

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 7 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2012～2013

課題番号：24840012

研究課題名(和文) マルチフェロイックに現れるエレクトロマグノンの巨大な電気磁気光学応答の研究

研究課題名(英文) Gigantic magnetoelectric resonance with electromagnons in multiferroics

研究代表者

高橋 陽太郎 (Takahashi, Youtarou)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・講師

研究者番号：30631676

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,300,000円、(間接経費) 690,000円

研究成果の概要(和文)：本課題ではマルチフェロイックと呼ばれる磁性と誘電性が強く結合した物質に置いて現れる新しいスピン波であるエレクトロマグノンに関する研究を行った。サイクロイド型磁気秩序を持つ磁性体においてエレクトロマグノンとその電気磁気光学効果を磁場で制御することで、20倍以上の強度の増強に成功した。さらに、スクリュウ型磁気秩序に由来したエレクトロマグノンの磁気カイラル効果の実現にも成功し、テラヘルツ帯での巨大な方向2色性を観測した。

研究成果の概要(英文)：We investigated a novel spinwave excitation, termed electromagnon, in the multiferroics, in which the magnetism and ferroelectricity are strongly coupled with each other. We demonstrated an enhancement of the electromagnon and their optical magnetoelectric effect 20 times as large as previous one on the cycloidal magnet by using the external magnetic field. We also succeeded in observing the magneto-chiral effect on electromagnon resonance driven by the screw spin structure, leading to the gigantic dichroism in the terahertz region.

研究分野：数物系化学

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：強相関電子系 物性実験 光物性

1. 研究開始当初の背景

近年マルチフェロイックとして、磁性に由来した強誘電性と、それに伴う巨大な電気磁気結合効果が大きな注目を集めている。このような物質の電気磁気結合効果は光学応答を含む動的な過程にも拡張することができる。この中で最も重要な例が、エレクトロマグノンと呼ばれる誘電応答を示すスピン波(マグノン)である。これは、マルチフェロイックが磁性に強誘電性を示すのを反映して、磁気秩序の揺らぎであるスピン波が大きな誘電応答ことに由来したもので、マルチフェロイックにおける最も基礎的な動的性質であると言える。基底状態における電気磁気結合効果が直接反映したエレクトロマグノンが実際に観測され、電気磁気光学効果と呼ばれる新奇光学現象が実際に2011年に観測された。

2. 研究の目的

代表的なマルチフェロイックであるサイクロイド型磁性体において、その動的応答としてエレクトロマグノンが存在することが明らかになっていた。そして、そのエレクトロマグノンが一般的に共鳴において電気磁気光学効果と呼ばれる新奇な性質を示すことも示唆されていた。しかし、その強度は電気磁気光学効果としては非常に巨大であるが、新しい展開や応用を考えた時には、まだ不十分であり、エレクトロマグノンの種類に関してもサイクロイド磁性体はその唯一の例であったことから、次の2点を目的とした研究を行った。

(1)エレクトロマグノンにおける外場・光学応答・物質中の環境など様々な特性を明らかにすることで、巨大応答への指針を明らかにし、それを実現する。

(2)新しいエレクトロマグノンの電気磁気光学効果として、スクリュウ型磁性体での磁気カイラル効果の実現を目指す。

3. 研究の方法

本研究で対象とするエレクトロマグノンは、スピンは励起であるために、その共鳴が数ギガヘルツからテラヘルツ領域に存在する。この応答を観測するために、高精度で物質の光学応答が観測可能なテラヘルツ時間領域電磁波分光法を用いた測定を行った。

また、物質の電気磁気特性を制御するためには電場・磁場下でのテラヘルツ分光測定が必要である。このため、超電導マグネットを用いた測定系を立ち上げ、電場印加が可能なホルダーを作成し測定を行った。

対象としたのはサイクロイド型とスクリュウ型の磁気構造であるが、共鳴条件、電気磁気特性から分光測定に適した試料を選び、テラヘルツ分光測定を行った。エレクトロマグノンの増強に関しては、代表的なマルチフェロイック物質であるペロブスカイト型のマンガン酸化物のらせん磁性相を用いた。一方、スクリュウ型磁気秩序に由来した磁気カ

イラル効果の観測には、デラフォサイト型のCuFeO₂を用いた。

4. 研究成果

(1)エレクトロマグノンの微視的なメカニズムとして、交換歪に由来するものやスピン流によるものなど複数の機構の存在が知られている。しかし、電気磁気光学効果という観点で見ると、らせん磁性体において強誘電分極の起源となっているスピン流機構のみが有効である。これは、磁気応答成分と電場応答成分が常に一樣な磁場・電場によって励起可能なためである。一方交換歪に由来したエレクトロマグノンでは、一樣な電場によりスピン波が励起されるが、スピン波の波数は格子に整合しているため、有限の波数を持ってしまい、一樣な磁場成分での励起が不可能である。

