The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	ペロブスカイト型マンガン酸化物薄膜におけるテラヘルツ波物性
Author(s)	貴田, 徳明
Citation	大阪大学, 2002, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/43467
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

【68】

氏　　名	貴田徳明（きだ のりあき）
博士の専攻分野の名称	博　士（工　学）
学位記番号	第　17041　号
学位授与年月日	平成14年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当 工学研究科電気工学専攻
学位論文名	**ペロブスカイト型マンガン酸化物薄膜におけるテラヘルツ波物性**
論文審査委員	（主査） 教　授　斗内　政吉 （副査） 教　授　佐々木孝友　教　授　伊藤　利道　教　授　熊谷　貞俊 教　授　辻　毅一郎　教　授　平尾　　孝　教　授　山中　龍彦 教　授　中塚　正大

論文内容の要旨

本論文は、近年、多彩な物性が発現する故に、多くの研究が行われてきた強相関電子材料、中でも巨大磁気抵抗（CMR）効果を示すペロブスカイト型マンガン酸化物に着目し、そのテラヘルツ領域における光学的性質を明らかにするとともに、極短光パルス電荷変調による新規物性の発現と制御を試みる事を目的として、研究を行ってきた結果をまとめたものである。論文は6章から成り、得られた研究成果を以下に要約する。

第1章は、本研究の背景と目的について概観し、論文の構成について述べた。

第2章は、本研究で着目した典型的なマンガン酸化物である強磁性金属 $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$、反強磁性絶縁体 $Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$の磁気輸送特性を述べた。

第3章では、$La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$、$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$薄膜を MgO(100)基板上に、レーザーアブレーション法を用いて作製した結果について述べた。酸素分圧及び基板温度等の条件を制御する事で、ほぼ a 軸配向した酸素欠損のない単相薄膜が得られる事を、X線回折、抵抗の温度依存性、磁化の温度・磁場依存性を測定する事により明らかにした。

第4章においては、$La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$、$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$薄膜の低エネルギー領域（0.5-10meV）における光学的性質を明らかにするために、作製した $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$、$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$薄膜に初めてテラヘルツ電磁波時間領域分光を適用した結果を述べた。$La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$において、絶縁体金属転移温度以下で、既に Drude 吸収が消失している事を見出し、またキャリアーの平均自由行程等を見積もる事で電荷ダイナミクスを議論した。一方、$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$において、電荷整列の動的な挙動の一つの証拠として、電荷密度波の形成に伴う集団励起モードが存在する事を初めて明らかにした。

第5章においては、$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$薄膜上にボウタイ型アンテナの光伝導素子を作製し、電圧を印加しフェムト秒レーザーを照射する事で、磁性体から初めてテラヘルツ電磁波の発生に成功した結果について述べた。詳細な空間・印加電圧・励起ポンプ光強度・温度・サンプル依存性を測定し、$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$においては、従来の半導体からのテ

ラヘルツ電磁波発生で考えられている光による電流変調のみでなく、スピン変調によってもテラヘルツ電磁波が生じている可能性を指摘した。

最後に第6章において、本研究の総括を行った。

論文審査の結果の要旨

本研究は、超巨大磁気抵抗（CMR）効果を示すペロブスカイト型マンガン酸化物に着目し、そのテラヘルツ領域における電荷ダイナミクスを明らかにするとともに、極短光パルス電荷変調による新規物性の発現と制御を試みる事を目的として、研究を行ってきた結果をまとめたものである。具体的には、典型的なマンガン酸化物として、強磁性金属転移温度近傍でCMR効果が発現する$La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$及び$La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$を凌駕する磁気抵抗を示す反強磁性電荷・軌道整列絶縁体である$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$に着目し、それらの薄膜作製と評価を行っている。またマンガン酸化物系において、初めてテラヘルツ電磁波時間領域分光を適用し、低エネルギー領域（0.5-10meV）における複素光学スペクトルを測定し、マンガン酸化物の強磁性金属相及び反強磁性絶縁体相の光学的性質を明らかにしている。更に$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$を用いて光伝導素子を作製し、フェムト秒レーザーを照射する事で、磁性体から初めてテラヘルツ電磁波の発生に成功した結果について述べている。得られた研究成果を以下に要約する。

