

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24656207

研究課題名(和文) テラヘルツ波をプローブとした新奇な磁気ドメイン観察法の開発

研究課題名(英文) Magnetic domain analysis using terahertz waves

研究代表者

川山 巖 (Kawayama, Iwao)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・准教授

研究者番号：10332264

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円、(間接経費) 930,000円

研究成果の概要(和文)：強磁性体酸化物であるPr_{1-x}Sr_xMnO₃(PSMO)薄膜を作製し、そのテラヘルツ帯における伝導度の温度変化をテラヘルツ時間領域分光法で計測した。このとき、さらにテラヘルツ波の偏光面が[1-10]方向に対して0度、45度、90度の方向の時のスペクトルを測定し、それぞれ比較した。

その結果、偏光方向が[1-10]方向の時の光学伝導度は、通常の金属と同様Drude的なスペクトルが強磁性体金属相で顕著に見られたが、90度傾けた[001]方向の時は、約4meV程度にピークのある、非Drude的な振る舞いが見られ、面内で伝導機構のクロスオーバーが生じていることを見出した。

研究成果の概要(英文)：Low-energy charge dynamics in PSMO (110) epitaxial film were investigated along a nd across two dissimilar in-plane orthogonal axes, [1-10] and [001], by recording the complex refractive index in the energy range of 1 - 7 meV. We report a novel observation of a gradual crossover from Drude-like metallic conductivity to charge-density-wave (CDW) like collective excitations as the polarized terahertz excitation field is swept across the orthogonal in-plane axes. This is a rare manifestation of a CDW mode in a highly conducting stripe-type charge-ordered (CO) system, which is fundamentally different from the CDW modes of checkerboard CO. Interestingly, the contrasting charge dynamics along orthogonal in-plane axes form an intrinsic electronic switch, apparently a consequence of the unique CO of PSMO.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：電気電子工学・電子・電気材料工学

キーワード：テラヘルツ 酸化物薄膜 強磁性薄膜 電荷密度波

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスへの応用に向けて、磁性材料やデバイス界面における局所磁化のドメイン構造やその応答性を計測することは、次世代デバイスの性能評価として必須である。申請者はこれまでマルチフェロイック材料である BiFeO₃ 薄膜にフェムト秒レーザーを照射し、発生するテラヘルツ放射の特性を詳細に解析し、その発生機構が強誘電自発分極光変調に由来するものであることを明らかにした (Adv.Mater. 21,2881,2009)。つまり、テラヘルツ波強度のバイアス電界依存性を測定すると、きれいな強誘電体特有のヒステリシスループが得られる。これは、テラヘルツ波放射強度が、強誘電体の局所的な自発分極の大きさに比例していることを示している。また、この現象を利用し、発生するテラヘルツ波をプローブとして強誘電体ドメイン構造を可視化できることを示した (Appl. Phys. Lett., 91, 031909 (2007))。しかしながら、強磁性酸化物における時期的な秩序とのテラヘルツ波物性との関連については、ほとんど明らかにされていなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は、テラヘルツ波分光技術を用いて、酸化物磁性体の時期的秩序とテラヘルツ波物性との相関を明らかにすることである。また、テラヘルツ領域のキャリアダイナミクスを計測することで酸化物磁性薄膜の異方性や磁性体ドメインの空間的・時間的な新たな評価を行う。この様な手法は、少数フォトンによるスピンの雪崩的・集団的な変調を実現しマクロな磁化を制御する新たな光制御スピントロニクスデバイスに展開可能であると考えている

3. 研究の方法

温度可変テラヘルツ波計測システムを開発し、強磁性体酸化物のテラヘルツ波物性およびテラヘルツ波放射を観測する。強磁性体酸化物としては Pr_{1-x}Sr_xMnO₃(PSMO)を対象として、テラヘルツ領域の光学伝導度の異方性や局所場光励起による強磁性分極の光変調によるテラヘルツ波を計測し、磁気秩序とテラヘルツ波領域の物性との関連を明らかにする。

