

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K03853

研究課題名(和文) 異方的な物性応答を利用した磁気多極子ドメインの制御

研究課題名(英文) Control of magnetic multipole domains using anisotropic physical responses

研究代表者

阿部 伸行 (ABE, Nobuyuki)

日本大学・文理学部・准教授

研究者番号：70582005

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では空間反転対称性と時間反転対称性の複合的な破れに伴う新しい物性応答の起源としての奇パリティ磁気多極子秩序に着目し、その物性をマクロな物性応答として検出することを目的として実験を行った。その実現のため、奇パリティ磁気多極子ドメインの可視化と、異方的な物性応答を利用したドメイン制御について研究を進めた。本研究の成果として1. Ba₃Fe₂O₅Cl₂などの複数の物質がマルチフェロイクスであることを発見した。2. アキラルな構造を持つ反強磁性体であるMnTiO₃や、キラルな結晶構造を持つ有機-無機ハイブリッドペロブスカイトにおいて方向二色性が現れることを発見した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果の中でも特にアキラルな構造を持つ反強磁性体であるMnTiO₃における方向二色性の発見は、これまでの研究指針よりも広範囲の物質に適応できる可能性があり、今後の方向二色性を示す物質の新しい探索指針になることが期待される。

研究成果の概要(英文)：In this study, we focused on the odd-parity magnetic multipolar order as the origin of new physical property responses associated with the breaking of both space inversion symmetry and time reversal symmetry, and performed experiments to detect the new physical properties as macroscopic physical property responses. To achieve this, we have studied visualization of odd-parity magnetic multipolar domains and domain control using anisotropic physical response. Main achievements are listed below. 1. Multiferroic response is newly discovered in several materials such as Ba₃Fe₂O₅Cl₂. 2. It has been discovered that large directional dichroism in MnTiO₃ and organic-inorganic hybrid perovskites.

研究分野：固体物性

キーワード：マルチフェロイクス 方向二色性 奇パリティ磁気多極子秩序

1. 研究開始当初の背景

物質の性質や機能は対称性と深く結びついている。例えば空間反転対称性の破れは強誘電性や掌性として、時間反転対称性の破れは強磁性として現れ、各種の電子デバイスや記憶素子の基本原理としても広く用いられている。これらの強磁性体や強誘電体では結晶全体で対称性が破れているのに対し、近年の研究では局所的な反転対称性の破れの重要性が指摘されている。局所的な反転対称性の破れの典型的な例は固体表面や界面であり、例えば Rashba 効果によるバンドのスピンスプリットや、積層薄膜の界面における Dzyaloshinskii-守谷相互作用に由来する非共線的な磁気構造などが報告されている。これらの効果はスピンプラズマを操作する方法としてスピントロニクスデバイスの基本原理としても期待されている。固体中においても四面体結晶場、ジグザグ構造、ハニカム構造などを舞台として、局所的な反転対称性の破れに伴う奇パリティ多極子の重要性が指摘されており[1]、この中でも図1のような磁気四極子などの奇パリティ磁気多極子では対称性の複合的な破れに伴う新しい物性応答が期待できる[2]。また複数の磁気モーメントによって形成されるクラスター多極子も新しい物性応答の舞台として注目されている[3]。

強磁性体における磁区のように、強的な秩序を持つ物質では系全体のエネルギーを下げるためにドメイン構造が形成される。それぞれのドメインの間にはドメイン壁が形成され、例えば強磁性体では磁化に対して共役な磁場によってドメイン壁を動かすことで磁化の向きを制御している。すなわちドメイン構造やドメイン壁の運動を理解することは、応用の観点からも重要である。一方で、本研究で対象とする奇パリティ磁気多極子は基本的に反強磁性体において現れることから、共役な外場は無く、ドメイン制御方法は未だ確立されていない。すなわち、通常の反強磁性体とされていた物質においても、奇パリティ磁気多極子秩序の単ドメイン化が実現できれば、新しい物性応答が現れる可能性がある。

