

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2015

課題番号：26706011

研究課題名(和文) スピン波励起を用いたエレクトロマグノンの巨大電気磁気光学応答

研究課題名(英文) Strong optical magnetoelectric effect of electromagnon resonance

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)・准教授

研究者番号：30631676

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,000,000円

研究成果の概要(和文)：テラヘルツ帯に現れるエレクトロマグノン共鳴を利用し、電気磁気光学効果の新原理の開拓、巨大応答の実現を目指した研究を行った。らせん型に配列したスピン構造を利用することで、エレクトロマグノン共鳴における磁気カイラル効果を実現した。これは結晶構造に依存せずスピン構造のみに由来する現象であり、らせん磁性体の持つ一般的な動的応答である。特にデラフォサイト型の物質においては、400%もの光学応答の変化を示す巨大な電気磁気光学効果(方向2色性)を実現した。一方、磁性由来の強誘電分極の伸縮モードに対応するエレクトロマグノンを観測し、その共鳴が電気磁気光学効果を示すことを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：We investigated the electromagnon resonance on the multiferroic helimagnets so as to exploit the new mechanism hosting strong optical magnetoelectric effect in terahertz region. We demonstrated the optical magnetoelectric effect inherent to the screw spin structure, which is specifically referred to as magnetochiral effect, on the electromagnon resonance. The screw spin structure is responsible for the presence of the magnetochiral effect irrespective of the underlying lattice. For the delafossite type helimagnet, the strong magnetochiral effect is found to cause the nonreciprocal directional dichroism as large as 400% on the electromagnon resonance. We also found the electromagnon with a character of amplitude mode of the ferroelectric polarization, resulting in the appreciable magnitude of magnetochiral effect.

研究分野：物性物理学

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

マルチフェロイクスと呼ばれる物質系では、磁性に由来した強誘電分極が現れる。スピン構造に由来したマルチフェロイクスの原理が2000年代に発見されて以降、磁性と電気分極が関連した様々な現象の研究が著しく進展した。その中でも特徴的な現象がエレクトロマグノンと呼ばれるスピン波共鳴である。スピン波の共鳴は通常交流磁場により生成されるが、物質中の強い電気磁気結合を介すことで、交流電場に応答するスピン波が現れる。これがエレクトロマグノンであり、2006年に初めてその観測が報告された。その後の研究によりマルチフェロイクスの電気磁気結合を直接反映したエレクトロマグノンの共鳴を用いることで電気磁気光学効果と呼ばれる特異な光学応答が実現する可能性が示唆されていた。

2. 研究の目的

物質中での誘電性と磁性の間の結合効果である電気磁気効果は、同時に新奇な光学応答を生み出す。それは磁気光学やメタマテリアルとも異なる特徴を持つが、その応答は小さく、物質も非常に限られていた。我々のこれまでの研究で、特定の電子スピン秩序に由来した巨大な電気磁気光学効果を実現した。この成果に基づき、電気磁気光学効果の新原理の開拓、巨大応答の実現、広い展開を目指す。特にエレクトロマグノンと呼ばれる電気磁気共鳴を利用することで、ギガヘルツ・テラヘルツ帯の光整流素子の基礎原理の実証、巨大応答による物質相のテラヘルツ波制御などの革新的展開へとつながる研究を行う。

3. 研究の方法

本研究ではエレクトロマグノンによる巨大電気磁気光学応答の実現のために以下の研究を行う。

( ) 電気磁気光学効果を誘起する新原理の開拓

( ) 電気磁気光学効果の巨大化

( ) 広い物質群への展開

エレクトロマグノンはスピン波励起であることから、エレクトロマグノンとスピン秩序との対応関係に着目し、効率的に新原理に基づく電気磁気光学効果の提案・検証を行う。更に電気磁気共鳴と、マグノン、エレクトロマグノン、フォノン、結晶場励起等の低エネルギー励起とのカップリングを利用し、巨大電気磁気光学効果の実現を目指す。これらに、戦略的な物質選択を組み合わせることで幅広い展開を目指す。

4. 研究成果

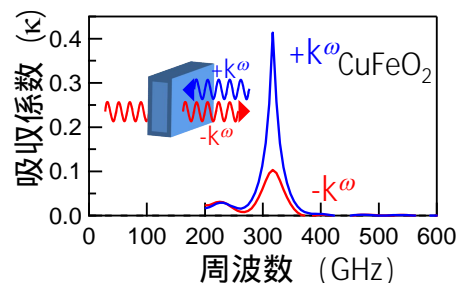
本研究はマルチフェロイクス中のエレクトロマグノンにおける電気磁気光学効果を対象としている。エレクトロマグノンは誘電応答を示すスピン波(マグノン)であり、光の

