

論文の内容の要旨

Nonreciprocal optics in multiferroic CuB_2O_4
(マルチフェロイック CuB_2O_4 における非相反光学現象)

豊田新悟

19世紀後半、Maxwellが明らかにしたように、光は電場と磁場の波である。これに対応して物質の光学応答は、電場応答と磁場応答によって記述される。従来の光学では、電場応答のほうが圧倒的に大きいことから、磁場応答は等閑視されてきた。ところが近年、光の磁場応答を積極的に利用することによって、本質的に新しい光学現象が生じることがわかってきた。その代表的な例が、空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れたマルチフェロイック物質において生じる電気磁気光学効果である。電気磁気光学効果とは、光の進行方向の反転によって光学応答が変化する非相反な光学現象のことである。特に光吸収が表と裏で変化する現象のことを方向二色性と呼ぶ。2008年にマルチフェロイック物質 CuB_2O_4 において、吸収係数の比が3倍にもなる巨大方向二色性が発見されたことから、近年盛んに研究が行われている。本論文では CuB_2O_4 を対象物質として、方向二色性の原理の解明、方向二色性のさらなる巨大化、および新たな電気磁気光学効果を開拓することを研究目的とした。

方向二色性は電場応答と磁場応答の干渉によって生じる。電場応答と磁場応答が同じ大きさで干渉するとき、物質は一方向にのみ透明になることが期待される（一方向透明現象）。この一方向透明現象が実現すれば、基礎物理学的な観点から興味深いだけでなく、小型の光アイソレータや特殊な窓ガラスなどへの応用が期待される。しかし、方向二色性に関するこれまでの研究は群論による定性的な議論に留まっている。そのため、未だに光学領域における一方向透明化現象は実現されていない。本論文では、結晶場分裂、スピン軌道相互作用、ゼーマンエネルギーを考慮した対角化計算を行うことで、 Cu^{2+} イオンの d 電子波動関数を決定した。計算で得られた波動関数を用いて方向二色性を量子力学的に定式化し、定量的な評価を行った。その結果、強磁場印加および光の進行方向の選択によって電場応答と磁場応答の大きさが制御可能であることを明らかにし、強磁場下において一方向透明現象が生じうることを理論的に予想した。さらにパルス強磁場を用いた光吸収スペクトル測定を行った結果、電場応答と磁場応答が完全に相殺することによる、光の一方向透明化現象の実現に成功した。

以上の成果は、光の吸収過程における非相反性を調べた研究である。発光は吸収の逆過程であるため、電気磁気光学効果は発光過程においても生じる。すなわちある方向への発光と反対方向への発光で強度が変化する。これまで常磁性体においては、発光強度が0.5%程度変化する現象が確認されているが、変化量が小さいことからこの現象は応用には向かないと考えられていた。これに対して本論文では CuB_2O_4 において発光の電気磁気光学効果の測定を行い、発光強度の変化量が70%にも及ぶ巨大な電気磁気光学効果を観測することに成功した。これは、従来常磁性体で報告されていた値の140倍である。さらにこの現象が磁気ドメインイメージングに応用可能なことが、本研究から明らかになった。

以上の吸収・発光強度の非相反性は屈折率の虚部が方向依存することから生じるものである。これに加えて屈折率の実部、すなわち光の速さも方向依存する（方向複屈折）。本論文では、方向複屈折に由来する非相反な屈折現象についても研究を行った。フェルマーの原理に基づくならば、光はあらゆる経路のうち、その所要時間が最小になる経路をたどる。したがってマルチフェロイック物質中では、光の通る経路も進行方向の反転によって変わるはずである。とくに CuB_2O_4 においては、単一ドメインの状態、試料と真空中の界面において行きと帰りで異なる方向に屈折することが予想される（非相反屈折）。本論文では、この現象の観測を目指した。実験的に光の進行方向を反転してずれを計測するのは困難であるため、それと等価である磁場反転による光軸の変位を計測した。実験の結果、磁場反転によって 500 nm の光軸の変位を計測し、非相反屈折現象の観測に成功した。

本論文は全6章から構成される。第1章では電気磁気光学効果の原理・先行研究について概略する。第2章では実験手法を説明する。第3章では方向二色性の定式化および一方向透明現象について取り上げる。第4章では発光の電気磁気光学効果の巨大化について報告する。第5章では非相反屈折現象の観測について説明し、第6章では本論文の総括を行う。以上のように本論文では、マルチフェロイック物質 CuB_2O_4 における電気磁気光学効果を開拓した。これにより、一方向透明現象が実現可能であることが示されただけでなく、本現象を数式によって表現することが可能になった。さらに、発光、屈折過程においても電気磁気光学効果を確認し、磁気ドメイン観察などに応用できることが実証された。以上の成果は、今後の電気磁気光学効果の研究の指針になると考える。