

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 1 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24244045

研究課題名(和文) マルチフェロイク物質における光に対するローレンツ力の実験的検証

研究課題名(英文) Lorentz force on light propagating in multiferroics

研究代表者

有馬 孝尚 (Arima, Taka-hisa)

東京大学・新領域創成科学研究科・教授

研究者番号：90232066

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 22,100,000円

研究成果の概要(和文)：磁性と強誘電性を併せ持つマルチフェロイク物質では、光の屈折率が光の進行方向の反転によって変化する現象が観測されている。この現象を応用すると、光に対して擬似的なローレンツ力を与えることが可能になることが予測されている。本研究では、メタホウ酸銅という物質を対象として上記の理論予測に基づいた実験的な研究を行い、磁性強誘電体となる温度領域において実際にローレンツ力が働いていることを検証した。この効果は、光の伝搬方向の磁気的な制御に新たな可能性を与える。また、メタホウ酸銅に強磁場を印加することで方向二色性が増大し、一方向透明現象が出現することを突き止めた。

研究成果の概要(英文)：A difference in refractive index with the reversal of the propagation vector of light, termed directional birefringence, is observed in some multiferroics. It was predicted that this phenomenon may act on a photon as the Lorentz force on an electron. An experimental study is performed on multiferroic copper metaborate to confirm the presence of the Lorentz force on a photon. In order to enlarge the Lorentz force, the directional dichroism/birefringence must be enhanced. It has been discovered that the application of a high magnetic field on copper metaborate enhances the directional dichroism and results in the one-way transparency.

研究分野：物質科学

キーワード：方向二色性 電気磁気効果 光のローレンツ力 メタホウ酸銅 蜂の巣格子

1. 研究開始当初の背景

21世紀に入り、電気磁気効果を示す磁性体(マルチフェロイク物質)に関する集中的な研究が行われた。これらの物質では、電気と磁気の結合だけでなく、特異な光応答も見いだされている。例えば、光の伝搬方向を反転することにより、光の吸収や屈折率が変化する。これらは、それぞれ、方向二色性や方向複屈折と呼ばれている。我々のグループは、メタホウ酸  $\text{CuB}_2\text{O}_4$  において巨大な方向二色性と方向複屈折(図1)を見出すことに成功している([1,2,3])。

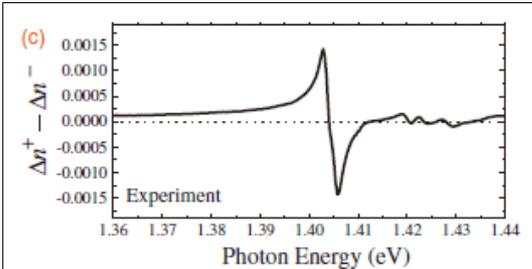


図1:  $\text{CuB}_2\text{O}_4$  における方向複屈折。文献[3]より引用。

2005年に澤田と永長は方向複屈折に由来する現象として、光に対するローレンツ力が生じると予測した(図2)[4]。彼らは、方向複屈折を表現する物理量として、変位とスピンモーメントのベクトル積で定義されるトロイダルモーメントの空間平均  $\mathbf{T}$  を考慮した。その結果、光子の運動に対して、トロイダル  $\mathbf{T}$  は、ベクトルポテンシャル  $\mathbf{A}$  と同等な働きを持つことを明らかにした。このことから、トロイダルモーメントの空間回転( $\text{rot}\mathbf{T}$ )が生じるようなドメイン壁において、光が伝搬方向と垂直に力を受けて曲がることを予測した。しかしながら、この現象は実験的に確認されていなかった。

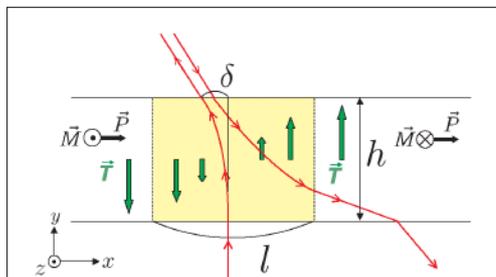


図2: 強トロイダル物質のドメイン壁における光に対するローレンツ力の模式図。文献[4]より引用。

2. 研究の目的

本研究の目的は、マルチフェロイク物質中を伝搬する光に対して、澤田らの予測通り、ロ

ーレンツ力が働くのかどうかを実験的に検証することである。

3. 研究の方法

光に対するローレンツ力を検証するために、二つの方法をとる。一つ目の方法は、澤田らが提唱したのと同じであり、トロイダル  $\mathbf{T}$  の180度ドメイン壁付近を伝搬する光が曲がるかどうかを検証することである。透過電子顕微鏡を用いて、高速の電子線が磁化から受けるローレンツ力を見る方法は「ローレンツ顕微鏡法」としてよく知られている。これと同じ方法が光に対するローレンツ力の計測にも応用できるはずである。すなわち、図3に示すように、180度ドメイン壁を伴う多ドメイン状態にある試料を用意して、そこに光線を照射する。試料を透過した光が曲がると、試料の前後で、光の粗密の像が現れる。したがって、焦点をずらして試料を撮像することで、その光が試料中を伝搬した時に受ける屈曲を判別することができる。

