験結果とよい一致を示すことを確認した[図2(a),(b)]。本研究で観測された方向二色性はファラデー効果に依るものとは全く異なり、マイクロ波領域における、概念的に新しい機能性を実証している。

(2) 三角格子を有する擬2次元有機導体 θ -(ET)₂RbZn(SCN)₄ において、徐冷時では電荷秩序転移が起こるのに対し、急冷時では電荷秩序転移が妨げられ、過冷却電子液体状態が低温まで持続することを見出した(図3)。電気抵抗の時間平均値からの揺らぎを周波数分解することで、電荷揺らぎが~10 kHz という遅いダイナミクスを持つこと、及び温度低下と共にその揺らぎはさらに遅くなり、電荷秩序転移近傍では10 Hz 以下になることを観測した。遅い電気抵抗揺らぎが発達している温度域では、10 nm 程度のサイズを持った電荷のクラスタが成長していることが、x 線散漫散乱実験から分かった。また、電荷の液体状態においては、クラスタサイズは低温程大きくなることを見出した。低温に向けて、特徴的な揺らぎが遅くなると共にクラスタサイズが成長することから、遅いダイナミクスの起源は電荷クラスタであることが示唆された。急冷した試料においては、低温でクラスタサイズは温度依存しないものの、170 K 以上では、高温程クラスタサイズが小さくなる状態へと移行した。これは、電荷がガラス状態から液体状態へと転移した兆候と見なすことができる(図4)。ガラス化が分子や原子の集合体のみならず、物質中にひしめき合う電子にも見られることが分かり、ガラス化メカニズムの普遍的な理解、及び電荷秩序マルチフェロの動的性質の解明に向け、新しい切り口を与えることが期待される。

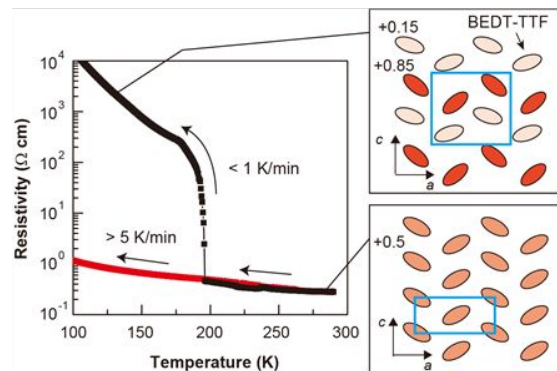


図3： θ -(ET)₂RbZn(SCN)₄における電気抵抗の温度依存性。高温では電荷は液体的で平均価数は+0.5であるのに対し、徐冷環境下では電荷秩序転移が起こり、電荷は不均化を起こす。

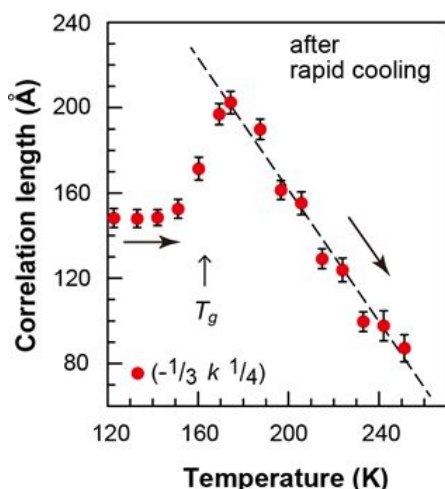


図4 : x 線散漫散乱実験より得られた電荷クラスターサイズの温度依存性。試料を一旦急冷した後、徐々に温度を上げつつ、測定を行った。170 K 付近でガラス転移の兆候が観測されている。

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 5 件)

T. Sato, F. Kagawa, K. Kobayashi, K. Miyagawa, K. Kanoda, R. Kumai, and Y. Murakami, Y. Tokura, "Emergence of nonequilibrium charge dynamics in a charge-cluster glass", 査読有, Phys. Rev. B 83, 121102(R) (2014).

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.83.121102>

F. Kagawa, S. Horiuchi, N. Minami, S. Ishibashi, K. Kobayashi, R. Kumai, Y. Murakami, and Y. Tokura, "Polarization switching ability dependent on multidomain topology in a uniaxial organic ferroelectric", 査読有, Nano Letters 14, 239 (2014).

<http://dx.doi.org/10.1021/nl403828u>

Y. Okamura, F. Kagawa, M. Mochizuki, M. Kubota, S. Seki, S. Ishiwata, M. Kawasaki, Y. Onose, and Y. Tokura, "Microwave magnetoelectric effect via skyrmion resonance modes in a helimagnetic multiferroic", 査読有, Nature Communications 4, 2391 (2013).

<http://dx.doi.org/10.1038/ncomms3391>

F. Kagawa, T. Sato, K. Miyagawa, K. Kanoda, Y. Tokura, K. Kobayashi, R. Kumai, and Y. Murakami, "Charge-cluster glass in an organic conductor", 査読有, Nature Physics 9, 419 (2013).

<http://dx.doi.org/10.1038/nphys2642>

Yufan Li, N. Kanazawa, X. Z. Yu, A. Tsukazaki, M. Kawasaki, M. Ichikawa, X.

F. Jin, F. Kagawa, and Y. Tokura, "Robust Formation of Skyrmions and Topological Hall Effect Anomaly in Epitaxial Thin Films of MnSi", 査読有, Phys. Rev. Lett. 110, 117202 (2013). <http://prl.aps.org/abstract/PRL/v110/i11/e117202>

[学会発表](計 5 件)

F. Kagawa, "Strongly correlated electrons in molecular solids", The IGER International Symposium on Science of Molecular Assembly and Biomolecular Systems 2014, 名古屋大学, 2014 年 3 月 12 日発表

賀川 史敬, " -ET 塩における電荷のガラス的挙動 ~ Rb 塩と Cs 塩の比較 ", 研究会「電子誘電体の新展開 -光と分極がおりなす新物質相-」, 東北大学金属材料研究所, 2013 年 12 月 3 日発表

F. Kagawa, "Electronic and ionic ferroelectricity in organic charge-transfer complexes", 13th International Meeting of Ferroelectricity (13th IMF), Krakow (Poland), 2013 年 9 月 2 日発表

F. Kagawa, "Charge-cluster glass in an organic conductor with charge frustration", The International Conference of strongly correlated electron systems, Univ. Tokyo, 2013 年 8 月 9 日発表

F. Kagawa, "Strongly correlated electrons in organic conductors with triangular lattice", Telluride Workshop 2013 on Physics of Emergent Correlated Materials, Telluride (USA), 2013 年 6 月 3 日発表

F. Kagawa, "Charge-glass behavior in θ -(ET)₂RbZn(SCN)₄", Tokyo workshop on Spin/charge liquid near ordering, Univ. Tokyo, 2012 年 11 月 30 日発表

[産業財産権]

出願状況(計 1 件)

名称: スキルミオンによるマイクロ波整流機構

発明者: 岡村嘉大、賀川史敬、他 7 名

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 特願 2013-240064

出願年月日: 25 年 1 月 20 日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

賀川 史敬 (KAGAWA, Fumitaka)

独立行政法人理化学研究所・創発物性科学

研究センター・ユニットリーダー
研究者番号：30598983