

令和 4 年 5 月 16 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02424

研究課題名(和文)伝導性を利用した圧電応答の開拓と材料開発

研究課題名(英文)Study of novel piezoelectric responses in highly conductive materials

研究代表者

塩見 雄毅 (SHIOMI, YUKI)

東京大学・大学院総合文化研究科・准教授

研究者番号：10633969

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：伝導系圧電材料の開発およびその基礎学理の構築を目指して研究を行った。レーザードップラー振動計を用いた低温磁場下での逆圧電効果測定系を構築し、種々の伝導性試料に対して温度依存性を含めた圧電応答の研究を系統的に行った。特筆すべき成果として、時間反転対称性と空間反転対称性の破れた磁性金属において磁気圧電効果と呼ばれる金属特有の圧電効果を発見した。温度依存性の測定により、低温に向かって圧電信号が増大することを見出した。非常に低温では、圧電係数の値は典型的な圧電材料と同程度に達する。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまで伝導性を有する物質材料は、伝導電子によるスクリーニング効果によって圧電応答が妨げられるために、有効な圧電材料にはならないと考えられてきた。しかしながら研究代表者は超イオン伝導性や磁性の自由度を有効に用いることでこの常識を打ち破り、新たに伝導を有する物質の圧電材料としての有用性を見出した。特に、磁気圧電効果と呼ばれる低対称金属における新しい圧電現象の発見を達成した。

研究成果の概要(英文)：Experimental research was performed with the aim of developing conductive piezoelectric materials. We newly constructed a measurement system of the inverse piezoelectric effect under low temperature and magnetic field using a laser Doppler vibrometer. We systematically studied temperature dependence of piezoelectric responses for various conductive materials. Notably, we discovered a new piezoelectric effect called the magnetopiezoelectric effect in magnetic metals with broken time-reversal and space-inversion symmetries. By examining the temperature dependence of the magnetopiezoelectric effect, we found that the magnetopiezoelectric signal increases with decreasing temperature, and the its efficiency reaches the same level as typical piezoelectric materials at the lowest temperature.

研究分野：物性物理学

キーワード：圧電効果 磁性金属 磁気圧電効果 ネマティック秩序 奇パリティ多極子

1. 研究開始当初の背景

圧電材料は、機械的エネルギーと電気エネルギーを相互変換できる特殊な材料であり、センサやアクチュエータなど幅広く応用されてきた。しかしながら、広く用いられてきた実用圧電材料は有害な鉛を含んだ PZT (Pb(Zr,Ti)O₃) であり、人体や環境に対する負荷が大きな問題となってきた。環境問題への意識の高まりもあり、鉛フリーの圧電材料の開発は世界的な課題として精力的に研究が行われているが、有望な代替材料はほとんど見つかっていない。この状況を打破するには、これまでとは全く異なる圧電材料開発の指針が必要である。

「伝導を有する物質は優れた圧電材料になり得るのか。」本申請課題はその問いに答えを出し、伝導系圧電材料の開発およびその基礎学理の構築を目指した。これまで伝導を有する物質材料は、伝導電子によるスクリーニング効果によって圧電応答が妨げられるために、有効な圧電材料にはならないと考えられてきた。すなわち優れた圧電材料はバンドギャップをもつ絶縁体あるいは半導体に限られてきた。しかしながら、研究代表者は超イオン伝導を利用することで、伝導性狭ギャップ半導体 AgCrSe₂ においてスクリーニング効果に打ち勝った巨大な圧電応答を観測した (Adv. Electron. Mater. 2018)。本課題はその知見を活かし、従来材料に匹敵した性能を有する伝導系の圧電材料開発に取り組む。伝導系圧電材料は、電気を流して動作する多くのエレクトロニクス素子(電気回路)に原理的に組み込むことが可能であり、圧電効果を利用した新しいエレクトロニクス機能の開発が期待できる。

2. 研究の目的

本研究課題では、伝導を有する物質の圧電材料としての有用性を見出すことを目的とした。特に、磁性金属特有の圧電応答である Magneto-piezoelectric 効果(磁気圧電効果)の世界初観測を達成し、研究代表者の得意とする磁性金属物質における効率的な圧電応答の実現を目指した。