この効果を検出するために構築した光学系を、

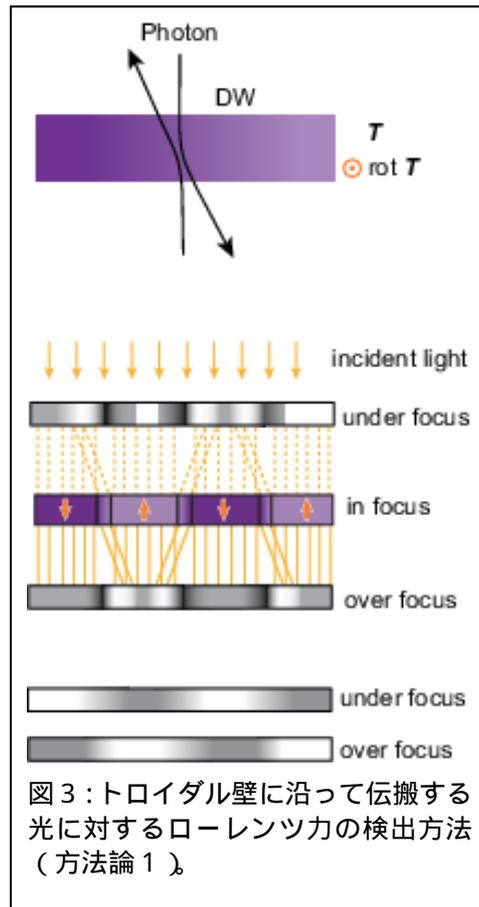
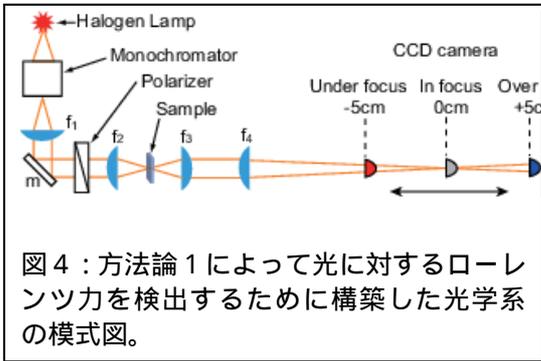
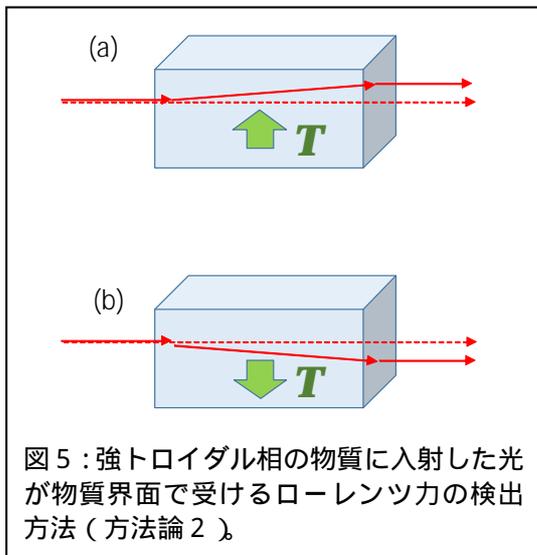


図3: トロイダル壁に沿って伝搬する光に対するローレンツ力の検出方法(方法論1)。

図4に模式的に示す。分光器で単色化された光を試料に入射し、透過光をレンズで集光する。この際、試料の実像の位置から±5cmだけ前後にずらした位置に CCD 検出器を設置して像を撮影した。

