

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 嶋田 義皓

時間反転対称性と空間反転対称性が同時に破れた系においては、光学的電気磁気(OME)効果と呼ばれる非相反的な光学応答が発現する。OME 効果は、電気磁気(ME)効果を光の周波数領域へ拡張したものと考えることができ、光学応答が光の波動ベクトル \mathbf{k} に依存する性質(方向二色性)を持つ。OME 効果はこれまで極性フェリ磁性体 GaFeO_3 やキラル常磁性体 $\text{Eu}(\pm\text{frc})_3$ などにおいて検証されてきたが、特殊な磁性体に限られており各論的であった。本論文では、OME 効果の微視的起源を明らかにする目的で、希土類ドーパ強誘電体の発光および吸収における OME 効果を磁場変調分光法によって系統的に検証した結果を述べている。

本論文は全 6 章からなる。

第 1 章では、光学的電気磁気(OME)効果の一般的特徴および過去の研究例について概観し、本研究の目的と本論文の構成を述べている。

第 2 章では、実験に用いた単結晶試料の合成法や基礎物性の測定手法、および磁場変調分光法による光学測定について説明している。

第 3 章から第 5 章に、実験結果とそれに関する議論が述べられている。

第 3 章では、 Er^{3+} イオンが反転対称性の無い Ti サイトを占める $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3:\text{Er}^{3+}$ 単結晶における OME 効果の検証結果を述べている。室温において強誘電・常磁性的な振る舞いが見られた $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3:\text{Er}^{3+}$ は、磁場下で時間・空間反転対称性がともに破れた系であり、外部磁場と自発電気分極に垂直な方向の光に対し方向二色性の発現が期待される。実際、 Er^{3+} の ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$ 遷移において磁場変調発光スペクトルが得られた。試料の自発電気分極および外部磁場の反転により、得られた磁場変調スペクトルの起源が OME 効果であることを確かめている。また、OME スペクトルの温度依存性から、電気双極子($E1$)と磁気双極子($M1$)の干渉が励起状態で生じていると結論づけた。強誘電体中の希土類イオンにおいて OME 効果が観測されることが初めて明らかになり、希土類ドーパ強誘電体が OME 効果を系統的に調べるためのプロトタイプとなることが示された。

第 4 章では、希土類元素を含む強誘電性酸化物 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の La サイトを希土類元素 R^{3+} ($R=\text{Nd, Eu, Er}$) で 0.5% 程度置換した $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7:R^{3+}$ 単結晶の発光における OME 効果の検出について述べている。得られた Eu^{3+} の ${}^5D_0 \rightarrow {}^7F_1$ 遷移、 Er^{3+} の ${}^4I_{13/2} \rightarrow {}^4I_{15/2}$ 遷移、 Nd^{3+} の ${}^4F_{3/2} \rightarrow {}^4I_{11/2}$ 遷移における磁場変調発光スペクトルから、OME 効果の微視的メカニズムについてスピン軌道相互作用、励起状態の J の大きさ、電気・磁気双極子遷移の選択則などの観点から定性的に議論している。同一結晶場中で希土類イオンを系統的に変化させた例は過去に無く、本研究によって初めて OME 効果強度の相互比較が可能になった。

第 5 章では、強誘電性酸化物 $\text{Nd}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ の吸収における非相反的方向二色性の系統的スペクトロスコーピーとその半定量的解析について述べている。吸収測定では励起状態の占有率の影響を受けず全ての励起準位が観測可能であり、 $\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7:\text{Nd}^{3+}$ の発光では観測できなかった多くの $f-f$ 遷移について OME スペクトルを測定している。吸収スペクトルを Judd-Ofelt 解析することにより $E1$ 遷移振動子強度を求め、また $\text{LaCl}_3:\text{Nd}^{3+}$ の波動関数を用いた $M1$ 遷移振動子強度から見積もることにより、 $E1-M1$ 振動子強度移送量を計算した。この計算値を実際の OME スペクトルの積分強度と比較することにより、スピン軌道相互作用による $E1-M1$ 干渉が OME 効果の微視的起源であると半定量的に結論づけた。これまで 1 つの遷移に対する OME 効果の観測が報告されてきたが、9 つもの遷移について系統的に観測した例は本研究が初めてであり、これにより OME 効果を $M1$ 遷移の同定に使用しうる分光学的手法として確立したことは高く評価できる。

第 6 章では、本研究で得られた成果をまとめている。

本論文には 2 つの補章が設けられている。

付録 A では、有意な OME シグナルが得られなかった実験結果について述べている。

付録 B では、本論文で扱った点群における OME テンソルを計算している。

以上をまとめると、本論文では反転対称性のない磁性体において期待される OME 効果を、希土類イオンの $f-f$ 遷移における非相反的方向二色性の観察によって調べた。その結果、強誘電体にドーブされた希土類イオンの発光における OME 効果の検証、OME スペクトルの希土類・結晶場依存性と定性的な微視的起源の考察、多くの $f-f$ 遷移に渡る定量的スペクトロスコピー、など新規でかつ重要な学術的知見を得ている。また、今後、非相反性光デバイスへの応用を考える上で、その物質設計における重要な指針を得た。これらの点で、本研究は物性物理学と物理工学の進展に寄与するところが大きい。

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。