

最近の研究から

X線領域の非相反的方向二色性

有馬孝尚^{1,2,*}、久保田正人^{1,3}、十倉好紀^{1,4,5}、澤博³

¹ 科学技術振興機構 ERATO、² 筑波大学数理物質科学研究科、³ 物質構造科学研究所

⁴ 産業技術総合研究所、⁵ 東京大学工学系研究科、* 現東北大学多元物質科学研究所

X-ray Non-reciprocal Directional Dichroism

ARIMA Taka-hisa^{1,2}, KUBOTA Masato^{1,3}, TOKURA Yoshinori^{1,4,5}, SAWA Hiroshi³

¹ERATO, Japan Science and Technology Agency, ²Institute of Materials Science, University of Tsukuba,

³Institute of Materials Structure Science, ⁴National Institute of Advanced Industrial Science and Technology,

⁵Department of Applied Physics, University of Tokyo

1. はじめに

近年、固体物性関連の論文において multi-ferroics という新語を見かけます。まだ対応する日本語は作られていないようですが、多重強秩序とでも翻訳すべきでしょう。具体的には、強磁性と強誘電性あるいは強弾性の共存する状態を指します。多重強秩序系が興味を持たれる理由はいくつかあります。その一つが、多重強秩序系が示すと予測されている特異な磁気光学効果です。この磁気光学は non-reciprocal magneto-optics と呼ばれ、電磁波の波数ベクトル \mathbf{k} と磁化 \mathbf{M} に線形な屈折率や吸収の変化として特徴付けられます。電磁波の吸収が \mathbf{k} に比例するという事は、電磁波の進行方向の正負で吸収が異なることを意味します。極端に言えば、マジックミラーのような性質です。しかも、磁化にも比例する応答ですから、磁化反転によってこのマジックミラーの表と裏が入れ替わります。

このような電磁波の進行方向に対する non-reciprocal (非相反のと訳しておく) な二色性は \mathbf{k} に比例する項に由来するので、X線領域で増大する可能性があります。もちろん、関係する電子遷移の性質が変わるため本当にそうなるかどうかはわかりませんが、検証する価値は十分にあるでしょう。また、X線領域の分光は一般的に優れた元素選択性を持つため、X線非相反的方向二色性も特異な検出技術として活用されるようになるかもしれません。非相反的二色性は空間反転対称性が破れた部分のみから生じますから、例えば磁性超格子の界面磁性の研究などに応用することができるとも考えられます。

最近、筆者のグループは典型的な極性磁性体である GaFeO_3 について X 線非相反的方向二色性 (X-ray Non-reciprocal Directional Dichroism; XNDD) を測定することに成功しました。その結果、XNDD は極性磁性体の中のトロイダルモーメントの総和を検出していると解釈できることが分かりました。ここで、トロイダル (toroidal) モーメント $\boldsymbol{\tau}$ は、磁気モーメント分布の多重極展開の中に現れる物理量、磁気モーメント $\boldsymbol{\mu}$ を持つ磁性イオンが局所的な反転中心から \mathbf{u} だけ変位した場合に

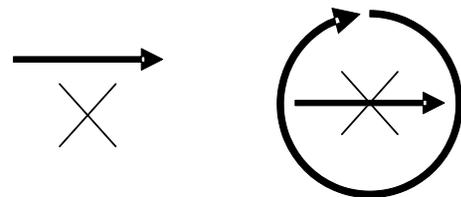


Figure 1 Left figure schematically shows a magnetic moment (an arrow) at a site displaced from the inversion center (a cross). Right shows toroidal (a circle with an arrow) and a magnetic moment at the center. The both become identical in the small-displacement limit.

$$\boldsymbol{\tau} \equiv \frac{\mathbf{u} \times \boldsymbol{\mu}}{4} \quad (1)$$

として定義されます [1,2]。ところで、トロイダルとは元来磁界ベクトルがリング状に閉じた状況です。磁気モーメントを持つイオンが変位した状況を遠くから眺めると、磁気モーメントが中心にある状態と比べてトロイダルが発生したように見える (Fig. 1) ことから、式 (1) の定義が理解できます。なぜ XNDD によってトロイダルモーメントが検出できるのでしょうか。以下、実験結果とその解釈について述べます。