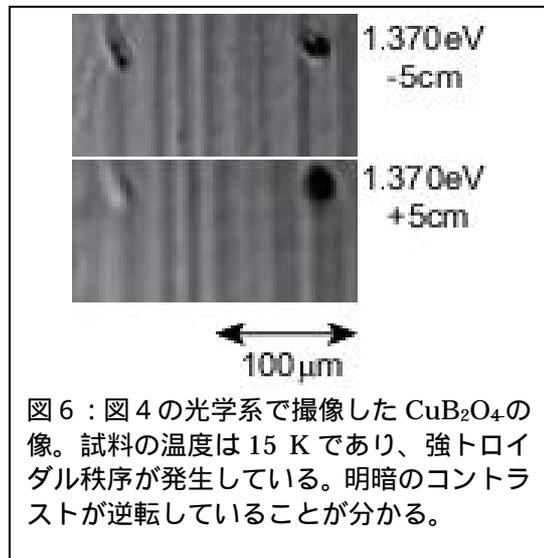


二つ目の方法は、物質の  $\mathbf{T}$  と垂直に入射した光が界面で曲がるかどうかを検証することである。単ドメイン状態の試料を用意して、 $\mathbf{T}$  を含む平面から光を入射させて、逆側の平行な平面から出射させる。光が試料に入る界面でローレンツ力を受けると、試料内の光線の軌跡は少し斜めになるため、出射位置がずれることが期待できる(図5)。光の出射位置を精密に測定し、さらに、図5 (a), (b)に示すようにトロイダルモーメントを反転させた状態で結果を比較することで、光のローレンツ力を観測することが可能となる。



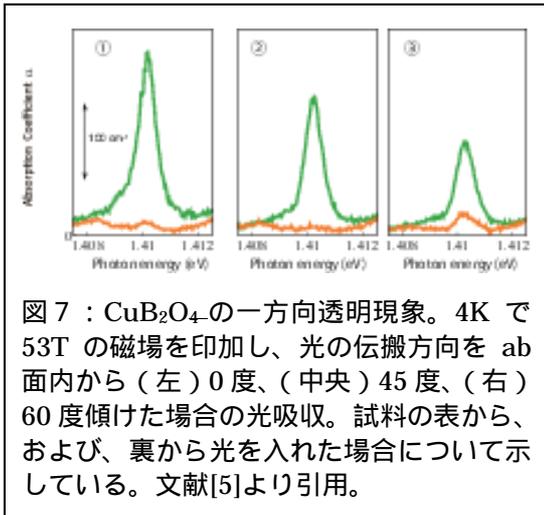
#### 4. 研究成果

近赤外領域で大きな方向複屈折を示すマルチフェロイク物質  $\text{CuB}_2\text{O}_4$  を対象として、光のローレンツ力の検証を試みた。 $\text{CuB}_2\text{O}_4$  の傾角反強磁性相においては、磁化が[110]を向いた領域では、トロイダル  $\mathbf{T}$  が[1-10]方向を向き、磁化が[100]や[010]を向いた領域では、トロイダル  $\mathbf{T}$  は磁化と平行、あるいは、反平行になることが知られている。そこで、「3. 研究の方法」の項で記述した方法論1に対応するように、トロイダル  $\mathbf{T}$  が[1-10]および[-110]を交互に向いた180度ドメイン状態を実現させ、[1-10]方向に進んだ光の屈曲を見ることにした。その結果、図6に示す通り、試料の像を焦点距離より手前、あるいは奥で撮像した場合に明暗コントラストが観測できた。また、二つの像で明暗が逆転しており、



光がまっすぐ進んでいないことが分かる。すなわち、光に対するローレンツ力が検出できていると言える。

つぎに、方法論2として、単ドメイン状態にあるメタホウ酸銅のc面から光を入射し、対向するc面を出る位置を精度よく調べた。その結果、トロイダルモーメントの反転に伴って、出射位置が変化する様子が観測された。この結果も、光に対するローレンツ力が実在することを示している。ただし、再現性については、引き続き厳格に調べている。



光に対するローレンツ力を増強するためには、方向複屈折を大きくする必要がある。そのための基礎研究として、方向二色性が外部磁場の増加に対してどのような依存性を示すのかを調べた。その結果から、銅サイトにおける3d軌道と4p軌道の混成等の物質パラメータを解析した。得られたパラメータから、方向二色性を増強する方策が明らかになり、それを実証するための実験を行った。具体的には、50テスラを超える磁場を[1 -1 0]方向に印加したうえで、光の伝搬方向をc軸の方向に45度程度傾けることによって、片方に伝搬する光の吸収をほぼゼロにすることができた(図7中央)[5]。すなわち、一方向透明

