

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 14 日現在

機関番号：32601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25870169

研究課題名(和文)磁性強誘電体におけるエレクトロマグノンの強励起現象と光機能の理論的探索

研究課題名(英文)Theoretical study on intense-excitation effects and optical functions of electromagnons in multiferroic materials

研究代表者

望月 維人(Mochizuki, Masahito)

青山学院大学・理工学部・准教授

研究者番号：80450419

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：絶縁性キラル磁性体Cu₂OSe₃の磁性相において、エレクトロマグノンに由来するマイクロ波の巨大方向二色性を理論的に予言し、実験グループとの共同研究で、それを実証した。また、この物質の薄膜試料に探針電極で電場を印加することで、磁化反転を起し、スキルミオンを書き込めることを示した。また、世界で2例目となる絶縁性スキルミオン物質GaV₄S₈を発見し、そこで実現するスキルミオンがネール型スキルミオンであることを明らかにした。さらに、エレクトロマグノン励起を発現する典型的なスパイラル磁性強誘電体TbMnO₃の磁場誘起強誘電分極フロップの物理機構を解明し、この現象が決定論的に起こることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：I have theoretically predicted that interference of two activation channels inherent to electromagnon excitations in insulating chiral magnet Cu₂OSe₃ leads to gigantic microwave directional dichroism, and have confirmed this prediction by a collaboration with experimental groups. I have also theoretically demonstrated that skyrmions can be created by applying electric fields on a thin-film sample of Cu₂OSe₃ via an electrode tip, which is achieved by electric-field-driven local magnetization flop through magnetoelectric coupling in this multiferroic system. In addition, I have discovered a new insulating skyrmionic material GaV₄S₈, and have uncovered that skyrmions in this material are Neel-type one, which has not been discovered in any real material so far. We also theoretically revealed a microscopic mechanism of magnetic-field induced 90-degree flop of ferroelectric polarization in spin-spiral multiferroics TbMnO₃, and have shown that this phenomenon occurs in a deterministic way.

研究分野：固体物理

キーワード：磁性強誘電体 エレクトロマグノン 電気磁気結合 マルチフェロイックス キラル磁性体 非相反方向二色性 磁気カイラル効果 スキルミオン

1. 研究開始当初の背景

研究開始当時、磁性強誘電体の研究が世界的に精力的に行われており、光やマイクロ波の振動電場によって励起される新しタイプのスピン波「エレクトロマグノン」が興味を集めていた。2010年に本研究者により、ペロフスカイト型スパイラル磁性強誘電体 $R\text{MnO}_3$ のエレクトロマグノン励起のメカニズムが完全に解明されたことで、エレクトロマグノンが生み出す新しいマグノンの物理学の展開が期待されていた。

2. 研究の目的

このような背景から申請者は、エレクトロマグノンの非線形・非平衡ダイナミクスが新しい物理現象と物質機能の宝庫であることを確信し、その理論研究に着手した。研究の主な目的として次の三つを掲げた。

- (1) 強励起されたエレクトロマグノンが示す非線形ダイナミクスを理論的に探索する。例えば、強励起エレクトロマグノンのレーザー発振やチェレンコフ放射、や光誘起相転移などを実現する方法を理論的に探索する。
- (2) エレクトロマグノンが持つ電場と磁場の両方に活性であるという特徴を利用して、異なる励起チャンネルの干渉に由来する現象を理論的に探索する。例えば、外場可変な方向二色性（直線偏光のダイオード効果）や円二色性（円偏光のダイオード効果）、磁気旋光性（偏光面の回転）などの新しい光・マイクロ波機能性の発見を目指す。
- (3) エレクトロマグノンを示す新しい系や、新しい励起機構を理論的に探索する。例えば、絶縁性のキラル磁性体やフラストレート磁性体、接合系で実現するヘリカル磁性やコニカル磁性、磁気スキルミオン、磁気渦、トポロジカル磁気構造などの非共線磁化構造がエレクトロマグノンを示す可能性を理論的に探索し、その物理的な機構やそれがもたらす新しい物理現象を解明・探索する。

3. 研究の方法

物質や系の個性を取り込んだ微視的な理論モデルに基づく理論計算により、高強度レーザーにより励起されたエレクトロマグノンが引き起こす劇的な新現象の発見・解明を目指す。まず磁性強誘電体やカイラル磁性体で実現する非共線のスピントクスチャと電気分極の結合を記述する微視的モデルを構築し、このモデルをモンテカルロ法で解析することで、温度や外場を変えた時に現れる非自