2. X線非相反的方向二色性 XNDD

自発的に電気分極と磁化を併せ持つ系では、一般的に非相反の磁気光学が存在します。このことは対称性に関する簡単な考察によって示すことができます [3,4]。例えば自発電気分極 \mathbf{P}_0 と磁化 \mathbf{M}_0 が平行でない場合、磁化にも電気分極にも垂直な方向に電磁波を入射させると、方向二色性が存在するのです。簡単のため自発磁化、自発電気分極、電磁波の進行方向がすべて直交する場合を考えます。電磁波の波数ベクトルに垂直な鏡映操作では、電気分極は反転しませんが磁化の向きが反転します (Fig. 2 中央)。電気分極の方向の周りに 180 度回転操作を行うと、電気分極が反転せずに磁化方向が反転します。磁化の方向の周りに 180 度回転操作を施すと、磁化の向きが変化せずに電気分極が反転します。空間反転操作では、磁化の向きが変

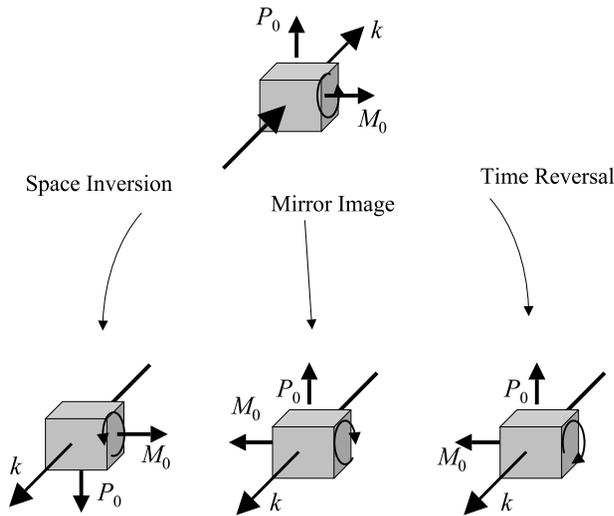


Figure 2 Suppose that an x ray is propagated perpendicular both to the spontaneous magnetization and to the spontaneous polarization in a polar magnet. The triple product $\mathbf{k} \cdot \mathbf{P}_0 \times \mathbf{M}_0$ will be invariant under any space or time operations. The cases of the positive and negative triple product can be distinguished from each other. The x-ray absorption is dependent on the propagation direction. (Excerpt from Ref. [3])

化せず電気分極が反転します (Fig.2 左)。時間反転操作を行うと、電気分極が変化せず磁化が反転します (Fig. 2 右)。このように、どのような対称操作を行っても、自発電気分極 \mathbf{P}_0 、自発磁化 \mathbf{M}_0 、電磁波の波数ベクトル \mathbf{k} のうち2つが反転するのです。数式を使うと次のように表現することができます。

どのような座標変換操作を行っても \mathbf{k} 、 \mathbf{P}_0 、 \mathbf{M}_0 の三重積 $\mathbf{k} \cdot \mathbf{P}_0 \times \mathbf{M}_0$ の符号は入れ替わらない。よって、この三重積の符号が正の場合と負の場合は異なる状況として区別することができ、異なる光学定数を持つてよい。

一方、非相対的磁気光学効果の大きさは対称性の議論からは分かりません。その大きさを予測する上では、どのような遷移過程が非相対的磁気光学に寄与するかが重要になります。今、角周波数 ω の外場 (光の電場、磁場) が作用したときに物質に生じる誘起分極 $\Delta P(\omega)$ を考えましょう。この応答の中で、光の波数ベクトル \mathbf{k} と磁化 \mathbf{M}_0 の両者に比例する項が非相対的磁気光学に対応します。例えば、光の電気四重極子の作用により誘起された電気分極が自発磁化の影響により変化することにより非相対的磁気光学が生じます。これに対応する応答関数 χ_{jlm} は、

$$\chi_{jlm} \propto \frac{1}{\omega} \sum_{n,n'} \frac{\langle 0 | P_j | n' \rangle \langle n' | \lambda \mathbf{L} \cdot \mathbf{S} | n \rangle \langle n | Q_m | 0 \rangle}{(E_n - \eta\omega)(E_n - \eta\omega)}$$