現象である。

さらには、メタホウ酸銅からの発光スペクトルの方向依存性を調べた結果、最大で70%にも及ぶ大きな方向非対称性を有することを明らかにした[6]。

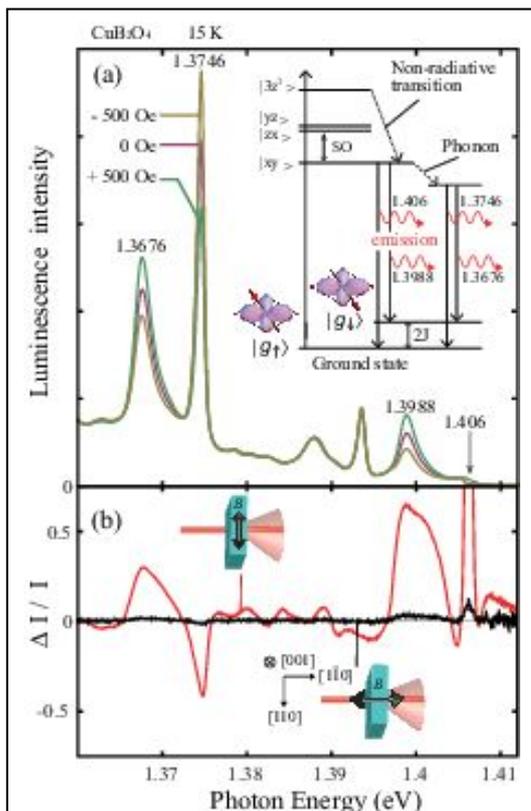


図8：15Kにおけるメタホウ酸銅の(上)発光スペクトルの磁場依存性と、それから計算された(下)方向非対称性。インセットは、方向非対称性を説明するための電子準位モデル。文献[6]より引用。

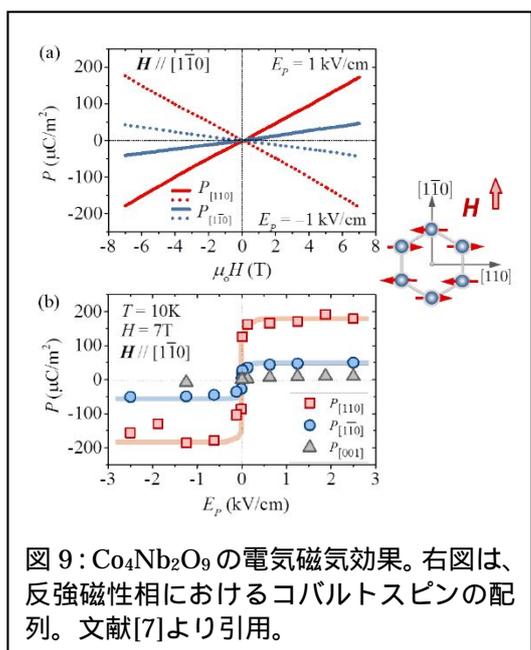


図9：Co<sub>4</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>9</sub>の電気磁気効果。右図は、反強磁性相におけるコバルトスピンの配列。文献[7]より引用。

これらと並行する形で、光のローレンツ力の舞台となりうるCuB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>以外のマルチフェロイク物質を探索した。その結果、Co<sub>4</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>9</sub>という物質が、強トロイダル秩序と同等の非対角な線形電気磁気効果を示すことを発見した(図9)[7]。この物質は菱面体晶に属し、磁性を有するコバルトイオンが蜂の巣状に並んだ二次元ネットワークを形成し、それが、位相を変えながらc軸に積層している。この蜂の巣ネットワークの上では、スピンの積層軸と直交する向きで単純な反強磁性秩序をとるだけで、トロイダル秩序を生み出すと考えられる。このようなネットワーク構造を有する反強磁性体は数多く存在するので、これらの物質においても、光の方向複屈折とローレンツ力の発現が期待される。

<引用文献>

- [1] M. Saito, K. Taniguchi, T. Arima, J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 013705 (2008).
- [2] M. Saito, K. Ishikawa, K. Taniguchi, T. Arima, Phys. Rev. Lett. **101**, 117402 (2008).
- [3] M. Saito, K. Ishikawa, K. Taniguchi, T. Arima, Appl. Phys. Express **1**, 121302 (2008).
- [4] K. Sawada and N. Nagaosa, Phys. Rev. Lett. **95**, 237402 (2005).
- [5] S. Toyoda, N. Abe, S. Kimura, Y. H. Matsuda, T. Nomura, A. Ikeda, S. Takeyama, T. Arima, Phys. Rev. Lett. **115**, 267207 (2015).
- [6] S. Toyoda, N. Abe, T. Arima, Phys. Rev. B **93**, 201109(R) (2016).
- [7] N. D. Khanh, N. Abe, H. Sagayama, A. Nakao, T. Hanashima, R. Kiyonagi, Y. Tokunaga, T. Arima, Phys. Rev. B **93**, 075117 (2016).