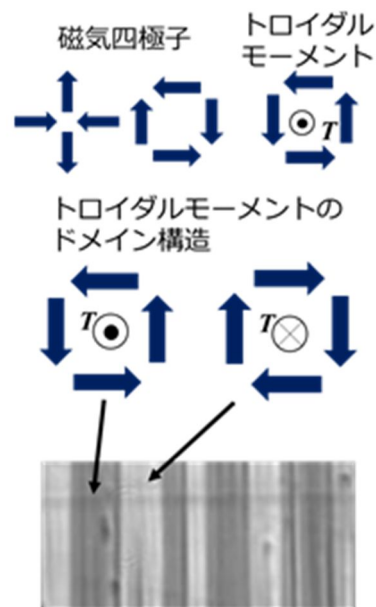


図1 奇パリティ磁気多極子とドメイン構造

2. 研究の目的

本研究では対称性の複合的な破れに伴う新しい物性応答の起源としての奇パリティ磁気多極子秩序に着目し、その新しい物性をマクロな物性応答として検出することを目的とする。その実現のため、(1) 奇パリティ磁気多極子ドメインの可視化と、(2) 異方的な物性応答を利用したドメイン制御の2点について研究を進める。

3. 研究の方法

(1) 奇パリティ磁気多極子ドメインの可視化

奇パリティ磁気多極子の強的な秩序が存在する場合、非相反光学応答が現れる [4]。図1下はトロイダルモーメントのドメイン構造を方向二色性によって観測した例であり、磁気秩序温度以下では図1のように向きが異なるトロイダルモーメントのドメインが形成され、ドメイン構造を透過光強度の違いによって検出することが可能である。同様の光学応答は反射[5]や発光[6]、屈折[7]などにおいても現れることから、これらの非相反光学応答を利用することで、奇パリティ磁気多極子のドメイン構造を可視化する。

(2) 異方的な物性応答を利用したドメイン制御

奇パリティ磁気多極子秩序を持つ物質では電気磁気効果が発現する。このことを利用して、絶縁体では電場と磁場を同時に印加することでドメインを制御することが可能である。一方で電気抵抗が低く電場を印加することができない金属や半導体では、同様の手法を用いることができない。このため、本研究ではドメイン制御の手法として異方的な物性応答を利用する。特に反強磁性体における磁気構造の制御方法として有望な一軸応力や電流を利用したドメイン制御方法の確立を目指す。

上記の(1)と(2)の研究を遂行するために、本研究費で0.5テスラまで印加可能な電磁石およびイメージング測定用の16bit CMOSカメラを導入した。現有の冷凍機および光学測定系にこれらの機器を組み込むことで、磁場印加下での光学スペクトルおよびイメージングの測定を行えるようになった。また冷凍機内での一軸応力印加用セルの設計と工作を行い、応力印加測定を試みた。研究後半では外部実験も可能になったため、東京大学物性研究所での共同利用実験によって候補物質の単結晶育成、X線構造解析、電気磁気効果および磁化の測定などを行った。

4. 研究成果

本研究では対称性の複合的な破れに伴う新しい物性応答の起源としての奇パリティ磁気多極子秩序に着目し、その新しい物性をマクロな物性応答として検出することを目的として研究を進めてきた。本研究における顕著な成果として(1) MnTiO_3 における方向二色性の発見、(2) $\text{Ba}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ における電気磁気効果の発見、(3) MnTiO_3 における方向二色性を利用したドメインダイナミクスについての研究、(4) 有機無機ハイブリッドペロブスカイトにおける方向二色性の発見が挙げられる。

(1) MnTiO_3 における方向二色性の発見

マルチフェロイック物質では、光の入射する向きに依存して吸収係数が変化する方向二色性が現れる場合がある。この方向二色性が現れる条件として、「空間反転対称性と時間反転対称性が破れている」という制約があるため、これまでの研究ではマクロな磁化を持つ強磁性強誘電体や強磁性キラル磁性体などを対象として研究が行われてきた。一方で、可視光領域の光吸収の起源は主に遷移金属イオンの電子遷移であり、結晶構造は空間反転対称性を持っていたとしても、遷移金属イオンの配位子が反転対称性を持たなければ方向二色性は生じる。そのような観点からアキラルな構造を持つ反強磁性体である MnTiO_3 を対象として研究を進めたところ、方向二色性が現れることを発見し、原著論文として報告した。この成果は方向二色性を示す物質の新しい探索指針になることが期待される。