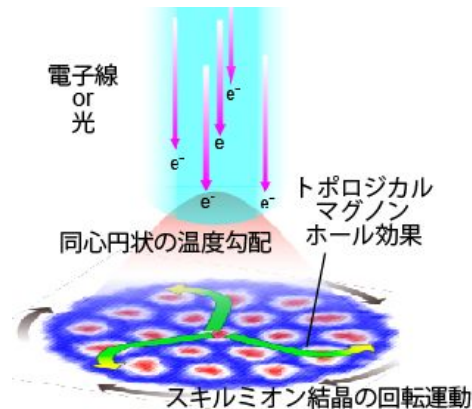
明な磁性相の素性を明らかにする。これらの磁性相の外場応答ダイナミクスを LLG 方程式の数値解析により調べ、励起機構やスペクトル、共鳴周波数、モード、偏光選択則などの諸性質を明らかにする。その上で、これらの共鳴モードを強励起することで引き起こされる新しい非平衡・協同現象を探索・予言し、その物理を解明する。また、上で明らかにした偏光選択則から、電場と磁場の励起チャンネルの干渉が起こる偏光配置を決定し、干渉効果が吸収係数や屈折率、旋光性に及ぼす影響を、LLG 方程式の数値解析と磁気光学の理論を組み合わせて評価する。これにより巨大な磁気光学効果と新しい光・マイクロ波機能を探索・解明する。

4. 研究成果

(1) キラル絶縁磁性体 Cu_2OSeO_3 で実現するスキルミオン結晶相やヘリカル磁性相、フェリ磁性相では、マイクロ波の振動磁場成分のみならず、磁化と電気分極の結合（電気磁気結合）を通じてマイクロ波の振動電場成分でもスピン波が励起できる。このエレクトロマグノン励起の複数の励起チャンネル（電場励起と磁場励起）の干渉効果に由来する巨大な「マイクロ波整流効果」を理論的に発見・予言した。具体的には、この物質に特定の方向から静磁場を印加すると、ネットの磁化 M と強誘電分極 P が直交する状況が実現できる。このような状況で、 M と P の両方に垂直な方向、つまり両者の外積 $M \times P$ に平行な方向にマイクロ波を照射すると、表から照射した場合と裏から照射した場合でマイクロ波の吸収係数が 20%程度も異なる現象（マイクロ波非相反方向二色性）を理論的に予言した。この理論予言を確かめるべく、東京大学工学系研究科および理化学研究所の実験グループと共同研究を行い、その効果を実証し、Nature Communications 誌に発表した。この発見は、高性能なマイクロ波アイソレータ素子の実現に道を開くものとして大きな注目を集めており、日本物理学会誌に依頼記事を執筆し、特許出願を行った。

(2) キラル磁性体においてレーザー光や電子線によるマグノンの熱励起を通じて、ナノスケールの磁気テクスチャであるスキルミオンの決まった方向への回転運動が駆動できることを発見した（図参照）。具体的には、スキルミオン結晶が実現しているキラル磁性体の薄膜試料に電子線を照射すると、電子線が当たっている領域の温度が外周部に比べてわずかに上昇するため、同心円状の微少な温度勾配が導入される。このとき、熱的に励起されたスピン波（マグノン）は、高温部から低温部に拡散的に流れる。この熱拡散マグノン流は、スキルミオンが作る創発的な磁束量子により曲げられ、トポロジカルマグノンホール効果を示す。その反作用により、マグノン流が曲げられる方向と逆方向のスキ

ルミオンの運動（回転運動）が駆動されることになる。この成果を論文にまとめ、Nature Materials 誌に発表した。この発見は、次世代磁気記憶・論理デバイスの情報担体としての応用が期待されているスキルミオンを小さなエネルギー損失で制御する方法として大きな注目を集めている。この研究成果に関連して、固体物理誌に依頼記事を執筆し、プレスリリース（青学、東大、理研共同）を出した。また、以上二つの研究成果をアメリカ物理学会における招待講演を始め、いくつかの国際・国内会議で発表した。

