

論文の内容の要旨

論文題目 らせん磁性体のエレクトロマグノンにおける電気磁気光学現象

氏 名 増田 亮二

電気磁気光学現象とは、光の電場成分と磁場成分の相関が生み出す非相反な光学現象である。従来、この現象の報告例は極めて限られており、光学効果としては非常に小さく、物理的な理解も不十分であった。近年、マルチフェロイックと呼ばれる物質群に特有のエレクトロマグノンと呼ばれる素励起が、テラヘルツ帯において巨大な電気磁気光学現象を示すことが明らかになった。本博士論文では、エレクトロマグノンが電気磁気光学現象を示すために磁気構造が満たすべき条件や、らせん磁気秩序によって多彩な電気磁気光学現象が生じることを明らかにし、電気磁気光学現象を利用した、全く新しいテラヘルツ光の外場制御を実現した。近年テラヘルツ帯は様々な観点から注目を集めており、本論文の成果は新しいテラヘルツ光の制御法の基礎原理の開拓という側面も持ち合わせている。

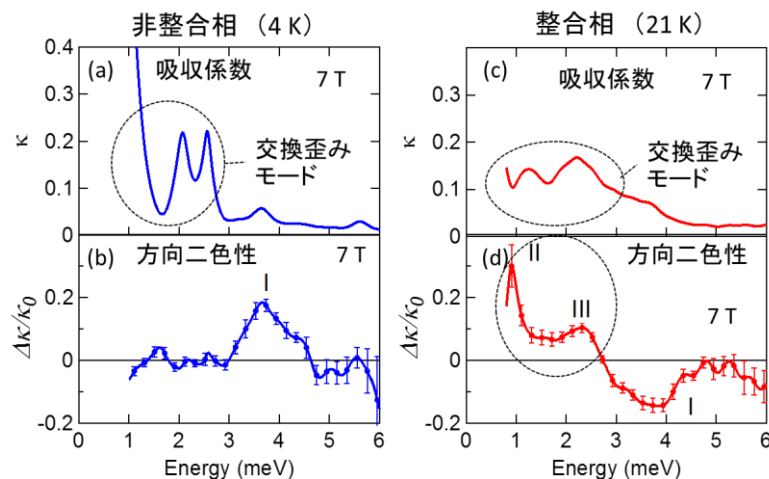
第1章では、本研究で電気磁気光学現象として扱った、方向二色性、旋光性複屈折、自然旋光性の3つの光学現象とその先行研究について述べた後、巨大な電気磁気光学現象が期待されるマルチフェロイックス固有の素励起エレクトロマグノンについて述べた。第2章では、テラヘルツ時間領域分光法による偏光解析により、テラヘルツ帯の誘電率テンソルを実験的に導出する方法について述べた。第3章では、典型的なマルチフェロイック物質である YMn_2O_5 において、磁気波数が格子と整合する相と非整合な相の方向二色性の測定を行い、磁気波数と方向二色性を示すエレクトロマグノンのモードとの相関を明らかにした。第4章では、高温マルチフェロイックとして知られ、カイラルかつ

ポーラーな磁気構造を持つ CuO において、自然旋光性の測定を行い、らせん磁気構造に由来するカイラリティを反映し、エレクトロマグノンが自然旋光性を示すことを実証した。また、CuO の磁気構造由来のカイラリティの符号が電気分極の向きと対応していることを利用し、電場によるカイラリティの制御に成功した。第5章では、カイラルかつポーラーな磁気構造を持つ CuO に外部磁場を印加することにより、すべての電気磁気光学現象をエレクトロマグノン共鳴において観測した。この結果をもとに電気磁気光学効果を包括的に理解することを目標に、定量的な比較、モデル化を行った。以下、各章について概説する。

第3章 YMn₂O₅におけるエレクトロマグノンの非相反方向二色性

エレクトロマグノンは磁気構造由来の分極の動的応答であるが、微視的な起源によりその性質が異なる。例えば、交換歪み機構に由来するモードは、一般に大きな振動子強度を持つが、電気磁気光学現象への寄与が観測された例は非常に少ない。本章ではこの交換歪み機構に由来するモードが電気磁気光学現象を生じるための条件を明らかにすることにより、巨大な電気磁気光学現象の実現のための指針を示すことを目的とした。