(およびこの式で Q_m と P_j を入れ替えたもの) で表すことができます [5]。ここで、添え字 j, l, m はそれぞれ誘起電

気分極ベクトル、電磁波の波数ベクトル、電磁波の偏光の方向を表します。また、 $P_j, \lambda \mathbf{L} \cdot \mathbf{S}, Q_m$ はそれぞれ電気双極子 (E1) 遷移、スピン軌道相互作用、電気四重極子 (E2) 遷移に対応した演算子です。E2 遷移許容な準位 n と E1 遷移許容な準位 n' がスピン軌道相互作用によって混成するとき、その近傍の光子エネルギーで共鳴増大が起きることがわかります。なお、電気四重極子遷移を磁気双極子遷移で置き換えた項からも非相対的磁気光学が生じます。

3d 遷移金属化合物の場合には、部分占有された 3d 準位に関連する光吸収が非相対的磁気光学に寄与するでしょう。例えば、遷移金属の原子内 $d-d$ 遷移、配位子から遷移金属への電荷移動遷移、遷移金属の内殻電子の d 準位への励起などです。硬 X 線領域では、遷移金属の K 殻から 3d 準位への E2 遷移が狙い目だと考えられます。

3. 実験方法

実験には産業技術総合研究所が文部科学省学術創成研究プログラムと共同で建設した BL-1A を使いました。このビームラインは自由度が高く、新奇の X 線磁気分光のような試験的な実験を行なうのに適しているのです。

今回測定対象として選んだ GaFeO_3 は斜方晶系に属しその自発分極は b 軸方向にあります。205 K 以下で強磁性 (正確にはフェリ磁性) 状態となり、磁化容易軸は c 軸です [2,6,7,8]。したがって、X 線の進行方向が a 軸に平行な場合に $\mathbf{k} \cdot \mathbf{P}_0 \times \mathbf{M}_0$ の正負で吸収スペクトルが変化すると期待されます。より詳細にこの系の結晶構造を見ましょう。Fig. 3 に示すように、酸素が (010) 面内で層を形成し、その空隙を Ga と高スピンの Fe が占めます。Fe のサイトは 2 種類あり、Fe1 が +0.26Å, Fe2 が -0.11Å だけ b 軸方向に変位しています。Fe1 と Fe2 のスピンは T_c 以下で反強磁性的に整列しそれらは c 軸にほぼ平行です。それぞれのサイトで a 軸方向に同じ向きのトロイダルモーメントが発生することになります。

X 線吸収の測定には光電子や X 線蛍光を測定するなどいくつかの方法があるようですが、我々は原理どおり薄い試料の透過 X 線を測定するという方法を採用しました。透過 X 線の強度はかなり弱くなるので、長い ionization chamber

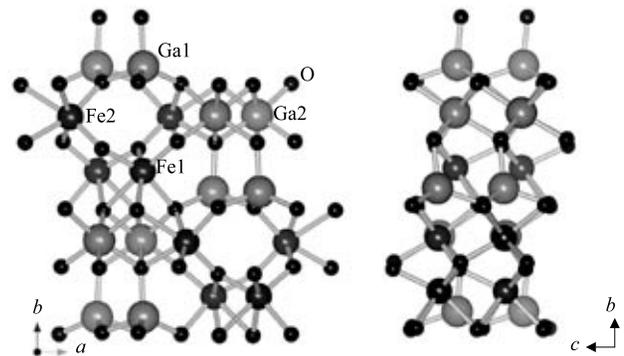


Figure 3 Crystal structure of GaFeO_3 . Small solid circles: oxygen. Large circles: iron and gallium. The Ga sites are partially occupied by Fe, and vice versa. Spin moments on Fe1 and Fe2 sites are antiferromagnetically aligned below $T_c \sim 205$ K.

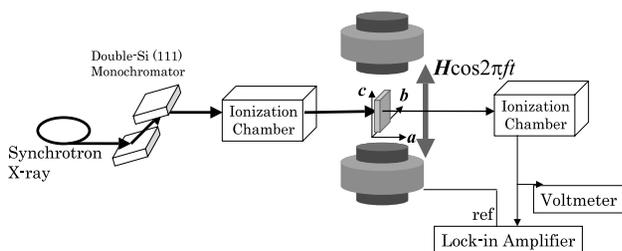


Figure 4 Block diagram of the measurement system of x-ray non-reciprocal directional dichroism.

