

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 16 日現在

機関番号：84502

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26790076

研究課題名(和文)フェリ磁性薄膜に誘起される巨大スピン波の高度制御

研究課題名(英文)Advanced control of gigantic spin waves induced in ferrimagnetic thin films

研究代表者

大河内 拓雄(Ohkochi, Takuo)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・研究員

研究者番号：00435596

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：申請者はこれまでに、フェリ磁性体薄膜GdFeCoに一定の条件でフェムト秒レーザーパルスを与えると、これまでに示されてきた「磁場を用いない」超高速磁化反転のみならず、巨大な磁気の波を誘起できることを実証してきた。本課題では、この現象の起源の理論・実験による考察を進め、さらに任意制御に向けて励起レーザーの安定化やマイクロ波導入下での現象発現の試みなどに向けた装置の整備を進めた。実験では、フェリ磁性体に対する光誘起磁化制御に関しての一般的な性質や知見を獲得した。

研究成果の概要(英文)：It have been widely known that "magnetic-field-free" ultrafast magnetization reversals are realized by applying femtosecond laser pulses to ferrimagnetic GdFeCo thin films. The applicant had so far showed that remarkably giant magnetic waves can also be induced by applying similar method in certain situations. In this project, the applicant had made progress in theoretical and experimental elucidation of the mechanism of this giant spin wave phenomenon, as well as in instrumental upgrading such as stabilized laser beams and experiment system under microwave excitations for advanced control of the spin waves. General properties and findings on light-induced spin manipulations for ferrimagnets have been obtained in the experiments.

研究分野：放射光科学

キーワード：フェリ磁性 スピン波 光電子顕微鏡 時間分解 フェムト秒レーザー

### 1. 研究開始当初の背景

磁性体中のスピン偏極した電流が局在スピンの運動量を与えるスピントランスファー効果は、磁気記録素子の制御のための磁場にとって代わる有望なツールであり、省電力磁気記録媒体への応用に多大な期待が寄せられている[1]。しかし、伝導電子スピン流はスピン拡散長が $\mu\text{m}$ 以下と短いため、近年では、コヒーレンス長が数 $\text{mm}$ 以上と長いスピン波を用いた「スピン波スピン流」による磁気情報伝達の方式が提唱されている[2]。このような研究を推進するため、申請者のグループは磁性薄膜やメゾスコピック磁性体の電気・磁気・光励起下での磁区構造を実時間・実空間で観測し、磁気ダイナミクスの詳細解析を行っている[3-5]。そして最近、フェリ磁性 $\text{GdFeCo}$ 垂直磁化薄膜のパルスレーザー励起実験で、磁化歳差運動が促進される合金組成において空間伝搬するスピン波を見出した(図1)。観測されたスピン波の振幅は、これまでに報告されているものをはるかに上回り( $\sim 20^\circ$ )、位相伝搬速度も通常のスピン波と全く遜色のない $20\text{ km/s}$ 程度であった(図1)。本課題ではこの研究をさらに発展させ、より制御された巨大スピン波生成を試みる。

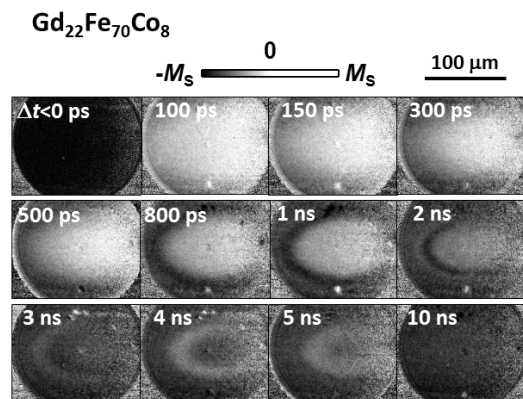


図1. フェリ磁性 $\text{GdFeCo}$ 薄膜から見出された巨大スピン波。

### 2. 研究の目的

巨大スピン波の任意制御に向けた実験的研究の構想・方針は大きく以下の3つである。

「1. スピン波位相のレーザー偏光依存性の検証」: 観測された巨大スピン波は位相がよく揃っており、励起レーザーの偏光により歳差運動の初期位相を規定できる可能性が示唆される。したがって、(図1の実験では直線偏光レーザーを用いているが)左右円偏光レーザーを用いることで逆ファラデー効果によるスピン波位相の反転が期待される。逆ファラデー効果は光の偏光ベクトルが磁化に影響を及ぼす効果で[6]、非熱的な微小歳差運動励起で確認された例があり[7]、ごく限られた条件では円偏光のヘリシティ