代表的なマルチフェロイックの一つである YMn₂O₅ において磁場下でのテラヘルツ分光を行うことにより、電気磁気光学現象の1つである非相反方向二色性の測定を行った。その結果、らせん磁性相の磁気波数が格子と整合する磁気相においてのみ、交換歪み機構に由来するエレクトロマグノンが方向二色性を生じることを観測した(図1)。方向二色性は光の電磁場に対する電気磁気効果であるため、エレクトロマグノンが電場活性かつ磁場活性である必要がある。交換歪み機構に由来するエレクトロマグノンは一般にゾーン端のモードであり、一般的に磁場活性ではない。しかし磁気構造によるゾーンの折り返しを考えると、磁気波数が格子と整合する場合には磁場活性となりうるため、電気磁気活性となることが期待できる。この考察は実験結果を矛盾なく説明する。これらの結果は、交換歪み機構に由来するエレクトロマグノンにおいて広く一般に成り立つと



考えられ、大きな振動子強度を持つ交換歪み由来のモードを電気磁気光学現象に利用するための指針を示したものである。

図1 YMn₂O₅ の非整合相と整合相の(a, c)吸収スペクトルと(b, d)方向二色性のスペクトル。交換歪み機構由来のエレクトロマ

グノン共鳴は両相で観測されているが、整合相でのみ方向二色性を示している (d 図モード II, III)。

第4章 らせん磁性に由来したカイラリティの自然旋光性と電場制御

本章では、らせん磁気構造に由来するカイラリティが、結晶構造や分子構造に由来する従来のカイラリティと同様に自然旋光性を示すことを実証すること、および磁気構造由来のカイラリティの外場による符号反転を実現することを目的とした。本章の前半では、カイラルかつポーラーな磁気構造を持つ CuO について、テラヘルツ時間領域分光法による偏光解析を行い、エレクトロマグノン共鳴が自然旋光性を生じていることを明らかにした。また、自然旋光性の詳細な温度依存性の測定により、観測された自然旋光性がらせん磁気構造に起因することを明らかにした。本章の後半では、試料にパルス状の電場を印加した際の偏光回転角を測定することにより、カイラリティと電気分極の符号が一对一に対応しているカイラルかつポーラーな磁気構造において、電場によるカイラリティの反転が可能であることを、自然旋光性により直接観測した (図2)。これは、電場によるテラヘルツ光の偏光制御を可能にする新しい手法であり、エレクトロマグノン共鳴を利用したテラヘルツ光の外場制御の可能性を示した。

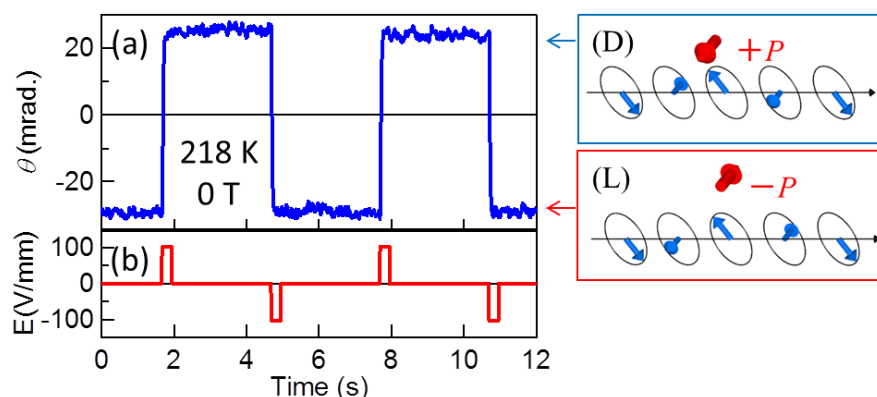
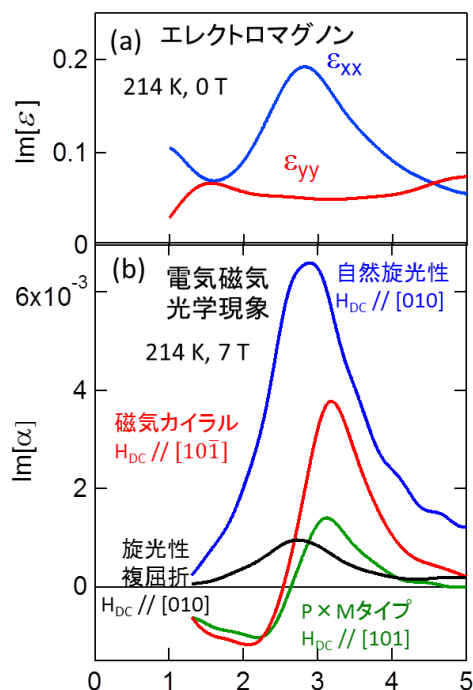


