

令和元年6月3日現在

機関番号：12601
研究種目：若手研究(A)
研究期間：2017～2018
課題番号：17H04845
研究課題名(和文) スピンによるカイラリティの物理の探求

研究課題名(英文) Study of spin-driven chirality

研究代表者

高橋 陽太郎 (Takahashi, Youtarou)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授

研究者番号：30631676

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 20,200,000円

研究成果の概要(和文)：カイラリティは空間反転対称性の破れを示し、物理・光学・化学・生物など幅広い分野で重要な概念である。通常は化学的な結晶構造に由来して物質がカイラリティを持つ。しかし、スピンの秩序においても、カイラリティが生じ、その重要性が近年広く議論されている。本研究では、スピン構造に由来したカイラリティの基礎特性の解明、その制御などスピンを使うことで得られる自由度の開拓を目的とした。テラヘルツ帯の偏光分光を行うことで、らせん型スピン構造に由来した自然旋光性を観測することに成功した。更に、自然旋光性を指標とすることで、カイラルドメイン壁のダイナミクスの動的相転移の観測に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

カイラリティは対称性の破れを示す普遍的な概念である。一般的にはカイラリティは結晶や分子中の原子位置によって生じるが、スピン構造によっても結晶構造とは独立にカイラリティを持ちうる。スピン構造由来のカイラリティの最も基本的な特性である、自然旋光性をテラヘルツ帯のエレクトロマグノンの共鳴で観測することに成功し、カイラリティが外場で制御しうることを明らかにした。この結果はスピン由来のカイラリティの持つ基礎特性を解明しただけではなく、スピン構造特有の機能性を持ちうることを示したものである。

研究成果の概要(英文)：Chirality has been a fundamental concept in many fields including physics, optics, chemistry and biology. Usually the chirality is caused by asymmetry of the chemical structure of matter. On the other hand, the chirality induced by the long range orders of spin has been attracting increasing attention.

In this work, we study the fundamental characteristics and novel functionality of magnetically-induced chirality on helimagnets by using the terahertz polarimetry. On the symmetric chemical lattice, the enhanced natural optical activity was observed on the resonance of electromagnon. The temporal control of the natural optical activity was demonstrated by applying the electric field pulses. The chiral domain wall dynamics was measured by the natural optical activity and the dynamical phase transitions of the domain wall was clearly observed. These results enable us to the comprehensive study of dynamical phase transitions.

研究分野：光物性

キーワード：光物性 マルチフェロイクス テラヘルツ分光

1. 研究開始当初の背景

「カイラリティ」とは右手と左手のような鏡写しの関係にありながら、互いに重なることのない関係にある対称性の一つである。カイラリティという概念は幅広い領域に偏在する重要な物質の性質である。例えば水晶などの結晶はカイラルな結晶構造をもち、左右両方の単結晶が得られる。一方、生態系では DNA、糖、タンパクなどでは片方のカイラリティのみが選択されていることが知られている。しかし、原子の空間的な構造が安定してしまうと、カイラリティを入れ替えることは困難であり、そこに外的操作による自由度は存在しない。

原子構造の対称性由来のカイラリティに対し、近年スピン配列がカイラリティを持つことが指摘されている。例えば、原子のらせん構造は右巻き、左巻きで区別されるカイラリティを持つが、スピンの場合も「らせん型」の配列を持つと図1のようにカイラリティが現れる。なお、ここで用いているカイラリティはスピン系で使用されるベクトルスピンカイラリティやスカラスピンカイラリティとは異なる。この、軸性ベクトルの一つであるスピンの構造が持ちうる性質を持つであろうか？この問題について我々は、ここ数年、電気磁気光学効果と呼ばれる特殊な光学現象を通してスピン構造がマクロなカイラル応答を示すことを明らかにした。

カイラリティを判別するためにはいくつかの手法が知られており、x線や電子線による構造解析なども用いられるが、最も広く用いられているのは自然旋光性である。これは、カイラルな物質中を透過した光の偏光が回転する現象で、カイラリティの存在を確認する最も重要な証拠となる。ここで重要な点は、スピンを利用することでフレキシブルなカイラリティの物理が実現可能であるという点である。本課題では、光応答に着目したスピン構造由来のカイラリティの物理の研究を行う。その基本特性の解明に加え、カイラリティの外場による制御、カイラルドメインの時空間観測など、スピン構造由来のカイラリティを生かした機能性開拓を目指す。

