

強磁場下における CoTeMoO_6 の磁気カイラル二色性の観測

物質系専攻 47-146027 根津 正謙

指導教員：有馬孝尚 (教授)

キーワード：対称性の破れ、強磁場、磁気カイラル二色性

1 緒言

時間反転対称性と空間反転対称性が同時に破れているような物質では、一般に知られている磁気光学効果とは異なる光応答が生じる。具体的には、磁化と平行に光を入射した場合、入射方向の反転、または磁化の反転に伴い屈折率や吸収率が変化する現象などがある。特に、吸収に関するものを磁気カイラル二色性 (Magneto-Chiral Dichroism: MChD) と呼ぶ [1]。

MChD は非常に興味深い現象であり、新たな光ディスクや光学素子、測定手段としての応用が期待されている光学効果でありながら、観測された報告例は少ない。本研究では、群論の観点から MChD を示すことが期待される物質である CoTeMoO_6 において、強磁場下における磁気カイラル二色性の観測を試みた。また、磁気特性などとの比較を行うことで MChD のメカニズムの解明につなげたい。

CoTeMoO_6 は斜方晶系の空間群 $P2_12_12$ に属すカイラル磁性体である [2, 3]。結晶構造を Fig. 2(a) に示す。 $T = 24.4 \text{ K}$ において、弱強磁性を伴う反強磁性相転移が起きることが知られている [3, 4, 5]。Fig. 2(b) は磁化の温度および磁化依存性の結果である [5]。 CoTeMoO_6 の磁化には異方性があり、 $B \parallel a$ 軸の場合、0.5 T 程度でヒステリシスを伴う立ち上がりを見せ、0.5 T 以上の領域では磁場に比例するような振る舞いをみせることから、 a 軸方向に弱強磁性成分が存在することがわかる。

このように、 CoTeMoO_6 は磁性を持つカイラルな結晶であることから、MChD を示す可能性があり、本研究で測定を行った。

2 実験方法

本研究で使用した試料は、 c 面の広い、厚み t が $74 \mu\text{m}$ 程度の薄い単結晶である。したがって、 c 軸方向に光を入射し、磁場を印加することで磁気カイラル二色性 (MChD) の観測を行う。近赤外領域において、Co の d-d 遷移の MChD の観測をするために、強磁場を印加して測定を行った。強磁場実験は東京大学物性研究所 (ISSP) 国際超強磁場科学研究施設および、東北大学金属材料研究所 (IMR) 附属強磁場超伝導材料研究センターにて行った。ISSP では非破壊型ロングパルスマグネッ

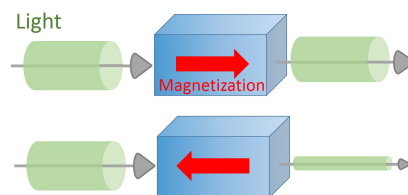


Fig. 1. MChD の模式図。吸収率が入射方向と磁化の向きによって異なる現象。

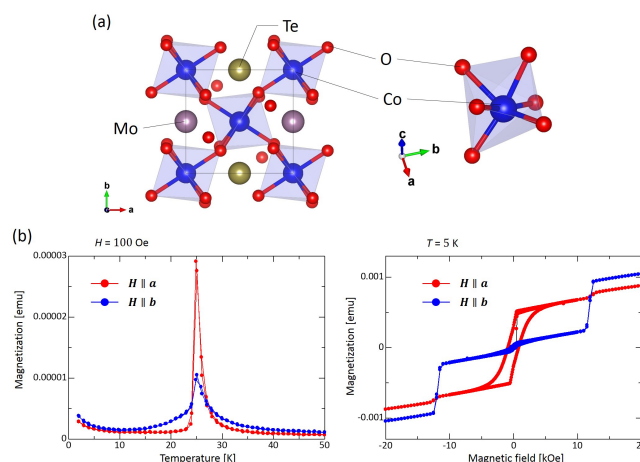


Fig. 2. (a) CoTeMoO_6 の結晶構造。 (b) a 軸と b 軸方向における磁化の温度および磁場依存性 [5]。

ト、IMR では超伝導マグネットを用いて強磁場を印加した。Fig. 3(a) に、強磁場下において MChD 観測を行ったときの試料の配置を示す。 c 軸方向に a 偏光させた光を入射し、光と同じ向きに磁場を印加する Faraday 配置にて測定を行った。本研究では、偏光子 → 試料の順番に光が透過する場合を $+k$ 、試料 → 偏光子の順番の場合を $-k$ とし、偏光子 → 試料の方向に印加される磁場を $+H$ 、逆の方向の場合を $-H$ とする。