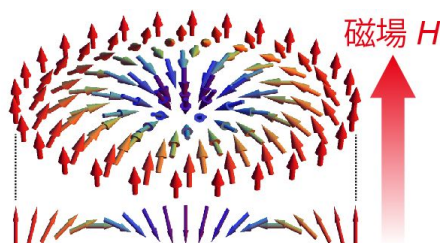


(3) キラル絶縁磁性体 Cu_2OSeO_3 において、エレクトロマグノン励起の二種類の励起チャネル（電場励起と磁場励起）の干渉効果に由来する「マイクロ波ダイオード効果」を、(1)で発見したマイクロ波偏光配置とは異なる条件で、またより巨大な効果として発見した。具体的には、キラルな立方晶である Cu_2OSeO_3 の三回対称軸 $[111]$ に磁場を印加すると、ネットの磁化 M と強誘電分極 P がともに磁場と（ $[111]$ 軸と）平行な方向に誘起される。この状況で、マイクロ波を磁場と平行に入射した場合と、反平行に入射した場合で、吸収係数が最大で 30%以上異なる現象（マイクロ波磁気カイラル効果）を理論的に予言した。この成果を論文にまとめ、Physical Review Letters 誌に発表した。

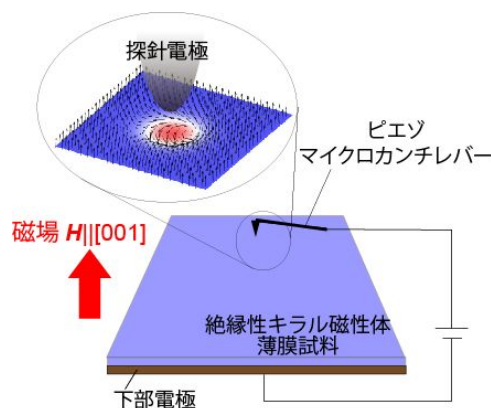
(4) ハンガリー、ドイツ、スイスの複数の実験グループと連携して、このようなマイクロ波周波数領域でエレクトロマグノン励起を示す新奇物質の探索に取り組んだ。対称性の議論から「結晶構造が n 回回転対称の点群に属する絶縁磁性体」が有望な物質の候補であることを見出し、そのような化合物中心に調べた結果、世界で 2 例目となる磁気強誘電性を示すスキルミオン相を発現する物質を発見した。この物質はまた、DM 相互作用由来のスキルミオンを発現する世界で初めての非キラル磁性体の発見例となった。

さらに、この物質の磁性と強誘電性を記述する微視的な数理モデルを構築し、モンテカルロ法による数値計算で解析することで、この物質が示す磁気強誘電相図と磁気構造を余すところなく解明した。その結果、この物

質で実現しているスキルミオンが従来のブロッホ型と呼ばれるものではなく、ネール型（図参照）と呼ばれる新しいタイプのものであることを明らかにした。この研究成果を共同で論文にまとめ Nature Materials 誌に発表した。また、伝統ある磁性の国際会議 (MMM2014) や強相関電子系の大きな国際会議 (SCES2013) を始め、いくつかの国内・外の会議で招待講演を行った。

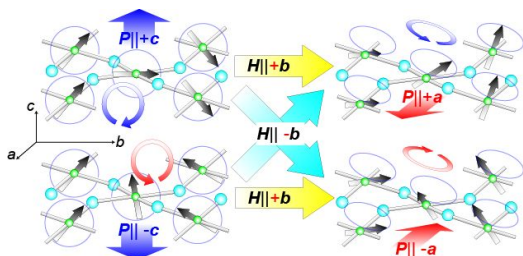


(5) エレクトロマグノン励起に起因する興味深いマイクロ波機能を発現することが明らかになったキラル磁性体 Cu_2OSeO_3 において、磁気スキルミオンの電気磁気結合に由来する基礎的な物理現象やデバイス機能を理論的に調べた。その結果、この絶縁性キラル磁性体薄膜に針状電極を使って局所的に電場を印加することで、電気磁気結合を通じた局所磁化反転を実現し、スキルミオンを書き込めることを発見した。また、この現象が薄膜面の方位に対する強い依存性を示すことや、立方晶の (111) 面および (001) 面でのみ起こることを見出した。さらに、その微視的な物理機構を明らかにした。この成果を、Applied Physics Letters 誌、および Advanced Electronic Materials 誌に発表した。



