

# 光の非相反現象を用いた強磁場下の反強磁性秩序変数の観測

## [1] 要旨

空間反転に対しても時間反転に対しても対称でない結晶を光が透過する際、光の進行方向を逆にすると光の吸収量が変わるという現象が発現する。この非相反な光学現象は方向二色性と呼ばれ、近年、空間反転および時間反転が破れたマルチフェロイック物質を対象として活発に研究がなされている。しかしながらこれまで報告された近赤外-可視光領域での方向二色性は、一部の例外を除き、その多くは大きさが1%程度またはそれ以下と小さなものであった。今回、空間および時間反転対称性の破れた反強磁性体  $\text{Pb}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$  の磁場誘起相において13%を越える顕著な方向二色性が発現することが明らかとなった。さらに、パルス磁場下における方向二色性の測定が、数十テスラという定常磁場では到達の難しい強磁場領域において反強磁性の秩序変数を検出することができる数少ない手法の1つとなり得ることが示された。

## [2] 本文

空間反転対称性と時間反転対称性がともに破れた磁性体においては、印加電場に比例した磁化、または印加磁場に比例した電気分極が誘起される「線形電気磁気効果」が発現することが知られている。この効果は散逸の少ない電場によって磁性を制御することを可能とするために活発な研究がなされている。また、このような磁性体に光を通過させると光の電場成分と磁場成分に比例した振動磁化と振動分極が物質中に誘起される「電気磁気光学効果」が生じ、直線偏光や無偏光の吸収量が光の進行方向の正負で変化する「方向二色性」といった非相反光学現象が現れることが知られている。とくに磁性と誘電性が共存・結合したマルチフェロイック物質が広く着目を集めるようになった2000年代以降には、マイクロ波からX線に渡る広い波長領域での電気磁気光学応答に関する研究が展開され、特にテラヘルツ領域では、様々なマルチフェロイック物質で巨大な方向二色性が実現されるに至った。一方、 $d$ 電子励起のエネルギーに相当する近赤外-可視光領域において電気磁気光学効果を示す物質の報告例は少ないが、空間反転と時間反転を破る弱強磁性体  $\text{CuB}_2\text{O}_4$  においては、究極の方向二色性に相当する一方向にのみ光が透過する一方向透明現象が強磁場下で実現している。電気磁気光学効果は強磁性体のみならず対称性の要請を満たす反強磁性体においても発現するもので、反強磁性体を用いた新しい磁気光学素子の動作原理となり得るほか、反強磁性の性質を探る強力なプローブにもなり得ると期待される。しかしながら、近赤外-可視光領域での方向二色性の相対的な大きさは、マクロ磁化を持たない反強磁性体においては通常数%未満と大変小さく、同効果をプローブとして活用した反強磁性体の研究はあまり進められていなかった。

最近、東京大学大学院新領域創成科学研究科のメンバーを中心とする研究グループは、数十テスラという強磁場中で、空間と時間反転対称性がともに破れた反強磁性体  $\text{Pb}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$  の磁気光学測定を行い、約16テスラ以上の強磁場下で現れる磁場誘起相において近赤外光の吸収係数の相対変化が13%を越える顕著な非相反方向二色性が発現することを見出した。この値は、それまで報告のある反強磁性体における方向二色性に比べて1~2桁程大きい値である。また、微視的な視点から非相反方向二色性が示す磁場依存性を考察し、方向二色性のシグナルが反強磁性の秩序変数に対して比例関係にあることを明らかにした。このことは、パルス磁場における方向二色性測定が反強磁性の秩序変数を得る新しい実験手法となり得ることを提示している。この成果は、JPSJの2021

