

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 8 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2011～2014

課題番号：23244063

研究課題名(和文) テラヘルツパルス電磁波によるスピン秩序の制御と動的挙動の観測

研究課題名(英文) Control of spin order and observation of its dynamical behavior by using pulsed terahertz electromagnetic wave

研究代表者

末元 徹 (Suemoto, Tohru)

東京大学・物性研究所・教授

研究者番号：50134052

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,800,000円

研究成果の概要(和文)：強力テラヘルツ(THz)パルスの磁場成分を用いた各種のポンプ・プローブ時間分解測定法によって、オルソフェライト弱強磁性体におけるスピンおよびスピン再配列転移の超高速ダイナミクスを研究した。その結果、(1) スピン再配列転移に伴うスピンの方位角の変化をTHz時間領域分光法によって測定することに成功した。(2) 電子励起がスピンの環境に影響を与えるまでに10から数10psの時間がかかることを見出し、f電子・格子間の相互作用が律速していると結論した。(3) 例外的にコヒーレンス時間の長いスピン歳差運動を見出した。(4) 分割リングとスピンの結合による歳差運動振幅の共鳴増大を見出した。

研究成果の概要(英文)：Ultrafast dynamics of spin motion and spin reorientation transition in orthoferrite weak-ferromagnets were investigated by means of several types of pump-and-probe time-resolved spectroscopy based on pulsed magnetic fields accompanying high intensity terahertz (THz) radiation. The main achievements are: (1) Change of spin orientation angle associated with the reorientation transition was successfully observed with THz time-domain spectroscopy. (2) A delay time of ten to several tens of ps was found for the electronic excitation to act on the spin environment. The bottleneck of this process is identified to be the weak interaction between phonons and f-electrons. (3) Spin precession with an exceptionally long coherence time was found. (4) Enhancement of the precession amplitude was observed in a spin system coupled with a split-ring resonator.

研究分野：数物系科学

キーワード：テラヘルツ波 時間分解 磁気共鳴 スピン再配列転移 弱強磁性体 オルソフェライト メタマテリアル 分割リング共振器

1. 研究開始当初の背景

近年、電子の持つ電荷だけではなく、スピン自由度も利用した電子デバイスの開発を目指すスピントロニクスと呼ばれる分野が脚光を浴びている。エレクトロニクスにおける磁性の利用は長い歴史を持つが、スピン流やコヒーレンスなど高度なスピン利用を目指すのが新しい視点である。スピントロニクスにはセンサー、メモリー、スイッチ、トランジスターの開発や量子情報処理技術の実現も含まれる。これに伴って様々な材料への要求が高まり、強磁性体金属や半導体のナノ構造体、磁性半導体、マルチフェロイック物質などの研究が進んでいる。

この流れの中で、ごく最近、外的な刺激によるスピンドायナミクスやスピン秩序の超高速な制御が俄かに注目を集めるに至り、世界中で一斉に研究が開始されている。我々はその中でも、いち早くテラヘルツ電磁波 (THz 波) を用いた強磁性共鳴の実験に着手し、磁化させた ϵ 酸化鉄においてスピン歳差運動から高効率で円偏光が放射されることを見出した。また、オルソフェライト YFeO_3 においてダブルパルス THz 照射により歳差運動を止めたり、2つのモードの一方を選択的に励起するなどコヒーレント制御が可能であることを示した。

2. 研究の目的

本計画では、超短パルス THz 電磁波の磁場成分とスピンの直接的な相互作用を利用して、磁気秩序の制御とダイナミクスの研究を行う。電子励起を介さず、THz 波のみで制御と観測を行う方式を採用することにより、光キャリアの生成や発熱の問題を回避して純粋なスピンの制御を可能にする。プラズマおよび波面整合光整流効果による強力テラヘルツ光源を開発し、これらを利用したコヒーレント制御を強磁性共鳴に適用して非線形現象などの強励起効果を実証するとともに、スピン系の THz 波誘起相転移の発現を目標とする。これにより、スピントロニクスの一つの重要課題である磁気秩序の超高速制御の方法を提案する。

3. 研究の方法

(1) 強力 THz 光源の整備

大出力 (4 mJ/pulse, 1 kHz) のチタンサファイア再生増幅器 (本補助金で購入) をベースにして、空気プラズマ方式と LiNbO_3 波面整合方式の 2通りの光源を構築した。

