

平成21年6月5日現在

研究種目：萌芽研究
 研究期間：2007～2008
 課題番号：19654044
 研究課題名（和文） ペロブスカイト型Mn酸化物における異常な反射率振動
 研究課題名（英文） Anomalous Reflectivity Oscillation of Layered Manganite
 研究代表者
 江馬 一弘 (EMA KAZUHIRO)
 上智大学・理工学部・教授
 研究者番号：40194021

研究成果の概要：

Mn酸化物の低温における反射スペクトルの時間変化を測定したところ、反射光強度が時間とともに非常にゆっくり振動していることが判明した。この現象の起源を解明する目的で研究を行った。半導体や金属では異常な振動が見られないことを確認したが、様々な条件で測定を行った結果、この異常な振動は強相関系物質の本質ではなく、光を反射する表面層が生じたことが原因と思われる。ただし、同じ条件下で半導体や金属では見られないことから、表面に特殊な層が生じるのは、強相関系の物質に限られると推定される。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	2,300,000	0	2,300,000
2008年度	900,000	0	900,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,200,000	0	3,200,000

研究分野：光物性

科研費の分科・細目：物理学・物性I

キーワード：強相関系物質，Mn酸化物，反射，磁性

1. 研究開始当初の背景

強相関電子系物質は電荷・スピン・軌道の複雑な絡み合いにより、多彩で魅力ある物性を示すため、固体物理学の中心課題として精

力的に研究されている。その研究は主に磁性や伝導に関するものであるが、最近では、光物性の立場からも研究が活発に行われている。

申請者は、半導体における光物性、特に励起子物性とその非線形性についての研究を10年以上にわたって行ってきた。実験手法としては、フェムト秒レーザーを用いた非線形分光や時間分解分光であり、緩和過程などを中心に研究を行っている。最近になって、強相関電子系である Mn 酸化物を用いて、反射型のポンプ・プローブ分光を行った。その結果、高い温度 ($T > 50$) では、電子系、スピン系、格子系の緩和過程をそれぞれ異なる時間スケールで観測できることがわかった (Solid State Commun. **133**, 449-453(2005)). しかし、低温になると、ポンプ・プローブ信号は測定する度に異なり、再現性が全くなかった。その原因を知るために、反射スペクトル自体の時間変化を測定したところ、反射光強度が時間とともに非常にゆっくり振動していることが判明した。その振動の周期は、**数時間から数 10 時間という異常な長さ**である。この異常な反射率振動は波長によってその振動周期が異なる (図1) ために、スペクトルが時間とともに変化する。スペクトルの変化は反射光の色の変化として肉眼でも確認できるので、反射光の写真も一緒につけた。普通に考えると、その異常な時間スケール故に、この振動は測定系の何らかの問題に起因するものであると推測できる。しかし、そう

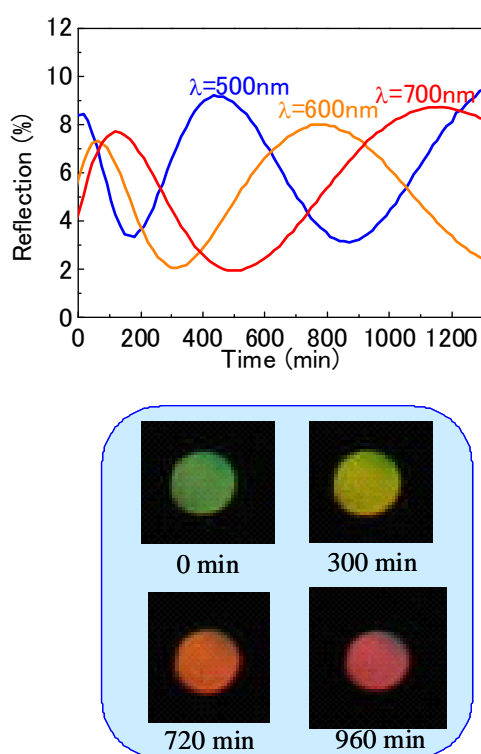


図1. Mn酸化物における異常な超周期の反射率振動(温度11K)