3. 研究の方法

本研究は、試料作製を研究分担者の石渡が行い、圧電計測を研究代表者の塩見が行った。磁気圧電効果の最初の実験的観測は、反強磁性金属 EuMnBi₂ においてなされた。EuMnBi₂ は、図 1(a) に示すように、Mn²⁺の周りに Bi³⁺が四面体配位した層、Bi¹⁻ 正方格子からなる層、および Eu²⁺の層の 3 層からなる層状の反強磁性体である。空間群は I4/mmm で空間反転対称な結晶構造を有するが、ネール温度 T_N^{Mn}=314 K で、Mn が反強磁性秩序を示し、系の空間反転対称性が破れる。すなわち、T_N^{Mn}以下で、時間反転対称性と空間反転対称性が同時に破れることで、磁気圧電効果の発現が許される。なお、より低温(22 K)で Eu イオンも反強磁性を示すが、Mn モーメントの磁気構造には影響がなく、更なる対称性の低下は起きない。T_N^{Mn}以下では、EuMnBi₂ は D_{2d} の対称性をもつことから、群論的分類結果に基づくと、電流を結晶の [001] 方向に印加すると、[110] 方向に歪みが生じることが期待される。

EuMnBi₂ における磁気圧電効果の測定は、図 1(b) に示すように、レーザードップラー振動計を用いて非接触に動的歪みを直接測定することで行われた。ここで、レーザードップラー振動計は、レーザードップラー効果を利用することで、振動する試料の振動速度を高精度に測定する手法である。得られた振動速度は、FFT アナライザを用いて時間に対して数値積分することで、周波数の関数として試料の変位を求めることができる。レーザードップラー振動計を用いた動的変位計測は、車の振動計測やカンチレバーの共振周波数の測定など、工学的な用途で広く用いられてきたが、本研究は低温下での物性実験となるため、光学窓が付いたクライオスタットに EuMnBi₂ を入れて実験を行った。レーザードップラー振動計を用いて低温磁場下での圧電応答計測した例は見当たらず、本研究で初めて構築する測定系である。磁気圧電効果の観測のためには、電流に応答して生じる歪みを観測する必要がある。前述の対称性の考察から、単結晶試料の [001] 方向に交流(AC)電流を印加し、それに応答して生じる面内方向の動的歪みを計測した [図 1(b)]。

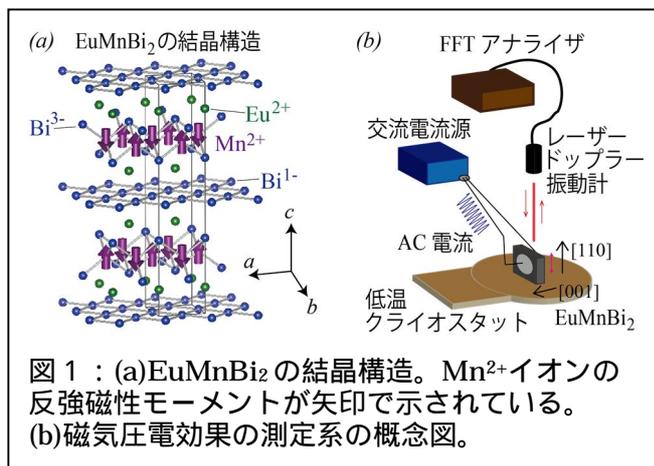


図 1 : (a)EuMnBi₂ の結晶構造。Mn²⁺イオンの反強磁性モーメントが矢印で示されている。(b)磁気圧電効果の測定系の概念図。

4. 研究成果

磁気圧電効果の測定結果を図2に示す。まず、図2(a)に示すように、77 Kの温度において、6 kHzの電流を試料の[001]方向に印加すると、面内方向(この場合は[100]方向)に印加電流と同じ周波数で変位信号が生じていることがわかった[図2(a)-]。電流をオフにすると変位信号は消え、電流印加により生じた変位の大きさは、25 pmほどである。この変位信号は、図2(a)- に示す通り、同じ条件で電流を[001]方向に印加した状態で[001]方向に変位を計測しても観測されない。この結果は、対称性から期待される磁気圧電効果の異方性と整合している。さらに、別の測定系で、4.5 Kまで温度を下げて同様の測定を行っても結果は再現された[図2(b)]。すなわち、[001]方向の交流電流の印加により、[110]方向に電流と同じ周波数の動的歪みが生じた。電流の大きさを0 mAから100 mAまで増加させると、電流強度に比例して電流誘起の変位信号の振幅は増大していく。また、同じ結晶構造でMnモーメントの反強磁性がないEuZnBi₂において電流誘起の変位信号が見られないことも確認した。以上の実験結果は、EuMnBi₂において磁気圧電効果が発現していることを示している。