4. 研究成果

ペロブスカイト型マンガン酸化物は、超巨大磁気抵抗効果 (CMR) の発見以来、多くの研究がなされてきた。特に、キャリアドーピングを制御する、いわゆるフィリング制御により特異な電荷、軌道および磁気秩序が現れる。PrSrMnO₃ は特異な電荷および磁気秩序を示すことが知られているが、LaCaMnO₃、LaSrMnO₃、PrCaMnO₃ などのマンガン酸化物に比べて研究例が少なく、その特性は十分に明らかになっていない。本研究ではハーフドーピングの Pr_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃ (PSMO) を用いた。PSMO は 260K

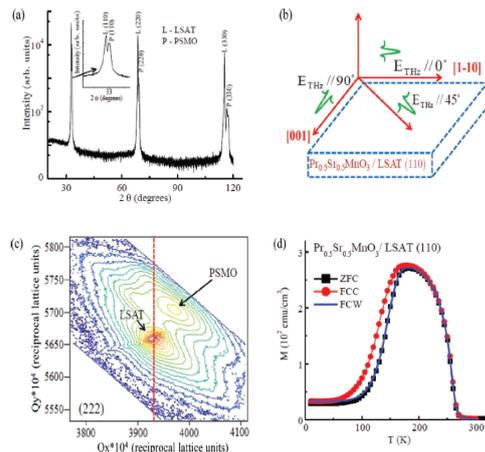


図 1 PCMO(110)薄膜の(a)XRD 2θ-θパターン、(b)方位と透過テラヘルツ波の偏光方向との関係、(c)逆格子マッピング測定結果および(d)磁化率計測結果。

で常磁性から強磁性に転移し、140K で強磁性から A タイプの反強磁性に転移する。いくつか興味深い点があるが、その一つは類似の構造を持つ Nd_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃ は CE タイプの反強磁性で、2 倍周期の電荷整列相であるのに対し、PCMO の場合は、3 倍周期の電荷整列相である点である。その他にも、例えば電荷・軌道整列相が反強磁性および強磁性転移においても消失せず、かなり高温まで存在していること、電荷整列相が高い伝導度を伴ったまま発現することなどが挙げられる。これまでの、軌道整列相における電荷密度波に関しては、CE タイプの電荷整列を持つ物質でしか調べられていなかった。

本研究では、時間領域テラヘルツ分光法 (THz-TDS) を用いて、PSMO (110) 薄膜の 1-7meV のエネルギー範囲における光学伝導度の面内方位依存性を測定した。

図 1 (a) は (LaAlO₃)_{0.3}(Sr₂TaAlO₆)_{0.7} (LSAT) (110) 基板に作成した PCMO 薄膜の XRDθ-2θ パターンである。この結果から PCMO 薄膜は (110) 配向していることが分かる。図 1 (b) は今回の THz-TDS 計測におけるテラヘルツ波の偏光方向と PCMO 薄膜の方位を示したものである。偏光方向は PCMO 薄膜の [1-10]、[001] およびそれぞれから 45° 方向の 3 方向で測定した。[1-10] と [001] は、図 1 (c) の逆格子マッピング測定結果から、(222) ピークの大正一からのずれにより確かめた。図 1 (d) は超伝導量子干渉計 (SQUID) を用いて計測した PCMO 薄膜の磁化率計測の結果である。バルク試料と同様に 130K 付近に強磁性-反強磁性転移を示すヒステリシスが見られた。

図 2 は図 1 (b) に示された 3 方向に偏光したテラヘルツ波を用いた THz-TDS で測定した、PCMO 薄膜の光学伝導度の温度依存性である。測定した 3 方向で明かな傾向の違いが見られている。E_{THz}//0° では 120-300K でドレーデ的な応答が見られているが、120K 以下では反強

