

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 18 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K14154

研究課題名(和文)無偏光照射によるキラリティと磁化の制御

研究課題名(英文) Manipulation of chirality and magnetization via the irradiation of unpolarized light

研究代表者

豊田 新悟 (Toyoda, Shingo)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・基礎科学特別研究員

研究者番号：30802730

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：キラリティと磁化を同時に持つ物質では、光の進行方向の反転によって光学応答が変化する(磁気キラリティ効果)。この現象の逆効果として、光誘起磁化の方向が光の進行方向の反転によって変化する逆磁気キラリティ効果の存在が予想されている。本研究では、CuB2O4において、逆磁気キラリティ効果の観測を目指した。この現象の観測には、微少な磁化変化を検出する測定手法が必要となる。本研究期間においては、第二次高調波発生(SHG)が有力なプローブになると考え研究を進め、磁化反転に応じてSHG強度がほぼ100%変化する巨大非相反性を示すことを発見した。今回発見した非相反SHGは逆磁気キラリティ効果の観測に繋がる有力な手法だと考える。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光の進行方向の反転によって光学応答が変化する現象は、非相反光学効果と呼ばれ近年盛んに研究が行われている。これまでに物質が一方向にのみ透明になる現象や、ある方向にだけ強く発光する現象など、主に線形光学過程がその研究対象となってきた。本研究では、この現象を非線形光学過程に拡張することを目的とした。第二次高調波発生(SHG)は固体中で入射光の半分の波長の光が発生する非線形光学効果である。メタホウ酸銅においてSHGの非相反性を調べた結果、光の進行方向の反転に伴いほぼ100%の大きさでSHG強度が変化した。今回発見された巨大非線形非相反光学効果は光スイッチングや磁気ドメイン観察などに応用できると考える。

研究成果の概要(英文)：In a matter which has both chirality and magnetization, the optical response can differ between the opposite propagation direction of light (magneto-chiral effect). As an inverse effect of this phenomenon, the direction of the photo-induced magnetization is expected to change by the reversal of the propagation direction of the light, i.e., inverse-magneto-chiral effect is theoretically predicted. In this study, we aimed to experimentally observe the inverse-magneto-chiral effect in CuB2O4. In order to observe this phenomenon, a sensitive probe to detect a tiny magnetization change is required. In this study period, we revealed that second harmonic generation (SHG) is a promising probe to detect this phenomenon. It is found that the SHG intensity varies by almost 100% with the magnetization reversal in CuB2O4, indicating a giant nonreciprocal nature of SHG. The gigantic nonreciprocal SHG found in this study may pave the way to an observation of the inverse-magneto-chiral effect.

研究分野：磁気光学

キーワード：磁気光学 逆光学効果 非相反光学効果 マルチフェロイック 第二次高調波発生

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

光と物質の相互作用は古くから研究されてきた。1811年にアラゴはキラル物質中で偏光が回転することを見出し、1846年にファラデーは磁性体中でも同様に偏光が回転すること発見した。このように巨視的な光学現象に関しては19世紀から研究が行われてきたため、現代の物理学では完全に理解されていると思われるかもしれない。しかし、複数の秩序を持つ物質中ではいまだに新たな光学現象が発見され続けている。例を挙げると、キラリティと磁化を同時に併せ持つキラル磁性体において生じる、磁気キラル効果である。この現象は光吸収が光の進行方向の反転によって変化する非相反な光学現象であり、非相反方向二色性とも呼ばれる。光に対してダイオードのように働くことから、新奇な光デバイスの開発につながると期待されている。磁気キラル効果は1997年にリッケンらによって初めて実験的に観測され、近年盛んに研究が行われている。

もう一つ近年の光学研究の潮流として挙げられるのが、光照射によって物性を制御する逆光学効果である。具体的には円偏光照射によるキラリティ誘起や円偏光照射によって磁化を誘起する逆ファラデー効果などが知られている。

本研究ではこれら2つの研究の潮流を基盤として、キラル磁性体における逆光学効果を開拓する。キラル磁性体中では無偏光照射によって、キラリティと磁化を制御できる逆磁気キラル効果が存在することが理論的に予想されている。円偏光を必要とせず、任意の偏光状態の光によって物性を制御できるという点で、従来の逆光学効果とは大きく異なる。