(2) 希土類フェライト試料の作製

フローティングゾーン法によって各種オルソフェライト単結晶を育成し、光学研磨したものを測定に用いた。組成は、 ErFeO_3 、 DyFeO_3 、 TmFeO_3 、 $\text{Dy}_x\text{Er}_{1-x}\text{FeO}_3$ などである。

(3) 各種のポンププローブ時間分解測定

THz 波の透過、THz 波の放射、THz 波ポンプ-可視ポンプ-ファラデー回転プローブ、などいろいろなタイプの時間分解測定装置を構築し、測定に用いた。

(4) メタマテリアルの利用

試料表面に微小な金属パターンを作成することにより、磁場強度の増強を試みた。

4. 研究成果

(1) 空気プラズマからの THz 放射を増強する技術の開発

本研究の基本となるのは高強度 THz 波の発生である。その方法の一つとして採用したのがプラズマ方式である。レーザーの光 (波長 800nm) とその 2 倍高調波 (波長 400nm) を重

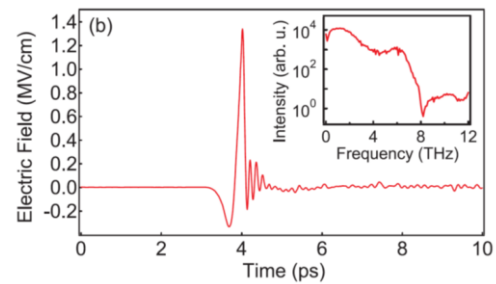


図 1 薄型波長板の挿入により増強されたプラズマからのテラヘルツ波の波形。挿入図はそのスペクトル。

畳して空気中に集光することで THz 波が発生するが、この場合、最大効率を得るためには両者の偏光方向を平行にする必要がある。しかし、この条件を満たすためには複雑な光学系を用いる必要があり、そのために新たな損失が生じて結果的に高い出力は得られないという問題があった。そこで、非線形光学結晶 (BBO) と集光点の間に数 $10 \mu\text{m}$ の薄い石英波長板 1 枚を挿入するだけで偏光を揃えることを発案し、約 1.7 倍の電場増強に成功した (典型的な電場波形を図 1 に示す)。これは非常に簡便かつ有効な技術として、注目されている。

(Y. Minami *et al.* Appl. Phys. Lett. **102**, 041105 (2013))

(2) スピン再配列転移の THz 波による超高速観測

希土類オルソフェライト (RFeO_3) は図 2 に示すようにほぼ反強磁性的に配列した鉄 (Fe) の持つスピンがわずかに傾斜した、傾角型反強磁性体と呼ばれ、自発磁化を持つ。こ

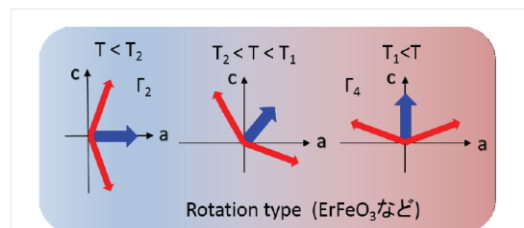


図 2 オルソフェライトにおけるスピンの配列。赤矢印は Fe のスピン、青矢印は合成スピンを表す。

のマクロな磁化の方向が温度によって変化する「スピン再配列転移」を示すものが多数知られている。これらの物質はスピンスイッチング、スピナルブ、スピン流制御などへの応用が期待されている。

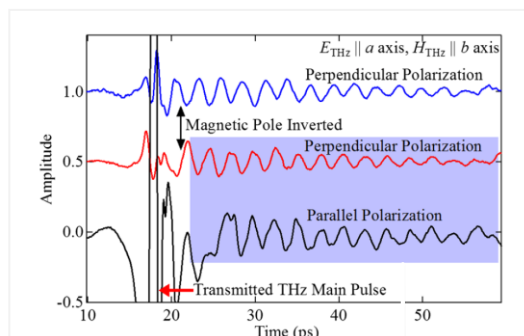


図3 オルソフェライト ErFeO_3 における磁気共鳴による振動波形。

本研究では、その中の代表的な物質 ErFeO_3 におけるスピン再配列転移を THz 放射によって観測することに成功した。この物質は F (擬強磁性) モードと AF (擬反強磁性) の 2 つの磁気共鳴モードを持つ。試料を透過した THz 波は図 3 に示すようにスピンの歳差運動 (F モード) を反映した振動構造を持っており、これのフーリエ変換からスペクトル強度が求められ、2 つの直交する偏光の波形から楕円率を求めることができる。これにより、スピン (磁化) の方向の情報が得られる。

