

フラストレート磁性体のエレクトロマグノンに関する研究

Electromagnon excitation in frustrated magnets

木村 尚次郎¹, 澤田 祐也¹, 渡辺 和雄¹, 藤田 崇仁², 萩原 政幸², 山口 博則³, 柏木 隆成⁴, 寺田 典樹⁵

¹東北大・金研, ²大阪大・極限セ, ³大阪府大・理, ⁴筑波大・数理物質, ⁵物材機構

S. Kimura¹, Y. Sawada¹, K. Watanabe¹, T. Fujita², M. Hagiwara², H. Yamaguchi³, T. Kashiwagi⁴ and N. Terada⁵

¹ Institute for Materials Research, Tohoku University

² KYOKUGEN, Osaka University

³ Department of Physical Science, Osaka Prefecture University

⁴ Graduate School of Pure and Applied Science, University of Tsukuba

⁵ National Institute for Materials Science

1. はじめに

現在マルチフェロイック物質等で精力的に研究されている電気磁気効果の重要な点は、共役でないため通常は小さな値しかとり得ない磁場に対する電気分極あるいは、電場に対するスピンの特異な巨大(交差)応答が起り得ることである。なかでも特に興味深い現象が、スピンと電気分極の結合を通じて、磁性体の基本的素励起であるスピン波を光の振動電場により励起するエレクトロマグノンと呼ばれる現象である。この現象は電子スピンの集団運動をテラヘルツ領域の光電場で駆動する顕著な動的交差応答現象であり、その特性の評価と励起機構の解明が極めて重要視されている。本研究では、三角格子反強磁性体 CuFeO_2 の強磁場磁気相にエレクトロマグノンが現れることを高周波 ESR 測定によって明らかにした。

CuFeO_2 は、低温で逐次相転移を示し $T_{N2} = 11 \text{ K}$ 以下の最低温反強磁性相において四副格子で記述される up-up-down-down のスピン構造をとる[1]。また磁化容易軸である c 軸方向に磁場を印加すると、多段の磁場誘起転移を示し[2, 3]、第一磁場誘起らせん磁気相において自発電気分極を発生する[4]。この物質の ESR 測定において、通常の磁気双極子遷移では励起できない禁制磁気励起モードが強い信号強度をもって観測されている[5-7]。Fig. 1 にスピン波計算によって得られた反強磁性相及び、第二磁場誘起 1/5 プラトー相における禁制遷移の励起に伴うスピンの歳差運動を図示する。反強磁性相では、up 及び、down スピン同士が互いに 180° 位相をずらして歳差運動するため、スピンの振動成分を打ち消し合う。また 1/5 プラトー相では、3-up 2-down に配列したスピンのうち、一つの up スピンが静止し、残りのスピンの場合と同様に振動成分を打ち消し合う。このような打ち消し合いが生じる ESR モードは電磁波の振動磁場成分とは結合できない。これに関して、最近、テラヘルツ時間領域分光が行われ、反強磁性相の禁制モードが電磁場の振動電場と結合して励起されることが明らかとなった[6]。注目すべきは、この禁制モードがベクトルスピカイラリティー $\mathbf{c} = \sum \mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j$ の振動を伴っている点である。すなわち、スピンの歳差運動に伴い平衡方向から傾く際、有限の

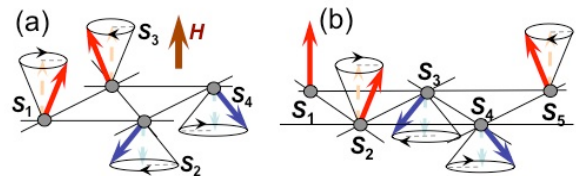


Fig.1 Precession motion of spins for the forbidden ESR modes in the (a) antiferromagnetic and (b) 1/5-plateau phases