図2 CuO の自然旋光性による(a)偏光回転角と(b)試料に印加した外部電場の時間変化。100 V/mm の電場パルスの印加により試料のらせん磁気構造の巻き方 (カイラリティ) が反転し、自然旋光性による偏光回転角が反転している。

第5章 らせん磁性体におけるエレクトロマグノンの電気磁気光学現象の包括的研究

これまで、4種類の電気磁気光学現象 (非相反方向二色性、磁気カイラル効果、旋光性複屈折、自然旋光性) の観測は、それぞれ異なる物質において行われてきたが、カイラルかつポーラーな磁気構造を持つ CuO では、外部磁場の印加方向を変えることにより、すべての電気磁気光学現象が許容となる。本章では、カイラルかつポーラーな磁気構造がすべての電気磁気光学現象を示すことを実証し、これら4つの光学現象について統一的な理解を得ることを目的とした。本章の第1節では、磁場がテラヘルツ光の伝

播方向と平行な配置においてテラヘルツ分光を行い、エレクトロマグノンが磁気カイラル効果を示すことを観測した。また、電場によるカイラリティの反転が可能なことを利用し、電場による磁気カイラル効果の制御に成功した。第2節では、磁場、テラ



ヘルツ光の伝播方向、分極がすべて直交する配置においてテラヘルツ分光を行い、エレクトロマグノンが非相反方向二色性を示すことを観測した。第3節では、磁場が分極と平行な配置においてテラヘルツ分光による偏光解析を行い、エレクトロマグノンが旋光性複屈折を示すことを観測した。第4節では、本章と前章で観測された、CuOにおける各種電気磁気光学現象について比較を行い（図3）、磁気カイラル効果と非相反タイプ方向二色性が同一の機構により定量的に解釈することが可能であることを示し、旋光性複屈折と自然旋光性のスペクトルの類似性についての考察を行った。また、エレクトロマグノンが旋光性複屈折と自然旋光性を示すことを説明するモデルを提案した。

図3 CuOのエレクトロマグノン共鳴における(a)吸収スペクトルと(b)各種電気磁気光学現象を生じる電気磁気テンソル成分のスペクトル。

第6章 結論

本博士論文では、らせん磁性体のエレクトロマグノンが示す電気磁気光学現象について調べ、以下のような知見を得た。

- ①典型的なマルチフェロイックである $Y\text{Mn}_2\text{O}_5$ において、磁気波数と電気磁気光学現象の相関を調べた。その結果、交換歪み機構由来のエレクトロマグノンが、磁気波数が格子と整合する磁気相でのみ $P \times M$ タイプ方向二色性を示すことを観測した。
- ②カイラルかつポーラーな磁気構造を持つ CuO において、磁気構造に由来するカイラリティを反映し、エレクトロマグノンが自然旋光性を示すことを観測した。また、カイラリティと電気分極の対応関係を利用し、電場によるカイラリティの反転を実現した。
- ③カイラルかつポーラーな磁気構造を持つ CuO において、エレクトロマグノンが非相反方向二色性、磁気カイラル効果、旋光性複屈折、自然旋光性のすべての電気磁気光学現象を示すことを観測した。また、観測された各種電気磁気光学現象を比較し、磁性由来の電気分極の動的なモデルによりエレクトロマグノンの電気磁気光学現象を説明するモデルを提案した。