

Cr³⁺の選択励起による ErCrO₃ の磁化

笹森 栄吉、永田 裕侑、関谷 隆夫

横浜国立大学大学院 工学研究院

Magnetization change of ErCrO₃ by Selective Excitation on Cr³⁺

E. Sasamori, Y. Nagata, T. Sekiya

Graduate school of Engineering, Yokohama National University

Abstract

The change in magnetization of ErCrO₃ for anti-ferromagnetic Γ_1 and weak-ferromagnetic Γ_4 phases induced by selective photo-excitation on Cr³⁺ R' line were measured with a pick-up coil. A pulsed-laser light irradiation on Γ_1 Phase results in an increase in induced voltage on pick-up coil, which corresponds an increase in magnetization. On Γ_4 phase, its magnetization decreases on the photo-excitation. The induced voltage was proportional to excitation intensity, and the decay time of the induced voltage depends on the excitation intensity.

1. 序論

光を照射することによって物質の磁性を変化させることは光誘起磁化と呼ばれる。これは磁性イオンを基底レベルと磁気量子数の違うレベルへ光で励起してマクロな磁気モーメントを発生させることができることに起因している。近年我々は ErCrO₃ による光誘起磁化の研究に着手した。ErCrO₃ は Er³⁺ と Cr³⁺ の二つの磁性イオンを含み、それぞれのイオン間で Er³⁺-Er³⁺、Cr³⁺-Cr³⁺、Er³⁺-Cr³⁺ の磁氣的相互作用が働き、温度や印加磁場によって相転移を起こすことが知られている[1]。印加磁場が無い状態では $T_{c1}=133.2\text{K}$ 以下で c 軸方向に磁化を持つ弱強磁性体(Γ_4 相)となり、 $T_{c2}=9.8\text{K}$ 以下では Cr³⁺ のスピンの再配列し反強磁性体(Γ_1 相)となる[2,3]。また、Cr³⁺、Er³⁺ はそれぞれ d 電子、f 電子の局在性により Cr³⁺ と Er³⁺ の光吸収スペクトルはある程度独立して観測される[4]。

ErCrO₃ のこれらの物性は一方のイオンを選択的に励起することで他方のイオンの磁化を制御できる可能性を秘めており、本研究では Cr³⁺ を選択励起することによる ErCrO₃ の磁化の時間変化を測定した。

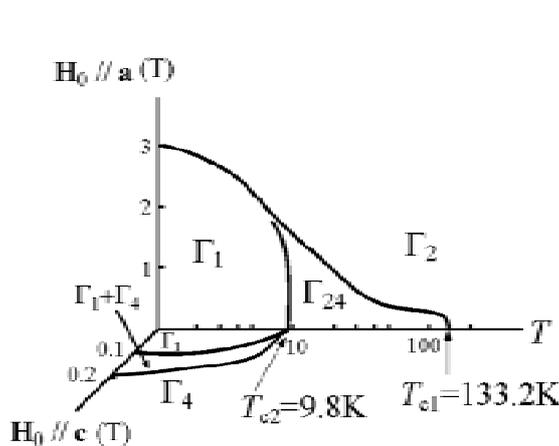


Fig.1 ErCrO₃ の磁気相図

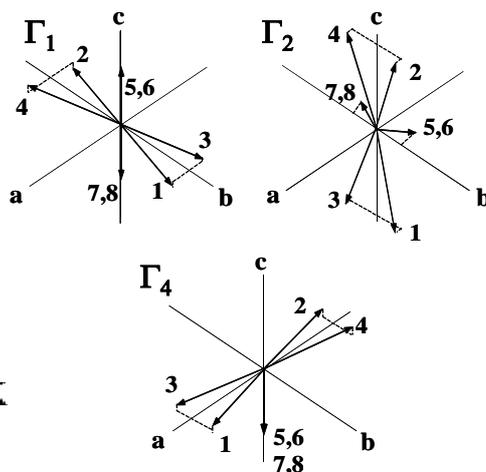


Fig.2 ErCrO₃ におけるスピンの配列
(1-4: Cr³⁺, 5-8: Er³⁺)

2. 実験

本実験にはフラックス蒸発法により育成された ErCrO_3 単結晶を使用した。磁束計 (Quantum Design) を用いて、 ErCrO_3 単結晶の c 軸に平行に外部磁場を印加した場合の磁化率の温度依存性と磁場依存性の測定を行った。