興味深いことに、磁気圧電効果による電流誘起の変位信号は、低温ほど大きくなる傾向があった。一般に金属においては低温ほど伝導率が大きくなるから、この実験結果は磁気圧電効果の応答は伝導率が高いほど大きくなることを示している。これは、通常の圧電効果とは対照的である。すなわち、通常の圧電効果においては伝導率が低いほど(つまり絶縁性がよいほど)スクリーニングの効果が小さくなるため、圧電応答の強度が大きくなる。磁気圧電効果は、実験の観点からは、通常の圧電効果と同じような応答であるが、応答係数の物質パラメータ依存性は通常の圧電効果の場合とは全く異なることが示唆される。今後は、より詳細に磁気圧電効果の性質を解明すべく、より精緻な測定やミクロな理論解析が求められる。

本研究課題で見出した磁気圧電効果に対して圧電応答の効率を求めるために、圧電係数を計算した。先述の通り低温に向かって圧電係数は大きくなる傾向があり、4.5 Kで最大で3500 pC/Nの値を示した。これは典型的な圧電材料の室温における圧電係数と比べても十分大きい。ただし、歪みの大きさを大きくするために試料に印加する電流を大きくすると、ジュール熱による発熱が問題となり得ることも明らかとなった。

本研究課題において達成した磁気圧電効果の観測に用いた(逆)圧電効果測定系は、様々な物質における低温磁場下での圧電応答の評価を可能にする。順調に研究が進行したため、研究課題後半期においては、ネマティック秩序やトポロジといった新規な物理概念と関連した新圧電現象を開拓することを目指して研究を行った。例えば、世界最古の天然磁石であるマグネタイトにおける低温磁場下での圧電効果測定を行った。マグネタイトは低温で金属絶縁体転移を示し、低温相においてはトライメロンという複雑な秩序状態が発現することが知られる。低温相では対称性が破れるので圧電効果が発現することが知られていたが、我々の測定系を用いて圧電係数の詳細な温度依存性を初めて明らかにした。さらに、最低温で0.3Tの磁場を印加すると圧電

