

テラヘルツ波パルスによる超高速スピン分光

中嶋 誠 (Makoto Nakajima) (大阪大学レーザー科学研究所)

近年テラヘルツ波光源の発展は目覚ましく、その高強度化が進むことで、物性研究においても観測だけでなく励起し、制御する実例が増えてきている。スピン分光に用いるテラヘルツ波の磁場成分は、大きいもので、ピーク振幅がサブテラ程度にもなっている[1-5]。

磁性体におけるスピンの超高速応答は、スピントロニクスや量子計算などの応用が期待され、光領域において活発に研究が行われており、光キャリア励起や円偏光励起による逆ファラデー効果（逆磁気光学効果）等を用いてスピン歳差運動を誘起する[6,7]。これに対し、フェムト秒パルスレーザーを使って発生できるテラヘルツ波パルスを用いると、磁気共鳴周波数・マグノン周波数に共鳴させた磁場成分によって、ゼーマン相互作用で直接励起することができる[5,8-20]。このことは光励起の際に付随してくる電子系の励起や強い加熱効果を抑制できるという大きな利点につながるため、基底状態に近いスピンの超高速ダイナミクスを効率的に励起・観測する手法としてテラヘルツ波は非常に適したものである。これらの特徴からテラヘルツ波を用いたスピン系の応答に関する研究は近年数多く報告されるようになってきており、我々のグループでは最初期から放射・吸収・磁気光学スペクトル等の測定[8-11]からテラヘルツ波パルスを用いたスピン歳差運動のコヒーレント制御[9]、スピン再配列転移の観測[13]、近年の巨視的磁化のコヒーレント制御[16]や、サブピコ秒の超高速応答[19]など報告しており、その一部を紹介するようになりたい。

磁性体中にテラヘルツ波パルスが入射されると、その磁化は下記のランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式に従って運動する。

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma \mathbf{M} \times (\mathbf{H}_{\text{eff}} + \mathbf{H}_{\text{THz}}) + \alpha \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \quad \text{式(1)}$$

ここで \mathbf{M} は磁化を表し、 \mathbf{H}_{eff} および \mathbf{H}_{THz} は、それぞれ有効磁場および入射するテラヘルツ波の磁場成分を表し、 γ は電子の磁気回転比に相当する。右辺第2項は減衰項を表し、 α は減衰定数である。ハーフサイクルに近いテラヘルツ磁場が入射した場合の典型的な応答は、当初磁化容易軸に向いていた磁化が撃力的に倒され、容易軸の周りで歳差運動を始め、その後容易軸の方向を向くように減衰していくというものである。

図1は、テラヘルツ波パルスを用いたナノ磁性体 ($\epsilon\text{-Ga}_{0.4}\text{Fe}_{1.6}\text{O}_3$) に照射したときに生じる円偏光テラヘルツ波放射である[8]。直線偏光のテラヘルツ波を入射することで、バルク磁化(スピン)の歳差運動に対応した周波数0.1 THzの円偏光テラヘルツ放射が観測されている。測定は室温で行われ、試料表面垂直に磁化された試料を用いている。測定中は外部磁場を印加しておらず、自然共鳴に対応するスピン歳差運動による放射(吸収)を見ている。放射されるテラヘルツ波の楕円率は ~ 1 であり、ほぼ純粋な円偏光となっている。また円偏光のカイラリティは、試料の向き(磁化の向き)を変えることで逆転し、この円偏光の放射が、磁化の歳差運動を起源とすることを示している。これはテラヘルツ波によって励起されたピコ秒時間スケールの超高速磁化ダイナミクスをテラヘルツ波放射で観測した最初の例である。

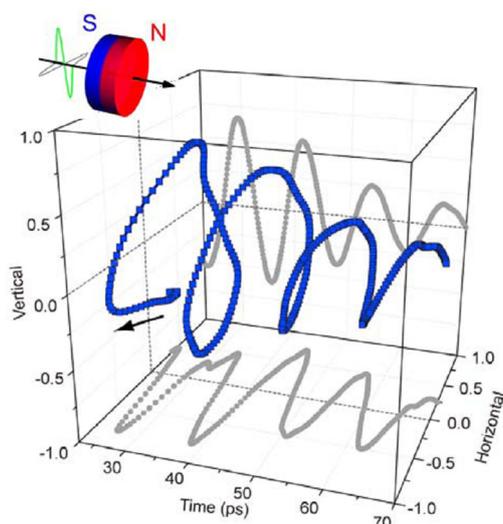


図1 $\epsilon\text{-Ga}_{0.4}\text{Fe}_{1.6}\text{O}_3$ ナノ磁性体からの円偏光テラヘルツ波放射

また、入射させるテラヘルツ波をダブルパルス化することによって、スピン歳差運動の振幅を増強させたり消滅させたりすることが可能である[9]。このことは、コヒーレントフォノンの測定などでも行われている手法であるが、テラヘルツ波パルスを用いることで、スピン系と光系のエネルギー移動を直接観測することが可能であり、スピン系への情報の書き込みだけでなく、スピン歳差運動の情報をテラヘルツ波の信号から読み取るという新しい可能性についても示した[9]。