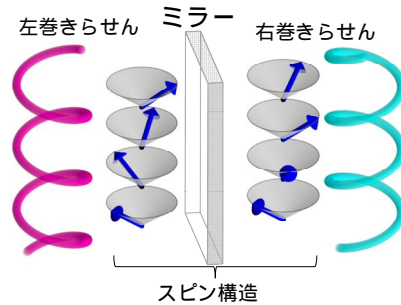


図1: スピン構造によるカイラリティと鏡映操作によるカイラリティの反転

2. 研究の目的

本課題では、スピン構造由来のカイラリティに関して、以下の点に着目した研究を行う。

a) スピン構造由来のカイラリティによる自然旋光性発現メカニズムの解明

自然旋光性はカイラルな物質の持つ一般的な光学特性であるが、自然旋光性は磁気双極子遷移と電気双極子遷移の虚部の干渉効果であると考えられている。エレクトロマグノンと呼ばれる電場活性を示す磁気共鳴の電気磁気光学効果においてえられたスピン波の電気磁気結合に関する知見を自然旋光性の光学プロセスに取り入れ、一般的なメカニズム、スペクトル特性の解明し、らせん磁性体の一般則として適用可能なカイラリティプロープを確立する。

(b) 電場によるカイラリティの制御

スピン構造由来のカイラリティは非常に高い柔軟性がある。その一つが電場によるカイラリティ制御の可能性である。ここ10年ほどのマルチフェロイクスに関する研究の進展から、らせん磁性体と強誘電性の関連が明らかになっている。電場によりスピン構造由来のカイラリティの反転を実現し、それを自然旋光性により検出することを目指す。

(c) カイラルドメインの時空間観測

原子配列によるカイラリティを持つ結晶では、一旦生成されたカイラルなドメインは結晶中で固定され、その制御は不可能である。しかし、スピン構造を利用したカイラリティの制御が可能であれば、そのドメインの時空間の性質が重要になる。ドメイン壁の時間応答、トポロジックな磁性体や強誘電体で長年非常に大きな注目を集めている重要なテーマである。本研究では自然旋光性をプローブとすることで、ドメイン壁のダイナミクスの解明を目指す。

3. 研究の方法

本研究ではスピン構造を利用したカイラリティの研究に取り組む。この研究では大きく分けると、スピン構造由来した自然旋光性の発現メカニズムの解明とカイラリティプロープとしての確立、スピンのフレキシビリティを利用した新しいカイラル物理の創出、という2段階に分けられる。

スピン構造由来したカイラリティの基本応答となる自然旋光性の観測と微視的メカニズムの解明を行う。エレクトロマグノンはテラヘルツ帯に共鳴を持つことから、時間領域テラヘルツ分光法を用いた光学応答の測定を行う。時間領域テラヘルツ分光法を用いた光学測定では、試料を透過したテラヘルツ電場の位相と振幅を計測することで、誘電率スペクトルの対角成分を導出する。自然旋光性は偏光回転によって観測されるため、入射偏光にたいして垂直な偏光を持つテラヘルツ波の波形を観測する必要がある。我々は1 mradを切る高い角度分解能を持つ

測定系を構築した。また、図2のように透過テラヘルツ波の回転成分の電場強度と位相測定から、 2×2 の誘電率テンソルの各成分を独立に決定することができる。

一方で、試料にはカイラリティ制御のための電場を印加する必要がある。最大で1500 kV/cmの電場を印加しつつ、温度を下げることで試料の強誘電/カイラリティドメインの制御を行った、また、パルス電場を印加することで等温過程でのドメイン制御も行った。

ドメイン壁の運動は数HzからMHzといった帯域で観測される。本研究では、交流電場の下でのドメイン壁の応答を自然旋光性を用いてドメイン壁の応答を観測した。時間領域テラヘルツ分光によって測定した偏光回転の振幅と、交流電場に対する位相から、結晶中のドメインの応答関数を決定した。測定は1 Hz から 10 kHz の交流電場下で行い、回路等による振幅・位相をずれを補正し、スペクトルを決定した。