に依存した選択的な磁化反転も実証されている[8]。しかし、巨視的な動的現象として観測された例はない。大振幅のスピン波に対して偏光依存効果が観測されるかどうかを実証する。

「2. スピン波の広域伝搬・相互干渉の試み」: これまでに観測された巨大スピン波はレーザー照射で熱的に励起された領域内での現象であるが、広域伝搬を可能にすることでスピン波磁気通信などへの応用が期待される。巨大スピン波の発生は物質の角運動量補償温度の制御により達成されたが、キュリー点を制御、つまり試料温度を上げたり非磁性元素を添加するなどの処理で励起に対する応答を敏感にして薄膜全域でのスピン波伝搬ができるかどうかを検証する。また、実用に資する制御法としてスピン波の相互干渉を試みる。具体的にはマイクロアンテナ構造などを構築して波伝搬の様子を実空間・実時間で観測する。

「3. マイクロ波励起による巨大スピン波生成の試み」: 今回観測された巨大スピン波は大パルス強度のフェムト秒レーザーによるもので、複雑かつ雑多な励起過程が絡んで生成されたものである。これを高周波電場/磁場など電氣的励起によって発生させることに挑戦する。発生源がシンプルな励起源を用いることで、分散関係の導出など、よりクリアな現象の解釈を試みる。また、高出力レーザーを用いない手法に切り替えることで大幅な省電力化も見込まれる。

### 3. 研究の方法

実験はSPring-8 BL25SU軟X線ビームラインの光電子顕微鏡装置を用いて、パルスレーザー(Ti:Sapphire, 800 nm, 120 fs)による励起でポンプ-プローブの時間分解観測を行う。これによってレーザー励起スピン波を観測する。また、各実験に必要なレーザー光や周辺装置・機構に関して改造を施す。

「スピン波位相のレーザー偏光依存性の検証」については、円偏光レーザーを発生させるため、レーザーパス中に円偏光ポラライザーを挿入する等のセッティングで光電子顕微鏡観測を進める。この際、逆ファラデー効果の検出はレーザーパワーや照射位置の精度が要求されるので、レーザー安定化のための小規模な改造も実施する。「スピン波の広域伝搬・相互作用の試み」については、試料中の磁化の軟化を促し広域伝搬を促進するため、試料の加温、およびキュリー点を抑制した薄膜の作製を行い現象の観測を行う。また、スピン波発生フェリ磁性体/波伝搬フェロ軟磁性体などのハイブリッド構造を駆使して干渉効果を通じた制御も試みる。「電氣的励起による巨大スピン波生成の試み」では、高真空かつ高電圧電子レンズ直下という光電子顕微鏡装置のスペース制約下でマイクロ波を導入する必要があるため、専用のGHz伝送用試料ホルダを開発する。これを構

築した後、試料組成や温度、高周波の条件を調整することで、巨大スピン波の電氣的発生を試みる。

#### 4. 研究成果

(1) スピン波位相のレーザー偏光依存性の検証：最初に励起光となるレーザー光の安定化を行った。レーザー装置から放射光光電子顕微鏡装置までの長距離パス（約 15m）の通過によるビームの発散を抑えるために望遠レンズ機構を挿入し、ビーム平行度と最終段階の集光効率を向上させた。また、装置直前の集光レンズの調整機構を改善し、スポットサイズやパワー密度の調整精度を上げた。このようなセッティングのもとで円偏光ポラライザーを挿入し、スピン波観測の実験を行った。結果として、円偏光ヘリシティに有意に依存した波面の挙動は検出されず、逆ファラデー効果がレーザーによる全体的な励起中で寄与する割合が極めて低いという結論に至ったが、後述するように、フェリ磁性体特有のレーザー励起磁気改変挙動に関する知見を得る足掛かりとなった。

(2) スピン波の広域伝搬・相互干渉の試み：広域伝搬とハイブリッド構造による干渉実験を実現するため、まず、その素材となるフェロ軟磁性体のレーザーに対する磁気改変挙動を実験的に調査した。キュリー温度を 400~450 K 程度まで抑制した NiCu マイクロ構造磁性薄膜について、光誘起磁気改変のダイナミクス測定を行った。結果、よりキュリー点の高い GdFeCo（約 500 K）フェリ磁性薄膜の磁気変化の閾値よりも大きな出力密度のレーザーパルスを与えても磁化の変化が起こらないことが分かった（図 2）。これは、フェリ磁性薄膜における磁化反転やスピン波発生の過程は、キュリー点を越えた単純熱消磁過程を経由するものではないということの間接的に示唆している。フェロ軟磁性を示す諸物質をスピン波制御の媒体として利用するには違った角度からの設計が必要であることが分かったが、さらなる研究により、レーザー励起における熱成分が磁気改変に不要であることが示されれば、より高効率・省電力のフェリ磁性磁気記録素子の開発へとつながるはずである。