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計7件)すべて査読有。

1. “Gigantic directional asymmetry of luminescence in multiferroic CuB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>”, S. Toyoda, N. Abe, T. Arima, Phys. Rev. B **93**, (No. 20) 201109(R)/1-5 (2016)  
DOI:10.1103/PhysRevB.93.201109.
2. “Magnetoelectric coupling in the honeycomb antiferromagnet Co<sub>4</sub>Nb<sub>2</sub>O<sub>9</sub>”, N. D. Khanh, N. Abe, H. Sagayama, A. Nakao, T. Hanashima, R. Kiyonagi, Y. Tokunaga, T. Arima, Phys. Rev. B **93**, (No.7) 075117/1-6 (2016)  
DOI:10.1103/PhysRevB.93.075117.
3. “One-Way Transparency of Light in Multiferroic CuB<sub>2</sub>O<sub>4</sub>”, S. Toyoda, N. Abe, S. Kimura, Y. H. Matsuda, T. Nomura, A.

- Ikeda, S. Takeyama, T. Arima, Phys. Rev. Lett. **115**, (No.26) 267207/1-5 (2015). DOI:10.1103/PhysRevLett.115.267207.
4. “Large magnetochromism in multiferroic  $MnWO_4$ ”, S. Toyoda, N. Abe, T. Arima, S. Kimura, Phys. Rev. B **91**, (No.5) 054417/1-4 (2015). DOI:10.1103/PhysRevB.91.054417.
  5. “Ferroelectricity driven by charge ordering in the A-site ordered perovskite manganite  $SrBaMn_2O_6$ ”, H. Sagayama, S. Toyoda, K. Sugimoto, Y. Maeda, S. Yamada, T. Arima, Phys. Rev. B **90**, (No.24) 241113R/1-4 (2014). DOI:10.1103/PhysRevB.90.241113.
  6. “Magnetic-field-induced spin flop transition and magnetoelectric effect in  $Ca_2Fe_{2-x}Al_xO_5$ ”, N. Abe, N. D. Khanh, T. Sasaki, T. Arima, Phys. Rev. B **89**, (No.5) 054437/1-4 (2014). DOI:10.1103/PhysRevB.89.054437.
  7. “Magnetic control of electric polarization in the noncentrosymmetric compound  $(Cu,Ni)B_2O_4$ ”, N. D. Khanh, N. Abe, K. Kubo, M. Akaki, M. Tokunaga, T. Sasaki, T. Arima, Phys. Rev. B **87**, (No.18) 184416/1-5 (2013). DOI:10.1103/PhysRevB.87.184416.

〔学会発表〕(計7件)

1. “‘One-way transparency of light’ in multiferroic  $CuB_2O_4$ ”, S. Toyoda, N. Abe, S. Kimura, Y. Matsuda, T. Nomura, A. Ikeda, S. Takeyama, T. Arima, International Conference on Magnetism 2015, Barcelona (Spain), 2015/7/7.
2. “Magneto-Electric Coupling in a Buckled-Honeycomb Antiferromagnet”, T. Arima, Workshop on Topological Magnet, 理化学研究所和光事業所 (埼玉県和光市), 2015/5/25.
3. “Ferroic Spin Order”, T. Arima, International Research Symposium on Chiral Magnetism 2014, JMS アステールプラザ(広島県広島市), 2014/12/8.
4. “On directional dichroism in  $CuB_2O_4$ ”, T. Arima, 13th Bilateral German-Japanese Symposium, Miesbach (Germany), 2014/7/14.
5. “Microscopic Mechanism of Giant Non-reciprocal Directional Dichroism in  $CuB_2O_4$ ”, S. Toyoda, N. Abe, S. Kimura, T. Arima, APS March Meeting 2014, Denver (USA), 2014/3/4.
6. “Magnetic control of electric polarization in  $(Cu,Ni)B_2O_4$ ”, N. D. Khanh, N. Abe, M. Akaki, M. Tokunaga, K. Kubo, T. Sasaki, T. Arima, APS March Meeting 2014, Denver (USA), 2014/3/3.
7. “Magnetically induced polarization in

Copper metaborate  $CuB_2O_4$ ”, K. D. Nguyen, N. Abe, M. Tokunaga, M. Saito, K. Kubo, T. Arima, The 19th International Conference on Magnetism, Busan (South Korea), 2012/7/10.

〔図書〕(計1件)

1. 有馬 孝尚, 共立出版、マルチフェロイクス、2014、145

6. 研究組織

(1) 研究代表者

有馬 孝尚 (ARIMA Taka-hisa)

東京大学・大学院新領域創成科学研究科・教授

研究者番号：90232066