本研究では、らせん磁気構造を持つマルチフェロイックCuOを試料として用いた。同物質は213 Kから230 Kの間で傾いたスピン面を持つらせん磁性相を持つ。この時、スピン構造は図3のようにカイラルな対称性を持つスクリュウ型らせんスピン構造と、極性を持つサイクロイド型らせんスピン構造の和であると考えられる。極性を持つサイクロイド型らせん構造は逆ジャロシンスキ・守谷相互作用を介して強誘電分極を誘起し、外部電場によってその符号を制御することが可能となる。この時、スピンのヘリシティ（巻き方）が強誘電分極の符号と1対1対応することから、スピンのヘリシティが電場によって反転する。このヘリシティの反転はスクリュウ型のらせん成分を持つカイラリティの反転が生じる。このように、CuOの傾いたらせん磁気構造により、カイラリティによる光学応答の研究を行った。

4. 研究成果

テラヘルツ帯のエレクトロマグノンのスペクトルと偏光測定によって得られた回転角スペクトルを図4に示す。らせん磁性相においてのみ、エレクトロマグノンの共鳴が3 meVに観測された。またこの時の入射光は[101]に偏光しており、先行研究と整合している。一方、[010]方向に偏光したテラヘルツ光に対しては、吸収は観測されなかった。このエレクトロマグノンの偏光は強誘電分極に垂直であり、理論計算から強誘電分極の振動モードであることが指摘されている。

次に、電場印加の下で試料を常磁性相から冷却した時の、偏光回転スペクトルを図4の下段である。複素回転スペクトルの測定により回転角 θ と楕円率 η が得られた。エレクトロマグノンの共鳴の存在する[101]偏光で入射した場合、厚み1 mm程度の試料では最大40 mrad程度の回転角が得られた。ピークはエレクトロマグノンに同じく3 meVに位置しており、エレクトロマグノンにおいて共鳴的に自然旋光性が増強されていることが分かる。一方円二色性を示す虚部 η は分散型のスペクトル構造を持ち、同様にその中心はエレクトロマグノンの共鳴ピークに一致している。一方で、エレクトロマグノンの共鳴が存在しない[010]に偏光した光に対しても偏光回転が生じている。回転角 θ と楕円率 η は、[101]偏光で入射した場合と同様に、共鳴構造が観測された。これは、誘電率の非対角項に由来した回転が現れていることを示唆している。この自然旋光性はスピンのトルクによる運