図 4(a) に示すのは、c 軸方向に磁化させた試料を①高温相→②低温相→③高温相と変化させた時のスペクトルの変化である。①では平行垂直両方のスペクトルが見えることから円偏光放射であり、スピンは c 軸周りに回転していることがわかる (図(b))。②では周波数が低下するとともに直線偏光の放射に変わる。これは図(c)のようにスピンの a 軸周りに回転していることを意味する。③で周波数は元に戻るが円偏光ではなくなっている。これは 90 度回ったスピンが戻るときに磁化の記憶を失うためとして理解できる。このように THz 放射を観測することでスピン (磁化) の方向を的確に捉えることができることが示された。この方法はピコ秒の時間分解能を持つので、スピン再配列のダイナミク

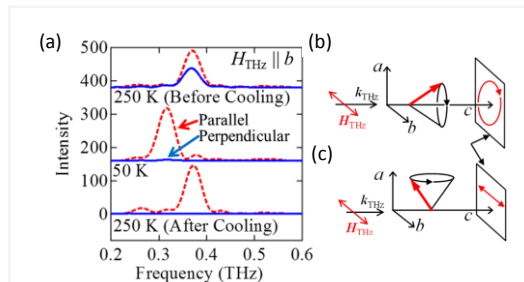


図4 磁化させた試料での THz 放射スペクトル。(a)高温→低温→高温と変化させたときのスペクトル。(b)高温相、(c)低温相での歳差運動と放射される THz 波の偏光特性。

スを研究するための手法として有望である。(K. Yamaguchi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **110**, 137204 (2013))

(3) スピン再配列転移におけるスピン配向方向の決定

上記の手法を精密化し、スピンの配向方向の温度依存性を定量的に決定することを試みた。用いた結晶は、 $\text{Dy}_{0.7}\text{Er}_{0.3}\text{FeO}_3$ である。この混晶の転移は詳しく調べられていないため、THz 透過スペクトルに現れる F モードと AF モードの周波数と強度の温度依存性を測定し、スピン再配列が 11~18 K で起こることを確認した。(図 5)

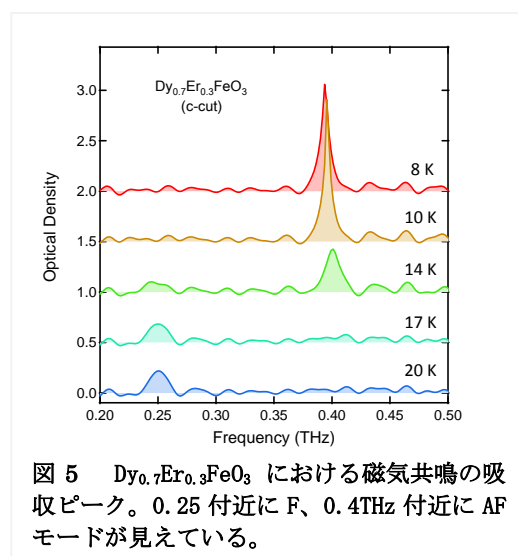


図5 $\text{Dy}_{0.7}\text{Er}_{0.3}\text{FeO}_3$ における磁気共鳴の吸収ピーク。0.25 付近に F、0.4THz 付近に AF モードが見えている。

更に吸収強度の解析により、導出した磁化の方位角を得た (図 6)。これは理論とよい一致を示す。次に外部磁場下で方位角の温度依存性が大きく変化することを示した。これにより、ピコ秒分解能で方位角を正確に決定できることを示すと同時に、磁区構造に邪魔され