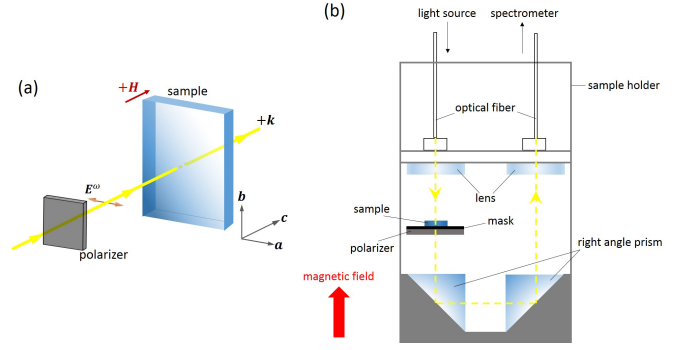


Fig. 3. (a)ISSP および IMR にて行った実験の試料配置。(b)Faraday 配置測定用ホルダーの概略図。[6] から改変して使用。

3 実験結果

Fig. 4(a) に、パルス強磁場下での、吸収スペクトルの磁場依存性を示す。測定は光の入射方向を固定した状態で、磁場を正負に印加して行った。Fig. 4(b) には、台形公式を用いた吸収係数の積分値の磁場依存性を示す。印加磁場の変化に対して系統的な変化をしていることがわかる。 $+k$ の場合、磁場が上昇すると共に α の値が大きくなり、 $-k$ の場合は磁場が上昇すると共に α が小さくなっている。磁場の反転および光の入射方向の反転によって吸収係数が変化していることから、これは MChD であるといえる。

次に、どの程度の大きさの MChD が観測できたのかを考える。そこで、MChD を以下のように定義する。

$$\text{MChD} [\%] \equiv \frac{\alpha t(+H, k) - \alpha t(-H, k)}{\alpha t(0 \text{ T}, k)} \times 100$$

Fig. 3(c) は、 $+k$ および $-k$ での MChD の磁場依存性である。1.4-1.6 eV のエネルギー領域で

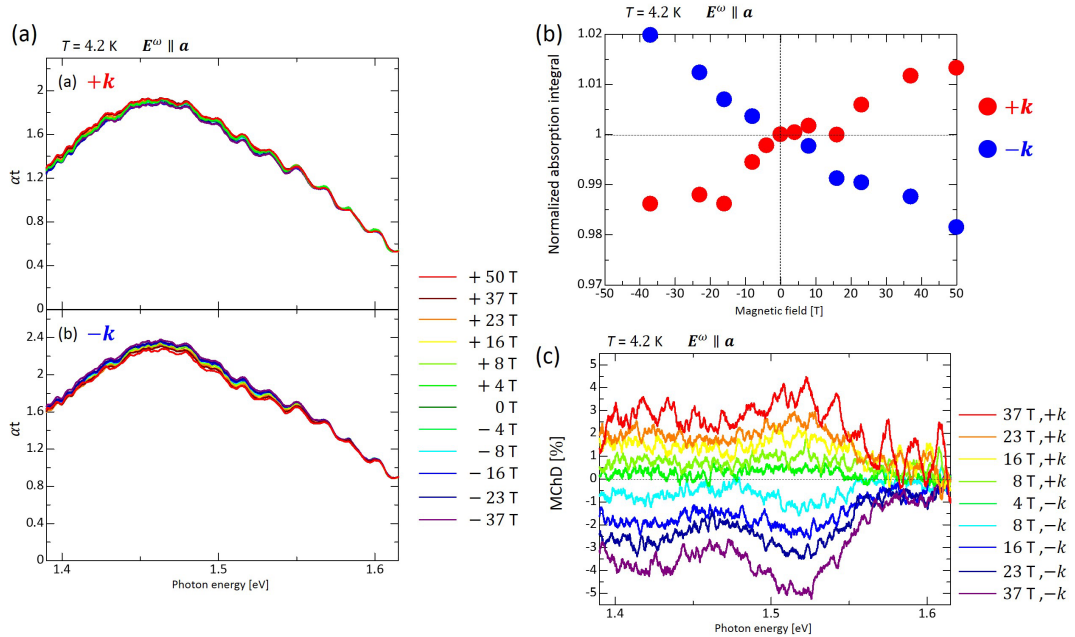


Fig. 4. (a)4.2K における (a) $+k$ および (b) $-k$ の場合の吸収スペクトル測定の磁場依存性。 $E^\omega \parallel a$ 。(b) 台形公式を用いた吸収係数の積分値の磁場依存性。赤丸は $+k$ 、青丸は $-k$ の光に対するものである。(c) $+k$ および $-k$ での MChD の磁場依存性。MChD [%] $\equiv \{(\alpha t(+H, k) - \alpha t(-H, k))/\alpha t(0 \text{ T}, k)\} \times 100$ 。