ErCrO_3 の Γ_1 相 ($T=7\text{K}$) と Γ_4 相 ($T=11\text{K}$) において Cr^{3+} イオンの選択的パルス光励起による ErCrO_3 の磁氣的応答をピックアップコイルを用いて測定した。結晶の c 軸方向の磁化の変化を測定するためにピックアップコイル (0.04mm, 20 ターン) を結晶の周囲に配置した。励起光には OPO を備えた 10Hz で動作するパルス Nd:YAG レーザを制御して得られる Cr^{3+} の R' 吸収線に相当する波長 677nm (1.83eV) のナノ秒パルス光を用いた。励起光をシャッターで間引き 2Hz として試料に照射した。励起光強度は $500\mu\text{J} \sim 60\mu\text{J}$ とした。 Γ_1 相を励起する際には $H=2500\text{e}$ 、 Γ_4 相を励起する際には $H=15000\text{e}$ の外部磁場を結晶の c 軸に平行な向きに印加した。結晶へのレーザ照射によりピックアップコイルに誘起される電圧をアンプを介しオシロスコープで測定した。プリズムによって分光されたレーザ光成分の一部をフォトダイオードに取り込み、オシロスコープのトリガーとした。

3. 結果・考察

Fig.3 に ErCrO_3 の磁化率の温度依存性と磁場依存性を示す。Fig.3(a)、(b)より磁気転移温度は $T_{c1}=133.2\text{K}$ 、 $T_{c2}=9.8\text{K}$ であった。また、Fig.3(c)より T_{c2} 以下の $T=5\text{K}$ において外部磁場の増加に伴い $H=10000\text{e}$ 付近で反強磁性相から弱強磁性相に転移し、Fig.3(d)より T_{c2} 以上の $T=25\text{K}$ では $H=10000\text{e}$ 付近で c 軸方向の磁化が飽和することがわかる。これらの磁氣的性質は過去の研究報告[2,3]と一致しており、本実験で使用する単結晶が良質なものであることが確認できた。