によって測定しました。また、X線方向二色性の測定といっても放射光X線の進行方向を逆向きにすることはほぼ不可能です。したがって、自発磁化か自発分極の反転に伴う吸収変化を測定することになります。GaFeO₃は外部電場によって電気分極を反転することができない焦電体ですので、自発磁化の反転に伴う吸収変化を測定しました。測定上最も問題となったのは、どのようにして自発磁化の反転を行うかという点です。まず永久磁石によって磁場を印加する方法を試してみました。永久磁石を用いて試料のc軸方向に磁場を印加してX線透過率を測定し、その後永久磁石を反転して再度透過率を測定するという測定を繰り返しました。結論から言うと、この方法は失敗に終わりました。永久磁石の回転にかかる時間が長すぎて、X線強度の減衰が影響してしまうようです。ただしこれは、検出器として用いた ionization chamber や電流電圧変換器のゼロ点補正がうまくいっていないためX線強度の減衰をモニター強度で補正しきれないなどの可能性もあります。私たちは、永久磁石ではなく交流電磁石を用いた磁場変調法を試しました。測定系のブロック図を Fig. 4 に示します。磁場を印加するために振幅 50mT、周波数 10Hz の交流電磁石を用意しました。その磁場中に、冷凍機にマウントした試料を設置します。Bending Magnet から放射されたX線はシリコン(111)の2結晶分光器によって単色化されています。このX線をビーム強度モニター用の短い ionization chamber、薄片試料、長い透過X線測定用の ionization chamber の順に透過させます。後段の ionization chamber の信号を電流電圧変換したのち、直流成分をデジタルボルトメータによって、磁化で変調された成分をロックインアンプによって同時に測定します。この測定系により、波長1点あたり150秒から600秒程度の積算により直流成分の10⁻⁵の精度で磁場変調成分を検出することができました [3,4]。

なお、最終的に得たい XNDD スペクトルは透過光強度の変化量 ΔI そのものではなく、吸収が磁場の反転に対してどれだけ変化するかです。透過X線強度 I が ΔI だけ変化するとき、吸収 μt の磁化反転による変化は

$$\Delta \mu t = -\frac{\Delta I}{I}$$

と計算できます。

ところで、極性磁性体では一般的に自発分極の方向が

光学軸になっているはずですが、X線吸収の場合もX線の偏光が自発分極に平行か垂直かで違いがあります。XNDD スペクトルにも異方性が見られるでしょう。したがって、GaFe₃でもX線の偏光がb軸に平行な場合とc軸に平行な場合の二通りについて測定を行う必要があります。実験上では、偏光状態を変えるか試料およびそれに付随する磁石の向きを変えるかのどちらかが必要です。移相子等による偏光制御ができればよいのですが、BL-1Aの場合は横方向のビーム発散角が大きいためダイヤモンド移相子による偏光制御はうまくいきませんでした。そこで、Huber 回折計に磁石と冷凍機を設置して、それを光軸周りに90度回転させて測定を行いました。得られた信号が他のX線磁気光学(磁気円二色性やコットンムートン効果)によるものでなくXNDDであることは、交流磁場に対する透過光強度変化の高調波成分の測定、信号の温度依存性と磁化の温度依存性の比較、および信号の磁場印加方向依存性の測定などによって慎重に確かめました [4]。

4. XNDD スペクトルとその解釈 (文献 [4])

磁気相転移点より十分に低温の50 Kで測定したGaFeO₃のX線吸収スペクトルとXNDDスペクトルを Fig. 5 に示します。エネルギー領域はFeのK吸収端近傍です。X線吸収スペクトルの7.12 keVより高エネルギー側に見られる大きな立ち上がりはFeの1sから4pへの遷移によるものです。これをmain edgeと呼んでいます。その少し低エネルギー側(7.113 keV付近)に小さな構造が見られます。これは1sから3dへの遷移によるX線吸収で、pre-edgeと呼ばれます。XNDDスペクトルには次のような特徴が見られます。

- 1) Pre-edge 領域と main edge 領域を比べると、前者のエネルギーで大きな方向二色性を示す。
- 2) Pre-edge 領域の方向二色性は3eVほど離れた位置に正負のピークを有する。
- 3) 測定範囲でXNDDスペクトルを積分すると、大まかにゼロに近い。
- 4) X線の偏光によってXNDDスペクトルの形状が異なる。特に、pre-edge 領域では符号が反転する。

これらの特徴は何を意味するのでしょうか。1)は3d準位に働くスピン軌道相互作用が重要であることを意味しているでしょう。2)は3d準位の配位子場分裂との関係を示唆します。3)は振動子強度の再配分を示唆し、4)には偏光による励起状態の選択則が影響しているはずです。