MChD が生じることがわかる。また、8 T において最大 1.5%、37 T において最大 5% 程度の MChD を示しているが、この大きさは、これまで報告されている MChD の大きさに比べると大きいものである [1, 7]。

東北大学金属材料研究所 (IMR) では、低磁場領域 (最大 18 T) における MChD の温度依存性の詳細を調べた。使用した超伝導マグネットは磁場の印加方向を反転できないため次のような順序で実験を行った。1. 光の向きを $+k$ に固定し磁場を 0 T \rightarrow 18 T と掃引した。2. 光の向きを $-k$ に固定し磁場を 0 T \rightarrow 18 T と掃引した。3. プローブをマグネットから取り出し、試料を反転させることで磁場印加の方向を反転した。光の向きを $+k$ に固定し磁場を 0 T \rightarrow 18 T と掃引した。4. 光の向きを $-k$ に固定し磁場を 0 T \rightarrow 18 T と掃引した。

Fig. 5 に、4.2 K および 40 K における $h\nu = 1.47$ eV の MChD の磁場依存性を示す。磁場に比例して MChD が大きくなるという、パルス強磁場下での結果 (Fig. 3(b)) を再現するような結果が得られた。また、常磁性相 ($T = 40$ K) において、磁気秩序相の場合と同程度の大きさの MChD を観測した。常磁性相における単位磁場あたりの MChD の大きさは、これまで報告されている可視光から近赤外領域における常磁性体の MChD [8] に比べて約 2 倍大きいものである。

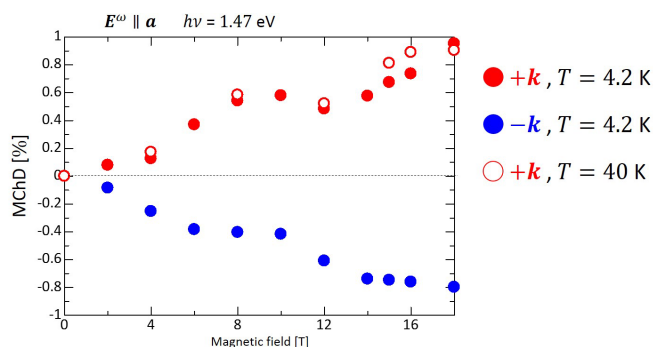


Fig. 5. 4.2 K および 40 K における $h\nu = 1.47$ eV の MChD の磁場依存性。赤丸は ($+k, T = 4.2$ K)、青丸は ($-k, T = 4.2$ K)、中抜きの赤丸は ($+k, T = 40$ K) に対するものである。MChD [%] $\equiv \{(\alpha t(+H, k) - \alpha t(-H, k))/\alpha t(0 \text{ T}, k)\} \times 100$ 。

4 総括

本研究では、強磁場下における CoTeMoO_6 の磁気カイラル二色性の観測を行った。磁気秩序相および常磁性相において大きな MChD を観測した。特に、常磁性相における可視光領域の MChD の大きさは、過去の報告に比べて約 2 倍大きいものである。このことから、 CoTeMoO_6 は室温での大きな MChD が期待される物質である。また、 b 軸および a 軸に光を入射して MChD の観測を試みること、磁気秩序との関連性を調べることは今後の課題である。

参考文献

- [1] G. L. J. A. Rikken, *et al.*, Nature **390**, 493 (1997).
- [2] Y. Laligant, J. Solid State Chem. **160**, 401 (2001).
- [3] Y. Doi, *et al.*, J. Solid State Chem. **182**, 3232 (2009).
- [4] R. Suzuki, *et al.*, Solid State Sci. **12**, 227 (2010).
- [5] Y. Tokunaga, Private communication.
- [6] Y. Sawada, *et al.*, J. Low Temp. Phys. **120**, 424 (2013).
- [7] M. Ceolín, *et al.*, Adv. Mater. **24**, 3120 (2012).
- [8] G. Kopnov, *et al.*, Rev. Sci. Instrum. **85**, 053106 (2014).

発表

日本物理学会 2016 年春季大会 ”強磁場下におけるカイラル磁性体 CoTeMoO_6 の磁気カイラル二色性の観測”