

論文の内容の要旨

論文題目 超高速時間分解分光法によるキャリア媒介強磁性体の研究

氏名 小嶋 映二

§ 1 背景と目的

本論文は磁性体材料を対象として、超高速時間分解分光法を用いて、光励起に伴う、電子状態および磁性の過渡応答を捉えることに着目し、電子状態と磁性の関わりを探る手法を開拓した。これを用いて、応用上も注目を集めている、強磁性半導体 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ を詳しくしらべ、その強磁性発現機構について研究を行った。

強磁性体の強磁性発現機構を理解するためには、電子構造と磁性の関係を明らかにする必要がある。そのための手法として、伝導測定、磁化測定など様々な手法が広く利用されている。その中で、分光学的な手法は、系の結合状態密度を反映した光学応答を利用するものであり、DC 伝導測定などと比較して電子構造に対する豊富な情報を含んでいると考えられる。しかし、光学スペクトルは、磁性とは無関係な電子構造にも強く依存することから、磁性と相関のある部分を抽出するためには工夫が必要である。

一方、近年の超短パルスレーザー技術の飛躍的進歩に伴い、ポンププローブ分光法をはじめとする超高速時間分解分光法が固体における電子励起ダイナミクスの研究に広く利用されるようになった。

その中で、超高速分光法を応用し、磁性体の超高速のスピンドYNAMICSを捉える研究が最近始まった。先駆的な研究として E. Beaurepaire らによる研究が挙げられる。彼らは、ポンププローブ分光法と磁気光学分光法を組み合わせた時間分解磁気光学分光法により強磁性金属 Ni における光照射後の電荷と磁化のダイナミクスを調べた。

本研究の第一の目的は、時間分解分光法を用いて、磁化のダイナミクス及び磁化と光学応答の相関を明らかにする手法を開拓することである。

まず時間分解磁気光学分光法により磁化の過渡応答を抽出する方法を開拓した。次に、独立に光学スペクトル(吸収スペクトル、磁気光学スペクトル)の過渡応答を測定し、磁化の過渡応答と比較することで、自発磁化の変調による光学応答の変化を抽出する方法を開拓する。これは通常の線形な光学測定では分離不可能なものである。この手法によって、どのエネルギーの電子状態が磁化と相関が強いのかを調べることができる。

第二の目的は、あらたに開拓した手法を用いて、III-V 族磁性半導体 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ における強磁性発現機構を解明することである。

III-V 族磁性半導体はスピントロニクスの主役を担う材料として注目されている。しかし、現在、Te が室温以下であり、その強磁性発現機構も未解明である。室温強磁性実現のためには機構を解明し、最適なパラメータを持つ物質を創成することが必要となっている。

強磁性発現機構に関するこれまでの研究で、特に問題となっているのは強磁性を媒介す

るキャリアの性質である。当初、強磁性機構のモデルとして、ホールは遍歴性が高い価電子帯にドーピングされたと考える Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida モデルが提唱された。続いて、ホールは Mn の 3d 軌道的な性質を持つと考える二重交換モデルが提唱された。しかし、電子状態を直接検出できる、光電子分光、X 線吸収などの実験結果はこれらのいずれとも整合しない。

これらのモデルを超えた機構について検討するために、強磁性発現に関わるキャリアとしてアクセプタに束縛されたホールに着目した。また、アクセプタに束縛されたホールは周囲の局在スピンとの相互作用により磁気ポーラロンを形成する可能性がある。

本研究では、パルス光励起に伴う磁化と電子系の過渡応答を時間分解分光法を駆使して検出し、 $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ における強磁性発現機構におけるアクセプタ状態の役割を明らかにする。

§ 2 試料と光源

本研究に用いた試料と光源について概略を述べる。

試料は、物性研究所家・勝本研究室によって提供されたものを使用した。低温分子線エピタキシーで $\text{GaAs}[001]$ 基板上に成長し、その後アニールした $\text{Ga}_{0.94}\text{Mn}_{0.06}\text{As}$ である。磁化測定から求めた T_c は、110K であった。

光源には、フェムト秒チタンサファイア再生増幅システムを用いた。この光源の性能は、繰り返し 1kHz、パルス幅 150fs、パルスエネルギー 1mJ、光子エネルギー 1.55eV である。これから得られた光を光パラメトリック増幅器と差周波発生を組み合わせ中赤外光 (100-400meV) を発生させた。サファイア結晶を用いて自己位相変調により白色光 (1.45-2.5eV) を発生させた。中赤外光、白色光は各測定におけるプローブ光に用いた。ポンプ光には、第二高調波 (3.1eV) を用いた。実験は、 T_c 以下で行った。

§ 3 実験と考察

以下の 3 項目の実験を行った。

1. 2 色プローブ時間分解磁気カー分光により光照射後の磁化の時間変化を磁気光学信号を解析することで抽出した。
2. Mn アクセプタ状態から価電子帯への遷移に対応する中赤外吸収ピークの光照射後の過渡応答を観測し、これと磁化の時間変化を比較した。
3. 価電子帯-伝導帯間遷移とアクセプタ-伝導帯間遷移でどちらが磁化に敏感であるかを調べるために、可視領域の磁気カースペクトルの光照射後の過渡応答を観測した。

3-1. $\text{Ga}_{0.94}\text{Mn}_{0.06}\text{As}$ における 2 色プローブ時間分解磁気カー分光

(公表文献 1)

