

## 科学研究費補助金研究成果報告書

平成 24 年 5 月 31 日現在

機関番号 : 14401

研究種目 : 挑戦的萌芽研究

研究期間 : 2009~2011

課題番号 : 21656019

研究課題名 (和文) テラヘルツ波放射分光による光パルス制御コヒーレントマグノンの観測

研究課題名 (英文) Observation of coherent magnons controlled by optical pulses using terahertz emission spectroscopy

研究代表者

長島 健 (NAGASHIMA TAKESHI)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・助教

研究者番号 : 60332748

研究成果の概要 (和文) : テラヘルツ波放射分光法によりフェムト秒光パルス照射遷移金属酸化物反強磁性体から特徴的な振動成分を持つテラヘルツ波放射を観測した。振動周波数の温度依存性及び振動振幅の励起光強度依存性から、振動成分は光パルス照射によって励起されたコヒーレントマグノンから放射された電磁波であることを明らかにした。さらに光パルス列照射及び偏光制御光パルス照射によりコヒーレントマグノンを高時間分解制御できることを示した。

研究成果の概要 (英文) : Terahertz radiation with characteristic oscillations from transition-metal oxide antiferromagnets illuminated with femtosecond optical pulses was investigated by terahertz emission spectroscopy. From the dependences of frequency and amplitude of the oscillations on temperature and excitation intensity, it is concluded that the oscillations are magnetic-dipole radiation from coherent magnons excited by the optical pulses. In addition, controls of coherent magnons with high temporal resolution by irradiations of optical pulse trains and optical pulses with various polarization states are demonstrated.

交付決定額

(金額単位 : 円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野 : 工学

科研費の分科・細目 : 応用物理学・工学基礎・応用光学・量子光工学

キーワード : マグノン, テラヘルツ, 超高速制御

## 1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスの情報処理や磁気記録への適用に関して、磁性体の電子スピン秩序の観測及びその高速制御の必要性が高まっている。特にマクロな磁化を持たない反強磁性体は高速電子スピン制御の可能性が高いと期待されている。反強磁性体の電子スピン

秩序の動的変化であるスピン波あるいはマグノンの観測方法としてはこれまでに主としてラマン散乱分光法が用いられている。しかしながらラマン分光による測定は定常状態を対象としており、マグノンの生成及び消滅過程のような動的過程は観測できない。近年ではフェムト秒光パルスを用いた磁気複

屈折効果を用いる手法が提案されており、マグノンのコヒーレント制御の例が報告されている (A. V. Kimel et al., *Nature* **435**, 655-657 (2005)). しかしながら多くの反強磁性体は光領域で不透明であり、適用可否は材料に依存する。一方、テラヘルツ波領域ではほとんどの反強磁性体は透明である。これは通常の反強磁性体ではテラヘルツ波を吸収する自由キャリア、フォノン及び電子準位間遷移が存在しないことによる。研究代表者はこれまでに光パルス励起反強磁性体からのテラヘルツ波放射現象について調べてきた。本研究では光パルスによるコヒーレントマグノンの制御方法及びそのマグノンをテラヘルツ波放射分光により高時間分解観測する手法を開発した。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は光パルスによるコヒーレントマグノンの制御及びマグノンのテラヘルツ波放射分光による観測を実証し、その基本的実験手法を確立することである。まずこれまで明らかにされていない反強磁性体の光励起マグノンの温度変化をテラヘルツ波放射分光によって調べる。次に1番目の光パルスで反強磁性体を励起して発生したコヒーレントマグノンを、時間遅延を与えた同軸に入射する2番目の光パルス照射によって増強・消滅させられることを示す。すなわちマグノンのコヒーレント制御を実証する。

## 3. 研究の方法

反強磁性転移温度 (ネール温度  $T_N$ ) の異なる遷移金属酸化物 NiO ( $T_N=523$  K) 及び MnO ( $T_N=120$  K) について再生増幅システムからのフェムト秒光パルス (中心波長 800 nm, パルス幅約 120 fs あるいは 35 fs) を照射して放射されるテラヘルツ波電磁波波形を時間領域分光法により測定した。試料温度は低温ではパルスチューブ冷凍機及び高温では高温セルを用いて変化させた。

具体的な実施項目を以下に示す。

- (1) 光パルス励起マグノンの試料温度依存性及び励起光強度依存性の測定
- (2) 複数光パルスによるマグノンのコヒーレント制御の実現
- (3) 広帯域時間領域分光法によるゾーン端マグノンの励起・観測