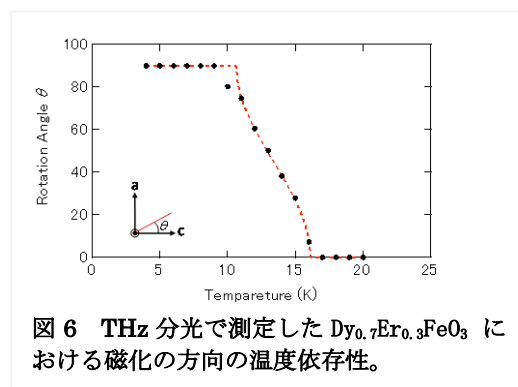


図6 THz 分光で測定した $\text{Dy}_{0.7}\text{Er}_{0.3}\text{FeO}_3$ における磁化の方向の温度依存性。

ずにスピン方位を測定できるユニークな手法として提案することができた。(Appl. Phys. Lett. に投稿中)。

(4) 電子励起がスピンの環境に作用するまでのダイナミクス

スピンに対する可視 (近赤外) 光の作用としては、逆ファラデー効果 (円偏光の場合)

と温度上昇による磁気異方性の変化が知られているが、後者については、単に熱効果として議論されることが多く、電子励起から磁気異方性の変化に至るダイナミクスは解明されていなかった。本研究では、スピン歳差運動を局所的な磁気異方性のプローブとして用いることで、鉄の d 電子励起から始まるダイナミクスを明らかにした。測定はファラデー回転による磁化プローブにより行った。図 7 は、F モードスペクトルの時間変化である。図 (a) はポンプ光がないときで、ピークは常に 450GHz にある。一方 20ps (白破線)

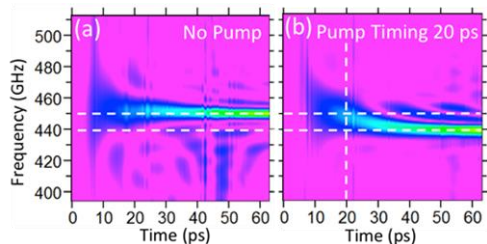


図 7 ErFeO₃ における 800nm ポンプ光による歳差運動周波数の時間変化。

でポンプ光 (800nm、100fs) を入れた場合 (図 (b)) は周波数が 440GHz まで 10ps 程度かけて徐々に下がっていくことが分かる。温度変化、DyFeO₃ との比較などから、この時間遅れはフォノンと希土類イオンの f -電子の相互作用が小さいことによると結論された。

(K. Yamaguchi *et al.* Phys. Rev. B に投稿中)

(5) 非常に長いコヒーレンス時間を持つスピン歳差運動

これまでオルソフェライトの磁気共鳴についてコヒーレンス時間を詳細に調べた報告はなかったが、本研究において ErFeO₃ の低温での F モードの振舞いを調べたところ、1ns を超える予想外に長いコヒーレンス時間を示すことがわかった (Q 値にして 500 以上)。また微細に分裂した複数のモードが存在してビート現象を起こしていることも分かった。この起源の解明は未だ進行中であるが、スピン系による量子情報実験の材料として期待が持てるのではないかと考えられる。

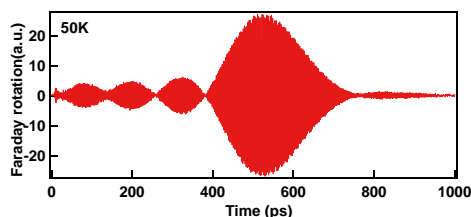


図 8 ErFeO₃ における長寿命の歳差運動とそのビート現象。

(H. Watanabe *et al.*, PIPT Slovenia 2014)

(6) 微細リング構造による磁場増強の観測

当初の計画には入っていなかったが、強磁

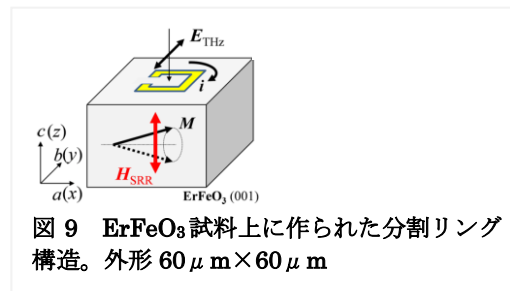


図 9 ErFeO₃ 試料上に作られた分割リング構造。外形 60 μ m \times 60 μ m

場を得るためにはメタマテリアルの利用が有望ではないかと考えるに至り、分割リング (SRR) 構造による磁場増強を試みた。図 9 にその構造を示す。リングは ErFeO₃ 基板上に作成した 60 μ m 角、幅 10 μ m、厚さ 200nm の Al 製のものである。THz 波の電場成分によってリングに電流を誘起すると、L-C 共鳴によ