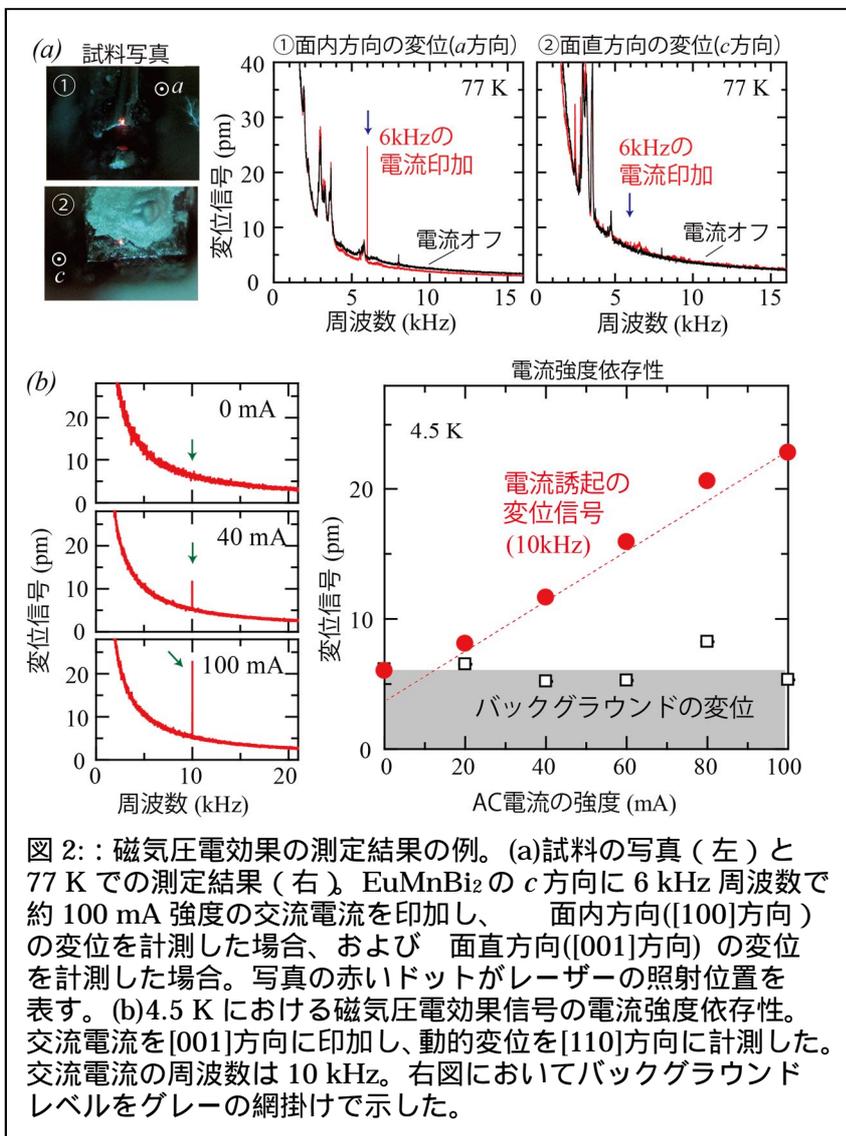


図2: 磁気圧電効果の測定結果の例。(a)試料の写真(左)と77 Kでの測定結果(右)。EuMnBi₂のc方向に6 kHz周波数で約100 mA強度の交流電流を印加し、面内方向([100]方向)の変位を計測した場合、および面直方向([001]方向)の変位を計測した場合。写真の赤いドットがレーザーの照射位置を表す。(b)4.5 Kにおける磁気圧電効果信号の電流強度依存性。交流電流を[001]方向に印加し、動的変位を[110]方向に計測した。交流電流の周波数は10 kHz。右図においてバックグラウンドレベルをグレーの網掛けで示した。

係数が 50%ほど減少することを明らかにした。方位を変えた実験を行うなど、再現性を含めて追加実験が必要であるが、これは非常に大きい磁場変化であり興味深い結果である。低温相の基底状態であるトライメロン秩序と関係している可能性もあり今後の研究展開が期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計17件（うち査読付論文 17件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 5件）

1. 著者名 Kosaki Hidetoshi, Umeda Maki, Saitoh Eiji, Shiomi Yuki	4. 巻 90
2. 論文標題 Magnon-Photon Coupling in a Spinel Ferrite with Large Gilbert Damping	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 083702 ~ 083702
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.083702	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 Chen Yao, Sato Masahiro, Tang Yifei, Shiomi Yuki, Oyanagi Koichi, Masuda Takatsugu, Nambu Yusuke, Fujita Masaki, Saitoh Eiji	4. 巻 12
2. 論文標題 Triplon current generation in solids	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 5199
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-021-25494-7	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 Hashizume Minori, Yokouchi Tomoyuki, Nakagawa Kurea, Shiomi Yuki	4. 巻 104
2. 論文標題 Anisotropic magneto-Seebeck effect in the antiferromagnetic semimetal FeGe2	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 115109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.115109	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 Nakagawa Kurea, Yokouchi Tomoyuki, Shiomi Yuki	4. 巻 11
2. 論文標題 Reconfigurable single-material Peltier effect using magnetic-phase junctions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 24216
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-03754-2	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 Yokouchi T., Shiomi Y.	4. 巻 16
2. 論文標題 Enhancement of Current-Induced Out-of-Plane Spin Polarization by Heavy-Metal-Impurity Doping in Fe Thin Films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 54001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevApplied.16.054001	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 Mayo Alex Hiro, Takahashi Hidefumi, Bahramy Mohammad Saeed, Nomoto Atsuro, Sakai Hideaki, Ishiwata Shintaro	4. 巻 12
2. 論文標題 Magnetic Generation and Switching of Topological Quantum Phases in a Trivial Semimetal EuP3	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review X	6. 最初と最後の頁 11033
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevX.12.011033	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 Mayo Alex Hiro, Richards Jon Alexander, Takahashi Hidefumi, Ishiwata Shintaro	4. 巻 90
2. 論文標題 High-Pressure Synthesis of a Massive and Non-Symmorphic Dirac Semimetal Candidate MoP4	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 123704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.123704	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 Shiomi Yuki, Masuda Hidetoshi, Takahashi Hidefumi, Ishiwata Shintaro	4. 巻 10
2. 論文標題 Large Magneto-piezoelectric Effect in EuMnBi2 Single Crystal at Low Temperatures	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 7574
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-64530-2	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 Nakagawa Kurea, Miyazaki Yu, Mitsuishi Natsuki, Sakano Masato, Yokouchi Tomoyuki, Ishizaka Kyoko, Shiomi Yuki	4. 巻 89
2. 論文標題 Enhanced Thermopower in the Antiferromagnetic Phase of Mn _{2-x} Cr _x Sb	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124601 ~ 124601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.124601	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 Kato Takemi, Sugawara Katsuaki, Ito Naohiro, Yamauchi Kunihiko, Sato Takumi, Oguchi Tamio, Takahashi Takashi, Shiomi Yuki, Saitoh Eiji, Sato Takafumi	4. 巻 4
2. 論文標題 Modulation of Dirac electrons in epitaxial Bi ₂ Se ₃ ultrathin films on van der Waals ferromagnet Cr ₂ Si ₂ Te ₆	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 84202
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.4.084202	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 Takahashi Hidefumi, Aono Kai, Nambu Yusuke, Kiyonagi Ryoji, Nomoto Takuya, Sakano Masato, Ishizaka Kyoko, Arita Ryotaro, Ishiwata Shintaro	4. 巻 102
2. 論文標題 Competing spin modulations in the magnetically frustrated semimetal EuCuSb	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174425
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.174425	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 Kurata I., Flores-Livas Jos? A., Sugimoto H., Takahashi H., Sagayama H., Yamasaki Y., Nomoto T., Arita R., Ishiwata S.	4. 巻 5
2. 論文標題 High-pressure synthesis of Ba ₂ RhO ₄ , a rhodate analog of the layered perovskite Sr-ruthenate	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 15001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.5.015001	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 Nakagawa K., Asano H., Miyazaki Y., Shiomi Y.	4. 巻 126
2. 論文標題 Magnetotransport properties of magnetite-hematite composite oxides	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 183904
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5129079	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 Hirobe Daichi, Sato Masahiro, Hagihala Masato, Shiomi Yuki, Masuda Takatsugu, Saitoh Eiji	4. 巻 123
2. 論文標題 Magnon Pairs and Spin-Nematic Correlation in the Spin Seebeck Effect	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 117202
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.117202	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 Shiomi Y., Koike Y., Abe N., Watanabe H., Arima T.	4. 巻 100
2. 論文標題 Enhanced magnetopiezoelectric effect at the Neel temperature in CaMn2Bi2	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 54424
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.054424	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 Ito Naohiro, Kikkawa Takashi, Barker Joseph, Hirobe Daichi, Shiomi Yuki, Saitoh Eiji	4. 巻 100
2. 論文標題 Spin Seebeck effect in the layered ferromagnetic insulators CrSiTe3 and CrGeTe3	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 60402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.060402	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 Chen Yao, Shiomi Yuki, Qiu Zhiyong, Niizeki Tomohiko, Umeda Maki, Saitoh Eiji	4. 巻 9
2. 論文標題 Electric readout of magnetic stripes in insulators	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 19052
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-55565-1	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 -