XNDDが生じる過程を考え合わせれば、次のような解釈が成り立つと考えています。GaFeO₃のFeは主に歪んだ八面体サイトを占めています。今、一つのFeO₆八面体を考えましょう。斜方晶のa, b, c軸に沿って局所的な直交座標x, y, zをとると、3d軌道は配位子場により近似的に、エネルギーの低い $d_{3y^2-r^2}$, d_{xy} , $d_{z^2-x^2}$ (t)とエネルギーの高い d_{xy} , d_{yz} (e)に分裂します。ここで、x,y,z軸が通常の八面体配位の場合とは異なることに注意が必要です。この座標系では

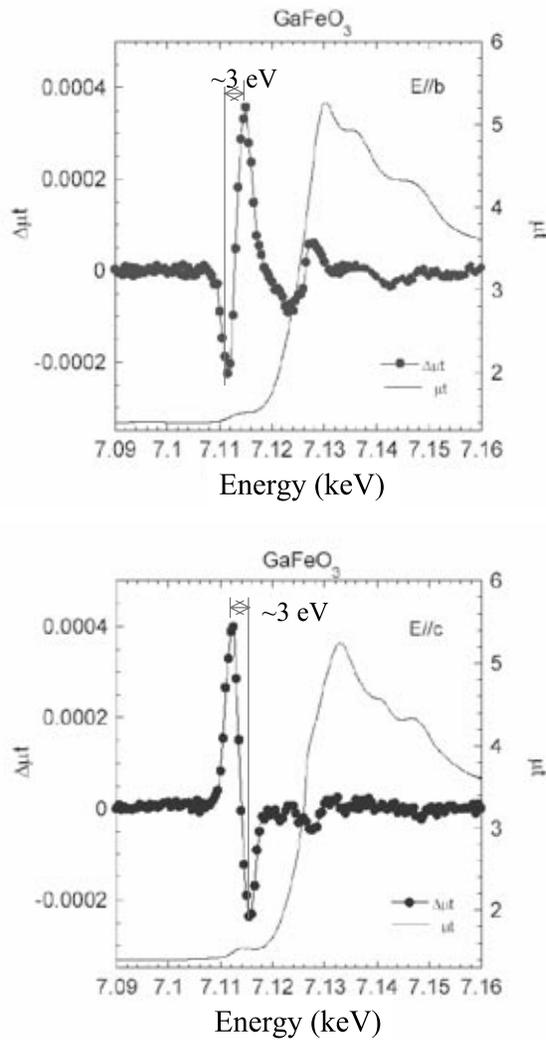


Figure 5 Spectra of x-ray absorption and x-ray non-reciprocal directional dichroism in GaFeO₃. (Excerpt from Ref. [4])

スピンモーメントはz軸に平行になります。そこで、スピン軌道相互作用は、 d_{zx} と d_{yz} 、 $d_{3y^2-r^2}$ 、 $d_{z^2-x^2}$ と d_{xy} の間にそれぞれ働きます。さて、一電子的な描像に立つと pre-edge 吸収の始状態は $1s$ で終状態は $3d$ です。四重極子遷移の終状態は、X線の偏光が $E^{\circ} // b$, $E^{\circ} // c$ の場合にそれぞれ d_{yz} , d_{zx} となります。一方、E1 遷移は正八面体配位ならば $1s$ と $3d$ の間では禁制です。E1 遷移と E2 遷移の干渉が起きるためには GaFeO₃ の FeO₆ 八面体の歪が重要な役割を果たしていると考えました。非相対的磁気光学に有効な歪は、バルクの電気分極の方向、すなわち y 軸方向への原子変位だと考えてよいでしょう。そのほかの局所的な非相対的磁気光学成分は、各 Fe サイトにおける磁気光学応答の総和をとると結晶の持つ対称性により消えてしまいます。そこで、摂動として y 方向にポテンシャル勾配を考えます。すると、 $3d$ 準位が部分的に電気双極子許容となります。具体的には、 $E^{\circ} // b$, $E^{\circ} // c$ のそれぞれの場合について、 $d_{3y^2-r^2}$ および d_{yz} が E1 遷移許容となります。以上をまとめると、例えば $E^{\circ} // c$ の場合次のように書くことができます。