(6) エレクトロマグノン励起を示すスパイラル磁性強誘電体の典型物質である希土類ペロフスカイト型マンガン酸化物 TbMnO_3 において、磁場印加により電気分極が 90 度フリップを起こす現象の微視的な物理機構を解明した。そして、これまで確率的に起こると信じられてきたこの磁場誘起電気分極フリップが、多くの研究者の素朴な予想に反して決定論的に起こることを明らかにし、この手のスパイラル磁性マルチフェロイック物質のデバイス応用への道を切り拓いた。この

成果を、Science 誌および Physical Review B 誌に論文として発表した。



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 16 件)

1. 松原正和, 望月維人, 木村剛 (査読無)
「スパイラル磁性強誘電体 TbMnO₃ におけるマルチフェロイックドメインの外場応答」
固体物理 第 51 巻第 3 号 (2016 年 3 月号「トピックス」) pp. 25(173)-37(185).
2. 望月維人 (査読無)
「磁気スキルミオンのダイナミクスとデバイス機能」
(公社)日本磁気学会第 205 回研究会資料 pp.39-44 (2015).
3. M. Mochizuki (査読有)
Theory of Magnetic Field Induced Polarization Flop in Spin Spiral Multiferroics
Phys. Rev. B 92, 224412 (2015).
DOI: 10.1103/PhysRevB.92.224412
4. M. Mochizuki, S. Seki (査読有)
Dynamical magnetoelectric phenomena of multiferroic skyrmions
Journal of Physics: Condensed Matter 27, 503001 (2015).
DOI: 10.1088/0953-8984/27/50/503001
5. M. Mochizuki (査読有)
Creation of Skyrmions by Electric Field on Chiral-Lattice Magnetic Insulators
Advanced Electronic Materials 1, 1500180 (2015).
DOI: 10.1002/aelm.201500180
6. I. Kezsmarki, S. Bordács, P. Milde, E. Neuber, L. M. Eng, J. S. White, H. M. Ronnow, C. D. Dewhurst, M. Mochizuki, K. Yanai, H. Nakamura, D. Ehlers, V. Tsurkan, A. Loidl (査読有)
Neel-type skyrmion lattice with confined orientation in the polar magnetic semiconductor GaV4S8
Nature Materials 14, 1116-1122 (2015).
DOI:10.1038/nmat4402
7. M. Mochizuki, Y. Watanabe (査読有)
Writing a skyrmion on multiferroic materials
Appl. Phys. Lett. 107, 082409/1-5 (2015).
DOI: 10.1063/1.4929727
8. 望月維人 (査読無)
「スキルミオンを作る・消す・動かす」
日本磁気学会報「まぐね」第 10 巻第 4 号 (2015 年 8 月号特集記事) pp. 192-198.
9. M. Matsubara, S. Manz, M. Mochizuki, T. Kubacka, A. Iyama, N. Aliouane, T. Kimura, S. Johnson, D. Meier, M. Fiebig (査読有)
Magnetoelectric domain control in multiferroic TbMnO₃
Science 348, 1112-1115 (2015).
DOI: 10.1126/science.1260561
10. M. Mochizuki (査読有)
Microwave Magnetochiral Effect in Cu₂OSeO₃
Phys. Rev. Lett. 114, 197203/1-5 (2015).
DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.197203
11. 望月維人, 関真一郎 (査読無)
「絶縁体中の磁気スキルミオン相が示す電気磁気ダイナミクス」
日本物理学会誌 第 69 巻第 3 号 (2014 年 3 月号「解説」) pp. 132-139.
12. 望月維人, 永長直人 (査読無)
「磁気スキルミオンが示す特異な熱励起・電流誘起ダイナミクス」
固体物理 第 49 巻第 3 号 (2014 年 3 月号「トピックス」) pp. 25(125)-35(135).
13. M. Mochizuki, X. Z. Yu, S. Seki, N. Kanazawa, W. Koshibae, J. Zang, M. Mostovoy, Y. Tokura, N. Nagaosa (査読有)
Thermally driven ratchet motion of a skyrmion microcrystal and topological magnon Hall effect
Nature Materials 13, 241-246 (2014).
doi:10.1038/nmat3862
14. J. Iwasaki, M. Mochizuki, N. Nagaosa (査読有)
Current-induced skyrmion dynamics in constricted geometries
Nature Nanotechnology 8, 742-747 (2013).
doi:10.1038/nnano.2013.176
15. Y. Okamura, F. Kagawa, M. Mochizuki, M. Kubota, S. Seki, S. Ishiwata, M. Kawasaki, Y. Onose, Y. Tokura (査読有)
Microwave magnetoelectric effect via skyrmion resonance modes in a helimagnetic multiferroic
Nature Communications 4, 3391/1-6 (2013).
doi:10.1038/ncomms3391