〔学会発表〕 計6件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 3件)

1. 発表者名 塩見雄毅
2. 発表標題 ディラック半金属Cd3As2ナノワイヤにおける表面状態由来の量子振動
3. 学会等名 物性研ワークショップ「ナノスケール物性科学の最先端と新展開」(オンライン開催) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 塩見雄毅
2. 発表標題 トポロジカル絶縁体におけるスピン流と電流の変換現象
3. 学会等名 有機エレ材研(JOEM)第245回研究会「トポロジカル絶縁体」(オンライン開催) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Shintaro Ishiwata
2. 発表標題 Search for topological spin structures in centrosymmetric perovskite oxides
3. 学会等名 The International Conference on Frustration, Topology and Spin Textures (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 塩見雄毅
2. 発表標題 反強磁性金属における磁気圧電効果の観測
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuki Shiomi
2. 発表標題 Observation of a magnetopiezoelectric Effect in Antiferromagnetic Metals
3. 学会等名 Online Young Research Leaders Group Workshop: Spin, Charge, and Heat Transport: From Symmetries to Emergent Functionalities (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yuki Shiomi
2. 発表標題 Observation of a magnetopiezoelectric effect in the antiferromagnetic metal EuMnBi ₂
3. 学会等名 J-Physics 2019 International Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 Tomasz Blachowicz、Andrea Ehrmann、塩見 雄毅	4. 発行年 2021年
2. 出版社 講談社	5. 総ページ数 336
3. 書名 スピントロニクスの基礎と応用 理論、モデル、デバイス	

1. 著者名 渡邊光、柳瀬陽一、石塚淳、金杉翔太、大同暁人、角田峻太郎、下出敦夫、塩見雄毅	4. 発行年 2020年
2. 出版社 アグネ技術センター	5. 総ページ数 15
3. 書名 奇パリティ多極子相の分類学と電磁応答・超伝導 (固体物理Vol155, No. 11)	

〔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
研究 分 担 者	石渡 晋太郎 (ISHIWATA SHINTARO) (00525355)	大阪大学・基礎工学研究科・教授 (14401)	

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
---------	---------