## 4. 研究成果

- (1) 光励起反強磁性体からのテラヘルツ波放射機構の解明 1

パルス幅が 120 fs 程度の光パルスで NiO(110) 単結晶に照射して得られたテラヘル

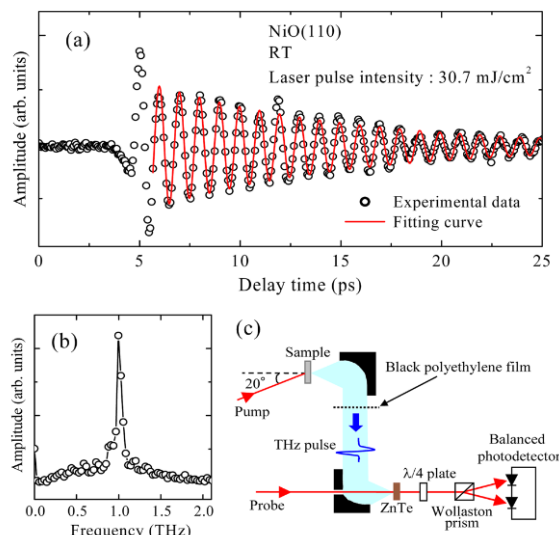


図 1 (a)室温における光パルス励起 NiO 単結晶からのテラヘルツ波放射波形. (b)放射電磁波の電場振幅スペクトル. (c)測定系の概略図.

ツ波放射波形を図 1(a)に示す。用いた実験系を図 1(c)に示している。測定温度は室温である。図 1(a)を見ると時間遅延で 5 ps 付近に広帯域成分を持つパルスが観測され、これに続いて周期が約 1 ps の減衰振動が現れている。図 1(a)の放射波形をフーリエ変換して得られた電場振幅スペクトル (図 1(b)) にはこの振動に対応した周波数 (約 1 THz) にピークが見られる。

この振動成分の起源を調べるために振動周波数の温度変化を測定した。結果を図 2 の赤丸で示す。なお図 2 では横軸の温度はネール温度 523 K で規格化している。図 2 の青四角は通常の透過型テラヘルツ波分光法によって別途測定した反強磁性共鳴周波数を示している。図 2 の縦軸はこの十分低温にお

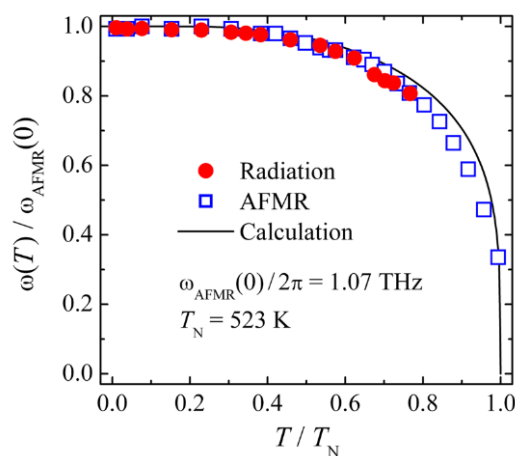


図 2 放射振動成分周波数及び反強磁性共鳴周波数の温度変化.

る反強磁性共鳴周波数で規格化されている。反強磁性共鳴吸収は入射電磁波によって波数がほぼゼロのスピนว波（マグノン）が励起されることで生じる。図2から放射振動成分周波数及び反強磁性共鳴周波数は各温度でほぼ一致していることがわかる。これより放射振動成分は光パルス照射によって何らかの過程により励起されたコヒーレント反強磁性マグノンからの電磁波放射成分と考えられる。（マグノンからの電磁波放射はマグノン励起による電磁波吸収の逆過程と見ることができる）すなわち振動成分振幅はマグノン密度を反映する。これらからテラヘルツ波時間領域分光法はマグノンの実時間応答のモニタリングに利用可能であることがわかる。

放射振動成分振幅の励起光パルス強度依存性を測定したところ、放射振動成分の電場振幅、すなわち励起マグノン密度は励起光強度にほぼ比例することがわかった。この結果は3次の非線形光学過程である瞬間的誘導ラマン散乱過程によるマグノン励起機構から予想される振る舞いと一致している。NiOにおけるマグノン励起機構の詳細については逆ファラデー効果モデルや磁気差周波発生モデル等の非線形光学過程に基づく解釈が提案されているが、詳細はこれまで明らかになっていない。本研究で調べたマグノンの光励起機構の詳細については(3)で再び述べる。