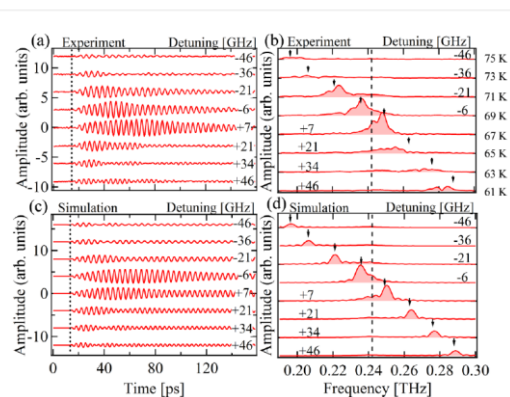


図 10 SRR とスピン系の共鳴結合を示す時間波形 (左) とそのフーリエスペクトル (右)。上段は実験、下段は計算結果。

る振動電流が流れ、リングを貫く磁場が発生し、基板の中のスピンと結合する。スピンの共鳴周波数 (F モード) は試料温度によって変化させられるので、リングの特性周波数と同調させることが可能である。図 10 はその結果を示すもので、両者の周波数が一致するところでスピンの歳差運動の振幅 (ファラデー回転でプローブ) が非常に大きくなることが分かる。また少し離調した条件 (たとえば +34GHz) ではビート構造が重畳していることから両者でエネルギーの授受があることが分かる。これにより、約 8 倍の磁場増強が実証された。

(T. Kurihara *et al.* Phys. Rev. B **90**, 1444408 (2014))

(7) まとめと展望

以上に述べたとおり、スピン系の THz 磁場による制御と分光において、様々の興味ある結果を得ることができた。その基本となったのは、THz 光源の高強度化であり、これにより S/N 比が大幅に向上し、ファラデープローブによる空間分解能の向上とあいまって、これまで観測が困難であった現象を捉えることができた。また、この報告書では触れな

ったが、ErFeO₃における非線形な瞬時磁化応答、DyFeO₃における THz 強度に依存したスピン再配列転移などの現象も見つかっており、今後その解明を進めたいと考えている。THz 磁場によるスピン制御は、世界の 2, 3 の研究グループでも進められているが、その中でも独自性の高い研究成果が得られたと自己評価している。

当初 4 年計画であった基盤研究 A は終了前申請の制度により 3 年で終了し、研究内容は H26 年度から 3 年計画で開始した基盤研究 B 「強力テラヘルツ波磁場によるスピン秩序の制御と非線形効果」として継続中である。また、スピン流の制御など本格的なスピントロニクスへの応用も本研究に参加した研究分担者により今後進められるものと期待している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 12 件)