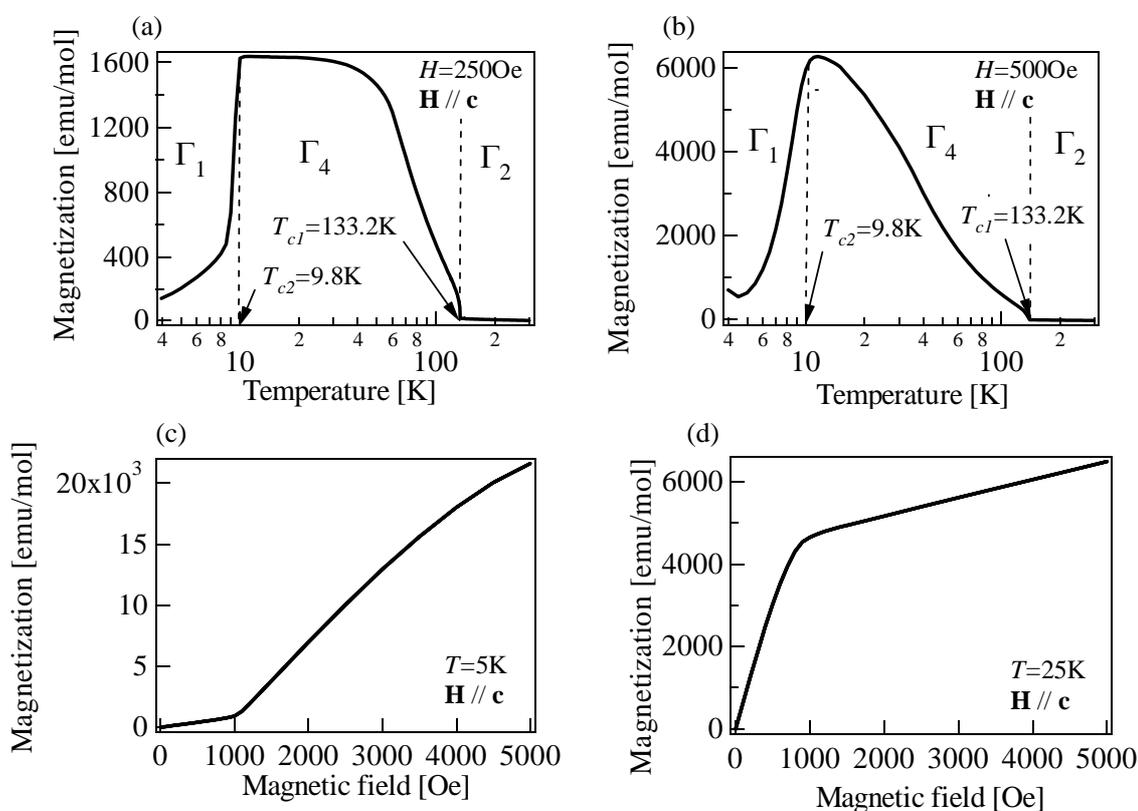


Fig.3 SQUID で測定した ErCrO_3 の磁化率 (a),(b)温度依存性 (c),(d)磁場依存性

Cr^{3+} の R' 吸収線励起による ErCrO_3 の光誘起磁化信号の励起光強度依存性を Fig.4 に示す。縦軸はコイルに誘起された電圧を示し、正の方向が結晶の c 軸方向の磁化の増加に、負の方向が減少に対応する。コイルに発生した誘導起電力は結晶の誘起磁化の時間変化に対応すると考えている。

