

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2013～2014

課題番号：25707032

研究課題名(和文) 強磁性絶縁体における磁壁の電場駆動

研究課題名(英文) Electric control of the ferromagnetic domain in ferromagnetic insulators

研究代表者

徳永 祐介 (Tokunaga, Yusuke)

東京大学・新領域創成科学研究科・准教授

研究者番号：50613387

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,800,000円

研究成果の概要(和文)：電場で磁化反転可能な弱強磁性強誘電体 $Dy_{0.7}Tb_{0.3}FeO_3$ において、強誘電履歴曲線が磁場によって電場軸方向に変位させられ、その極性や大きさが磁場の向きや大きさに制御できるという、電気分極と磁化が強く結びついている場合には普遍的に起こると期待される新しい現象を見出した。加えて、電場で磁化制御できる可能性がある磁性体材料として、強磁性強誘電体の六方晶 $Lu_{0.5}Sc_{0.5}FeO_3$ 、室温らせん磁性体Y型ヘキサフェライト $Ba_2Co_2Fe_{11}AlO_{22}$ の浮遊帯溶融法による単結晶試料の合成と、その物性の評価に成功した。特に $Lu_{0.5}Sc_{0.5}FeO_3$ については中性子回折による磁気構造の決定にも成功した。

研究成果の概要(英文)：In a multiferroic orthoferrite $Dy_{0.7}Tb_{0.3}FeO_3$, which shows electric-field-(E-)driven magnetization (M) reversal, magnetic-field (H) biasing on ferroelectric hysteresis loops is observed. The magnitude of the bias E field can be controlled by varying the magnitude of H, and its sign can be reversed by changing the sign of H. In addition, we have succeeded in growing single crystals of ferroelectric-ferromagnetic h- $Lu_{0.5}Sc_{0.5}FeO_3$ and room-temperature helical magnet $Ba_2Co_2Fe_{11}AlO_{22}$ by means of floating zone method, whose magnetization is potentially controlled by E. We could evaluate physical properties of these syngle crystals. In particular, the magnetic structure of h- $Lu_{0.5}Sc_{0.5}FeO_3$ has successfully been determined by neutron diffraction measurements.

研究分野：固体物性

キーワード：マルチフェロイクス 電気磁気効果 電場磁化制御 低消費電力デバイス 磁気記録

1. 研究開始当初の背景

電場による強磁性絶縁体における磁壁駆動は、電流によるジュール加熱によるエネルギーロスがほとんどないと期待されることから、電氣的に磁気を操る手段としては格段に省電力であり、スピントロニクス基礎技術として重要であると考えられる。特に強磁性強誘電体においては、強誘電分域壁と強磁性磁壁が強く結合している場合があり、こうした操作が実現できる可能性が高い。ところが、実際に電場で磁化制御に成功した例はまだ少ない。

2. 研究の目的

本研究では、強磁性絶縁体における電場による磁化の制御を目的に、電場で磁化を操作できる可能性のある物質群、特に強磁性強誘電体の単結晶合成とその物性評価、および電場による磁化の制御に関連した新しい現象の開拓を目指した

3. 研究の方法

研究対象とする単結晶試料は浮遊熔融帯法により合成した。合成した単結晶試料は、x線背面ラウエ法によって結晶軸を特定して切り出し、その磁気・強誘電特性を評価した。単結晶中性子回折実験は東海村 J-PARC の BL18(千手)で行った。

4. 研究成果

(1)これまでの研究で、すでに早い電場掃引による分極反転に際して磁化が反転することが確認されている強誘電強磁性体である斜方晶 $Dy_{0.7}Tb_{0.3}FeO_3$ の単結晶試料について、磁場中における強誘電履歴曲線の周波数依存性を詳細に調べることで、電場掃引が早い場合には磁場印加に伴って、強誘電履歴曲線が電場軸方向に変位するという、新奇な現象を見出した。その変位の大きさは磁場の大きさに比例し、またその符号は磁場の符号を反転したり、あるいは電気磁気ポーリング処理により電気分極と磁化の結合の符号を変えたりすることで反転できることが確認された。この現象の起源について考察し、この現象が、電気分極と磁化の方向が強く結合している場合には、自発磁化の方向が分極反転前後で異なるために、磁場中では正負の分極状態の間にゼーマン項によるエネルギー差が生じることに起因しており、電気分極と磁化の符号が結合した系に特有であることを突き止めた。強磁性履歴曲線の磁場軸方向への変位は「交換バイアス現象」と呼ばれ、しばしば強磁性/反強磁性二層膜で観察されており、磁気トンネル接合などへ実際応用されているよく知られた現象であるが、強誘電履歴曲線の電場軸方向への変位についてはほとんど報告がなく、なおかつ外場でこれが制御できるという例はこれが初めてである。本研究において見出された現象は、電気分極と磁気モーメントの符号が結合した系において