測定の対象にしている希土類オルソフェライトは、温度によってスピン再配列転移(スピン配列が90度回転する磁気転移)を示す物質であるが、そのスピン状態をテラヘルツ時間領域分光法によって、明らかにした[13]。これは、透過テラヘルツ波パルスが、試料面内の磁化の振る舞いを検出できるため、その偏光特性からスピン配向を区別することが可能である。

このスピン再配列転移が、外部磁場に敏感な相転移であることに着目し、テラヘルツ波を用いた巨視的なスピン秩序制御を試みた[16]。仮に低温相における磁化の向きが横方向、高温相では縦方向とする。温度上昇によってスピン再配列転移が生じる場合、スピン構造の向きが90度回転し、横から縦方向に変化する。この場合上方向と下方向のエネルギーは縮退しているため、磁化が上方向に回転する確率と下方向に回転する確率は等価であり、等量の分布が生じるようになる。しかしこの過程において先にテラヘルツ波を加えると状況が変わってくる。まずテラヘルツ波パルスによりスピン歳差運動が誘起されるので、磁化が上下に振動する。このように磁化が上下に偏った際に、タイミングを合わせて瞬時に光パルスを入射し、スピン再配列転移を誘起する。この瞬間は磁化の対称性が崩れているので、上手く行けば試料全体の巨視的な磁化を一方に揃えることができるはずである。スピン再配列転移温度の直下

(84 K) を初期温度に設定し、波長800 nm・時間幅約100 fsの光照射によってスピン再配列転移を誘起した。測定にあたり、用いた試料は磁性体 ErFeO_3 のC面である。Fモードの共鳴周波数(0.06 THz)に合わせて金属微細構造(分割リング共振器)を表面に作製し、共鳴周波数の磁場成分が試料表面に垂直にかかるように配置した。

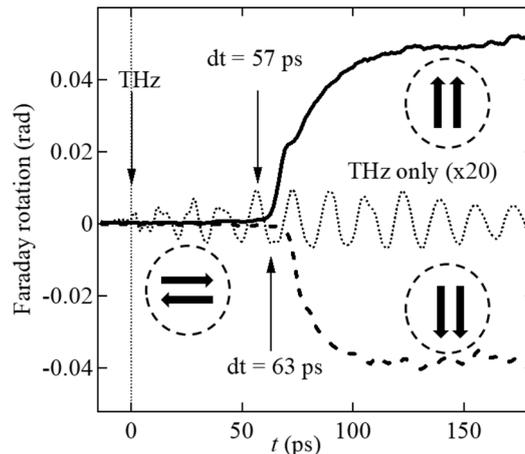


図2 ErFeO₃ における巨視的磁化のコヒーレント制御

図2が実験結果であり、縦軸はファラデー回転角であり、試料深さ方向の磁化に相当する。照射前の磁化は試料表面に平行の方向を向いており、スピン再配列転移後には、表面に垂直の方向を向くことになる。点線で表示されているのは、テラヘルツ波パルスのみを照射したときに相当し、周期的な振動成分が見られ、スピン歳差運動が誘起されることがわかる(20倍に増幅して表示)。0 psでテラヘルツ波パルス照射し、その後 $dt = 57$ ps のときにスピン再配列転移を誘起する光パルスを入射すると光パルス照射後に徐々に磁化が増加し、大きな値をとることがわかる (図2実線)。また、異なるパルス間隔 $dt = 63$ ps では、磁化が負の方向に増大していくことがわかる (図2破線)。最終的に到達する磁化の大きさは、テラヘルツパルスで誘起したスピン歳差運動の振幅の80倍もの大きさに相当する。すなわちテラヘルツパルス照射後に光パルスをいれることで、上向きもしくは下向きのどちらかに、巨視的磁化を誘起可能であることを示した。スピン再配列転移を誘起する時刻における、テラヘルツ波磁場で誘起された磁化の偏りにより、磁化が整列する方向が決まることが分かった。このように、テラヘルツ波パルスと光パルスを組み合わせることにより、スピン再配列転移後の巨視的磁化の向きを超高速に制御できることを明らかにした[16]。

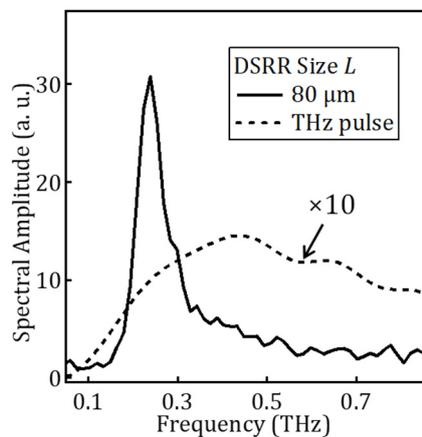


図3 金属導波路と金属微細共振器による検出されたテラヘルツ波スペクトル

さらにテラヘルツ波の励起強度を増大させることができれば相転移近傍等ではなく、通常状態においても磁化の制御の可能性が現れてくる。テラヘルツ波励起強度のさらなる増大のために、我々は、金属微