このことから、本研究ではスピン流機構に由来したエレクトロマグノンの電気磁気光学応答に着目した研究を行った。ここで重要なのはエレクトロマグノンの共鳴が電場応答(ϵ)を示すという点である。磁気共鳴を除いた光学応答を示す励起はほとんどが光の電場成分に対する応答に由来している。このため、エレクトロマグノンとの間に有限のカップリングが生じ、振動子強度の移動によって共鳴が増強される可能性を探った。

ここで今回カップリングの相手として用いたのがマンガン酸化物で観測されている交換歪に由来するエレクトロマグノンである。この交換歪モードは振動分極(偏光)が常に結晶の特定の軸に向いており、電場応答のみを示すという特徴がある。しかし、結晶の歪に由来するモードであるために、元来その振動強度が大きい。一方でスピン流に由来するエレクトロマグノンでは、振動分極(偏光)が磁気秩序(サイクロイド面)に依存しており、外部磁場や温度によりサイクロイド面を回転させることにより、その偏光方向が変わる。この特性を利用してカップリングの必要条件を満たすために交換歪とスピン流に起因したエレクトロマグノンの偏光をそろえ、マンガン酸化物においてエレクトロマグノンのスペクトルの観測を行った。この結果が図1であるが、1 meV 付近にある巨大なピークがスピン流に由来したエレクト

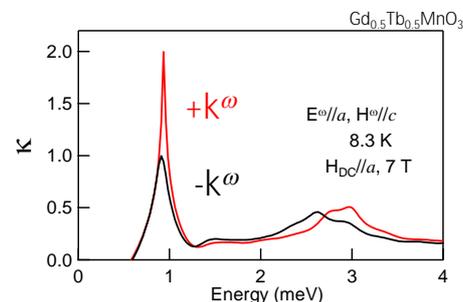


図1: エレクトロマグのと方向2色性のスペクトル(+k ω , -k ω)

ロマグノンであり、高エネルギー側にあるブロードな吸収帯が交換歪に由来したエレクトロマグノンである。両者のカップリングがない場合には、スピン流由来のモードの強度は屈折率虚部で $\kappa \sim 0.03$ 程度であったが、交換歪モードからの振動子強度の移動により $\kappa \sim 2$ と2ケタ以上の著しい強度の増大が観測された。これは、エレクトロマグノンの電場応答成分を用いたカップリングによる増強が有効な手段であることを示しており、将来的にはフォノン、伝導電子、結晶場励起など低エネルギー励起を用いることも考えられる。

この増強されたスピン流由来のエレクトロマグノンにおいて、電気磁気光学効果の観測を試みた。電気磁気光学効果は空間反転対称性の破れ(分極 P)と時間反転対称性(M)が同時に破れたときにおこる効果であり、光の伝搬ベクトルの反転によって光学応答が変化する方向2色性として観測される。方向2色性のスペクトル(図1)を見ると、光の進行方向($\pm k^0$)に応じて、1 meVにあるスピン流モードの強度が大きく変化していることがわかる。電気磁気光学効果のスペクトル(図2)である $\Delta\kappa$ を見ると、最大で ~ 1 程度の変化を示しており非常に巨大な方向2色性が実現していることがわかる。この値はこれまで観測された、近赤外、可視やX線領域などあらゆる波長での電気磁気光学効果よりも一桁以上大きいものである。

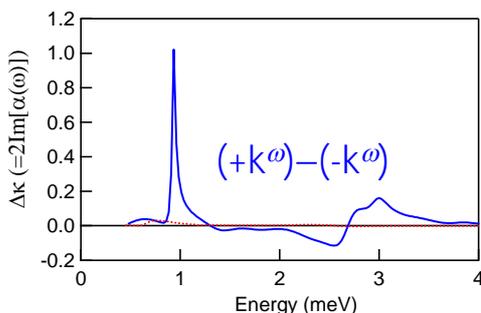


図2：電気磁気光学効果のスペクトル

$$\Delta\kappa = \kappa(+k^0) - \kappa(-k^0)$$

(2) 磁気カイラル効果は磁性とキラリティが物質中で共存した時に起こる電気磁気光学効果であり、方向2色性として観測される。これまで観測されてきた磁気カイラル効果はキラリな結晶構造、もしくは結晶構造の対象性とスピンを組み合わせることで誘起されるキラリティを用いていた。しかし、本研究では結晶の対称性に依存せず、らせん型のスピン構造が磁性とキラリティを誘起することで起こる、エレクトロマグノンの磁気カイラル効果の観測を目指した。

本研究ではプロバースクリュー型の磁気構造を持つ物質であるデラフォライト型 $\text{CuGa}_x\text{Fe}_{1-x}\text{O}_2$ ($x=0.035$) を対象として、磁場下