はごく一般的に起こることが期待され、なおかつ強誘電履歴曲線の電場軸方向への変位量や符号を磁場で自在に制御できることから、新しい応用への道が見つかる可能性がある。この現象はまた単磁区状態から出発して、強磁性磁壁を電場により核生成・駆動するための閾値電場を、磁場により制御したことに相当しており、強磁性強誘電体における磁壁の電場駆動に関しても新たな知見を与えるものである。

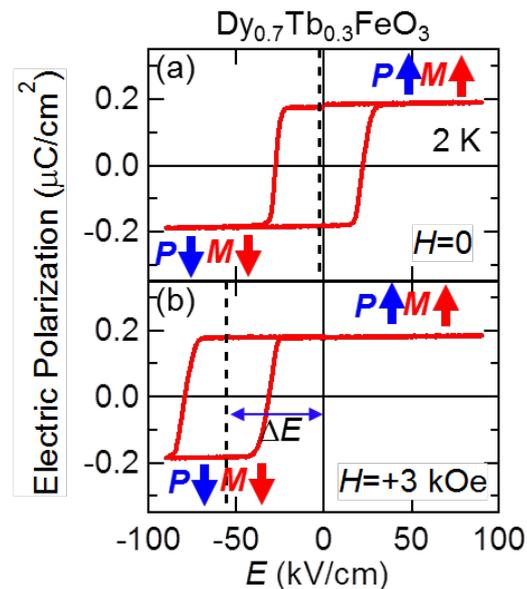


図1: $Dy_{0.7}Tb_{0.3}FeO_3$ における磁場によるP-E曲線のバイアス現象。

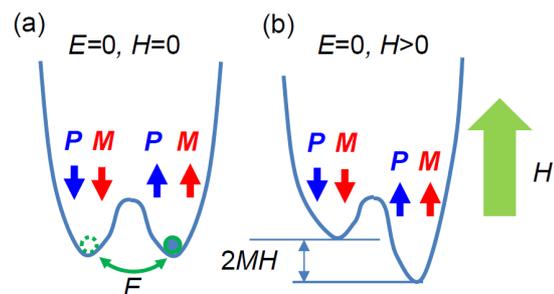


図2: 磁場によるP-E曲線のバイアス現象の発現メカニズム。

(2)六方晶 $RFeO_3$ (Rは希土類元素)は、強誘電反強磁性体として知られる六方晶 $RMnO_3$ と同一構造でありながら、弱強磁性、すなわち自発磁化を有する強誘電体であることが報告されており、理論的には強誘電分域壁と磁壁が結合する、つまり電場による磁化制御ができる可能性が示唆されている。しかしながら、 $RFeO_3$ については、ほとんどの希土類元素について斜方晶ペロフスカイト相が安定相であり、六方晶相は通常の圧力下では準安定であるため、バルク単結晶は合成されておらず、これまでの実験的報告は主に薄膜試料に限られており、その電気磁気応答は明らかにさ

れてこなかった。本研究においては、唯一常圧下での固相反応法による六方晶相の多結晶体の合成報告のある $\text{Lu}_{0.5}\text{Sc}_{0.5}\text{FeO}_3$ について、浮遊溶融帯法による単結晶合成を試み、合成条件を最適化することで、その単結晶化に初めて成功した。磁化測定から、弱強磁性モーメントが c 軸を向いていること、多結晶体での報告通り低温に向けて弱強磁性モーメントが減少してゆく振る舞いが確認された。また、J-PARC の BL18(千手)において単結晶中性子回折による磁気構造の決定を行い、弱強磁性相の磁気秩序構造に加えて、自発磁化が小さくなっていく低温領域では強トロイダルな磁気秩序が混じってくるなどが確認できた。予備的なピエゾ応答力顕微鏡による測定から、浮遊帯溶融法で合成された単結晶の強誘電ドメインは ~ 100 nm 以下のきわめて細かい構造を取ることが確認されており、今後合成手法を最適化して、このドメインを大きくすることができれば、ファラデー効果を用いて磁気ドメインをその場観察することによる、電場による強磁性磁壁駆動の検証に加えて、光の方向二色性をはじめとした様々な磁気光学応答の検出も期待される。