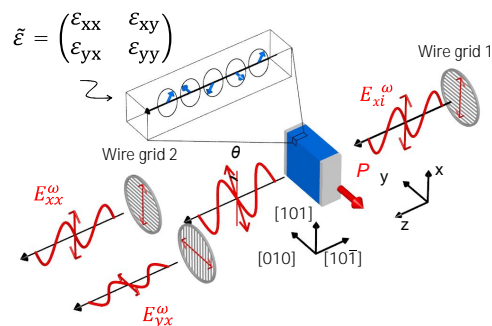


図2：時間領域テラヘルツ偏光測定。試料に電場を印加し、強誘電分極Pを制御した。

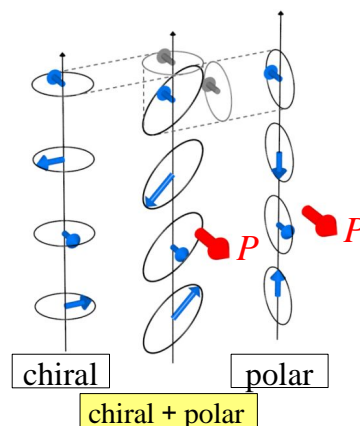


図3：傾いたスピン面を持つらせん磁気構造では、カイラルなスクリュウスピン構造と極性を持つサイクロイド型スピン構造が共存する。

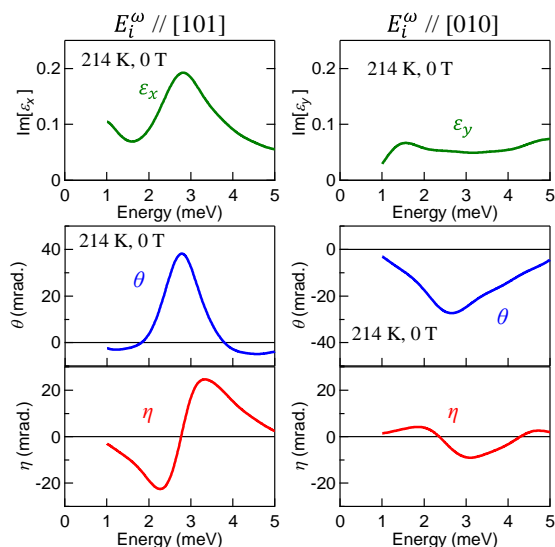


図4：CuOの対角項の誘電率スペクトル(上段)と複素回転角(θ , η)スペクトル。らせん磁性相である214 Kで測定。

動と逆ジャロシンスキ・守谷相互作用による電気分極を考慮することでモデル化できると考えている。

このテラヘルツ帯の自然旋光性による偏光回転の電場制御を試みた。温度をらせん磁性相に固定し、電場パルスを試料に印加したところ、偏光回転角の反転が観測された。これは、CuO 中のカイラルドメイン壁を電場で駆動することが可能であり、カイラリティを利用した新しい光機能性の示されたといえる。印加電場のパルス幅は 300 msec であるが、信号の立ち上がりから偏光回転に要する時間は数 msec 程度であることが明らかになった。この速度は温度と電場の強度に依存しており、温度が高く、電場強度が大きいほど高速でのスイッチングが可能となる。

では、交流電場下でのドメイン壁のダイナミクスを自然旋光性をプローブとすることで観測した。図 5 に示すように、ドメイン壁の応答を高精度で検出することに成功した。1 KHz 以下の帯域でドメイン壁の立ち上がりが観測されており、200 Hz 付近で虚部 χ'' にピークが観測された。一方実部 χ' は周波数が低周波側に行くにつれて、単調に増加する傾向が観測された。この電場強度では、スイッチングと呼ばれる結晶中のドメインが完全に入れ替わる運動が生じていると考えられるが、実際にこのスペクトルの Cole-Cole プロットでは半円の構造が出現し、理論計算によるスイッチングの振る舞いと一致した結果が得られた。

以上のように、らせん磁性体の新しい光機能として自然旋光性をテラヘルツ帯のエレクトロマグノン共鳴上で観測することに成功した。その物理的メカニズムの提案と、電場による等温過程での自然旋光性制御に成功した。また、この自然旋光性を用いて、ドメイン壁のダイナミクスの新しい測定方法を考案し、実際に高精度でドメイン壁ダイナミクスのスペクトルの測定に成功した。

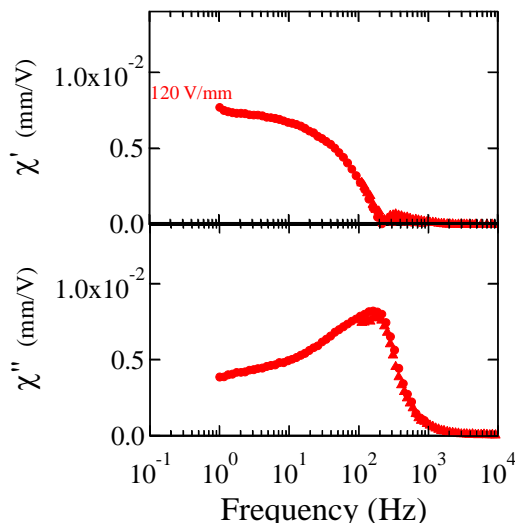


図 5 : CuO の自然旋光性を用いたドメイン壁の複素感受率スペクトル

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 3 件)

H. Shishikura, Y. Tokunaga, Y. Takahashi, R. Masuda, Y. Taguchi, Y. Kaneko, and Y. Tokura, “Electromagnon resonance at room temperature with gigantic magnetochromism”, Phys. Rev. Applied 9, 044033(2018).

DOI: 10.1103/PhysRevApplied.9.044033

T. Kurumaji, Y. Takahashi, J. Fujioka, R. Masuda, H. Shishikura, S. Ishiwata and Y. Tokura, “Optical magnetoelectric resonance in a polar magnet (Fe,Zn)2Mo3O8 with axion-type coupling”, Phys. Rev. Lett. 119, 077206 (2017).