## (2) 偏光制御光パルス列照射によるマグノンのコヒーレント制御

複数の光パルスを適当な時間間隔で照射することによりコヒーレントマグノンを高時間分解で制御できる。図3に時間差 $\Delta t$ だけ

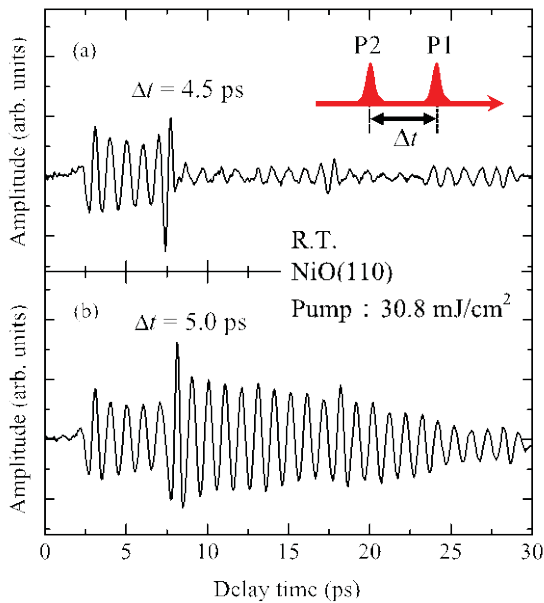


図3 直線偏光ダブルパルス照射によるコヒーレントマグノンの高時間分解制御。

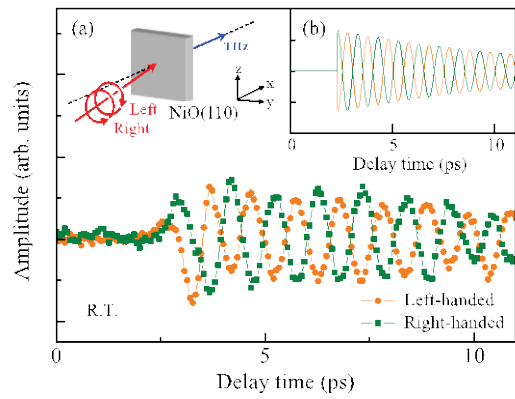


図4 (a)円偏光パルス励起 NiO からのテラヘルツ波放射波形のヘリシティ依存性。(b)逆ファラデー効果モデルによる計算結果。

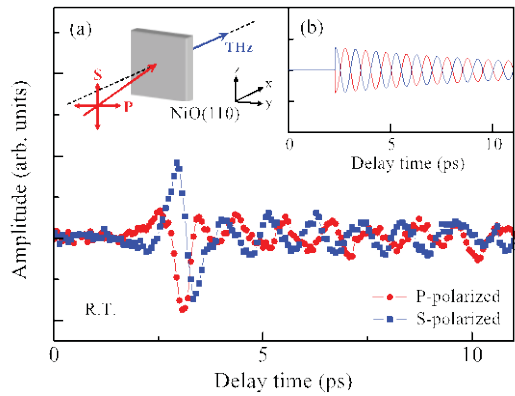


図5 (a)直線偏光パルス励起 NiO からのテラヘルツ波放射波形の光電場方向依存性。(b)逆ファラデー効果モデルによる計算結果。

隔たった2つの直線偏光パルスを NiO 単結晶（室温）に照射した場合に観測される放射テラヘルツ波パルス波形を示す。時間差 $\Delta t$ がマグノン周期（約 1 ps）の整数倍（図3(b)）では2つ目のパルスで1つ目のパルスと同位相のマグノンが励起され、マグノン密度が増強される。時間差を半周期分ずらすと2つ目のパルスで逆位相のマグノンが励起され、1つ目のパルスで誘起されたマグノンが打ち消される（図3(a)）。このようにコヒーレントマグノンを光パルス列照射により高時間分解制御できることを示した。

本研究ではさらに照射する光パルスの偏光を制御することでもマグノンの制御が可能であることを示した。光（フォトン）は角運動量を持つので偏光状態によって電子スピンを制御できる可能性がある。そこで角運動量の方法が反転している右及び左回り円偏光を照射した場合について放射テラヘルツ波パルス波形を測定したところ、図4(a)に

