

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 松原 正和

空間反転対称性と時間反転対称性がともに破れた物質においては、誘電性と磁性の結合した新たな光機能が発現する。そのうちの1つである非相対的光学効果（たとえば光の進行方向の反転により変化する光学応答）は、現在までにその研究例はきわめて限られているが、基礎科学的に興味深く、また応用面においても大きなポテンシャルを秘めていることから、現在、この効果を実験的に検証しようとする機運が高まっている。本論文では、反転対称性を持たない強磁性体における非相対的光学効果を、光学領域およびX線領域での磁場変調分光法によって種々の物質系において検証を行った結果を述べている。

本論文は全6章からなる。

第1章では、研究の背景となる非相対的光学効果（電気磁気光学効果あるいは磁気カイラル効果）の一般の特徴および過去の研究例について概観し、しかる後に本研究の目的と本論文の構成を述べている。

第2章では、実験に用いた試料の表面処理法、磁場変調吸収測定やX線磁気散乱法などの実験方法について説明している。

第3章から第5章に、実験結果、解析結果とそれに関する議論が述べられている。

第3章では、極性フェリ磁性体 GaFeO_3 において行った可視・近赤外領域における電気磁気光学効果の結果を説明している。 GaFeO_3 は、自発電気分極と自発磁化を同時に持つことにより時間反転対称性と空間反転対称性が破れている希な物質である。実際、電気双極子・スピン禁制の Fe^{3+} の $d-d$ 遷移に対応するエネルギー領域において、透過光変調成分が 3×10^{-3} という、現在までに知られている電気磁気光学効果の中で最も大きな値が観測された。試料の極性の向き（あるいは光の進行方向）を反転すると得られた信号の符号が反転することなどから、これが同効果であることが確かめられている。この結果、強磁性（フェリ磁性）、強誘電性、焦電性など複数の秩序状態が同一相の中で実現している物質（multiferroics）においては、電気磁気光学効果の増強が期待できるということが明らかになった。

第4章では、同じ GaFeO_3 におけるX線磁気散乱スペクトルの測定から、X線散乱における電気磁気光学効果について議論している。 Fe の K 吸収端、特にプリエッジ近傍において、 $(0\ 2\ 0)$, $(0\ 4\ 0)$ Bragg 反射に対して磁気的な共鳴構造を観測し、構造因子を用いた計算結果との比較などからこれが電気磁気散乱によると結論づけている。このように、従来まで吸収測定や屈折率測定においてのみ観測されていた電気磁気光学効果が、X線散乱においても同様に観測されることが初めて明らかになった。

第5章では、マクロには空間反転対称性が破れていないスピネル型酸化物 Fe_3O_4 と MnCr_2O_4 におけるX線電気磁気散乱について議論している。 Fe_3O_4 での $(2\ 2\ 2)$ Bragg 反射において、プリエッジ近傍で1%にもおよぶ巨大な共鳴成分を観測し、構造因子を用いた計算結果や他の Bragg 反射における結果との比較などから、これが局所的に反転対称性が破れた Fe サイト（A サイト）に起因する電気磁気散乱によって生じていることを明らかにしている。さらに、 Fe-O クラスタにおける局所的な反転対称性の破れとスピン軌道相互作用を考慮した「電気双極子 - 電気四重極子 ($E1-E2$) 干渉機構」によって、得られた電気磁気散乱スペクトルに微視的な解釈を与えている。この結果は、X線散乱を用いればマクロには空間反転対称性が破れていない物質においても電気磁気光学効果が検出できることを意味しており、これによって今まで限られた物質においてのみ観測可能であった電気磁気光学効果を、広い物質系に拡張できることを示した点は高く評価される。

第 6 章では、本研究で得られた成果をまとめている。

本論文には 3 つの補章が設けられている。

付録 A では、X 線磁気散乱の導出、一般論が要約している。

付録 B では、第 4 章、第 5 章で使われている構造因子の具体的な計算が述べている。

付録 C では、第 6 章で議論されている X 線電気磁気散乱におけるスピン軌道相互作用の効果について述べている。

以上をまとめると、本論文では反転対称性が破れた磁性体において期待される電気磁気光学効果を、光学領域の吸収や X 線領域の吸収・散乱における波動ベクトルの反転に関する 2 色性の観察によって調べた。その結果、極性強磁性体における電気磁気光学効果の著しい増強、X 線 Bragg 散乱における共鳴電気磁気散乱の観測、そしてマクロに反転対称性を持つ物質における電気磁気散乱の検出、など多くの新しくかつ重要な学術的知見を得ている。また、スピントロニクス分野への応用という意味においても重要な指針を得た。これらの点で、本研究は物性物理学、物理工学の進展に寄与するところが大きい。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。