でのテラヘルツ分光を行った。スクリュー磁気構造は左巻きと右巻きらせんの自由度を持ち、更に結晶構造に由来したらせん軸がc軸に垂直に3本存在する。磁場・電場下での冷却により、らせんスピンの巻き方(キラリティ)とらせん軸の制御し、シングルドメインの磁気構造を準備した。この状態でらせん軸(q_m)、光の伝搬ベクトル(k^0)、磁場(H)の方向を平行に配置し、0.8 meV から 4 meV でのテラヘルツ時間領域分光を行った。

この結果磁場中でのみ 1 meV から 1.3 meV で共鳴を観測し、磁場の反転、もしくは、らせんスピンの巻き方(ヘリシティ)の反転により共鳴の強度が大きく反転することを観測した。これは、磁気カイラル効果での対称性に由来する光学応答の符号の反転と一致しており、スピン波の共鳴において巨大な磁気カイラル効果が存在することを意味している。温度による相図との対応から、らせん磁性相においてのみ、磁気カイラル効果が観測されることを確認した。この結果は、らせん型スピン構造において、スピン流を介したモデルによる電気磁気光学効果の振る舞いとも一致している。電気磁気光学効果により共鳴の強度は $H=7$ T で、 $\kappa=0.4$ から $\kappa=0.1$ まで変化した。また、磁場の強度とともに、共鳴と電気磁気光学効果が単調に増加する様子を観測した。

これらの結果はらせんスピン構造の磁気共鳴が非常に巨大な電気磁気共鳴であることを示しており、らせん磁性とそこに現れる新奇な光学現象の一般的な性質を明らかにすることに成功した。

以上の研究は、エレクトロマグノンが誘起する電気磁気共鳴の特性の解明と巨大応答の実現、また、新しい機構(磁気カイラル効果)による電気磁気光学効果の発現といった本課題の当初の目的を十分に達成している。本研究で得られた結果は、更なる展開につながる重要な点を多く含んでいる。エレクトロマグノンはそれ自身が基底状態の磁気秩序の揺らぎである。巨大共鳴と近年開発が進んでいる高強度テラヘルツを組み合わせることにより、テラヘルツ光による磁性、誘電性、キラリティの制御が可能になると期待している。また、電気磁気共鳴はその共鳴の強度を増強させることで、負の屈折率を誘起することが理論的に示されている。本研究で得られた結果は屈折率で1程度の大きさであるが、これを数倍巨大化することで、バルクの絶縁体においても負の屈折率が可能となる。また、近年マルチフェロイック物質の開拓が著しく、室温でのらせん磁性体も合成されている。これによる方向2色性を用いたギガヘルツ・テラヘルツ帯のアイソレーターなど、応用も含めた展開も期待される。

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 4 件)

K. Ueda, J. Fujioka, Y. Takahashi, T. Suzuki, S. Ishiwata, Y. Taguchi, and Y. Tokura

"Variation of Charge Dynamics in the Course of Metal-Insulator Transition for Pyrochlore-Type $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ "

Phys. Rev. Lett.109.136402 (2012)

査読あり

DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.136402>

Y. Takahashi, Y. Yamasaki, and Y. Tokura

" Terahertz Magnetolectric Resonance Enhanced by Mutual Coupling of Electromagnons"

Phys. Rev. Lett.111.037204 (2013)

査読あり

DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.037204>

Y. Takahashi, S. Chakraverty, M. Kawasaki, H. Y. Hwang, and Y. Tokura

" In-plane terahertz response of thin film Sr_2RuO_4 "

Phys. Rev. B89, 165116(2014)

査読あり

DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.89.165116>

K. Ueda, J. Fujioka, Y. Takahashi, T. Suzuki, S. Ishiwata, Y. Taguchi, M. Kawasaki, and Y. Tokura

"Anomalous domain-wall conductance in Pyrochlore-type $\text{Nd}_2\text{Ir}_2\text{O}_7$ on the verge of metal-insulator transition"

Phys. Rev. B89, 075127(2014)

査読あり

DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.89.075127>

〔学会発表〕(計 6 件)

Y. Takahashi " Terahertz magnetolectric resonance with electromagnons in multiferroic materials". International symposium on Spin wave, 13/6/2013, St. Petersburg, Russia

高橋陽太郎 「エレクトロマグノンにおける巨大な電気磁気共鳴の研究」 日本物理学会 2014年春季大会 2014年3月

28日 東海大学、神奈川県

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称: 電磁波の透過率制御方法、電磁波の透過率制御デバイス

発明者: 高橋陽太郎、木林駿介、関真一郎、十倉好紀

権利者: 同上

種類: 特許

番号: 2013-257354

出願年月日: 2013年12月12日

国内外の別: 国内

取得状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年月日:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

http://www.qpec.t.u-tokyo.ac.jp/takahashi_lab/index.html

6. 研究組織

(1)研究代表者

高橋 陽太郎 (Youtarou Takahashi)

東京大学大学院工学系研究科量子相エレクトロニクス研究センター 特任講師

研究者番号: 30631676