電場成分と磁場成分の両方に対する応答を示す。電気磁気光学効果は電気双極子遷移と磁気双極子遷移の干渉効果であることから、エレクトロマグノンでは常に電気磁気光学効果の存在が期待できる。一方、対称性の観点からみると時間反転対称性と空間反転対称性の両者が同時に破れている必要がある。このため、対称性と微視的な光学応答の両者に着目して新しい電気磁気光学効果と巨大応答の実現を目指した研究を行った。

エレクトロマグノンは主にテラヘルツ帯に共鳴を持つことが多い。また、電気磁気光学効果の実現には外部磁場や強誘電分極のドメインを整列させることが必須である。このため、超伝導磁石と電場印加プローブにより試料の状態を制御し、時間領域テラヘルツ分光法を用いて光学応答を観測した。電気磁気光学効果は非相反方向2色性という現象により観測する。これは光の伝播方向により物質の光学応答が変化する現象で、片側から入射した光のみを透過し、逆側から入射した光には吸収が起こる。物質の磁化や分極、カイラリティの符号の反転によって、方向2色性の符号が反転する性質がある。このため、実際の測定においては、光の進行方向ではなく強誘電分極や磁化、カイラリティを反転することで光学応答の変化を観測した。

電気磁気光学効果の中に、磁化とカイラリティが共存した時に起こる磁気カイラル効果と呼ばれるものが存在する。通常は結晶構造の持つカイラリティとスピンの持つ磁化を利用することで磁気カイラル効果が現れる。しかし、我々はらせん型のスピン構造がカイラリティを持つことに着目し、完全にスピンにのみ由来した磁気カイラル効果の実現を試みた。デラフォサイト型の結晶構造をもつらせん磁性体であるCuFeO<sub>2</sub>に少量のGaをドーピングした試料を用いて、右回りらせんと左回りらせんスピン構造の反転と磁化の反転により、エレクトロマグノンの共鳴において磁気カイラル効果による巨大な方向2色性を観測した(下図のスペクトル参照)。スクリー型のもつらせん磁気構造が光の交流磁場・電場に応答することが、逆ジャロシンスキ・守谷機構により説明可能であることを示した。また、方向2色性がらせん磁気秩序でのみ観測されることを明らかにし、スピン構造のもつカイラリティと電気磁気光学効果の相関を明確に示した。

ここで観測した方向2色性は非常に巨大



な応答であり、共鳴強度が最大で400%もの変化を示すことが明らかになった。方向2色性はマイクロ波から線領域にわたる広い帯域で観測されているが、その変化量は小さく、通常は1%以下である。近年マルチフェロイクスを用いた巨大応答が報告されているが、今回観測した方向2色性はその中でも著しく大きな応答に属するものである。

ここで実現したエレクトロマグノンの磁気カイラル効果は、スクリュウ型らせん磁気構造のもつ一般的な性質である。実際に、同様のスピン構造を持つランガサイト化合物と  $MnWO_4$  においても磁気カイラル効果を観測した。このように、らせん磁性体のもつスピン由来のカイラリティを用いることで、エレクトロマグノン共鳴において方向2色性を実現することが可能であることを実証した。

本研究の基盤となる研究において、スピン由来の強誘電分極の揺らぎに対応するエレクトロマグノン共鳴において巨大な方向2色性を実現している。この時の強誘電分極の揺らぎは、南部・ゴールドストーンモードに対応する横揺らぎである。一方、磁気構造を制御することで、強誘電分極の伸縮モードに対応するエレクトロマグノンの出現が期待できる。我々は代表的なマルチフェロイクスの一つである  $MnWO_4$  をモデル物質として、この強誘電分極の伸縮モードの観測と、その電気磁気光学効果を実現した。ここで重要な点は、傾いたらせん面をもつスピン構造が、スピン由来の強誘電分極の伸縮運動に対応する自由度を持つことである。実際に強誘電分極と平行な光の交流電場によりエレクトロマグノンが可能であること、また磁気カイラル効果に分類される方向2色性が存在することを明らかにした。磁気相図上での方向2色性の特性から、この効果がらせん磁気構造に由来していることを明らかにした。