1. T. Kurihara, K. Nakamura, K. Yamaguchi, Y. Sekine, Y. Saito, M. Nakajima, K. Oto, H. Watanabe and T. Suemoto, "Enhanced spin-precession dynamics in a spin-metamaterial coupled resonator observed in terahertz time-domain measurements", Phys. Rev. B 90, 査読有, 144408-1-5 (2014)
DOI :10.1103/PhysRevB.90.144408
2. Namai, M. Yoshikiyo, S. Umeda, T. Yoshida, T. Miyazaki, M. Nakajima, K. Yamaguchi, T. Suemoto, and S. Ohkoshi, "The synthesis of rhodium substituted ε-iron oxide exhibiting super high frequency natural resonance" Journal of Materials Chemistry C 査読有, 1 巻, 2013, 5200-5206 ,
DOI:10.1039/C3TC30805G
3. Keita Yamaguchi, Takayuki Kurihara, Yasuo Minami, Makoto Nakajima, and Tohru Suemoto, "Terahertz Time-Domain Observation of Spin Reorientation in Orthoferrite ErFeO₃ through Magnetic Free Induction Decay" Phys. Rev. Lett. 査読有, 110 巻, 2013, 137204, DOI: 10.1103/PhysRevLett.110.137204
4. Yasuo Minami, Takayuki Kurihara, Keita Yamaguchi, Makoto Nakajima and Tohru Suemoto, "High-power THz wave generation in plasma induced by polarization adjusted two-color laser pulses" Appl. Phys. Lett. 査読有, 102 巻, 2013, 041105, DOI: 10.1063/1.4789773
5. Yasuo Minami, Takayuki Kurihara, Keita Yamaguchi, Makoto Nakajima and Tohru Suemoto, "Longitudinal terahertz wave generation from an air plasma filament induced by a femtosecond laser" Appl. Phys. Lett., 査読有, 102 巻, 2013, 151106, DOI:10.1063/1.4802482
6. T. Kurihara, K. Yamaguchi, H. Watanabe, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Dielectric probe for scattering-type terahertz scanning near-field optical microscopy" Appl. Phys. Lett., 査読有 103 巻, 2013, 151105 , DOI:10.1063/1.4824496
7. M. Nakajima, K. Yamaguchi and T. Suemoto, "Ultrafast Coherent Control of Spin Precession Motion by Terahertz Magnetic Pulses", Acta Physica Polonica A, 査読有, 121 巻, 2012, 343-346, <http://przrybwn.icm.edu.pl/APP/PDF/121/a121z2p12.pdf>
8. Namai, A; Yoshikiyo, M; Yamada, K; Sakurai, S; Goto, T; Yoshida, T; Miyazaki, T; Nakajima, M; Suemoto, T; Tokoro, H; Ohkoshi, S, "Hard magnetic ferrite with a gigantic coercivity and high frequency millimetre wave rotation", NATURE COMMUNICATIONS, 査読有, 3 巻, 2012, 1035 1-6, DOI: 10.1038/ncomms2038
9. M. Yoshikiyo, A. Namai, M. Nakajima, T. Suemoto, and S. Ohkoshi, "Anomalous behavior of high-frequency zero-field ferromagnetic resonance in aluminum-substituted αε-Fe₂O₃", Journal of Applied Physics, 査読有, 111 巻, 2012, 07A726 1-3, DOI: 10.1063/1.3677763
10. C. T. Que, T. Edamura, M. Nakajima, M. Tani, and M. Hangyo, "Terahertz Emission Enhancement in InAs Thin Films Using a Silicon Lens Coupler", Japanese Journal of Applied Physic, 査読有, 50 巻, 2011, 080207
11. Y. Minami, M. Nakajima, and T. Suemoto, "Effect of preformed plasma on terahertz-wave emission from the plasma generated by two-color laser pulses", Physical Review A, 査読有, 83 巻, 2011, 023828-(1-4), DOI: 10.1103/PhysRevA.83.023828

〔国際会議発表〕 (計 8 件)

1. T. Suemoto et al., "Observation and Control of Spin Dynamics by Impulsive Magnetic Fields of Terahertz Radiation (invited)", Fujihara Seminar, 2014 年 9 月 26 日, 苫小牧市(日本)
2. T. Kurihara *et al.*, "Interactive Magnetic Coupling Between Spin Precession and Split-Ring Resonator in the Terahertz Frequency", IRMMW-THz, 2014 年 9 月 18 日 University of Arizona ,Tucson,(USA)
3. K. Yamaguchi *et al.*, "Beating of Terahertz Pulse Induced Spin Precession in ErFeO₃ (poster)", 19th International Conference on Ultrafast Phenomena 2014年7月11日, 沖繩市(日本)