自発分極によって電気双極子許容となった $1s$ - $3d_{yz}$ 励

起と元来電気四重極子許容の $1s$ - $3d_{zx}$ 励起についてスピン軌道相互作用により終状態に混成が生じ、二つの遷移過程の間に干渉が起きる。スピンの反転するとスピン軌道相互作用による軌道の混成の位相も 180 度変化するので遷移の干渉の符号が反転し、振動子強度の増減が起きる。

$E^{\circ} // b$ の場合も同様のシナリオが成り立ちます。もう少し緻密に考えれば、main edge における小さな変調信号も含めて実験結果を説明することができます [1,2]。これをまとめたものが Fig. 6 です。このように、FeO₆ クラスタモデルを用いることで XNDD スペクトルを定性的に説明することができます。例えば、先に述べた XNDD の特徴の 2 項目は配位子場分裂に対応することになりますし、3 項目は振動子強度がやり取りされる事情から自然に説明されます。では定量性はどうか。XNDD の大きさ自体は吸収強度の 10^{-4} のオーダーですが、pre-edge 領域における X 線吸収の中で $1s$ - $3d$ 遷移の寄与は数 % しかありません。その他はより浅い内殻電子が真空準位を越えるような励起による吸収です。その意味では、 $1s$ - $3d$ 遷移自体に対する非相対的な項は 10^{-2} のオーダーと考えてよいでしょう。配位子場分裂 (10^4cm^{-1}) とスピン軌道相互作用の大きさ (10^2cm^{-1}) の比が $10^2:1$ のオーダーであることを考えると、このモデルが定量的にも XNDD をうまく説明できているように思います。

GaFeO₃ の XNDD がひとつの Fe イオンのみを含むクラスタモデルで説明することができました。したがって、微視的にはバルクの自発電気分極と自発磁化の外積によって X 線非相対的磁気光学効果が生じるという群論の見方を少し修正したほうがよいでしょう。すなわち、微視的な反転対称の破れ (変位 \mathbf{u}_i) と磁気モーメント $\boldsymbol{\mu}_i$ と \mathbf{k} ベクトルの三重積によって個々の磁性イオンが非相対的な応答を示し、その総和が XNDD となると考えられます。

$$\chi^{\text{XNDD}} \propto \mathbf{k} \cdot \sum_i (\mathbf{u}_i \times \boldsymbol{\mu}_i) = \mathbf{k} \cdot \sum_i \boldsymbol{\tau}_i \neq \mathbf{k} \cdot \sum_i \mathbf{u}_i \times \sum_j \boldsymbol{\mu}_j$$

ここで (1) 式で定義したトロイダルモーメントを用いませ

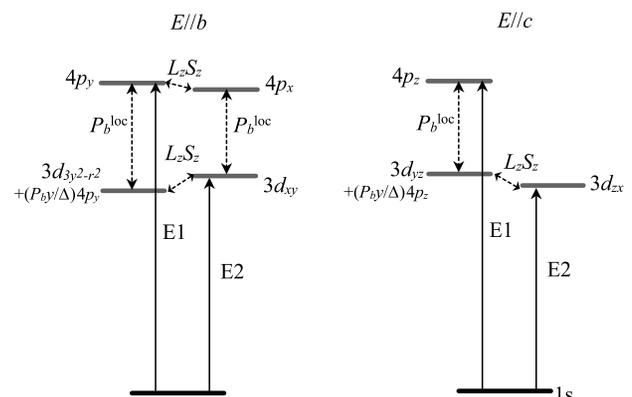


Figure 6 Energy diagram of x-ray non-reciprocal directional dichroism in GaFeO₃. (Excerpt from Ref. [4])

た。GaFeO₃ は Fe サイトが二種類あり Fe1 サイトと Fe2 サイトの磁気モーメントが反強磁性的に整列したフェリ磁性体で、自発磁化は Fe あたり 1 ボーア磁子以下です。一方、b 方向の変位についても Fe1 サイトが +0.26 Å, Fe2 サイトが -0.11 Å と逆向きになっています。結局、自発磁化と自発分極の大きさは、典型的な遷移金属酸化物の強磁性体、強誘電体に比べてそれぞれ一桁ほど小さくなっています。ところが、微視的な変位と磁気モーメントの外積であるトロイダルモーメントは Fe1 サイトと Fe2 サイトで同じ向きになります。したがって、点電荷模型による見積りでも GaFeO₃ はおよそ $0.013\mu_B/\text{Å}^2$ という大きなトロイダル密度を持つのです [11]。XNDD が極性と磁化によってではなくトロイダルモーメントによって生じると考えることは、XNDD の理解にとって重要です。極端な場合、副格子が逆向きの変位を持てば、反強磁性体でも（検出できるかどうかは別にして）XNDD が期待できます。