細共振器のついた常磁性体試料 $Tb_3Ga_5O_{12}$ (TGG) にV字型の金属導波路を装着した[17]。V字型の角度は、テラヘルツ波の集光ビーム角度に合わせており、超収束効果により、導波路空間にテラヘルツ波が集光するようになる。この増強された電場によって、金属微細共振器(2重分割リング共振器)を励起し、試料垂直方向に近接磁場を発生させ、それを光ファラデー効果で検出した。すなわち常磁性体を用いた磁場波形計測法であり、磁気光学(MO)サンプリングに対応する[18]。図3に実際に観測された磁場スペクトルを示す。共振器の共鳴周波数において、30倍もの値に増幅されていることが確認できた。この共鳴周波数は共振器のサイズ等によって調整可能であり、狭帯域で増強されたテラヘルツ波パルスにより、スピン制御等の実験への応用が期待される。また、テラヘルツ波のMOサンプリングに関して言えば、さらに低温にすることで、キュリー則に従って磁気感受率が大きく増大し、そのMO検出効率も大きく増加することが期待される。実際に33 Kに冷やした状態では20倍もの検出感度の増強に成功した[18]。一般的に得られるヘリウム温度4 Kまで冷やした場合、室温に比べて感度向上率は2桁に達すると予想される。

テラヘルツ波パルスを用いた磁性体におけるスピン分光について、現在では研究報告例も大きく増加し、マグノンの非線形光学応答[20]をはじめ新しい試みが今も多く行われている状態となっている。最近では磁性体を用いたテラヘルツ光源も注目を集めてきている[21-23]。テラヘルツ波と磁性体研究は組み合わせもよく、磁化の制御等の基礎研究だけでなく、磁気記録やスピンメモリへの応用やテラヘルツ帯磁気デバイスの開発などの応用研究が進められていくことも期待される。今後もこのテラヘルツスピントロニクス分野がさらに発展していくことを期待する。

【参考文献】

- [1] M. Hangyo, *Jpn. J. Appl. Phys.* 54, 120101 (2015): (Free access)
<http://iopscience.iop.org/article/10.7567/JJAP.54.120101/meta>
- [2] T. Kampfrath, *et al.*, *Nat. Photonics* 7, 680 -690 (2013).
- [3] J. Hebling, *et al.*, *J. Opt. Soc. Am. B* 25, B6-B19 (2008).
- [4] Y. Minami, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* 102, 069902 (2013).
- [5] M. Nakajima, *et al.*, *Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves*, 37, pp1199-1212 (2016).
- [6] A. V. Kimel, *et al.*, *Nature* 435, pp655-657 (2005).
- [7] A. Kirilyuk, *et al.*, *Rev. Mod. Phys.* 82, 2731 (2010).
- [8] M. Nakajima, A. Namai, S. Ohkoshi, T. Suemoto, *Optics Express* 18, 18260 (2010).
- [9] K. Yamaguchi, M. Nakajima, and T. Suemoto, *Physical Review Letters*, 105, 237201 (2010).
- [10] A. Namai, *et al.*, *Journal of American Chemical Society* 131, 1170 (2009).
- [11] A. Namai, *et al.*, *Nature Communications* 3, 1035 (2012).
- [12] T. Kampfrath, *et al.*, *Nat. Photon.* 5, 31, (2011).
- [13] K. Yamaguchi, *et al.*, *Physical Review Letters*, 110, 137204 (2013).
- [14] T. Kurihara, *et al.*, *Physical Review B* 90, 144408 (2014).
- [15] K. Yamaguchi, *et al.* *Physical Review B* 92, 064404 (2015).
- [16] T. Kurihara, *et al.*, *Physical Review Letters* 120, 107202 (2018).
- [17] H. Qiu, *et al.*, *Optics Letters* 43, pp1658-1661 (2018).
- [18] T. Kurihara, *et al.*, *Applied Physics Letters* 113, 111103 (2018).
- [19] S. Ohkoshi, *et al.*, *Journal of American Chemical Society* 141, 1775-1780 (2019).
- [20] S. Baierl, *et al.*, *Nat. Photon.*, 10, 715-718 (2016).
- [21] T. Kampfrath, *Nat. Nanotechnol.* 8, 256-260 (2013).
- [22] H. Qiu, *et al.*, *Optics Express* 26, pp15247-15254 (2018).
- [23] H. Qiu, *et al.*, *Applied Physics Express* 11, 092101 (2018).