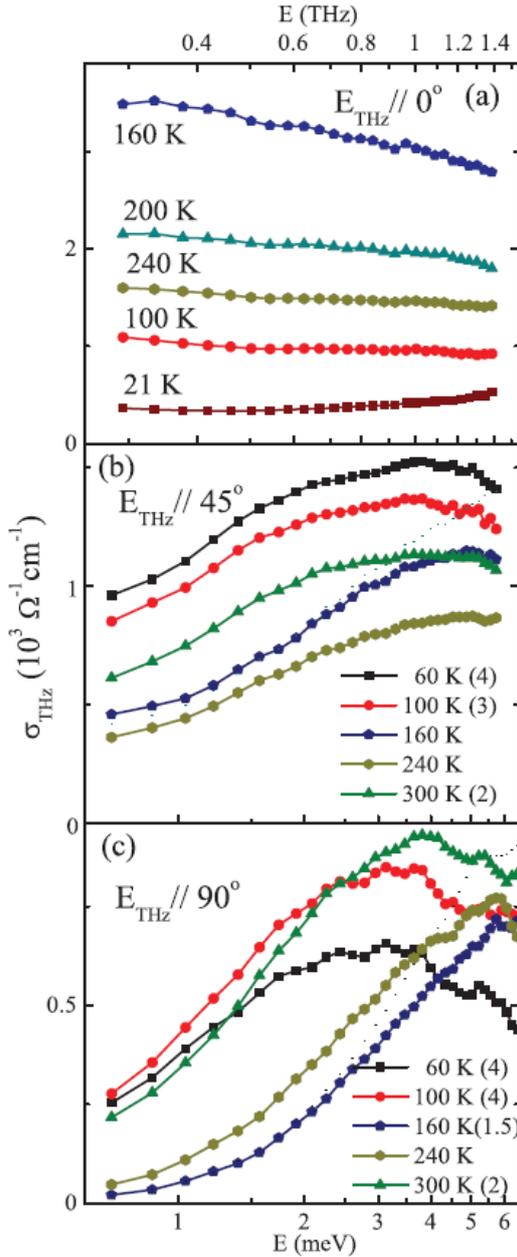


図2 (a)[1-10]($E_{\text{THz}}//0^\circ$), (b)[001]($E_{\text{THz}}//90^\circ$)および(c)それぞれから 45° 方向($E_{\text{THz}}//45^\circ$)の3方向における、THz-TDSで測定した、PCMO薄膜の光学伝導度の温度依存性。

磁性相の影響でドルーデ的な振る舞いからわずかなずれが見られる。 $E_{\text{THz}}//90^\circ$ では、 $E_{\text{THz}}//0^\circ$ と全く異なり、約4meVにピークを持つスペクトルが得られた。また、 $E_{\text{THz}}//45^\circ$ では $E_{\text{THz}}//0^\circ$ と $E_{\text{THz}}//90^\circ$ 重ね合わせのような振る舞いが観測された。

図3は3つの方位における、2meV、3.5meVおよび5meVで測定した光学伝導度の温度依存性である。 $E_{\text{THz}}//0^\circ$ では約140Kにシャープなピークがあり、260K付近にもブロードなピークが見られる。これは、バルクPCMOに近い振る舞いである。 $E_{\text{THz}}//45^\circ$ では、伝導度の

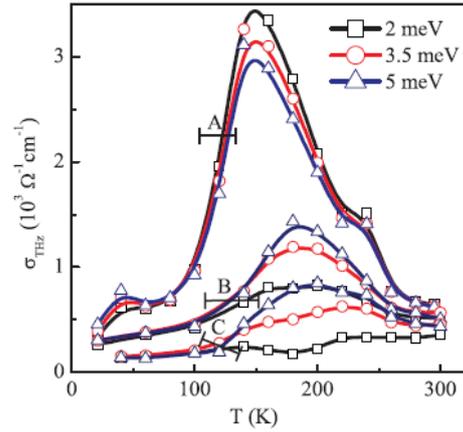


図3 PCMO(110)薄膜の(a)XRD $2\theta-\theta$ パターン、(b)方位と透過テラヘルツ波の偏光方向との関係、(c)逆格子マッピング測定結果および(d)磁化率計測結果。