4. H. Watanabe *et al.*, "Interfering long-lived spin precessions induced by a THz pulse in ErFeO₃", Photoinduced Phase transitions and Cooperative Phenomena, 2014年6月10日, Bled, (Slovenia)
 5. K. Yamaguchi *et al.*, "Observation of Spontaneous Spin Reorientation in ErFeO₃ with Terahertz Time Domain Spectroscopy(口頭)", 37th International Conference on Infrared and Millimeter and Terahertz Waves, 2012年9月27日, Wollongong NSW,(Australia)
 6. K. Yamaguchi *et al.*, "Study of Spin Reorientation Phenomena in Erbium Orthoferrite Observed by Free Induction Decay Signals After Half Cycle THz Pulse Excitation (poster)", International Symposium on Frontiers in Terahertz Technology, 2012年11月29日, 奈良市, (日本)
 7. M. Nakajima *et al.*, "Ultrafast Coherent Control of Spin Precession Motion by Terahertz Magnetic Pulses", International Conference on Photoinduced Phase Transitions and Cooperative Phenomena, 2011年6月30日, Wroclaw (Poland)
 8. Asuka Namai *et al.*, "Anomalous behavior of high-frequency ferromagnetic resonance caused by spin-reorientation phenomenon" 56th Annual Conference of Magnetism & Magnetic Materials, 2011年11月3日, Scottsdale, Arizona (USA)
- た ErFeO₃ スピン再配列転移点近傍における歳差運動緩和時間の観察”, 日本物理学会 第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 26 日, 関西学院大学(兵庫県・西宮市)
 7. 中嶋誠, “テラヘルツ波パルスによる磁性体の超高速スピン応答と制御”, 日本物理学会 第 67 回年次大会(招待講演), 2012 年 3 月 25 日, 関西学院大学 (兵庫県・西宮市)
 8. 栗原貴之 他, “THz 時間領域分光を用いたバリウムフェライト強磁性共鳴の FID による観測”, 日本物理学会 第 67 回年次大会, 2012 年 3 月 24 日, 関西学院大学 (兵庫県・西宮市)
 9. 山口啓太 他, “テラヘルツ磁場によるスピンのコヒーレント制御およびスピン-フォトン間のエネルギー移動の観測”, 日本応用物理学会 第59回応用物理学関係連合講演会 (招待講演), 2012年3月16日, 早稲田大学(東京都・新宿区)
 10. 中嶋誠, “テラヘルツ波パルスによるインパルススピン励起とコヒーレント制御”, 応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究会 若手研究者サマースクール 2012, 2012年8月6日, 浅間温泉(長野県・松本市)
 11. 山口啓太 他, “ErFeO₃ におけるスピン再配列転移のテラヘルツ時間領域分光による観察”, 日本物理学会 2011 年秋季大会, 2011 年 9 月 21 日, 富山大学(富山県・富山市)
 12. 山口啓太 他, “テラヘルツ波ダブルパルスによる弱強磁性体における超高速スピン制御”, 日本応用物理学会 第72回応用物理学会学術講演会, 2011年9月1日, 山形大学(山形県・山形市)

〔国内学会発表〕(計 20 件)

1. 中村圭太 他, “希土類オルソフェライト Dy_xEr_{1-x}FeO₃ における磁気共鳴現象の THz-TDS による観測”, 日本物理学会年会, 2014 年 9 月 7 日 中部大学 (愛知県・春日井市)
2. 山口啓太 他, “テラヘルツ時間領域分光による DyFeO₃ の磁気共鳴とスピン再配列転移の観測 (ポスター)”, 日本物理学会 第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 28 日, 広島大学 (広島県・広島市)
3. 栗原貴之 他, “テラヘルツ近接場を用いた磁性体の高空間分解観察”, 日本物理学会 第 68 回年次大会, 2013 年 3 月 28 日, 広島大学 (広島県・広島市)
4. 栗原貴之 他, “THz 領域におけるリング共振器を用いたオルソフェライト磁気共鳴の観察”, 日本物理学会 2014 年春季大会, 2014 年 3 月 27 日, 東海大学(神奈川県・平塚市)
5. 山口啓太 他, “弱強磁性共鳴周波数の弱磁場誘起大規模シフトのテラヘルツ分光による観測”, 日本物理学会 2013 年秋季大会, 2013 年 9 月 25 日, 徳島大学(徳島県・徳島市)
6. 山口啓太 他, “THz 時間領域分光を用い

〔その他〕

ホームページ等
<http://suemoto.issp.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

末元 徹 (SUEMOTO, Tohru)
 東京大学・物性研究所・教授
 研究者番号: 50134052

(2) 研究分担者

中嶋 誠 (NAKAJIMA, Makoto)
 大阪大学・レーザーエネルギー学研究中心・准教授
 研究者番号: 40361662

西野 正理 (NISHINO, Masamichi)
 独立行政法人物質・材料研究機構・その他部局等・研究員
 研究者番号: 80391217

南 康夫 (MINAMI, Yasuo)
 横浜国立大学・工学(系)研究科(研究院)・研究教員
 研究者番号: 60578368