時間分解磁気カー分光により $\text{Ga}_{0.94}\text{Mn}_{0.06}\text{As}$ における光パルス照射後の電荷とスピンのダ

イナミクスを観測した。光照射による磁気光学効果の変化は、一般に磁化の変化に比例する変化と磁化と無関係な変化(キャリアの温度上昇、バンドフィリングなどによる非線形効果)の和であらわされる。そのため磁気光学信号から直接、磁化の時間変化を議論することはできない。そこで、独立な測定量である、カー楕円率と回転角の変化信号から磁化の時間変化を抽出する方法を考案した。また、異なる2つのプローブエネルギー(1.55eV,1.77eV)において求めた信号を比較し、この方法で磁化成分の抽出が正しく行われたことを確認した。その結果、反射率変化に見られるホールの温度は光励起後、瞬時に上昇するが、スピンの温度はこれと比較して非常に遅い時間(数百ピコ秒)で上昇することを見出した。この磁化の緩和時間は、通常の半導体のホールのスピン緩和時間(例えば GaAs のホールのスピン緩和時間は 100fs 程度)と比較して圧倒的に長く、何らかの要因でスピンフリップが妨げられていることを意味している。この様子は、通常の強磁性金属である Ni の場合とは異なり、むしろハーフメタル強磁性金属 $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ の場合に近い結果である。Ga_{0.94}Mn_{0.06}As においてもフェルミ面近傍でハーフメタル的な強いスピン偏極が生じているのではないかと考えられる。

3-2. Ga_{0.94}Mn_{0.06}As における中赤外ポンププローブ分光

(公表文献 2)

アクセプタ状態と強磁性の関係について明らかにするために、光照射後の磁化ダイナミクスと中赤外域の吸収スペクトルの過渡応答を比較した。アクセプタ状態は周囲の局在スピンを揃えて束縛磁気ポーラロンを形成する可能性があるため、ポーラロン効果と強磁性の関係について詳しく検討した。通常、発光測定が用いられるがこの物質では、欠陥の影響により発光しにくいいためこの方法は適応困難である。そこで、アクセプタ-価電子帯間遷移に対応する中赤外吸収に着目し、これをアクセプタ束縛磁気ポーラロンを観測するプローブとして考え、光照射後の過渡吸収スペクトルを測定した。その結果、3-1.で測定した磁化の時間変化に追従する吸収の減少が見られた。これは、この遷移と磁化に相関があることを示している。また、吸収の減少はピークよりやや低エネルギー側で最も大きく、磁化の減少に伴って、吸収バンドが高エネルギーシフトしたことを意味する。これは、光照射により磁気ポーラロンの周囲のスピンが乱れ、その結果、磁気ポーラロンの束縛エネルギーが増したことを示唆される。この機構を説明するために、磁化の減少による中赤外吸収バンドの微分スペクトルのモデル計算を行った。その結果、実験結果をよく再現する微分スペクトルが得られた。これは、この物質では強磁性発現を媒介するキャリアは、自由キャリアではなく、アクセプタ状態にいるホールが磁気ポーロン形成を通じて、強磁性秩序をもたらしていることを示唆する。

3-3. Ga_{0.94}Mn_{0.06}As における磁気カーブスペクトルの過渡応答の測定

3-2.の結果はフェルミエネルギーがアクセプタバンド内に存在することを意味する。この

場合、可視域の光学スペクトルには、通常の価電子帯-伝導帯間遷移以外にアクセプタ-伝導帯間遷移に起因する成分が存在するはずである。これらは磁気光学スペクトルに異なった寄与を与える可能性がある。この点を調べるために光照射下での時間分解磁気カー測定を周波数軸上で行った。

すでに述べたように磁気光学信号は磁化とは直接関係のない効果によっても変化するので、磁化の変化によるスペクトルの変化を分離する必要がある。そこで解析により、磁気カースペクトルの過渡応答からある一定の磁化の変化に対する、スペクトル変化率の抽出を行った。その結果、線形カー回転角スペクトルでピークを与えるエネルギーよりも低エネルギー側で大きなスペクトル変化が見出された。このことは通常のバンド間遷移以外にアクセプタ-伝導帯間遷移が低エネルギー域に確かに存在し、またそれが、通常のバンド間遷移に比べ、磁化の変化に対してより敏感であることを示している。

§ 4 結論

時間分解磁気カー測定により、光照射後の磁化の時間変化を信号から抽出し、これと中赤外吸収スペクトルの過渡応答および磁気カースペクトルの過渡応答を比較した。

このような測定により、アクセプタ-価電子帯間遷移とアクセプタ-伝導帯間遷移のいずれも磁化変化に敏感に応答することが分かった。このことは、アクセプタバンドが強磁性発現に強く関わっていることを示している。これは、 T_c を高くする為には、このアクセプタバンドの深さ、バンド幅などの性質を最適化する必要があると考えられる。

公表文献（予定も含む）

1) "Observation of the spin-charge thermal isolation of ferromagnetic $\text{Ga}_{0.94}\text{Mn}_{0.06}\text{As}$ by time-resolved magneto-optical measurement", E.Kojima et al., Phys.Rev. B ,68,193203(2003)

2) 仮題" Magnetic polaron formation and ferromagnetism in $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ investigated by mid-infrared transient absorption spectroscopy", E.Kojima et al. in preparation