ではなく、後に示すように、強相関電子系の物性の何かを反映している可能性が高い

め、その点を明確にする必要があると考えた。

2. 研究の目的

本研究の目的の第一は、

(1)この異常な反射率振動が強相関電子系の示す物性に起因するものなのか、測定の問題なのかを明確にすることである。

ただし、この点については、すでに測定系の問題ではないことが判明しつつあるので、その確証を深めるための実験を行うことになる。そして、物性を反映していることが確認できたら、第二の目的は、

(2)どのような物質・条件で観測されるのかを系統的に調べることにある。

もちろん、最終的な目標は、この反射率振動の物理的な起源を明確にすることであるが、この「萌芽研究」の範囲内では、そこまでを目指すものでなく、系統的な実験データを蓄積することにある。

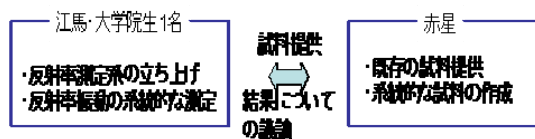
3. 研究の方法

【基本的な方針】

本研究における実験の最大の難点は測定に時間がかかることである。測定法自体は、反射スペクトルを取るだけなので簡単であるが、振動の周期が数 10 時間、つまり日のオーダーである。したがって、試料を変えるとか温度を変えるとかの系統的なデータを取ろうとすると、簡単に週・月の単位で時間を取ってしまう。実験室でこの測定を始めると、他の実験が長期間に渡ってできなくなるという大きな問題を抱えている。この問題点を解消するために、本申請の補助金の用途の大部分は、反射率振動を測定するための専用の測定系を立ち上げることにある。もちろん、測定する場所も必要だが、それは既存の実験室をうまく配置換えして、独立に測定が行えるような環境を作り出す。本補助金では、測定系に必要な真空ポンプ、ハロゲンランプ、光学系などを購入した。

【役割分担】

研究の統括は代表者の江馬が行い、試料作成を赤星が担当し、反射率振動の光学測定を江馬の指導のもと、大学院生 1 名が行った。以下に役割分担図を示す。



【試料作成】

用いる試料は、基本的にはペロブスカイト

型 Mn 酸化物であり、作成法は浮遊帯域溶融 (Floating Zone:FZ) 法である。これまでに、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_{1+x}\text{MnO}_4$, $\text{La}_{2-2x}\text{Sr}_{1+2x}\text{Mn}_2\text{O}_7$, $\text{Nd}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ などで反射率振動を確認しているが、その次元性も 2 次元、擬 2 次元、3 次元と様々であり、組成比 x によって、その磁気特性が大きく変化する。これらの中から素性の良くわかっている (磁気相図における転移温度、スピングラス相の存在など) 試料を系統的に作成し、反射率振動の測定を行う。スピングラスが関係しているという推測があるため、スピングラス相の有無、およびスピングラス相のあるものでは、ガラス転移温度の異なるものをいくつか用意する。それ以外にも、様々な磁気特性を持った試料が作成可能なので、可能なかぎり多くの種類の試料で系統的な測定を行う。

【測定系立ち上げ】

反射率振動を長時間測定し続けられる測定系を立ち上げた。低温での反射率測定なので、設備備品としては、クライオスタット、真空ポンプ、分光器が必要であり、その他に消耗品としてハロゲンランプおよび光学系 (レンズ、ミラー、ディテクターなど) が必須であった。

【反射率振動の確認と系統的な測定】

測定系が完成したら、これまでと同じ試料を用いて、反射率振動が測定系の問題でないことを確認する。具体的には、その他の物質 (半導体、金属) でそのような振動が見られないことを確認すること、振動が見られる物質ではその再現性、および振動が発現する温度の確定などを行う。その後、振動周期と波長の関係、入射光強度との関係などを明らかにしていく。一つの測定に週単位で時間がかかるため、パラメータを複雑にふることができない。したがって、初年度では、波長依存性と強度依存性に重点を置いて測定した。