示すように互いに極性が反転していることがわかった。すなわち励起光の角運動量の向きを反転することによってマグノンの極性を反転させることができる。直線偏光は角運動量がゼロであるが、直線偏光パルス照射の場合も偏光の電場方向を 90 度回転させることで、やはりマグノンの極性が反転することを見出した (図 5(a)) 直線偏光の場合にも極性反転が観測された理由は次項に述べる。

### (3) 光励起反強磁性体からのテラヘルツ波放射機構の解明 2

前項で述べたマグノン極性の偏光依存性を手がかりに光励起反強磁性体からのテラヘルツ波放射機構について知見が得られる。円偏光のヘリシティを切り替えることでマグノンの極性が反転することから、マグノン励起機構として逆ファラデー効果モデルが有力と考えられる。逆ファラデー効果は円偏光パルスの進行方向にパルス磁場が発生し、それがトリガーとなってマグノンが励起されると考える。NiOにおいて直線偏光励起の場合でもマグノンが励起されるのは、入射した直線偏光が試料内部で NiO の線形磁気複屈折によって円偏光成分が生じるためと考えられた。

そこで

- ① NiO の励起光波長での光学特性 (線形磁気複屈折, 吸収係数) 及びテラヘルツ波領域での光学特性
- ② NiO単結晶の双晶構造 (複屈折の光学軸方向の異なる 4 種類のドメイン  $T_1 \sim T_4$  がランダムに配置)
- ③ テラヘルツ波検出系の配置及び偏光特性を考慮し、逆ファラデー効果モデルを仮定した場合に放射されるテラヘルツ波パルス波形を計算した。モデルの概略図を図 6 に示す。各偏光状態に対する計算結果を図 4(b)及び 5(b)に示す。計算結果は励起光パルスの偏光状態に応じてテラヘルツ波放射波形の極性反転、すなわちマグノンの極性反転が生じることを良く再現する。なおこれらの図 4(b)及び 5(b)の縦軸は同じスケールになっているが、

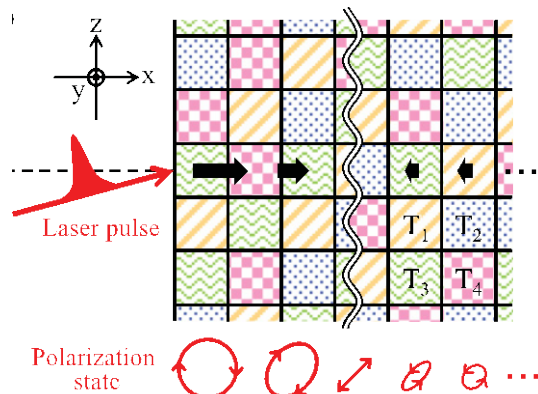


図 6 計算に使用したモデルの概略図。

実験で円偏光励起の場合のほうがやや放射電場振幅が大きくなるという傾向も良く再現されている。

等価な双晶ドメインがランダムに配置されている試料では、複屈折の効果は相殺され逆ファラデー効果によるテラヘルツ波放射も生じないとする主張も一部なされていたが、本研究の実験及び計算では放射が得られる。これは実際にはテラヘルツ波検出系の配置及び偏光特性から特定の配向のドメインからの放射成分を検出していることが主たる理由と考えている。

上記のようにテラヘルツ波放射波形の偏光依存性を解析した結果、マグノンの光励起機構として逆ファラデー効果が支配的であることが結論される。

### (4) 光パルス照射 MnO からのテラヘルツ波放射現象

前項まではNiOについての実験に基づいている。マグノン光励起機構を調べる上で遷移金属イオンを  $Ni^{2+}$  から  $Mn^{2+}$  (スピン量指数  $S=5/2$ ,  $Ni^{2+}$ は $S=1$ ) に変えたMnOとの比較が有用と考えられた。光パルス励起MnOもNiOと同様な光励起マグノンからのテラヘルツ波放射が観測された。しかしながらNiOと比べてテラヘルツ波放射特性の偏光依存性が異なっており、逆ファラデー効果以外の機構の影響が大きくなっていることがわかった。

