

論文の内容の要旨

論文題目 **Optical Magnetoelectric Effect in Noncentrosymmetric Magnets**
(非反転対称磁性体における光学的電気磁気効果)

氏名 嶋田 義皓

(本文)

(1-1)序論

光は相反性という性質を持ち、前向きと後ろ向きに進む光の区別は一般には困難です。この性質を保証している相反定理を破る物質では、非相反的な光学応答が期待できます。光学的電気磁気(OME)効果は時間・空間反転対称性が共に破れた系でのみ発現する新しい非相反的な光学効果です。OME 効果は、電気磁気(ME)効果を光の周波数領域へ拡張したものと考えることができ、光学応答が \mathbf{k} ベクトルに依存する性質(方向二色性)を持つことが言えます。これまで、極性フェリ磁性体 GaFeO_3 やキラル常磁性体 $\text{Eu}((\pm)\text{tfc})_3$ などにおいて、非相反的な光学応答を示すことが実験的に検証されています。

(1-2)本研究の目的

本研究は以下の3点を主な目的として行われました。

- ① 非反転対称磁性体のプロトタイプである希土類イオンドープ強誘電体における OME 効果の検証。
- ② 結晶場・希土類イオン種などの系統的变化による OME 効果の発現メカニズム解明。
- ③ OME 効果における振動子強度移送量の定性・定量的な解析。

(1-3)本論文の構成

本論文は以下の6章で構成されています。

1. Introduction
2. Experimental
3. Magnetoelectric Emission in $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3:\text{Er}^{3+}$
4. Magnetoelectric Emission in $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7:\text{R}^{3+}$ ($\text{R}=\text{Er, Eu, Nd}$)
5. Nonreciprocal Directional Dichroism in $\text{Nd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$
6. Conclusion

第1章では OME 効果の研究背景やこれまでの先行研究の例を紹介し、本研究の目的を述べています。第2章では実験手法について触れています。第3章から第5章では、本研究によって得られた結果である、「Er ドープ $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$ の発光における光学的電気磁気効果」、「 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7:\text{R}^{3+}$

($R=Er, Eu, Nd$)の発光における光学的電気磁気効果、「強誘電性 $Nd_2Ti_2O_7$ における非相反的方向二色性」について述べ、実験結果に基づき議論しました。第6章でまとめと結論を述べます。

(2)実験手法

本研究における方向二色性の測定は磁場変調分光法によって行いました。例として、発光における磁場変調測定の場合を示します。半導体レーザー(波長 980nm)により励起された Er^{3+} からの発光を光ファイバーで分光器に導き、光電子増倍管(PMT)で検出します。 $f=5\text{Hz}$ の交流磁場 H を $k \perp P \perp H$ となる方向に加え、発光強度の変動 ΔI をロックイン検出します。

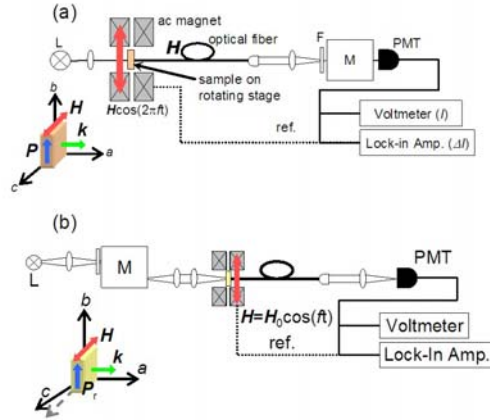


図2.1 (a)発光および(b)吸収における磁場変調分光測定の光学系。

(3)Magnetoelectric Emission in $(Ba,Sr)TiO_3:Er^{3+}$

磁性を持つ Er^{3+} イオンが反転対称性の無い Ti サイトを占める Er^{3+} 添加 $(Ba,Sr)TiO_3$ 単結晶を作製し OME 効果の検証を行いました。図 3.1(a),(b)に示すように、室温において強誘電・常磁性的な振る舞いが見られます。強誘電性結晶の場合、外部磁場を自発分極 P と垂直な方向に印加した場合に、それらと垂直な k ベクトルを持つ発光において OME 効果の発現が期待されます。図 3.2(a),(b)に、室温で得られた Er^{3+} の $^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 遷移における発光スペクトルと OME スペクトルを示しました。 P の反転によるスペクトルの符号の反転から、Faraday 効果ではないことを確認しました。得られたスペクトルの温度依存性から、微視的起源について議論しました。

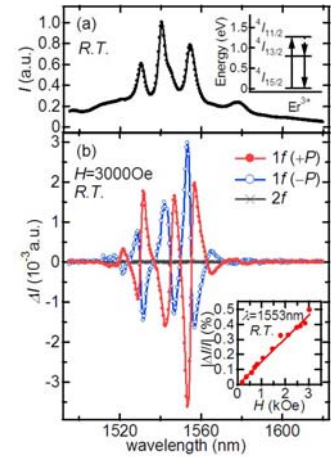


図3.2 (Ba,Sr)TiO₃:Er³⁺の室温における(a)発光、(b)OMEスペクトル。

(4)Magnetoelectric Emission in $La_2Ti_2O_7:R^{3+}$ ($R=Er, Eu, Nd$)