2. 研究の目的

本研究の最終目的は、逆磁気キラル効果の実験的な観測、すなわち無偏光照射によって、キラリティと磁化を制御することである。逆磁気キラル効果の観測はスピントロニクスの観点から重要であると考えられる。現在MRAM(磁気抵抗メモリ)では、強磁性体の磁化の向きで情報を記録する。情報の書き込み時には、書き込み線に電流を流し周囲に発生する磁場によって磁化を反転させる。この方式はジュール熱によるエネルギー損失が大きいため、その低減が要請されている。このような状況の中で、光による非熱的な磁化制御が注目を集めている。この方式では、光吸収に伴う熱が発生しないこと、高速な磁化制御が可能になる。近年、円偏光が持つ実効的な磁場によって磁化を操作する逆ファラデー効果が実際に報告されている。しかし円偏光を作るには複数の偏光素子が必要でデバイスの小型化が難しい。一方、逆磁気キラル効果では無偏光によって磁化の制御が可能になる。この研究により、無偏光照射による新たな磁化制御の方法を確立できると考えた。

3. 研究の方法

無偏光照射による磁化制御を実験的に観測するため、ポンププローブ分光法を用いた。高強度を持つフェムト秒スケールのパルス光を入射し、物質を励起する。さらにプローブ光を用いて逆磁気キラル効果によって誘起された磁化の検出を行う。通常は、ファラデー効果による偏光回転角によって磁化を検出するが、この物質の有利な点として、磁気キラル効果によって磁化方向を検出できることが挙げられる。具体的には、(100)面が広い試料を用いた場合、[100]軸方向に磁化が誘起される場合には1.41 eVの光吸収が大きくなり、反対方向に磁化が誘起されると光吸収が小さくなる。したがって、プローブ光の透過強度を測定することによって磁化方向が検出できると考えた。本研究では、プローブ光の波長を、巨大な磁気キラル効果が出現する1.41 eVに設定し、磁気キラル効果を用いて磁化ダイナミクスの検出を行った。さらにポンプ光の入射方向を反転し、同様の測定を行い、逆方向に磁化が誘起されていれば、逆磁気キラル効果の検出ができたことを意味する。実験を進めた結果、ポンプ光とプローブ光が平行に進む際には、透過率が変化し、1ps以内に緩和する様子が観測された。しかし、ポンプ光とプローブ光が互いに逆向きに進行する場合には、試料内での透過率変化が時間平均されてしまい、高速で振動する透過率変化が観測できないという課題が判明した。この問題を解決するには、厚さの薄い試料(10ミクロン程度)を用いる必要があるが、この場合吸収強度が小さくなり、透過率変化も検出できないほど小さくなるという別の課題が生じることが明らかになった。そこで薄い試料を用いた場合でも磁化反転により大きな信号強度の変化が期待される現象をプローブに適用すればこの課題を解決できると考え、本研究期間ではそのような現象の探索を行った。具体的には、非相反な二次高調波発生(SHG)が最適な検出方法になると考え、研究を進めた。

4. 研究成果

SHG とは図 1(a)のように周波数 ω の光を入射した際に、倍の周波数 2ω の光が生成される非線形光学過程である。通常の SHG の場合、光の進行方向を反転しても SHG 強度は変化することはない。本課題で研究を行った非相反 SHG の場合には、図 1 (b) のように光の進行方向の反転（もしくは磁化の反転）に伴い SHG 強度が変化する。この非相反性は磁気双極子遷移による SHG と電気双極子遷移による SHG の干渉によって生じる。干渉効果であるため両者の大きさが同程度の時に非相反性が巨大化するが、一般的に電気双極子遷移の方が磁気双極子遷移よりも圧倒的に大きいことから、非相反性は通常非常に小さくなる。この課題を解決するために、磁気共鳴を用いれば磁気双極子遷移が共鳴的に増強され、電気双極子遷移と同程度の大きさを持つと考えた。実験の結果、 Cu^{2+} イオンの d-d 遷移に共鳴する磁気双極子遷移において SHG スペクトルが磁場反転に伴い大きく変化することが確認された図 1 (c)。SHG 強度の変化量は 97%にも達する（図 1 (d)）。非相反 SHG は試料の厚さが薄い場合でも、磁化反転に伴い大きな信号変化が得られる。本研究で発見した巨大非相反 SHG は逆磁気キラル効果の有力な観測手段になると考える。本研究成果は、現在論文誌に投稿中である[1]。