また NiO と異なって中心波長 400 及び 800 nm の光励起により自由キャリアが励起されることを明らかにした。さらにこの自由キャリアの作る過渡的電流により広帯域テラヘルツ波パルスが放射される。自由キャリア寿命の温度依存性はネール温度近傍で変化率が反転するという特異な振る舞いを示す。これは自由キャリア再結合プロセスに関与するエネルギー緩和過程におけるフォノン及びマグノンによる緩和の競合によって生じると考えられた。今後より詳細に解析が必要である。

## 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)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① Junichi Nishitani, Takeshi Nagashima, and Masanori Hangyo:  
“Coherent control of terahertz radiation from antiferromagnetic magnons in NiO excited by optical laser pulses”  
Physical Review B **85**, 174439 (2012). (5 pages)
- ② Kohei Kozuki, Takeshi Nagashima, and Masanori Hangyo:

“Measurement of electron paramagnetic resonance using terahertz time-domain spectroscopy”  
Optics Express **19**, 24950-24956 (2011).

③ Junichi Nishitani, Kohei Kozuki, Takeshi Nagashima, and Masanori Hangyo  
“Terahertz radiation from coherent antiferromagnetic magnons excited by femtosecond laser pulses”  
Applied Physics Letters **96**, 221906 (2010). (3 pages)

[学会発表] (計 12 件)

① 西谷 純一, 長島 健, 萩行 正憲  
「反強磁性体 MnO のテラヘルツ分光」  
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.

② 長島 健  
「光・電磁波パルスを用いた電子スピンの高速応答検出及び制御」(招待講演)  
日本分光学会関西支部 平成 23 年度 講演会  
2012 年 3 月 9 日, 大阪大学.

③ Junichi Nishitani, Takeshi Nagashima, and Masanori Hangyo  
“Terahertz radiation from antiferromagnetic MnO”  
36th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz), 2011  
2011 年 10 月 6 日, ヒューストン, USA.

④ 長島 健  
「光-電磁波パルスによる電子スピンの制御と検出」(招待講演)  
大阪大学フォトンクスセンター第 22 回フォトンクス・コロキウム  
2011 年 8 月 1 日, 大阪大学

⑤ 西谷 純一, 長島 健, 萩行 正憲  
「フェムト秒光パルス励起反強磁性マグノンからのテラヘルツ波放射」  
平成 22 年度日本分光学会年次講演会  
2010 年 11 月 20 日, 京都大学 (京都市).

⑥ 長島 健  
「光パルス及びテラヘルツ波パルスと物質の相互作用」(招待講演)  
理化学研究所エクストリームフォトンクス研究シンポジウム  
2010 年 10 月 13 日, 理化学研究所 (和光市).

⑦ Junichi Nishitani, Takeshi Nagashima, Masanori Hangyo

“Terahertz radiation from coherent antiferromagnetic magnons excited by circularly polarized laser pulses”

The 35th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Wave (IRMMW-THz 2010)

2010 年 9 月 3 日, Angelicum University (ローマ).

⑧ 長島 健  
「フェムト秒光パルス励起反強磁性コヒーレントマグノンからのテラヘルツ波放射」(招待講演)  
東京大学物性研短期研究会「外部場の時間操作と実時間物理現象」  
2010 年 6 月 23 日 東京大学物性研究所 (柏市).

⑨ 長島 健, 西谷 純一, 上月 康平  
「テラヘルツ波時間領域分光法を用いた電子スピン応答の研究」(招待講演)  
電気学会 光応用・視覚研究会  
2010 年 1 月 27 日, 大阪産業大学梅田サテライトキャンパス.

⑩ 西谷 純一, 長島 健, 上月 康平, 萩行 正憲  
「フェムト秒光パルス励起反強磁性マグノンからのテラヘルツ波放射」  
日本物理学会 2009 年秋季大会  
2009 年 9 月 27 日, 熊本大学.

⑪ 西谷 純一, 長島 健, 上月 康平, 萩行 正憲  
“Terahertz Emission from Antiferromagnetic Magnons Excited by Femtosecond Laser Pulses”  
The 34th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Wave (IRMMW-THz 2009)  
2009 年 9 月 24 日, Busan, Korea.

⑫ 長島 健, 西谷 純一, 上月 康平  
“Electron spin response studied by THz time domain spectroscopy” (invited)  
8th Pacific Rim Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO/Pacific Rim 2009)  
2009 年 8 月 31 日, Shanghai, China.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

長島 健 (NAGASHIMA TAKESHI)  
大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・助教  
研究者番号: 60332748