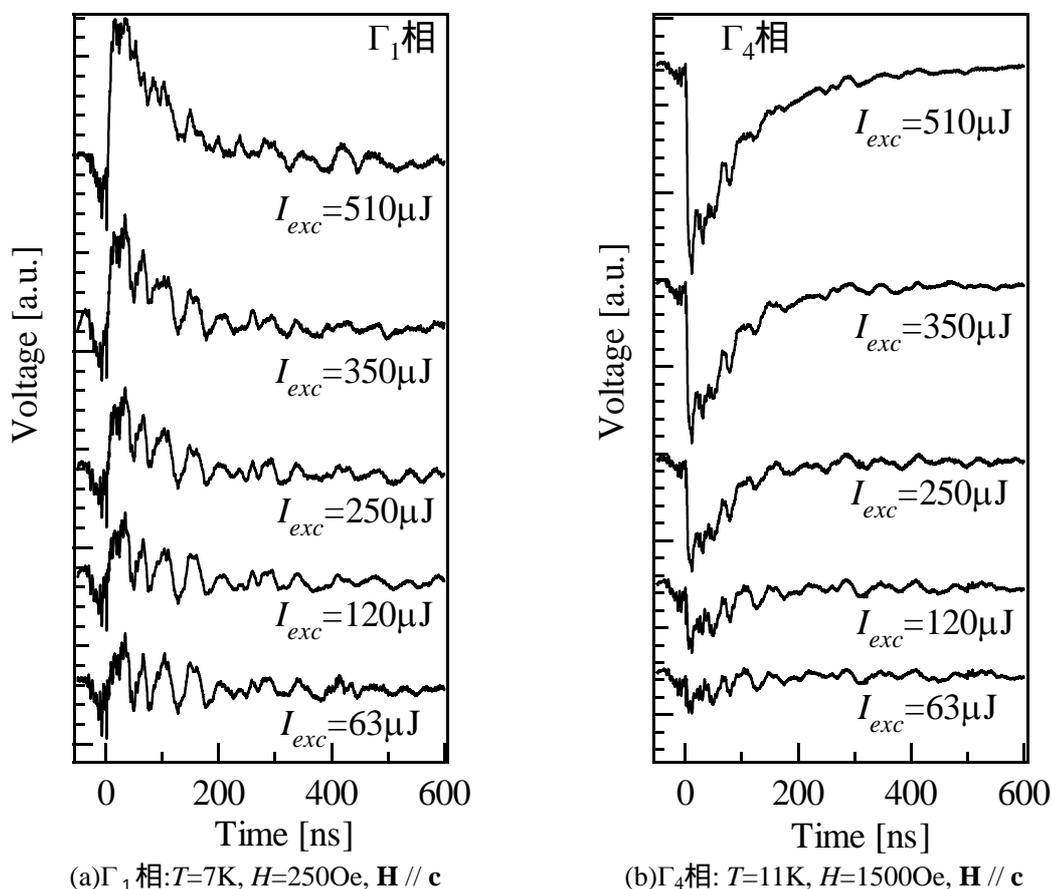


Fig.4 光誘起磁化信号の励起光強度依存性

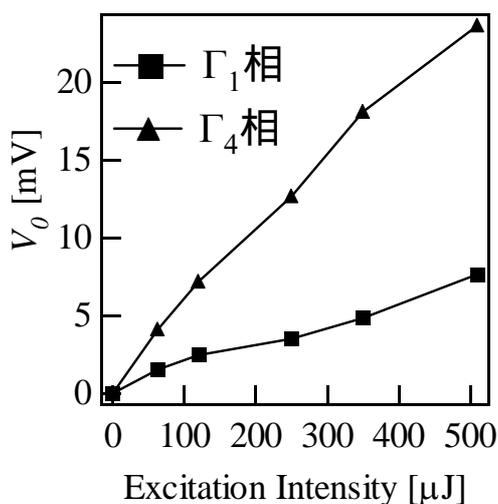


Fig.5 光誘起磁化信号の最大振幅の励起光強度依存性

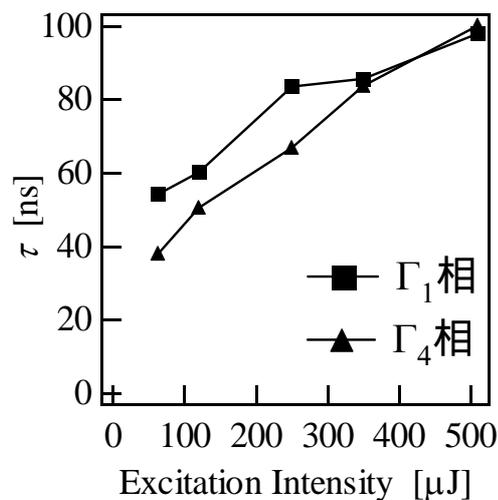


Fig.6 減衰時定数の励起光強度依存性

Γ_1 相を励起した場合は結晶の c 軸方向の磁化の増加を示す信号が、 Γ_4 相を励起した場合は減少を示す信号がそれぞれ観測された。 $t < 0$ に見られる負の方向の誘起電圧はレーザー照射によるノイズである。また、今回得られた減衰波形には振動成分が含まれているが、これが単結晶の磁化の変化に起因するものなのか測定系の影響なのかについて現在研究を進めている。

Cr^{3+} を選択励起したことにより Cr^{3+} の電子状態が変化し、 Er^{3+} - Cr^{3+} 間の磁氣的相互作用が働いたため磁化の変化が生じたと考え、得られた波形の減衰部分を $V = V_0 \exp(-\frac{t}{\tau})$ よりフィッティング解析した。コイルの誘起電圧の最大振幅 V_0 、減衰時定数 τ と励起光強度との関係を Fig.5、6 に示した。Fig.5 より最大振幅 V_0 と励起光強度はほぼ比例関係にあり、 c 軸方向の磁化の時間変化が線形応答の範囲内で起きていることを示している。Fig.6 より減衰時定数は励起光強度が小さくなるほど短くなる傾向が見られ、 Γ_1 相を励起した場合と Γ_4 相を励起した場合の減衰時定数の差は小さい。この信号の減衰時定数に励起光強度依存性があることや、弱強磁性状態である Γ_4 相を励起したときも Γ_1 相を励起した場合と減衰時間がほぼ等しい信号が観測されたことから、レーザー光のエネルギーが熱に変わり、試料の温度が上昇したことで磁化が変化した可能性がある。すなわち Fig.3(a),(b)より Γ_1 相状態から温度を上げていくと磁化率が増加し、 Γ_4 相状態から温度を上げていくと磁化率が減少することからこのように解釈することも可能である。今後測定系の見直しを行った上で、試料温度の上昇の可能性や信号に含まれる振動成分の原因を検討する。

4. まとめと今後

Cr^{3+} の R' 吸収線に相当する波長で励起したときの ErCrO_3 の磁化の時間変化の測定を行った。 Γ_1 相と Γ_4 相とで符合の異なる誘起磁化信号が観測され、励起光強度依存性から、この反応が線形応答の範囲内で起きていることを確認した。今回の測定では磁化の変化が光励起に起因するという確証は得られなかったため、試料の温度上昇の可能性を検討していく必要がある。また、励起光に Er^{3+} の吸収線を用いた測定や、ピックアップコイルの配置を変えた測定を行うことで、 ErCrO_3 の光誘起磁化の研究を進めていきたいと考えている。

参考文献

- [1] T. Yamaguchi : J. Phys. Chem. Solids, **35** (1974) 479-500
- [2] 玉城孝彦,他,日本応用磁気学会誌, **6** (1982) 135.
- [3] K. Toyokawa, et al., Phys. Rev. **B19** (1979) 274.
- [4] A. Hasson, et al., Phys. Rev. **B12** (1975) 5051.