GaFeO₃ は電気磁気効果（磁場を印加すると電気分極が変化する）を示しますが、大きなトロイダル密度がその原因であるとの指摘もあります [2]。XNDD はその電気磁気効果の X 線領域への拡張と考えられます [3]。X 線を使った磁性研究の中では、例えば X 線磁気円二色性 (XMCD) が広く知られています。XMCD は磁化の大きさを測定する手法ですが、X 線を用いることで元素選択的・軌道選択的な性格を有することが知られています。同じように、近い将来、XNDD は元素選択的なトロイダルモーメントの検出プローブとして、さらには、磁性イオンの波動関数に関する情報を引き出すプローブとして発展が期待できます。

5. まとめ

多重強秩序を有する GaFeO₃ において X 線非相反的方向二色性 (XNDD) を観測することに成功しました。信号強度の温度変化や交流磁場に対する信号の高調波成分の振る舞いから XNDD が磁化に比例することがわかりました。XNDD スペクトルを FeO₆ クラスタモデルによって説明することができました。それによると、X 線非相反の磁気光学は微視的な原子の変位と磁気モーメントの外積であるトロイダルモーメントを検出していると捉えることができます。

6. 今後の展望

X 線非相反的二色性によってトロイダルモーメントを検出することができました。同じ原理でトロイダルモーメントが反強的に配列した場合には非相反的な過程による磁気 X 線回折が生じるはずで、トロイダルモーメントの交替秩序は例えば面内方向に自発磁化を持つ人工磁性超格子で実現されます。超格子の界面では必ず対称性の破れによる変位あるいはそれに相当する電気双極子が生じ、これが界面ごとに反転します。一方、強磁性超格子の界面に存在する磁気モーメントはどの界面でも常に同じ向きを向きます。したがって、これらの外積であるトロイダルモーメントは反強的に配列します。このような磁性超格子において

非相反の X 線磁気回折が観測できれば、界面磁性を検出するための有力な手段となるでしょう。これは磁気抵抗素子の研究などに大いに役立ちます。

また、非相反的な磁気二色性や磁気複屈折は多重強秩序系以外にキラルな磁性体 [9] や閃亜鉛鉱型磁性半導体 [10] などでも観測されています。現在、キラル磁性体や磁性半導体はそれぞれ材料研究の上で注目されており、X 線領域の非相反の磁気光学も非常に興味深いところです。キラル磁性体の場合、磁場と電磁波の進行方向が平行か反平行かで吸収や屈折率が変化し、さらにその変化の符号が S 体と R 体とで反転するはずで、

非相反の X 線磁気分光の測定を行うためには、現在の X 線吸収や X 線散乱の実験ラインにおいて試料に磁場を印加する必要があります。さらに、その磁場について正負の切り替えが必要となります。具体的な手法としては我々が行なった交流電磁石を用いる方法のほか、永久磁石の位置をスイッチさせたり、パルス磁場を用いたりということが考えられます。また、偏光操作を容易に行なえるような仕組みがあると非常に便利です。例えば、上述したとおり、キラルな磁性体の場合の非相反的な磁気光学効果 (X 線磁気カイラル二色性, XMChD) は X 線磁気円二色性 (XMCD) と同じ磁場配置で観測されます。しかし、円偏光の切り替えに対して XMCD が符号反転する信号であるのに対し、XMChD は符号が変化しないという特徴を持ちます。XMChD を XMCD と分離して検出するためには磁場の反転と偏光操作の双方が不可欠になります。今後、このような実験系の構築や整備を行なうことにより、種々の磁性材料について X 線領域の非相反の磁気光学の研究を進展させたいと考えています。

謝辞

測定に用いた試料は科学技術振興機構の金子良夫、何金萍、于秀珍の各氏によって作製されました。ここに深謝いたします。ここに掲げたデータの測定は、PF 共同利用課題 2003S1-001 によるビームライン開発の一環として行なわれました。なお、その後、X 線の偏光度等ビームラインの特性が測定結果に及ぼしていないことを確かめるために、課題 2003G001 による検証実験を行ないました。