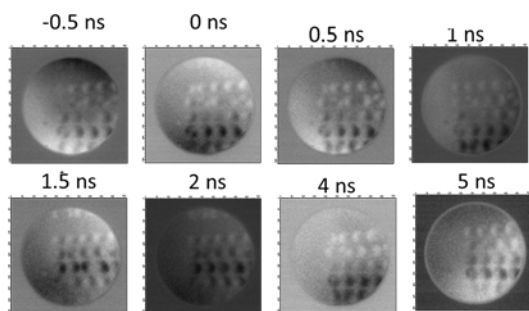


図 2. 直径 2  $\mu\text{m}$  の  $\text{Ni}_{85}\text{Cu}_{15}$  ドットアレイのレーザー励起磁区変化ダイナミクス。消磁の瞬間が存在しない。

(3) 電氣的励起による巨大スピン波発生の試み：時間分解光電子顕微鏡測定をマイクロ波励起下で実現するために、専用の試料マウント機構を開発した。GHz 級高周波で励起した状態での光電子顕微鏡観測の例は世界的にみてもほとんど例はない。高真空チャンバでの搬送・着脱、そして高電圧が印可される対物レンズとのスペースの取り合いを含めた試行錯誤の結果、図 3 に示すようなマイクロコネクタのプッシュイン式のコンパクトな試料ホルダが完成した。テスト実験では、およそ 3~5 GHz 程度まで顕著な損失なく試料中に導入が可能であることを確認した（図 3）。これを利用したダイナミクス実験に至るには、放射光パルスの出射タイミングと同期のできるマイクロ波電源等の装置投資が必要になるが、現時点では非同期状態でのマイクロ波導入下での磁化状態測定などの実験を試みている。

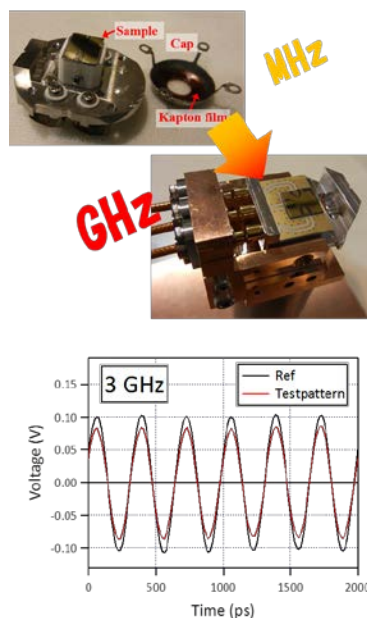


図 3. (上) PEEM 装置対応のマイクロ波導入可能な試料ホルダ。(下) 3GHz のマイクロ波導入テストの結果。

(4) 巨大スピン波に対する一般的な理論考察・実験考察の推進：本課題の契機となった巨大スピン波現象には未解明のメカニズムが存在する。特に、算出された数 100 MHz 程度の歳差運動周波数は、純粋なマグノンの典型的な共鳴周波数である数~数 10 GHz と比べると著しく低い値であり、根本的に異なるモデルを考える必要がある。これは長期に渡って解釈が難航していたが、この巨大スピン波が、過去に報告された表面弾性波の形状・周波数・波長と非常に類似することを見出した。つまり、磁気の波であるスピン波（マグノン）と音響波（フォノン）との相互作用により生成された磁氣的な弾性波である可能性が示唆されるため（図 4）[8]、これを

もとに考察を進展させた（論文投稿中）。過去のスピン-フォノンカップリングによる分散関係の理論的報告では、フォノンを摂動としたときのソフトニングはこれほど顕著でなく、より本実験に則したモデル再構築が必要である。現在、理論研究グループの協力のもと、さらに詳細な計算を進めている。弾性波との相互作用による磁気駆動は新方式の磁壁制御機構として提唱され、近年、活発に検証が進められている。この観点からも、巨大スピン波のメカニズム解明は急務である。