(2) $\text{Ba}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ における電気磁気効果の発見

これまでに報告されているマルチフェロイック物質の多くは室温以下の低温で動作するため、実際のデバイスとして用いることは難しい。このため高い磁気転移温度を持つことが多い鉄の化合物に着目し物質探索を進めたところ、564K という高い磁気転移温度を持つ $\text{Ba}_3\text{Fe}_2\text{O}_5\text{Cl}_2$ がマルチフェロイックとしての特性を示すことを発見した。放射光 X 線や中性子線を用いた回折実験も行うことで、この物質の電気磁気結合の微視的な起源についても明らかにした。

(3) MnTiO_3 における方向二色性を利用したドメインダイナミクスについての研究

2020 年度に原著論文として報告した MnTiO_3 における方向二色性を利用した反強磁性ドメインのダイナミクスの観察について、新たに原著論文として報告した。 MnTiO_3 の磁気秩序温度近傍では、電場を印加することによって電気分極が反転することに伴い、反強磁性ドメインを制御することができる。電場印加に伴うドメイン変化をパルス電場の時間幅を変化させつつ方向二色性を利用した磁気イメージングを行うことで、 MnTiO_3 における反強磁性ドメインのダイナミクスを明らかにした。

(4) 有機無機ハイブリッドペロブスカイトにおける方向二色性の発見

有機・無機ハイブリッドペロブスカイト系化合物は、比較的低温かつ簡便なプロセスでの合成が可能でありながら、優れた太陽電池材料としての光学特性を示す。一方でこれまでは磁性を持たない化合物のみに限定されていたが、今回の研究ではキラル分子を用いて反転心を持たない磁石の材料設計に成功し、方向二色性を発現させることに成功した。

上記のような顕著な研究成果が得られた一方で、電流や応力によるドメイン制御については現状も研究段階である。今後も研究を進めていくことで、奇パリティ磁気多極子秩序の物性制御方法を開拓していく。

[1] Y. Yanase, *J. Phys. Soc. Japan*, **83**, 014703 (2014 年)

[2] S. Hayami *et al.* *Physical Review B* **90**, 024432 (2014 年)

[3] M.T.Suzuki *et al.* *Physical Review B* **95**, 094406 (2017 年)

[4] T. Arima, *J. Phys.: Condensed Matter* **20**, 434211 (2008 年)

[5] B.B. Kruchevtsov *et al.* *J. Phys.: Condensed Matter* **5**, 8233(1993 年)

[6] S. Toyoda, N. Abe, T. Arima, *Physical Review B* **93**, 201109(R) (2016 年)