引用文献

- [1] H. Schmid, *Int. J. Magn.* **4**, 337 (1973).
- [2] Yu. F. Popov, A. M. Kadomtseva, G. P. Vorobév, V. A. Timofeeva, D. M. Ustinin, A. K. Zvezdin, and M. M. Tegeranchi, *Zh. Éksp. Teor. Fiz.* **114**, 263 (1998) [*J. Exp. Theor. Phys.* **87**, 146 (1998)].
- [3] 有馬孝尚, *応用磁気学会誌* **27**, 1111 (2003).
- [4] M. Kubota, T. Arima, Y. Kaneko, J. P. He, X. Z. Yu, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 137401 (2004).
- [5] L. D. Barron, "Molecular Light Scattering and Optical Activity", (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1982).

- [6] J. P. Remeika, J. Appl. Phys. **31**, 263S (1960).
 [7] S. C. Abrahams, J. M. Reddy, and J. L. Bernstein, J. Chem. Phys. **42**, 3957 (1965).
 [8] A. Delapalme, J. Phys. Chem. Solids **28**, 1451 (1967).
 [9] G. L. J. A. Rikken and E. Raupach, Phys. Rev. **E58**, 5081 (1998).
 [10] B. B. Krichevtsov, R. V. Pisarev, A. A. Rzhnevsky, V. N. Gridnev, H.-J. Weber, Phys. Rev. **B57**, 14611 (1998).
 [11] 現実には磁性イオンの磁気モーメント分布には広がりがありますから、反転対称を持つ仮想構造から出発して各原子を変位させて現実の結晶構造に達するまでの角運動量密度の流れの積分値として定義しなおすべきでしょう。

(2004年6月21日原稿受付)

著者紹介

有馬 孝尚 ARIMA Taka-hisa



東北大学 多元物質科学研究所 教授
 〒 980-8577 宮城県仙台市青葉区片平
 TEL: 022-217-5348
 FAX: 022-217-5350
 e-mail: arima@tagen.tohoku.ac.jp
 略歴：

1988年東京大学工学系研究科修士課程修了, 1991年東京大学理学部助手, 1995年筑波大学物質工学系助教授, 2001年科学技術振興機構 ERATO スピン超構造プロジェクトグループリーダー (併任), 2004年東北大学多元物質科学研究所教授。博士 (理学)。
 最近の研究: 磁性誘電体の材料開発と物性, X線散乱分光

久保田正人 KUBOTA Masato



物質構造科学研究所 助手
 〒 305-0801 茨城県つくば市大穂
 TEL: 029-864-5661
 FAX: 029-864-2801
 e-mail: masato.kubota@kek.jp
 略歴：

2000年東京大学大学院工学系物理工学専攻博士課程修了, 2000年日本学術振興会特別研究員, 2001年科学技術振興事業団 ERATO スピン超構造プロジェクト研究員, 2003年物質構造科学研究所助手。博士 (工学)。
 最近の研究: 光電子分光を用いたナノマテリアルの電子状態の解明

十倉 好紀 TOKURA Yoshinori



東京大学 工学系研究科 教授
 〒 113-8656 東京都文京区本郷
 TEL: 03-5841-6870
 FAX: 03-5841-6839
 e-mail: tokura@ap.t.u-tokyo.ac.jp

略歴: 1981年東京大学工学系研究科物理工学専攻博士課程修了, 1981年東京大学工学部助手, 1984年東京大学工学部講師, 1986年東京大学理学部助教授, 1993年工業技術院・産業技術融合領域研究所・アトムテクノロジー研究体グループリーダー (併任), 1994年東京大学理学系研究科教授, 1995年東京大学工学系研究科教授, 2001年産業技術総合研究所強相関電子技術研究センター長 (併任), 2001年科学技術振興機構 ERATO「スピン超構造」プロジェクト総括責任者 (併任)。工学博士。
 最近の研究: 物性物理

澤 博 SAWA Hiroshi



物質構造科学研究所 助教授
 〒 305-0801 茨城県つくば市大穂1-1
 電話: 029-864-5589
 FAX: 029-864-3202
 e-mail: hiroshi.sawa@kek.jp

略歴: 1990年学位取得 (青山学院大学), 1991年東大物性研助手, 1996年千葉大学理学部物理助教授, 2001年物質構造科学研究所に転任。理学博士。
 最近の研究: 主に強相関電子系物質の相転移などの構造解析を通して構造物性研究を行っている。