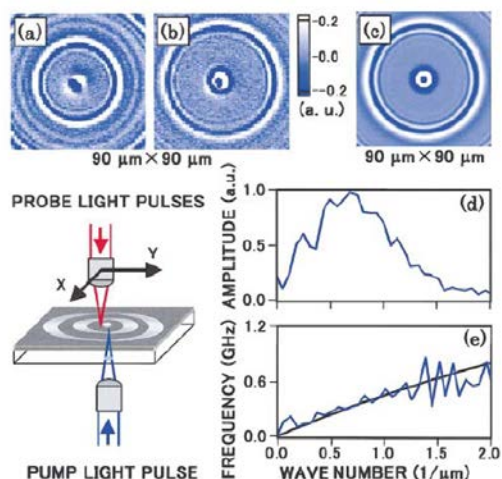


図4. 過去に報告された、表面弾性波による原子変位の波の観測例。本研究対象の巨大スピン波と波形も分散関係も類似している（文献[8]）。

また、フェリ磁性 GdFeCo の磁気改変過程を過渡的なダイナミクス以外の視点から考察するために、角運動量補償温度の異なる複数の GdFeCo 薄膜について、レーザーパルス照射後の磁区について詳細な統計的解析を行った。その結果、補償温度が高く速やかな磁化反転の起こる試料の条件下では照射領域全体で単純磁化反転が確認されたが、巨大スピン波が生成される補償温度の低い条件ではまばらな磁化反転領域ができており、解析の結果、「レーザーから受け取ったエネルギーはほとんどの割合で磁化歳差運動やスピン波発生に消費される」「GdFeCo フェリ磁性体全般について、磁化反転/改変過程は、熱消磁からの単純な回復過程では説明できない」などの知見が得られた（図5。投稿論文準備中）。これは、「(2) スピン波の広域伝搬・相互干渉の試み」で得られた考察と辻褃が合っており、「(1) スピン波位相のレーザー偏光依存性の検証」で結論されたように、フェリ磁性体においては偏光制御のような微弱な効果だけでなくフェリ磁性特有のミクロな磁気相互作用に根差した特異な磁気改変過程を積極的に利用することが磁化反転・スピン波生成を利用したデバイス応用の発展に効果的であることが分かった。今後も、

これらの知見を利用してさらに研究を進展させていきたい。

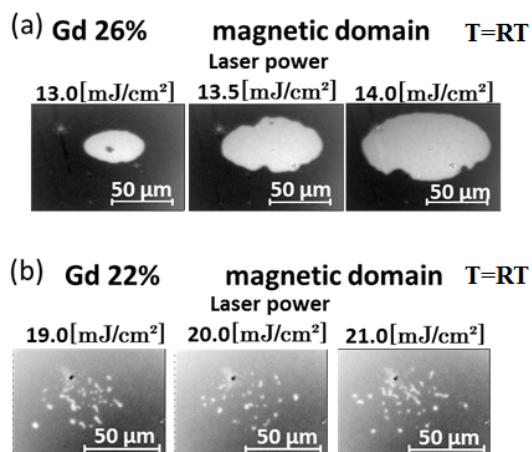


図5. 組成の異なる GdFeCo 薄膜の、レーザーパルス照射後の形成磁区。いずれの組成においても、完全熱消磁状態からの磁化形成プロセスからは説明できない磁区が形成されている。

#### 参考文献

- [1] J. C. Slonczewski: J. Magn. Magn. Mater. **159** (1996) L1.
- [2] T. Satoh et al.: Nat. Photonics **6** (2012) 662.
- [3] T. Kinoshita et al.: J. Phys. Soc. Jpn. **82** (2013) 021005.
- [4] T. Ohkochi et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **51** (2012) 073001.
- [5] T. Ohkochi et al.: Jpn. J. Appl. Phys. **51** (2012) 128001.
- [6] J. P. van der Ziel et al.: Phys. Rev. Lett. **15** (1965) 190.
- [7] A. V. Kimel et al.: Nature **435** (2005) 655.
- [8] Y. Sugawara et al.: Phys. Rev. Lett. **88** (2002) 185504.

#### 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）

〔学会発表〕（計 1 件）

- ① 大河内拓雄、他 15 名「垂直磁化フェリ磁性 GdFeCo 薄膜に誘起される巨大スピン波」日本物理学会第 71 回年次大会（2016 年 3 月 19 日、東北学院大学（宮城県仙台市））

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

大河内 拓雄 (OHKOCHI, Takuo)  
 (公財) 高輝度光科学研究センター  
 利用研究促進部門 研究員  
 研究者番号：00435596