年 12 月号に掲載された。

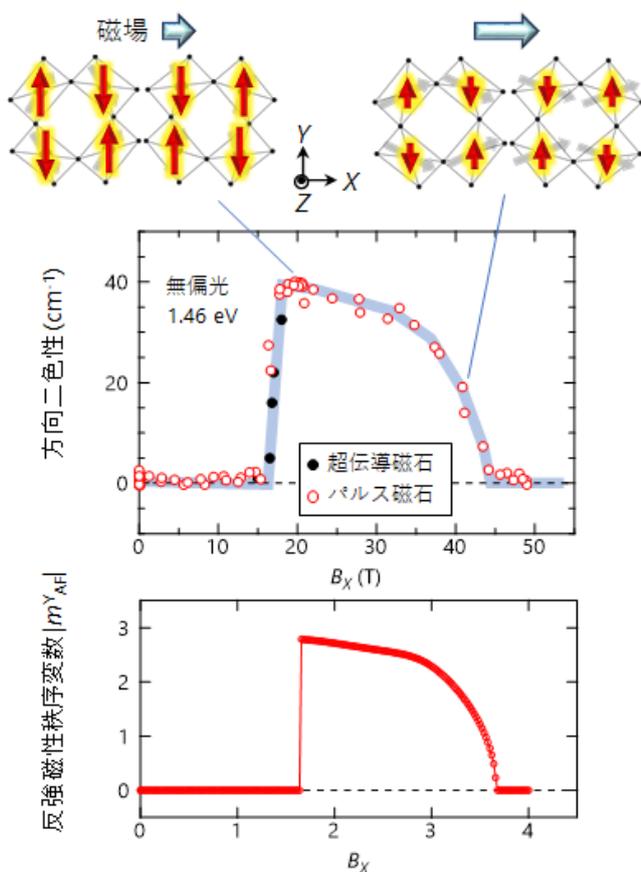


図 1  $\text{Pb}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$ における方向二色性の磁場依存性 (上のグラフ). 16~44 テスラの磁場領域で顕著な方向二色性が観測される. クラスタ平均場近似により計算された同磁場領域における磁気構造を上を示す. 下のグラフはクラスタ平均場近似により計算された反磁性秩序変数の磁場依存性. 方向二色性と反強磁性秩序変数がほぼ同じ磁場依存性を示している.

本研究で対象とした反強磁性体  $\text{Pb}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$  は空間反転の破れた結晶構造を持ち, 巨大方向二色性を示すことで知られる弱強磁性体  $\text{CuB}_2\text{O}_4$  に類似の  $\text{CuO}_4$  平面ユニットを内包する. さらに同ユニットが 4 つ集まり 1 つの正四角台塔と呼ばれる構造ユニットを形成し, 約 7 ケルビン以下で反強磁性秩序を示す. 16 テスラ以下の磁場領域ではこの正四角台塔ユニット中の 4 つのスピンの空間および時間反転対称性を破る磁気四極子型の配列を取り, それが一様に揃うことにより, 強的な磁気四極子秩序を示す. このスピン配列は, マクロな磁化を生み出さないが, 電気磁気光学効果が現れる条件を満たす. そのため, 互いに直交する二つの直線偏光の吸収量に違いが生じる「線二色性」が  $3d$  電子励起のエネルギーに相当する近赤外-可視光領域で発現し, さらに光の進行方向を反転すると線二色性の符号も反転するという「非相反線二色性」と呼ぶべき光学応答を発現する. この線二色性による吸収係数の相対的变化は約 4% と比較的大きく, これを用いた反強磁性ドメインの可視化も実証されている.

今回の研究成果では, 磁気光学分光法とパルス磁場技術を組み合わせることにより,  $\text{Pb}(\text{TiO})\text{Cu}_4(\text{PO}_4)_4$  に数十テスラの強磁場を印加したときに発現する磁場誘起相において 13% を越える顕著な方向二色性が近赤外領域で発現することが明らかとなった. さらに実験で得られた方向二色性シグナルの磁場依存性が, クラスタ平均場近似を用いた計算により得られる反強磁性秩序変

数のそれとよく一致することが見出された(図 1). 数十テスラという定常磁場では到達の難しい強磁場領域において、反強磁性の秩序変数を検出できる測定手法は数少ない. 本結果は、パルス磁場下での方向二色性測定が、強磁場領域における反強磁性秩序変数の検出を可能とする有用な手法となりうることを提示しており、今後のさらなる研究の展開が期待される.

原論文 (11月2日公開済)

[Nonreciprocal Directional Dichroism in a Magnetic-Field-Induced Ferroelectric Phase of  \$\text{Pb}\(\text{TiO}\)\text{Cu}\_4\(\text{PO}\_4\)\_4\$](#)

T. Katsuyoshi, K. Kimura, Z. Yang, Y. Kato, S. Kimura, Y. Motome, Y. Kohama, and T. Kimura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **90**, 123701 (2021).

<情報提供 木村健太 (東京大学)  
木村剛 (東京大学) >