

審査の結果の要旨

氏名 池田 勝佳

本論文は、強磁性というスピンに関連する物性と非線形誘電性という電荷に関連する物性の共存する系を対象としている。この様な強磁性と非線形誘電性が共存するバルク材料はこれまでのところほとんど知られていない。この様に極めて稀な物質を実際に見出し、さらに2つの物性の共存によって生じる新規現象の観察にも成功しているという点で非常に興味深い内容の論文であるといえる。

本論文の主題のひとつは、強磁性と非線形誘電性の共存が、分子性磁性材料の一種であるプルシアブルー誘導体に対して2次の非線形光学活性を電気化学的手法で導入することによって得られたという点である。導入された非線形光学活性は、実際に第2高調波発生の観察という形で確認が行われた。本論文の内容においては、観察された第2高調波が実際にバルク結晶由来の高調波であるという合理的な証拠の提出が、強磁性と非線形誘電性の共存という観点から本質的に重要な問題となる。この点に関して、光学測定による証拠として高調波強度の膜厚依存性と高調波干渉法による高調波の位相解析の結果が提示され、エリブソメトリーにより測定された屈折率分散のデータからの理論計算との比較から高調波の発生起源が膜の界面ではなくバルク結晶にあることが明確に示された。さらにこの点に関して、XRDを用いた解析により結晶の空間群が実際に反転対称を失って2次の光学非線形活性な構造になっていることが示され、強磁性と非線形誘電性が共存する材料であることの証拠が十分に示された。また、これらの実験データから非線形光学活性導入の機構についてモデルの提案がなされ、さらに、高調波強度と試料の組成との関係についてモデルから予測される関係と実験結果が一致することが示された。この結果、提案された非線形光学活性導入機構は合理的であると判断された。

本論文で提示された電気化学的手法による非線形光学活性の導入は、これまでに全く報告例がなく、非常に興味深い手法であると思われる。分子性材料に展開した点も今後の展開の容易さという点で興味を持たれる。本論文は基礎的な観点に立った研究であるが、応用の立場からは2次感受率の大きさなどの基礎光学的なデータも重要である。口頭発表ではこの点に関してほとんど触れられていなかったが、論文中には記載されており必要な測定は行われていると判断できる。

本論文のもうひとつの主題は、強磁性と非線形誘電性の共存によりどのような共存現象が生じるかという点にある。近年、金属磁性体の表面において非線形磁気光学効果の研究が行われるようになってきているが、バルク磁性体とくにバルクの強磁性体についてはほとんど検討されていないのが現状である。本論文では強磁性と非線形誘電性の共存し、さらにある程度の透明性を有する磁性膜の作成に成功し、透過測定で共存効果としての2次

の非線形磁気光学効果の観察に成功した点に非常に意義があると考えられる。従来の単に界面での対称性の破れを利用した表面現象とは物理的な意味合いが全く異なり、新しい展開が期待できる。測定結果は、高調波強度の温度依存性、外部磁場による高調波偏光面の巨大な回転、円偏光入射による外部磁場依存性などが提示された。それぞれの結果について、群論的な取り扱いを用いて論理的に説明が行われた。スピンの対称性を考慮して、2次の非線形感受率テンソルに対して磁化の摂動項を取り入れる手法は非常に合理的であり、かつ実験結果を非常によく説明しているといえる。特に外部磁場による偏光面の巨大な回転現象は線形の磁気光学効果の範囲内では説明することができず、共存効果としての2次の非線形課程における磁気光学現象の結果であることが明確に示された。また、この結果から、強磁性と非線形誘電性の共存した材料としてのプルシアンブルー誘導体が単に強磁体と非線形誘電体との混合物ではなく、同じ物質が2つの機能を有している材料であるという主張は十分に合理的であると認められる。

本論文では、将来展望として強磁性と非線形誘電性との共存の意義についても論じており、非相反性の導入による光双安定性と偏光制御の組み合わせの可能性等ある程度具体的な描像を示しており、今後の発展を期待させる。本研究内容の意義と進むべき方向性について十分認識していると思われる。

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。