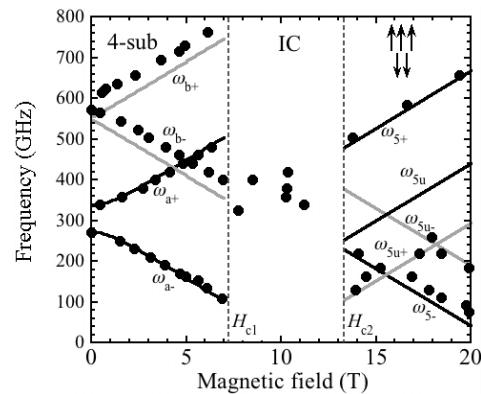


Fig.2 Frequency-field diagram of the ESR modes in CuFeO_2

ベクトルスピカイラリティーが生じ、これが歳差運動と同じ周波数で振動する。このことは、ベクトルスピカイラリティーの発生によって誘起された動的電気分極が光電場と結合してエレクトロマグノン励起が生じていることを示唆する。我々のスピン波計算によると 1/5 プラトー相と第三磁場誘起 1/3 プラトー相の禁制モードも同様のスピカイラリティーを伴っている。そこで 1/5 プラトー相の禁制 ESR モードが振動電場によって励起されうるかを調べるため、直線偏光を用いた強磁場 ESR 測定を行った[8]。

2. 実験方法

CuFeO_2 の偏光 ESR 測定を行うため金研強磁場センターにライトパイプを用いた透過型の高周波 ESR 装置を立ち上げた。ミリ波光源には発振周波数 81 GHz の Gunn 発振器を用い、てい倍器によって周波数を 2 倍して測定を行った。マグネットは液体ヘリウム浸漬冷却型 18 テスラ超伝導磁石を用いた。偏光実験を行う際の試料配置等に関する詳細は次節

で述べる。フローティングゾーン法で作製した CuFeO_2 単結晶試料を測定に用いた。

3. 実験結果

Fig. 2 にこれまでの $H//c$ の測定で得られた CuFeO_2 の ESR モードを示す。黒及び、灰色で示した理論曲線がそれぞれ許容及び、禁制 ESR モードである。また点線は転移磁場を示し、 $H < 7\text{T}$ の領域が反強磁性相、 $7\text{T} < H < 13\text{T}$ がらせん磁気相、 $13\text{T} < H < 20\text{T}$ が 1/5 プラトー相である。これまでの測定では全ての ESR 信号は Faraday 配置で c 軸に平行に伝搬する電磁波を試料に照射し観測された。このことは、それぞれの ESR モードは電磁波の c 軸に垂直に振動する磁場あるいは電場成分と結合して励起されることを示している。そこで、振動磁場と電場、どちらと結合するのかを判定するため、Fig. 3 の様な偏光 ESR 実験を行った。電磁波が c 軸に垂直に入射する様に試料を Voigt 配置し、その手前にワイヤグリッド偏光子を置いて直線偏光を照射する。この偏光子の向きを変えることで、ESR 信号強度の偏光方向に対する依存性を測定する。Fig. 4 は、電磁波の周波数 162 GHz、温度 1.5 K で観測された ESR スペクトルの偏光依存性である。5 T 付近で観測された ω_a 及び、17 T 付近の ω_{5-} モードは許容遷移、14.5 T 付近の ω_{5u+} モードが 1/5 プラトー相の禁制遷移である。それぞれの信号強度が偏光方向の 90° 回転に伴って急激に変化しており、その増減の偏光依存性は許容遷移と禁制遷移とで逆転している。すなわち、許容モードは静磁場方向である c 軸に対し振動磁場 h が垂直に加えられたときに強い ESR 信号を示すのに対し、禁制遷移は c 軸に垂直に振動電場 e がかった際、信号強度が大きく増す。これらの振る舞いは、許容モードが振動磁場による通常の磁気双極子遷移で励起されるのに対して、禁制モードは振動電場によって励起されることを示している。以上の結果から、1/5 プラトー相における禁制モードもエレクトロマグノン励起されることが明らかになった。20 T 以上の磁場領域で現れる 1/3 プラトー相の禁制モードにおいても同様の振る舞いが予想されることから、我々はエレクトロマグノンの発生は CuFeO_2 の collinear なスピン構造をとる磁気相に共通する特徴であると考えている。今後、ハイブリッドマグネットを用いて 1/3 プラトー相に関する偏光 ESR 実験を行い、この予想を検証する予定である。