(1)レーザーアブレーション法を用いて、MgO(100)基板上に$La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$及び$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$薄膜の作成を行い、室温でのX線回折測定、抵抗の温度依存性、磁化の温度及び磁場依存性を測定し、報告されている単結晶の実験結果と比較する事で、作製した薄膜の評価を行った結果について述べている。

(2)作製した$La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$及び$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$薄膜に、初めてテラヘルツ電磁波時間領域分光を適用する事で、マンガン酸化物における、強磁性金属相及び反強磁性絶縁体相のテラヘルツ領域での光学的性質を明らかにした実験結果について述べている。$La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$の低温金属相においては、複素誘電率スペクトルの虚部に$\omega=0$にピークを持つDrude吸収にDrudeモデルを適用し、キャリアーの有効質量（m^*）、散乱確率（Γ）、平均自由行程（l）及びフェルミ波長（λ_F）を見積もっている。その結果、強磁性金属相において、$\lambda_F > l > a$（a：格子定数）の関係が成り立つ事を明らかにしている。この事は通常の金属の描像で成り立つ$\lambda_F < l$が破綻している事を意味しており、事実、m^*は、自由電子の質量と比較して15倍程度大きく、これは、比熱等の実験から見積もられる値の5倍程度の大きさである事を示している。Drude吸収は、温度上昇に伴い減少するが、直流電気抵抗の測定より見積もった絶縁体－金属転移温度（T_{IM}）より低温（$\sim T_{IM}$）で既に消失している事を明らかにしている。一方、マンガンイオン、Mn^{3+}、Mn^{4+}が1:1に整列する$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$の電荷・軌道整列絶縁体相において、2-3meVに吸収帯が存在する事を初めて明らかにしている。この吸収帯の特徴と$K_{0.3}MoO_3$等の低次元物質の光学応答と比較する事で、$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$において、電荷密度波の形成による集団励起モードが存在する事を初めて明らかにしている。

(3)$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$薄膜上にボウタイ型のアンテナをパターニングして光伝導素子を作製し、電圧を印加した上で、フェムト秒レーザーを照射し、磁性体から初めてテラヘルツ電磁波の発生に成功した結果を述べている。発生したテラヘルツ電磁波の時間領域波形のメインパルスの半値幅は1ps程度であり、周波数成分として、中心周波数約0.2THz、最大1THz程度まで延びている事を明らかにしている。テラヘルツ電磁波強度は、印加電圧及び励起ポンプ光強度に対して線形であるが、突如、非線形に減少する傾向を示す。その後、同様の実験を行ったところ、閾値を持ってテラヘルツ電磁波が発生する事を明らかにした。テラヘルツ電磁波強度は、$Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$のスピン整列温度及び電荷・軌道整列温度で、変化が見られ、その前後で、テラヘルツ電磁波強度の温度に対する傾きが逆転する。更に時間領域波形のメインパルスの前後にも顕著な変化が現れる。この事より、従来の半導体で考えられている電流変調のみでなく、光によるスピン変調が生じている可能性がある事を示している。

以上のように、本論文は、近年CMR効果を示す事で多くの研究が行われてきたマンガン酸化物におけるテラヘル

ツ領域での光学的性質を明らかにするとともに、フェムト秒レーザーを用いてマンガン酸化物の新たな機能を創製した結果について述べている。特に $Pr_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ における電荷密度波に起因する集団励起モードの発見及び磁性体からのテラヘルツ電磁波放射に世界に先駆けて成功した研究成果は、マンガン酸化物をはじめとする強相関電子系のテラヘルツ波物性開拓に新たな知見を与え、将来のテラヘルツデバイス応用の先駆けとなる成果である。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。