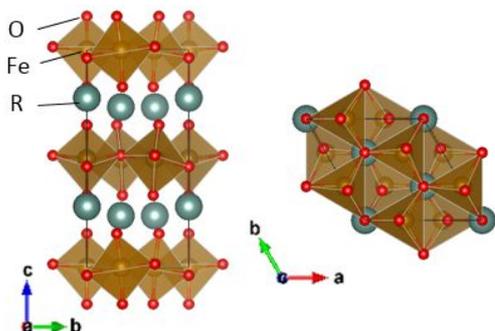


図 3: 六方晶 $R\text{FeO}_3$ の結晶構造。

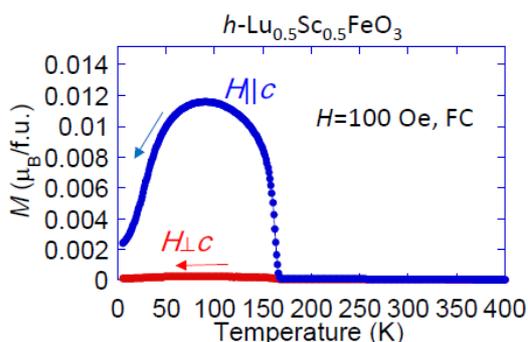


図 4: 六方晶 $\text{Lu}_{0.5}\text{Sc}_{0.5}\text{FeO}_3$ の単結晶における磁化の温度依存性。

(3) Y 型ヘキサフェライト $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{11}\text{AlO}_{22}$ は、多結晶体について室温で磁場による電気分極の反転が報告されている室温らせん磁性体であり、室温での電場による磁化制御がきわめて有望視される。その単結晶体について

はこれまで報告がなかったが、本研究ではレーザー-FZ 炉を用いた TSFZ 法による単結晶化に初めて成功した。現在のところ単結晶試料の室温における抵抗率は電気磁気効果の検出のために十分なほどは高くなく、電気磁気効果の検出は室温よりも低温に限られている。しかしながら、多結晶体では高圧酸素条件下での適切なアニールによって高抵抗化が実現できることが報告されていることから、今後高圧酸素処理などにより試料の絶縁性の改善がなされれば、室温における電場による磁化の制御にきわめて有望である。

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 3 件)

Y. Tokunaga, X.Z. Yu, J. S. White, H. M. Rønnow, D. Morikawa, Y. Taguchi and Y. Tokura, "A new class of chiral materials hosting magnetic skyrmions beyond room temperature", Nat. Commun., In press. (査読有)

T. Nakajima, Y. Tokunaga, V. Kocsis, Y. Taguchi, Y. Tokura, and T. Arima, "Uniaxial-Stress Control of Spin-Driven Ferroelectricity in Multiferroic $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ ", Phys. Rev. Lett. **114**, 067201 (2015). (査読有)

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.067201>

Y. Tokunaga, Y. Taguchi, T. Arima, and Y. Tokura, "Magnetic biasing of a ferroelectric hysteresis loop in a multiferroic orthoferrite", Phys. Rev. Lett. **112**, 037203 (2014). (査読有)

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.037203>

〔学会発表〕(計 7 件)

徳永祐介, "Electric-field control of ferromagnetic moment and magnetically-biased P - E loop in multiferroic orthoferrites" The Second International Conference of Young Researchers on Advanced Materials, 中国, 海口市, 2014 年 10 月 27 日 (招待講演)

中島多朗, 徳永祐介, Vilmos Kocsis, 田口康二郎, 有馬孝尚, 十倉好紀, 「マルチフェロイック $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ における一軸応力誘起強誘電性」, 日本物理学会 2014 年秋季大会, 中部大学(愛知県春日井市), 2014 年 9 月 8 日

徳永祐介, 第 59 回物性若手夏の学校分科会, 「ペロフスカイト型希土類鉄酸化物が示す巨大な電気磁気効果」, 浜名湖口イタルホテル(静岡県浜松市), 2014 年 7 月 30 日(招待講演)

Y. Tokunaga, "Electric-field control of ferromagnetic moment in multiferroic orthoferrites", The 3rd Tsinghua-RIKEN Joint Workshop on Emergent Matter Science, 北京(中国), 2014年5月19日(招待講演)

徳永祐介, 「マルチフェロイック RFeO₃ における電場による磁化制御」, 第一回「産業応用をめざした新物質機能の設計と実証」に関する研究開発専門委員会, 東京大学山上会館(東京都文京区), 2014年5月17日(招待講演)

Y. Tokunaga, N. Furukawa, H. Sakai, S. Iguchi, Y. Taguchi, T. Arima, and Y. Tokura, "Electric-field control of ferromagnetic moment in perovskite orthoferrites", Quantum in complex matter: stripes 2013, Ischia, Italy, 2013年5月30日(招待講演)

Y. Tokunaga, N. Furukawa, H. Sakai, S. Iguchi, Y. Taguchi, T. Arima, and Y. Tokura, "Electric-field-induced magnetization reversal in rare-earth orthoferrites", 5th APCTP workshop on multiferroics, Singapore, 2013年5月22日(招待講演)

(2)研究分担者 ()

研究者番号:

(3)連携研究者 ()

研究者番号:

〔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:
出願年月日:
取得年月日:
国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1)研究代表者

徳永 祐介 (Tokunaga, Yusuke)
東京大学・大学院新領域創成科学研究科・
准教授
研究者番号: 50613387