

論文の内容の要旨

論文題目 非線形光学を用いた遷移金属酸化物の
電荷・スピン状態の検出

氏名 佐藤 琢哉

第1章 序論

線形光学はその優れたスペクトル、空間、時間的分解能のために電子物性を調べる強力な方法である。一方、非線形光学では2つかそれ以上の光子が関わってくるために、線形の場合と比べて新たな自由度を持つ。そのため線形光学と相補的な役割を担う。2次の光学感受率 $\chi^{(2)}$ は系の各々のサイトが持つ対称性に依存しているため、対称性のわずかな変化で非線形光学応答は劇的に変化する。その最たる二つの例として界面第二高調波発生 (SHG) と磁気 SHG が挙げられる。

前者の例においては、反転対称性をもつ物質で SHG は電気双極子近似の範囲で禁制であるのに対し、その表面や界面においては対称性の破れによって許容である。線形光学では光が侵入する範囲内すべてをプローブするのに対して、SHG は界面の電子状態のみに敏感となる。後者の例では、磁気的な長距離秩序が生まれることで系の対称性が低下することを反映して、磁気 SHG が観測される。これは強磁性秩序のみならず、反強磁性秩序でも同様である。Faraday 効果のような線形磁気光学においては反強磁性体の2つの副格子によって信号が相殺されてしまうために、反強磁性体を調べることはできない。そのため、磁気 SHG は反強磁性を調べるユニークかつ強力な手法であるといえる。

このような非線形光学を用いる舞台は、遷移金属酸化物である。d 電子のもつ強いクーロン相互作用や交換相互作用のために、電荷・スピン・軌道が強く結合した系として、NiO の Mott 絶縁体を始めとして、Cu 酸化物の高温超伝導や Mn 酸化物の巨大磁気抵抗効果など多彩な物性を示す。

本研究では、第2章において Mn 酸化物薄膜の界面における特有な電子状態を界面 SHG を用いて観測した。第3章では反強磁性体 NiO のスピンドYNAMICS を磁気 SHG などにより調べ、さらに第4章において非線形磁気光学をより一般的に多くの種類の磁性体に適用する手法を開発した。

第2章 Mn 酸化物薄膜における界面結晶場敏感な第二高調波発生

Mn 酸化物はその物性がキャリアドーピングや格子定数に敏感であり、強磁性金属、反強磁性絶縁体、軌道秩序、電荷秩序など多彩な電子相を示す。近年では急峻な界面を持つ薄膜作製が可能になってきており、多層膜界面における電荷移動やストレーン効果の結果、新しい相の出現、スピンキャンティング、スピンプラストレーションなどが提案されている。これらの界面物性はデバイス開発においても重要であり、実際、Mn 酸化物からなる TMR の動作温度低下のメカニズム解明や酸化物トランジスタの提案がなされている。このように、界面での電子状態を調べることが必須である。

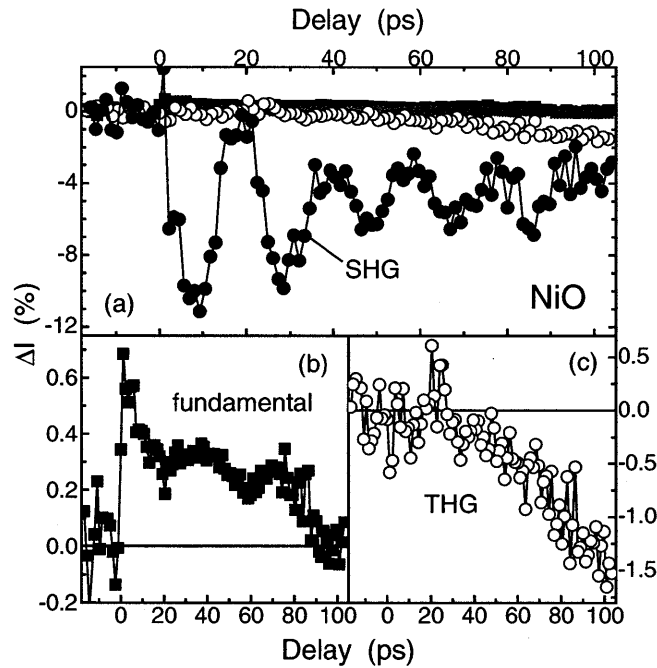


図 2: ポンプ光励起による SHG(黒丸)、 ω における基本波反射 (黒四角)、 2ω における基本波反射 (灰三角)、THG(白抜き丸) の時間発展

で閾値を持つことを観測した。これらの結果は以下のように解釈された。「まずポンプ光照射の間、磁気異方性に変調を受け、 Ni^{2+} スピンの磁気容易化軸が $\langle 11\bar{2} \rangle$ から $\langle 111 \rangle$ に変わる。これは“ $\langle 11\bar{2} \rangle$ 相”から“ $\langle 111 \rangle$ 相”への光誘起磁気相転移の一つと考えられる。ポンプ光照射後はポテンシャルは元の状態に戻るが、電子は2つの相にコヒーレントに共存する。そのためプローブ光により SHG を観測すると、2つの基底状態のエネルギー差である磁気異方性エネルギーに相当する周波数を持つ量子ビートが観測される。」さらに、この振動は時間差を持つ2つのポンプ光により制御された。それぞれのポンプ光が単独で起こす振動どうしが同位相の時は、2つのポンプ光による振動の振幅は倍増し、逆位相のときは振動が打ち消しあった。このことは、室温における超高速スイッチングの可能性を与える。

第4章 NiO と KNiF_3 を用いた共鳴増強磁気周波発生

前章で述べたように、非線形磁気光学効果は磁性体、特に反強磁性体を光学的に測定するユニークかつ強力な方法である。しかし電気双極子近似では、SHG は反転対称性を持たない系でのみ許容であるが、多くの磁性体が反転対称性を持つことから SHG の利用は限られたものになってしまう。反転対称性を持つ磁性体を調べるために、界面 SHG、磁気双極子型 SHG、3次の非線形過程などが試みられてきた。しかし、任意の磁性体を扱うにはそれらの方法は十分に一般的とはいえない。

そこで、反転対称性を有する場合も含めて任意の磁性体を研究するための有効な方法として、NiO と KNiF_3 を例にとって共鳴増強磁気周波発生 (SFG) を議論する。周波数 ω_1 の波長可変レーザーを用いて中間状態へ共鳴的に励起し、周波数 ω_2 の2つめのレーザーで非線形スペクトル $\omega_1 + \omega_2$ を得る。この方法は、反転対称性をもつ物質に対しても有効に用いることができる。なぜなら、2