DOI: 10.1103/PhysRevLett.119.077206

R. Masuda, Y. Kaneko, Y. Yamasaki, Y. Tokura, and Y. Takahashi, “Role of commensurability of spin order for optical magnetoelectric effect with electromagnons in multiferroic YMn₂O₅”, Phys. Rev. B 96, 041117(R) (2017) (selected as Editor’s suggestion)

DOI: 10.1103/PhysRevB.96.041117

〔学会発表〕(計 16 件)

Y. Takahashi, “Optical magnetoelectric effect with electromagnon resonance on multiferroics”, LEES 2018, June 24, 2018(Ancone, Italy) (招待講演)(国際学会), 2018

荻野慎子, 金子良夫, 十倉好紀, 高橋陽太郎, 「極性サイクロイド型磁性体における自然旋光性の観測」, 日本物理学会 2019 年春季大会、九州大学 伊都キャンパス、2019

村田大輝, 金子良夫, 十倉好紀, 高橋陽太郎, 「らせん磁性体におけるドメインダイナミクスの動的相転移」, 日本物理学会 2019 年春季大会、九州大学 伊都キャンパス、2019

村田大輝, 金子良夫, 十倉好紀, 高橋陽太郎, 「らせん磁性体におけるカイラルドメインダイナミクス」, 日本物理学会 2018 年秋季大会、同志社大学 今出川キャンパス、2019

荻野慎子, 金子良夫, 山崎裕一, 十倉好紀, 高橋陽太郎, 「ペロブスカイト型 RMnO₃ のエレクトロマグノンにおける巨大電気磁気光学効果の包括的研究」, 日本物理学会 2018 年秋季大会、同志社大学 今出川キャンパス、2019

Y. Takahashi, “Terahertz magnetoelectric optics with electromagnons on helical magnets”, Workshop Optomagnonics 2017 (招待講演)(国際学会), 2017 年

高橋 陽太郎、「テラヘルツ帯の新奇なスピン波共鳴の観測」、日本放射光学会第9回若手研究会（招待講演）2017年

荻野槿子, 金子良夫, 十倉好紀, 高橋陽太郎、「マンガン酸化物の交換歪に由来したエレクトロマグノンにおける非相反複屈折」、日本物理学会 2017年秋季大会、2017

増田亮二, 金子良夫, 十倉好紀, 高橋陽太郎、「高温マルチフェロイック CuO のエレクトロマグノンにおける電気磁気光学効果の電場制御」、日本物理学会 2017年秋季大会、2017

井口照悟, 関真一郎, 増田亮二, 十倉好紀, 高橋陽太郎、「らせん磁性マルチフェロイクス $\text{CuFe}_{1-x}\text{GaxO}_2$ ($x=0.035$) のエレクトロマグノンにおける自然旋光性のメカニズム」、日本物理学会 2017年秋季大会、2017

肉倉洋恵, 石渡晋太郎, 田口康二郎, 増田亮二, 十倉好紀, 高橋陽太郎、「Y型ヘキサフェライト $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ のエレクトロマグノンにおける巨大ファラデー効果」、日本物理学会 2017年秋季大会、2017

S. Iguchi, S. Seki, Y. Tokur, Y. Takahashi, “Gyrotropic birefringence and natural optical activity with electromagnon resonance”, The 9th APCTP Workshop on Multiferroics, 2017

M. Ogino, Y. Kaneko, Y. Tokura and Y. Takahashi, “Gyrotropic birefringence on electromagnon driven by magnetostriction in perovskite manganite”, The 9th APCTP Workshop on Multiferroics, 2017

Hiroe Shishikura, Shintaro Ishiwata, Yasujiro Taguchi, Ryoji Masuda, Yoshinori Tokura, Youtarou Takahashi, “Terahertz Faraday effect on electromagnon resonance in Y-type hexaferrite $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$ ”, The 9th APCTP Workshop on Multiferroics, 2017

荻野槿子, 金子良夫, 山崎裕一, 十倉好紀, 高橋陽太郎、「ペロブスカイト型 RMnO_3 のエレクトロマグノンにおける巨大非相反複屈折の全体像」、日本物理学会 2018年春季大会、2018

高橋陽太郎, 増田亮二, 金子良夫, 十倉好紀、「らせん磁性体 CuO のエレクトロマグノンの電気磁気光学効果」、日本物理学会 2018年春季大会、2018

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔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

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。