値はかなり小さくなるが、同様の傾向は見られる。しかしながら、 $E_{\text{THz}}//90^\circ$ ではこの様なバルクPCMO的な振る舞いは観測されなかった。この様な、 $E_{\text{THz}}//0^\circ$ と $E_{\text{THz}}//90^\circ$ の電気伝導度の大きな違いは、それぞれの方向における電気伝導のメカニズムが異なっていることを示している。

$E_{\text{THz}}//90^\circ$ における4meV付近にピークを持つ光学伝導度スペクトルは、電荷密度波による集団励起に起因すると考えている。この電荷密度波による励起はローレンツ型の調和振動子モデルで記述できるため、今回得られた光学伝導度を、以下に示すドルーデ・ローレンツモデルで説明することを試みた。ドルーデ・ローレンツモデルは以下の式で表すことができる。

$$\sigma(\omega) = \frac{1}{4\pi} \frac{\Gamma_d \omega_p^2}{\Gamma_d^2 + \omega^2} + \frac{1}{4\pi} \frac{S_n^2 \omega^2 \gamma_n}{(\omega_n^2 - \omega^2)^2 + \omega^2 \gamma_n^2} \times (i.e., \text{Drude} + \text{Lorentz}),$$

ここで、 ϵ_0 、 ω_p 、 Γ_d 、 ω_n 、 γ_n 、 S_n^2 はそれぞれ、真空の誘電率、プラズマ周波数、ドルーデ散乱確率、中心周波数、n次ローレンツ振動子強度である。式の左の項がドルーデ応答の寄与、右側の項はローレンツ応答の寄与である。図4は $E_{\text{THz}}//0^\circ$ 、 $E_{\text{THz}}//90^\circ$ および $E_{\text{THz}}//45^\circ$ をドルーデ・ローレンツモデルでフィッティングした結果である。挿入図は $E_{\text{THz}}//0^\circ$ のドルーデフィッティングである。これより、 $E_{\text{THz}}//90^\circ$ のスペクトルはローレンツ成分のみで、 $E_{\text{THz}}//0^\circ$ はドルーデ成分のみでよく再現できることが分かる。一方、 $E_{\text{THz}}//45^\circ$ では、ドルーデ項とローレン項の両者の成分の重ね合わせで再現できる。