16. M. Mochizuki, S. Seki (査読有)
Magnetoelectric resonances and predicted microwave diode effect of the skyrmion crystal in a multiferroic chiral-lattice magnet
Physical Review B 87, 134403/1-5 (2013).
doi:10.1103/PhysRevB.87.134403

[学会発表](計 23 件)

1. 望月維人 (招待講演)
第 55 回化合物新磁性材料専門研究会「トポロジカルなスピネクスタの可視化とダイナミクス」
題目: 磁気スキルミオンが示す特異なダイナミクスの理論
(東京大学浅野キャンパス情報基盤センター, 2016 年 3 月 11 日)

2. M. Mochizuki (招待講演)
RIKEN CEMS Discussion Meeting "Topological Phenomena in Noncentrosymmetric Magnets"
題目: Dynamical phenomena of magnetic skyrmions
(理化学研究所, 埼玉県和光市, 2016 年 1 月 28 日)

3. M. Mochizuki (招待講演)
EMN (Energy Materials and Nanotechnology) Hong Kong Meeting
題目: Dynamics of magnetic skyrmions in multiferroics
(Eaton Hotel, Kowloon, Hong Kong, 2015 年 12 月 9-12 日)

4. 望月維人 (招待講演)
日本磁気学会第 205 回研究会/第 56 回スピエレクトロニクス専門研究会 (共催)
将来の磁気デバイスを担う新しいナノ磁気構造とスピン操作の可能性 ~カイラル磁性とスピンオービトロニクスが拓く新現象~
題目: 磁気スキルミオンのダイナミクスとデバイス機能
(中央大学駿河台記念館, 2015 年 12 月 14 日)

5. 望月維人, 于秀珍, 関真一郎, 金澤直也, 小椎八重航, J. Zang, M. Mostovoy, 十倉好紀, 永長直人
題目: 熱勾配によるスキルミオンのラチェット回転とトポロジカルマグノンホール効果
日本物理学会 2015 年秋季大会 18aCM-3
(関西大学千里山キャンパス, 2015 年 9 月 16-19 日)

6. 望月維人
題目: スパイラル磁性強誘電体 TbMnO₃ における磁場誘起分極フロップの理論
日本物理学会 2015 年秋季大会 19aDB-6
(関西大学千里山キャンパス, 2015 年 9 月 16-19 日)

7. 望月維人
題目: 絶縁カイラル磁性体 Cu₂OSeO₃ におけるマイクロ波磁気カイラル効果の理論
望月維人 日本物理学会 2015 年秋季大会 19aDB-9
(関西大学千里山キャンパス, 2015 年 9 月 16-19 日)

8. 松原正和, Sebastian Manz, 望月維人, 井山彩人, 木村剛, Manfred Fiebig
題目: スパイラル磁性強誘電体 TbMnO₃ における電場磁場ドメイン制御の実空間観測
日本物理学会 2015 年秋季大会 19aDB-5
(関西大学千里山キャンパス, 2015 年 9 月 16-19 日)

9. 望月維人 (招待講演)
豊田理化学研究所特定課題研究「巨大負熱膨張材料を用いた革新的熱膨張制御技術の開発」第 3 回研究会
題目: マルチフェロイックスにおける電荷・スピン・格子結合と熱揺らぎの物理
(東京工業大学田町キャンパス, 2015 年 8 月 5 日)

10. M. Mochizuki (招待講演)
International Workshop on "Topological structures in ferroic materials"
題目: Dynamics of Skyrmions in Chiral-Lattice Magnets
(University of New South Wales (UNSW), Sydney, Australia, 2015 年 5 月 19-21 日)

11. M. Mochizuki (招待講演)
59th Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM 2014)
題目: Thermally Driven Ratchet Motion of a Skyrmion Microcrystal and Topological Magnon Hall Effect
(Hilton Hawaiian Village, Honolulu, Hawaii, 2014 年 11 月 3-8 日)

12. M. Mochizuki (招待講演)
Japan-Swiss Joint Workshop "Trends in Theory of Correlated Materials"
題目: Current-Driven Dynamics of Magnetic Skyrmions in Chiral-Lattice Magnets
(Aoyama Gakuin University, Tokyo, 2014 年 10 月 6-9 日)