これらの電気磁気光学効果では、逆ジャロシンスキ・守谷相互作用に由来した振動分極と光の交流電場の結合により起こるエレクトロマグノン共鳴が主要な役割を果たしている。一方で、スピン間の内積で表される交換相互作用によってもエレクトロマグノンが誘起されることが知られている。しかしこのエレクトロマグノンは電場活性になっても、磁場活性とはならないため、電気磁気光学効果に寄与しないと考えられていた。この交換歪に由来したエレクトロマグノンで電気磁気光学効果を実現することを試みた。

マンガン酸化物の一種である  $RMn_2O_5$  ( $R$ : 希土類)では、交換歪機構による強誘電分極とエレクトロマグノンがともに存在するマルチフェロイクスのモデル物質である。さらに、複雑なスピン構造により逆ジャロシンスキ・守谷機構に由来した強誘電分極も共存している。この物質は温度により磁性に関する逐次相転移を示すことから基底状態の磁性とエレクトロマグノンの電気磁気光学効果の相関を研究するのに適している。

エレクトロマグノン共鳴の方向2色性の測定を行った結果、磁気波数が結晶格子に整合した相において大きな信号が観測された。一方で磁気波数が格子非整合相となるそうでは、方向2色性が急激に消失することが明らかになった。これは、格子整合相では交換歪に由来したエレクトロマグノンが電場活性に加えて磁場活性となるために電気磁気光学効果が生じるためと考えられる。つまり、交流電場で生成されるスピン波と交流磁場で生成されるスピン波の波数が等しくなることが物質内部の動的電気磁気結合を誘起していると考えられる。一方格子非整合相では、両者の波数が異なることから、電気磁気結合が起こらず方向2色性が消失したと考えられる。

一方で、格子非整合相において方向2色性を示すモードが現れることが明らかになった。このモードは、エネルギーギャップが大きく、これまでに報告されているエレクトロマグノンとは異なる偏光特性を持つことが明らかになった。磁気構造とそこで動的応答を考察することで、このモードが光学分枝に対応するスピン波がエレクトロマグノンとなったもので、逆ジャロシンスキ・守谷機構に由来した電気磁気応答を示していることが明らかになった。

本研究では開始当初に「新原理の開拓」、「巨大化応答の実現」、「広い展開」という目標を設定した。これらを、テラフォサイト型らせん磁性体  $CuFeO_2$ 、マンガン酸化物  $RMn_2O_5$ 、 $MnWO_4$ 、ランガサイト化合物など、それぞれに特徴のある物質でのテラヘルツ応答を研究することによって以下の主要な成果を得た。

- ・スクリュウ型らせん磁性体の磁気カイラル効果の基礎原理の実証
- ・強誘電分極の伸縮モードの観測とその磁気カイラル効果の原理の実証
- ・エネルギーギャップを持つ光学モードのエレクトロマグノンにおける電気磁気光学効果の観測
- ・格子整合した磁気波数における交換歪機構に由来したエレクトロマグノンの電気磁気光学効果の観測
- ・スクリュウ型らせん磁性体で400%の共鳴強度の変化を伴う方向2色性の実現
- ・分極の伸縮モードに対しては最大で25%の共鳴強度の変化を伴う方向2色性の実現

これらの成果は、マルチフェロイクスの動的特性の研究という観点のみならず、テラヘルツ帯の新しい光学応答、光制御の基礎となることが期待できる。

#### 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)

Versatile optical magnetoelectric effects by electromagnons in  $\text{MnWO}_4$  with canted spin-spiral plane

**Y. Takahashi**, S. Kibayashi, Y. Kaneko, and Y. Tokura

Phys. Rev. B93, 180404(R) (2016) 査読あり

DOI: 10.1103/PhysRevB.93.180404

Electromagnon excitation in the field-induced noncollinear ferrimagnetic phase of  $\text{Ba}_2\text{Mg}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}$  studied by polarized inelastic neutron scattering and terahertz time-domain optical spectroscopy

T. Nakajima, **Y. Takahashi**, S. Kibayashi, M. Matsuda, K. Kakurai, S. Ishiwata, Y. Taguchi, Y. Tokura, and T. Arima

Phys. Rev. B93, 035119(2016) 査読あり

DOI: 10.1103/PhysRevB.93.035119

Unidirectional terahertz light absorption in the pyroelectric ferrimagnet  $\text{CaBaCo}_4\text{O}_7$