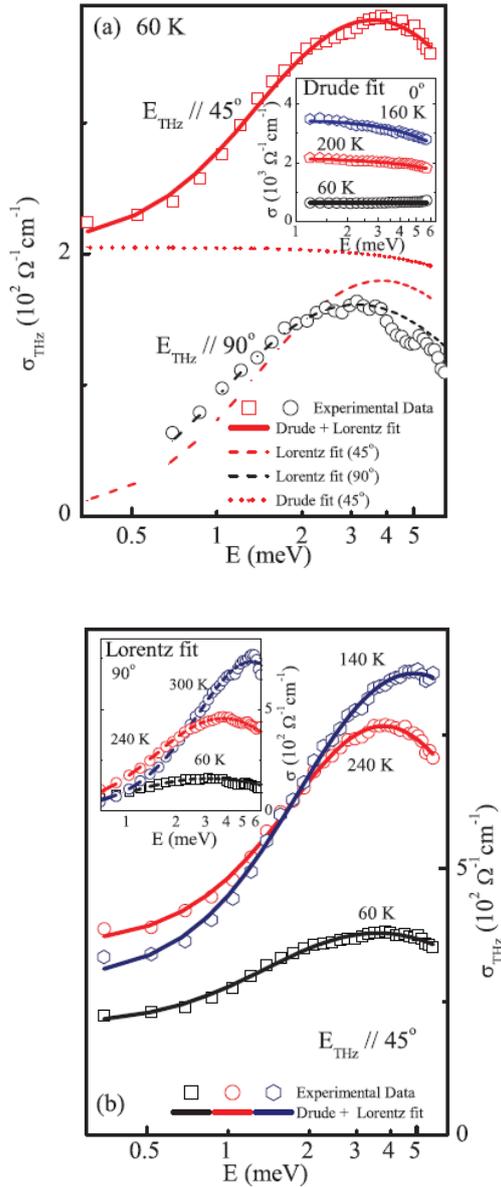


図4 (a) $E_{\text{THz}}//0^\circ$ 、 $E_{\text{THz}}//90^\circ$ および(b) $E_{\text{THz}}//45^\circ$ における光学伝導度をドルーデ・ローレンツモデルでフィッティングした結果。

図5はフィッティングの際のドルーデ項とローレンツ項の重み係数の温度依存性である。ローレンツ項の重み係数に関して $E_{\text{THz}}//45^\circ$ の方が、 $E_{\text{THz}}//90^\circ$ よりも大きいということが図5(a)からは示唆される。このことは、 $E_{\text{THz}}//45^\circ$ におけるローレンツ成分が $E_{\text{THz}}//90^\circ$ の単なる射影ではないと言うことを示している。一方、図5(b)のドルーデ成分を見ると、 $E_{\text{THz}}//0^\circ$ においては140K~240K強磁性金属相において大きく増加しており、また、 $E_{\text{THz}}//90^\circ$ の方は、全ての温度領域で小さな値となっている。また、図5(b)の挿入図はトータルの重み係数の温度依存性であるが、 $E_{\text{THz}}//0^\circ$ の時、強磁性金属相で大きく増加していることが分かった。

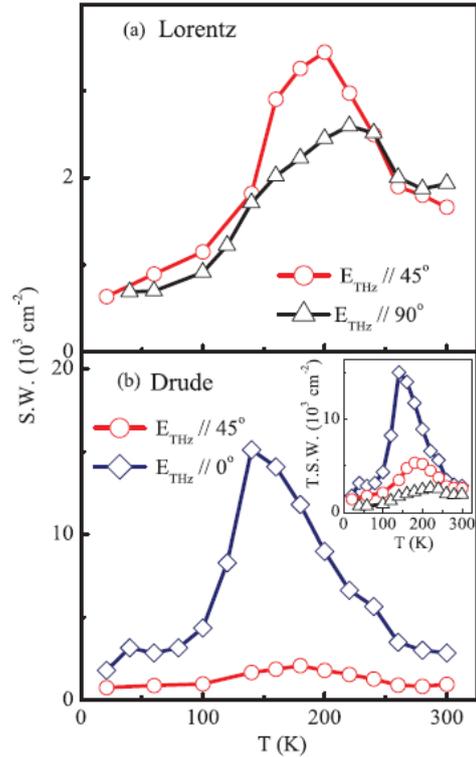


図5 PCMO(110)薄膜の光学伝導度をドルーデ・ローレンツの式でフィッティングしたときの、(a)ローレンツ項と(b)ドルーデ項の重み係数の温度依存性。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

R. Rana, P. Pandey, D. S. Rana, K. R. Mavani, I. Kawayama, H. Murakami and M. Tonouchi, "Anisotropy-induced crossover from Drude conductivity to charge-density-wave excitation a stripe-type charge-ordered manganite", Phys. Rev. B, Vol. 87, 224421(2013).

[学会発表] (計 1 件)

R. Rana, D.S. Rana, K.R. Mavani, I. Kawayama, H. Murakami and M. Tonouchi, "Anisotropy induced crossover from Drude conductivity to charge density wave excitations in $\text{Pr}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{MnO}_3$ ", JSAP-MRS Joint Symposia, September 18, 2013, Kyoto.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

川山 巖 (KAWAYAMA, Iwao)

研究者番号 : 10332264