謝辞

強磁場 ESR 測定装置の立ち上げにあたりご助力いただいた理化学研究所 大島勇吾博士と東北大学金属材料研究所 野尻浩之教授、実験結果について有益なご助言をいただいた東京大学大学院新領域創成科学研究科 有馬孝尚教授に感謝いたします。

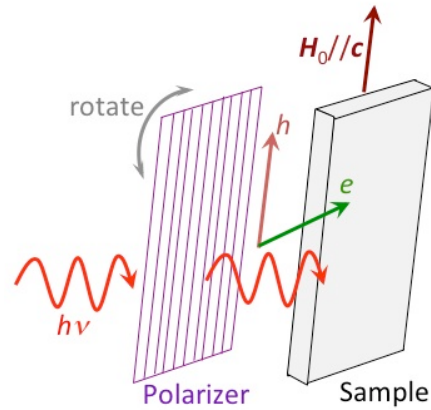


Fig. 3 ESR measurement using polarized light

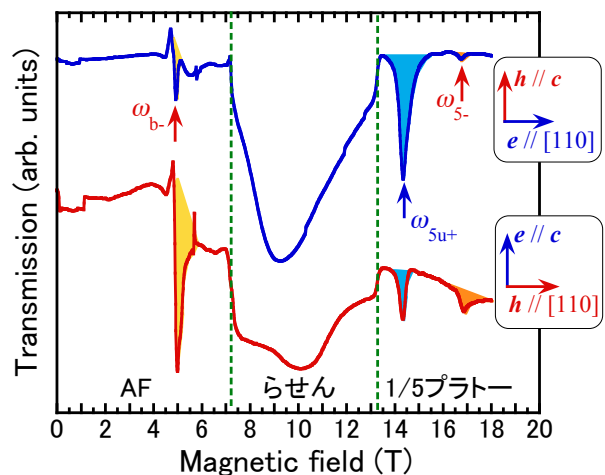


Fig. 4 Polarization dependence of the ESR spectrum observed in CuFeO_2 at 1.5 K.

参考文献

- [1] M. Mekata, N. Yaguchi, T. Takagi, T. Sugino, S. Mitsuda, H. Yoshizawa, N. Hosoito, and T. Shinjyo, J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 3643.
- [2] Y. Ajiro, K. Hanasaki, T. Asano, T. Takagi, M. Mekata, H. A. Katori, and T. Goto, J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 3643.
- [3] T. T. A. Lummen, C. Strohm, H. Rakoto, and P. H. M. van Loosdrecht, Phys. Rev. B **81** (2010) 224420.
- [4] T. Kimura, J. C. Lashley and A. P. Ramirez, Phys. Rev. B **73** (2006) 220401R.
- [5] T. Fukuda, H. Nojiri, M. Motokawa, T. Asano, M. Mekata, and Y. Ajiro, Physica B **246-247** (1998) 569.
- [6] S. Seki, N. Kida, S. Kumakura, R. Shimano, and Y. Tokura, Phys. Rev. Lett. **105** (2010) 097207.
- [7] S. Kimura, T. Fujita, N. Nishihagi, H. Yamaguchi, T. Kashiwagi, and M. Hagiwara, Phys. Rev. B **84** (2011) 104449.
- [8] S. Kimura, K. Watanabe, T. Fujita, H. Yamaguchi, T. Kashiwagi, and M. Hagiwara, J. Low. Temp. Phys. **70** (2013) 274.