S. Bordács, V. Kocsis, Y. Tokunaga, U. Nagel, T. Rõm, **Y. Takahashi**, Y. Taguchi, and Y. Tokura

Phys. Rev. B92, 214441(2015) 査読あり

DOI: 10.1103/PhysRevB.92.214441

Magneto-chiral dichroism resonant with electromagnons in a helimagnet

S. Kibayashi, **Y. Takahashi\***, S. Seki and Y. Tokura (\*corresponding author, 共同筆頭著者)

Nature communications 5, 4583(2014) 査読あり

DOI: 10.1038/ncomms5583

〔学会発表〕(計11件)

テラヘルツ領域の方向2色性(シンポジウム講演)

**高橋陽太郎**

日本物理学会 2016 年春季大会

2016 年 3 月 20 日 東北学院大学 宮城県

Y型ヘキサフェライトによる巨大な室温エレクトロマグノン共鳴

**高橋陽太郎**、徳永祐介、田口康二郎、金子良夫、十倉好紀

日本物理学会 2016 年春季大会

19-22 Mar. 2016 (東北学院大学、宮城県)

キラルな結晶構造を持つランガサイト( $\text{Ba}_3\text{NbFe}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ )におけるエレクトロマグノンの磁気カイラル効果

成田秀樹、徳永祐介、吉川明子、田口康二

郎、十倉好紀、**高橋陽太郎**

日本物理学会 2016 年春季大会

2016 年 3 月 20 日 東北学院大学 宮城県

高温マルチフェロイック物質  $\text{CuO}$  のエレクトロマグノンの電気磁気光学効果

増田亮二、金子良夫、十倉好紀、**高橋陽太郎**

日本物理学会 2016 年春季大会

2016 年 3 月 20 日 東北学院大学 宮城県

Y型ヘキサフェライトにおけるエレクトロマグノンの巨大な磁気クロミズムの観測

肉倉洋恵、徳永祐介、田口康二郎、金子良夫、十倉好紀、高橋陽太郎

日本物理学会 2016 年春季大会

2016 年 3 月 20 日 東北学院大学 宮城県

Terahertz optical magnetoelectric effects with electromagnons in helimagnets

**Y. Takahashi**

Core-to-Core International Meeting,  $\chi\text{Mag}2016$  Symposium

February 21-24, 2016 (Hiroshima, Japan)

キラルな結晶構造を持つランガサイト( $\text{Ba}_3\text{NbFe}_3\text{Si}_2\text{O}_{14}$ )におけるエレクトロマグノンの電気磁気共鳴

成田秀樹、徳永祐介、吉川明子、田口康二郎、十倉好紀、**高橋陽太郎**

日本物理学会 2015 年秋季大会

2015 年 9 月 16 日 ~ 9 月 19 日

関西大学 吹田市 大阪府

マルチフェロイックにおけるエレクトロマグノンの電気磁気共鳴

**高橋陽太郎**

2015 年 第 65 回応用物理学会春季学術講演会

2015 年 3 月 11 - 14 日 東海大学 湘南キャンパス 神奈川県

薄膜におけるテラヘルツ分光とその応用

**高橋陽太郎**

第 52 回化合物新磁性材料研究会

2015 年 2 月 20 日 東京大学本郷キャンパス (東京都)

Magnetoelectric resonance with electromagnons in helimagnets

**Y. Takahashi**

The 6th APCTP Workshop on Multiferroics (invited)

November 24-27, 2014(Pohang, Korea)

マルチフェロイック物質  $MnWO_4$  における  
エレクトロマグノンの動的電気磁気効果  
**高橋陽太郎**, 木林駿介, 金子良夫, 十倉好紀  
日本物理学会 2014 年春季大会  
7-10 Sep. 2014 (中部大学、愛知県)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称: テラヘルツ波吸収材料  
発明者: **高橋陽太郎**, 徳永佑介, 田口康二郎,  
十倉好紀, 金子良夫  
権利者: 同上  
種類: 特許  
番号: 特願 2015-159166 号  
出願年月日: 2015 年 8 月 11 日  
国内外の別: 国内

〔その他〕

ホームページ等

[http://www.qpec.t.u-tokyo.ac.jp/takahashi\\_lab/index.html](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 (Takahashi, Youtarou)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号: 30631676