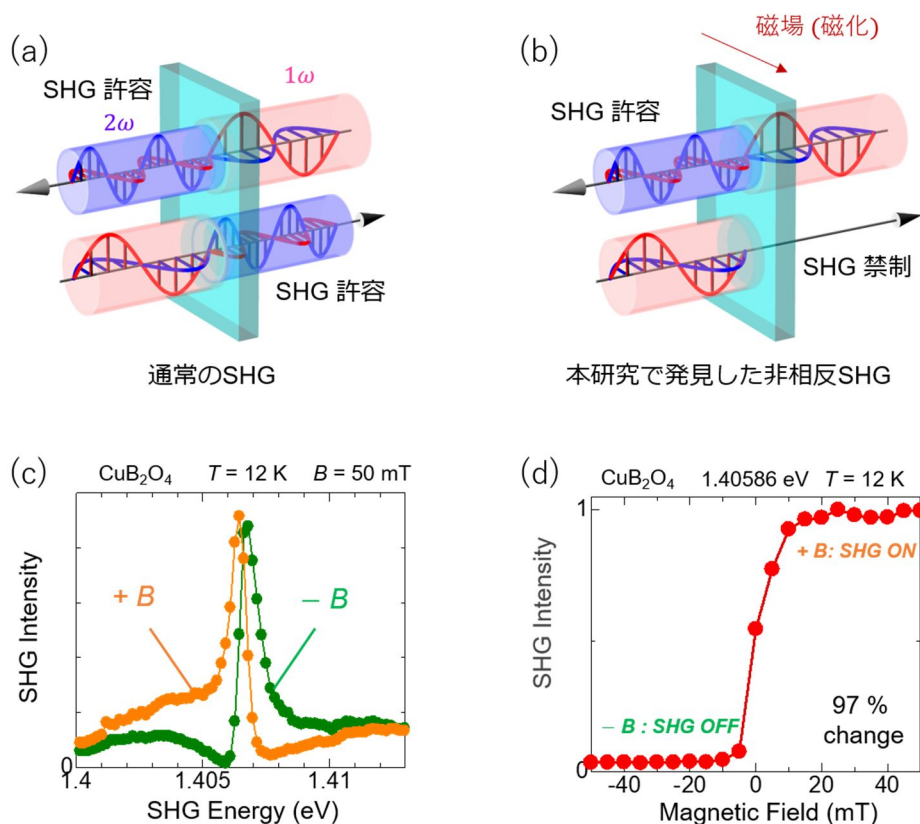


図 1: (a) 第二次高調波発生(SHG)の模式図。(b)非相反 SHG の模式図。
(c) 磁場中における SHG スペクトル。(d)SHG 強度の磁場依存性。

引用文献

- [1] S.Toyoda, M. Fiebig, T. Arima, Y. Tokura, N. Ogawa
Nonreciprocal second harmonic generation in a magnetoelectric material
Preprint at <https://arxiv.org/abs/2006.01728>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 S. Toyoda, N. Abe, and T. Arima	4. 巻 123
2. 論文標題 Nonreciprocal Refraction of Light in a Magnetoelectric Material	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 77401
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.077401	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件／うち国際学会 3件）

1. 発表者名 S. Toyoda, M. Fiebig, T. Arima, Y. Tokura, and, N. Ogawa
2. 発表標題 SHG-Active Boundaries between Nonpolar Magnetic Domains in MnWO4
3. 学会等名 International Conference on Strongly Correlated Electron System（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 豊田新悟、Manfred Fiebig、有馬孝尚、十倉好紀、小川直毅
2. 発表標題 MnWO4におけるSHG活性な磁壁の検出
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Toyoda, M. Fiebig, T. Arima, Y. Tokura, and, N. Ogawa
2. 発表標題 SHG-Active Boundaries between Nonpolar Magnetic Domains in MnWO4
3. 学会等名 Materials Research Society Fall Meeting（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Toyoda S., Abe N., and Arima T.
2. 発表標題 Gigantic nonreciprocity of luminescence in multiferroic CuB2O4
3. 学会等名 International Conference on Magnetism (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----