

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 樋口卓也

極超短パルスレーザー技術の進歩によって、光による能動的な物質制御とそのダイナミクスの観測が可能となった。特に物質の磁性を光で制御する研究が活発化している。強磁性体の光制御は磁気記録などの応用上の観点からも興味をもたれ、光パルスによる高速磁化制御について多くの研究が行われている。一方近年、多彩なスピン構造をもつ物質が開拓され、磁性構造に起因する特異な物性が見いだされている。それらを光で制御することはあらたな光機能発現や物性制御という観点で興味深い。本研究はその第一歩として反強磁性体に着目し、光による制御の原理と方法を調べたものである。反強磁性は、高温超伝導との関わりなど、強相関電子系の物性にとって重要な役割を果たす。また、強い交換磁場により、反磁性共鳴がテラヘルツ領域に現れ、マグノンの励起によってコヒーレントな磁気放射が生じるなど興味深い現象が見いだされている。しかし、反強磁性体は2つの副格子がもつ磁気モーメントがキャンセルしていることから、外場による制御が難しいという課題がある。本研究は、反強磁性体を対象とし、線形および非線形の光学応答について磁性結晶の群論的考察をもとに、光の偏光自由度を活用し、光による反強磁性体の制御と反強磁性体による光の制御について探索した。

本論文は英文によって執筆され、以下の9章からなる。以下に各章の内容を要約する。

第1章では、本論文の序論として、本研究の背景として、光と磁化の相互作用についてこれまでの研究について概説し、本研究目的と本論文の構成について述べている。

第2章では本研究の基礎となる、結晶の対称性と電磁応答の関係について概説している。磁気対称群を用いて、磁気光学効果・光磁気効果とOnsagerの定理について述べている。また、結晶の離散回転対称性と光の角運動量保存の関係について議論している。

第3章では、本研究の主題の一つである、 MnF_2 結晶についてその光物性について概説している。特に、本論文で研究を行ったd-d電子遷移に起因する光学吸収について、弱い磁気双極子遷移と電気双極子許容のマグノンと励起子の協働励起について紹介している。

第4章では、 MnF_2 結晶において磁気光学効果の実験を行い、そのスペクトル解析について述べている。まず、 MnF_2 がその白黒磁気点群対称性に起因して、磁気直線二色性を示すことに着目し、円二色性との競合やスペクトル構造の特異性について調べている。印加磁場を系統的に変化させた実験を行い、直線二色性と円二色性を分離して観測することに成功した。その結果、磁気双極子遷移共鳴では、円・直線が共存し、 ${}^6A_{1g} \rightarrow {}^4A_{1g}$, 4E_g など特定のd-d遷移に伴う励起子のマグノンサイドバンドでは直線二色性のみが観測されることを見いだしている。対称性を考慮した上で、マグノンと励起子の分散を取り入れた理論計算を行い、実験結果が再現されることを示している。これらの考察から、この電気双極子遷移許容の励起子マグノンサイドバンドはより高い対称性での電子構造によって規定されるものであることを示している。

第5章では、前章で議論した磁気直線二色性が結晶のドメイン観察に利用できることに着目し、光照射によるドメイン制御について述べている。光励起下で、ネール点をまたいで冷却した際

に光励起の効果によって、ドメイン界面が変化することが見いだされ、ドメイン制御法として利用できることを示している。前章で議論した磁気直線二色性に呼応した励起偏光依存性が観測され、本結晶の磁気的な対称性を反映していることが確認されている。

第6章では、瞬時的誘導ラマン散乱(ISRS Impulsive Stimulated Raman Scattering)によって光パルスによる反強磁性共鳴モードのマグノン励起について議論を行っている。NiO結晶を例として、磁気点群による考察を行い、マグノン励起の条件について考察している。反強磁性が単一ドメインの場合、励起パルスは直線偏光でも円偏光でもマグノンを励起できること、偏光によってマグノンモードや位相を選択励起できること導いている。またマグノンの観測方法についても述べている。

第7章では、結晶が3回回転対称軸をもつ場合、それにそって進む光ではISRSによって赤外活性なモードを励起できることを示している。この応用例としてマルチドメインのNiO結晶において[111]軸に沿って光を照射すると、磁気放射可能なマグノンを励起できることを示している。対称性の議論により、観測された磁気放射によるテラヘルツ電磁波の偏光特性が説明できることを示している。テラヘルツ波の波長に比べ十分小さなドメインがランダムに生じることにより、結晶が実効的に3回回転対称性を獲得したことによるものであることを示している。

前章では、偏光が決まったパルスによる励起を議論していた。この場合、どの様な偏光状態を用意しても、磁気振動は直線偏光となる。第8章では、光パルスの包絡線のねじれを用いることで、ISRSによってより自由に磁気振動の制御が可能となることを示している。NiOの例のように励起するマグノンの周波数が孤立している場合には、偏光角の異なる直線偏光のダブルパルスを用いることで、磁気励起をベクトル的に制御できる。ここではこの議論をさらに一般化し、周波数帯域、回転方向について選択的な回転励起の制御を行うことのための光パルス波形の設計指針について議論している。

第9章では本研究のまとめを行い、今後の展望について述べている。

以上のように本研究は、反強磁性体結晶を舞台として、磁性結晶の対称性について群論的な考察をもとに、線形および非線形の光学過程について議論を行い、特異な磁気光学効果について実験理論両面から検討を行った。MnF₂では、磁気光学効果としてd-d電子遷移に伴い、直線二色性と円二色性があらわれることとそれが分離可能であることを示し、結晶の対称性の議論からその起源を明らかにした。さらに光励起によって反強磁性ドメインが制御できることを示した。NiO結晶では、誘導ラマン過程を用いたパルス光による磁気的励起の制御について詳細に検討を行った。結晶の対称性を考慮して光の偏光の自由度を巧みに制御することで、磁気励起を自在に制御できることを示した。またこれを一般化し、より一般的にベクトル的に包絡関数が制御された光パルスを用いることで、誘導ラマン過程を介してより自由度の高い回転励起の方法を提案した。

これらの研究は、光と磁気の関わりについて、理論的および実験的検討により、新たな側面を見いだしたものであり、本研究の成果は今後の物理工学の発展に大きく寄与することが期待される。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。