2 年目には、磁気特性の異なるいくつかの試料で反射率振動の系統的な測定を行い、振動の特徴を整理した。また、波長依存、強度依存の他に、調べたことを列挙するとともに、測定に際し注目した点を述べる。

4. 研究成果

様々な試料を用いて、反射率振動を系統的に測定した。

波長依存

現在ある測定データの範囲では、波長が長いほど反射率振動の周期が長くなる傾向がある。さらに、その周期は入射する光の振動周期に大体比例しているという奇妙な現象が現れている。この点を、さらに波長範囲を

広げて確認した。

強度依存

この反射率振動は、光を入射したことによってスタートするものか、それとも光の入射とは関係なく、常に物質内で何かが振動しているのかを明らかにした。入射光が強い方が振動周期が短くなる傾向を示しており、入射光強度依存がありそうである。つまり、入射光が原因で何かがスタートしていると推測される。振動が誘発される入射光強度の閾値が存在するかなど、入射光強度依存性を明らかにした。

温度依存

スピングラス転移温度以下で振動が確認されたと述べたが、転移温度以上でも非常に長い周期で振動は続いているようである。その後さらに温度を上げると完全に振動が消える。このような温度依存性を試料を変えて系統的に測定した。振動の様子が変わる温度と、磁気相図での転移温度との関係を明らかにした。

偏光依存

結晶軸に対してどのような偏光の光でも起こるのかどうかを確認したい。入射光の偏光状態を変えて測定するとともに、反射光の偏光状態も振動とどう関係しているかを決定した。

外部磁場依存

スピングラスと関係があるならば、磁場をかけると敏感に振る舞いに変化するはずである。超伝導マグネット付きのクライオスタットは現有しておらず、測定に長い時間がかかるため、他の研究室で借りるわけにもいかない。しかし、磁石でも十分効果が見えると推測されるため、試料の横に強力な磁石を取り付けられるように測定系を改良し、磁場下での反射率振動を測定した。

空間伝搬効果

反射率振動の起源となるものが空間的に伝搬するかどうかを確認した。すなわち、試料のある場所に光をあて、別の場所の反射率が変化するかを測定した。伝搬効果があるならば、いくつかの場所に光をあて、それらの干渉効果なども見た。

以上のようなデータを 2 年間でできるだけ多く取得し、反射率振動の特性を整理した。ある程度のデータが揃ったので、物理的起源を解明する方向に向かう予定であったが、別の施設を利用し、真空度を高めた測定を行ったところ、奇妙な反射率振動は消滅した。これによって、この奇妙な振る舞いは、表面に

何らかの層が形成されて生じたものを予想される。ただし、半導体や金属では、真空度が低い状態でも、このような振動は観測されないので、Mn 酸化物特有の層形成かもしれないが、強相関の物理との本質的な関わりはないと結論した。

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)

1. K. Kouyama, Y. Kubo, K. Ema, and H. Kuwahara; “anomalous Reflectivity Oscillation of Layered Manganite $\text{La}_{0.5}\text{Sr}_{1.5}\text{MnO}_4$ ”, J. Phys. Soc. Jpn. **76**, 123702(2007). 査読有

[学会発表] (計 2 件)

1. 田先雷太, 幸山和晃, 赤木暢, 赤星大介, 江馬一弘, 桑原英樹, ペロブスカイト型酸化物における反射率の時間変化 II, 24aPS-27, 日本物理学会 2008 年春季大会, 2008 年 3 月近畿大学

2. 田先雷太, 幸山和晃, 赤木暢, 赤星大介, 江馬一弘, 桑原英樹, ペロブスカイト型酸化物における反射率の時間変化, 21aPS-83, 日本物理学会 2007 年秋季大会, 2007 年 9 月北海道大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

江馬 一弘 (EMA KAZUHIRO)
上智大学・理工学部・教授
研究者番号：40194021

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

赤星 大介 (AKAHOSHI DAISUKE)
上智大学・理工学部・講師
研究者番号：90407354