13. M. Mochizuki (招待講演)
International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES 2014)
題目: Magnon Current-Driven Dynamics of Magnetic Skyrmions in Chiral-Lattice Magnets
(Grenoble France, 2014 年 7 月 7-11 日)

14. 望月維人 (招待講演)
日本学術振興会「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「電気と磁気に関する物性研究、現在・過去・未来」

題目:カイラル絶縁磁性体における磁気スキルミオンの電場駆動・制御の理論
(東京大学山上会館およびお茶の水セントヒルズホテル, 2014年5月17-18日)

15. 望月維人(受賞講演)
日本物理学会第69回年次大会 第8回日本物理学会若手奨励賞受賞記念講演(領域8)
題目:マルチフェロイックMnペロプスカイトの電気磁気現象に関する理論研究
(東海大学湘南キャンパス, 2014年3月27日)

16. J. Iwasaki, M. Mochizuki, N. Nagaosa
題目: Thermally Driven Ratchet Motion of Skyrmion Microcrystal and Topological Magnon Hall Effect
2014 APS March Meeting
(Denver, Colorado 2014年3月4日)

17. J. Iwasaki, M. Mochizuki, N. Nagaosa
題目: Current-induced skyrmion dynamics in constricted geometries
2014 APS March Meeting
(Denver, Colorado 2014年3月4日)

18. M. Mochizuki(招待講演)
2014 American Physical Society (APS) March Meeting
題目: Theoretical Studies on Dynamical Phenomena of Magnetic Skyrmions
(Denver, Colorado 2014年3月4日)

19. M. Mochizuki(招待講演)
Workshop on Current-Driven Magnetisation Dynamics
題目: Current-driven dynamics of skyrmions
(Weetwood Hall Conference Centre, Leeds UK, 2014年1月7-9日)

20. 望月維人(招待講演)
第3回強相関電子系理論の最前線-若手によるオープン・イノベーション-
題目: 最近のスキルミオン研究
(和歌山県勝浦町, 勝浦観光ホテル, 2013年12月16-18日)

21. 望月維人、関真一郎
題目: スキルミオン結晶の電磁場活性スピン波モードと干渉効果
日本物理学会 2013年秋季大会 25aKQ-10
(徳島大学常三島キャンパス, 2013年9月25-28日)

22. 岩崎惇一、望月維人、永長直人
題目: 制限されたサンプル形状におけるスキルミオンの電流駆動ダイナミクス

日本物理学会 2013年秋季大会 27aKF-9
(徳島大学常三島キャンパス, 2013年9月25-28日)

23. M. Mochizuki(招待講演)
5th Asia Pacific Center for Theoretical Physics (APCTP) Workshop on Multiferroics
題目: Theory of dynamical magnetoelectric phenomena in multiferroics with noncollinear spin structures
(Singapore, Nanyang Technological University, 2013年5月22-24日)

[図書](計2件)

1. M. Mochizuki 他30名
Topological Structures in Ferroic Materials: Domain Walls, Skyrmions and Vortices (Springer Series in Materials Science, edited by J. Seidel)
ISBN 978-3-319-25301-5

2. S. Seki, M. Mochizuki
Skyrmions in Magnetic Materials (Springer Briefs in Physics)
ISBN 978-3-319-24651-2

[産業財産権]

出願状況(計2件)
名称: 電磁波の透過率制御方法、電磁波の透過率制御デバイス
発明者: 岡村嘉大、賀川史敬、関真一郎、久保田将司、石渡晋太郎、小野瀬佳文、望月維人、十倉好紀、川崎雅司
権利者: 理化学研究所
種類: 特許
番号: 特願 2013-240064
出願年月日: 平成 25 年 11 月 20 日
国内外の別: 国内

名称: スキルミオン生成装置、スキルミオン生成方法、および磁気記憶装置
発明者: 望月維人
権利者: 科学技術振興機構
種類: 特許
番号: 特願 2015-072079
出願年月日: 平成 27 年 3 月 31 日
国内外の別: 国内、国外(PCT)、台湾

取得状況(計0件)

[その他]

ホームページ等
<http://www.phys.aoyama.ac.jp/~mochizuki/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者
望月維人(Masahito MOCHIZUKI)
青山学院大学理工学部 准教授
研究者番号: 80450419