[7] S. Toyoda, N. Abe, T. Arima, *Physical Review Letters* **123**, 077401 (2019 年)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sato Tatsuki, Abe Nobuyuki, Tokunaga Yusuke, Arima Taka-hisa	4. 巻 105
2. 論文標題 Antiferromagnetic domain wall dynamics in magnetoelectric MnTiO ₃ studied by optical imaging	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 94417
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.105.094417	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 Hada M., Ohmura S., Ishikawa T., Saigo M., Keio N., Yajima W., Suzuki T., Urushihara D., Takubo K., Masaki Y., Kuwahara M., Tsuruta K., Hayashi Y., Matsuo J., Yokoya T., Onda K., Shimojo F., Hase M., Ishihara S., Asaka T., Abe N., Arima T., Koshihara S., Okimoto Y.	4. 巻 24
2. 論文標題 Photoinduced oxygen transport in cobalt double-perovskite crystal EuBaCo ₂ O _{5.39}	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Materials Today	6. 最初と最後の頁 101167 ~ 101167
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.apmt.2021.101167	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 Omi Tsuyoshi, Watanabe Yoshito, Abe Nobuyuki, Sagayama Hajime, Nakao Akiko, Munakata Koji, Tokunaga Yusuke, Arima Taka-hisa	4. 巻 103
2. 論文標題 Antiferromagnetic-to-ferrimagnetic phase transition with large electric-polarization change in a frustrated polar magnet CaBaCo ₄ O ₇	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184412
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.103.184412	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 Taniguchi Kouji, Nishio Masaki, Abe Nobuyuki, Huang Po Jung, Kimura Shojiro, Arima Taka-hisa, Miyasaka Hitoshi	4. 巻 60
2. 論文標題 Magneto Electric Directional Anisotropy in Polar Soft Ferromagnets of Two Dimensional Organic-Inorganic Hybrid Perovskites	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Angewandte Chemie International Edition	6. 最初と最後の頁 14350 ~ 14354
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/anie.202103121	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 Sato Tatsuki, Abe Nobuyuki, Araki Yusuke, Kimura Shojiro, Tokunaga Yusuke, Arima Taka-hisa	4. 巻 102
2. 論文標題 Thermally driven commensurate-incommensurate transition tracked by magnetochromism in chiral polar Ni ₂ In _{0.9} Cr _{0.1} SbO ₆	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 94418
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.094418	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 Araki Y., Sato T., Fujima Y., Abe N., Tokunaga M., Kimura S., Morikawa D., Ukleev V., Yamasaki Y., Tabata C., Nakao H., Murakami Y., Sagayama H., Ohishi K., Tokunaga Y., Arima T.	4. 巻 102
2. 論文標題 Metamagnetic transitions and magnetoelectric responses in the chiral polar helimagnet Ni ₂ InSbO ₆	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 54409
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.054409	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 Sato Tatsuki, Abe Nobuyuki, Kimura Shojiro, Tokunaga Yusuke, Arima Taka-hisa	4. 巻 124
2. 論文標題 Magnetochiral Dichroism in a Collinear Antiferromagnet with No Magnetization	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 217402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.124.217402	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 Abe N., Shiozawa S., Matsuura K., Sagayama H., Nakao A., Ohhara T., Tokunaga Y., Arima T.	4. 巻 101
2. 論文標題 Magnetically induced electric polarization in Ba ₃ Fe ₂ O ₅ Cl ₂ with tunable direction in three dimensions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 180407
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.180407	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 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 佐藤樹 , 園山樹 , 渡辺柗 , 車地崇 , 木村尚次郎 , 阿部伸行 , 徳永祐介 , 有馬孝尚
2. 発表標題 八二カム格子反強磁性体BaNi ₂ (PO ₄) ₂ における電気磁気結合と方向二色性
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤樹 , 阿部伸行 , 徳永祐介 , 有馬孝尚
2. 発表標題 磁気キラル効果によるMnTiO ₃ の反強磁性磁区イメージング
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 荒木勇介 , 阿部伸行 , 徳永祐介 , 有馬孝尚
2. 発表標題 極性反強磁性体Fe ₃ P ₀₇ における電気磁気効果
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 磯貝レオナ , 藤間友理 , LicongPeng , FehmiSamiYasin , 中島清美 , XiuzhenYu , 阿部伸行 , 徳永祐介 , 有馬孝尚
2. 発表標題 ローレンツ透過電子顕微鏡法を用いたスピネル型硫化物Fe _{1-x} Cu _x Cr ₂ S ₄ (x=0.1)の磁気バブル観測
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 荒木勇介, 大石一城, 阿部伸行, 徳永祐介, 有馬孝尚
2. 発表標題 極性キラル磁性体Ni ₂ InSbO ₆ におけるCo置換効果
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 渡辺義人, 阿部伸行, 徳永祐介, 有馬孝尚
2. 発表標題 六方晶希土類金属間化合物DyAuInのc軸磁場下伝導特性
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔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

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