希土類元素を含む強誘電性酸化物 $La_2Ti_2O_7$ に注目し、反転中心の無い La サイトを磁性希土類元素 R^{3+} ($R=Nd, Eu, Er$) で 0.5 % 程度置換した $La_2Ti_2O_7:R^{3+}$ 単結晶を作製し、発光における OME 効果の検証を行いました。

その結果、図 4.1, 2 に示すように、 Eu^{3+} の $^5D_0 \rightarrow ^7F_1$ 遷移および Er^{3+} の $^4I_{13/2} \rightarrow ^4I_{15/2}$ 遷移において OME 効果による磁場変調スペクトル (ΔI) が得られました。電気分極の反転で ΔI の符号が反転することから、得られた ΔI スペクトルが Faraday 効果によるものではない

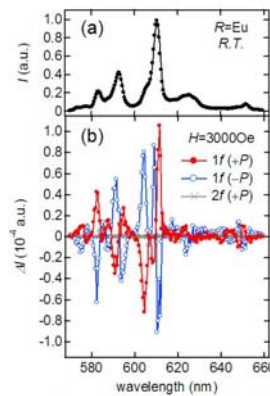


図4.1 $R=Eu$ における発光(a)、および磁場変調(b)スペクトル。

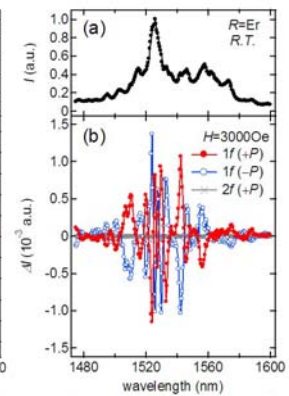


図4.2 $R=Er$ における発光(a)、および磁場変調(b)スペクトル。

いことを確認しました。一方で、 Nd^{3+} の ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 遷移では OME 効果は観測されませんでした。希土類元素ごとに異なるスピン軌道相互作用、励起状態の J の大きさ、電気・磁気双極子遷移の選択則などから、OME 効果の微視的起源について議論しました。

(5) Nonreciprocal Directional Dichroism in $\text{Nd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$

反転中心のない結晶場におかれた希土類元素を含む強誘電性酸化物 $\text{Nd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ に注目し、吸収における OME 効果の検証を磁場変調吸収測定により行いました。強誘電分極 \mathbf{P} に直交するように磁場 \mathbf{H} を印加し、それらと直交する方向に光を入射したとき ($\mathbf{P} \perp \mathbf{H} \perp \mathbf{k}$) に OME 効果に起因する方向二色性が生じると予想されます。

吸収スペクトルには Nd^{3+} の ff 遷移による構造が数多く見られ、Judd-Ofelt 理論により定量的にアサインを行いました。

図 5.1 にはそれぞれの遷移での $H=3\text{kOe}$ 、 5Hz の振動磁場下での磁場変調スペクトル ($\Delta\alpha t$) を示しました。

\mathbf{P} の反転に伴う $\Delta\alpha t$ の符号反転によって、得られた

$\Delta\alpha t$ スペクトルが OME 効果に起因するものであることを確認してあります。9 つの $2S+1L_J$ 状態について測定を行い、Judd-Ofelt 理論をもとにした電気・磁気双極子遷移の選択則から、OME 効果の遷移依存性について半定量的に議論しました。

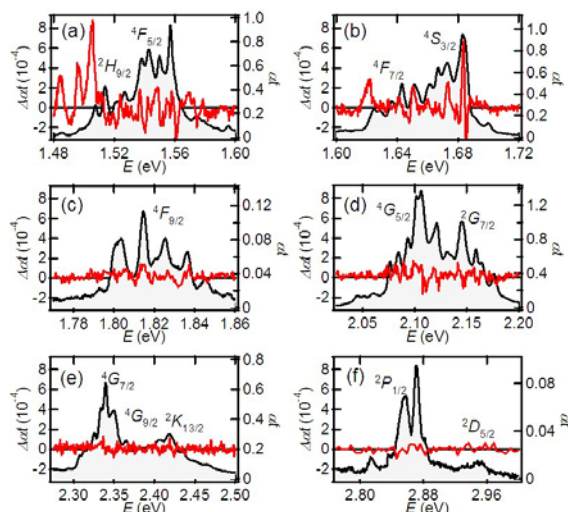


図 5.1 $\text{Nd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の室温における非相反的方向二色性スペクトル。

(6) 結論

強誘電体中の様々な希土類イオンの ff 遷移において OME 効果による非相反的な光学応答を検証し、下記の知見を新たに得ました。

- ① $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3:\text{Er}^{3+}$ の ff 遷移発光において室温・ 3kOe 磁場下で 0.5% もの大きな非相反性を観測しました。温度依存性から励起状態の分裂が主要であることが分かりました。
- ② $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7:\text{R}^{3+}$ ($\text{R}=\text{Er, Eu, Nd}$) の発光における OME 効果を検証し、非相反性と原子変位・スピン軌道相互作用・ $M1$ 遷移選択則から、微視的メカニズムを定性的に説明しました。
- ③ $\text{Nd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ における Nd^{3+} の 9 つの ff 遷移吸収について非相反的方向二色性スペクトルを測定しました。OME 効果による $E1-M1$ 振動子強度移送量を半定量的に解析しました。