

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 8 月 9 日現在

機関番号：73903

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26287060

研究課題名(和文) 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

研究課題名(英文) Control of spin order and non-linear phenomena induced by intense terahertz magnetic field

研究代表者

末元 徹 (Suemoto, Tohru)

公益財団法人豊田理化学研究所・フェロー事業部・フェロー

研究者番号：50134052

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：これまで利用が進んでいなかったテラヘルツ電磁波の磁場成分を活用して、スピンの制御と非線形効果の発現に関する実験的研究を行った。その結果、分割リング型のメタマテリアルにおいて、近接場効果によって約10倍の磁場増強効果があることを実証した。この増強磁場と近赤外パルスによる励起を組み合わせることによって、エルビウムオルソフェライトにおいて巨視的な磁化を発生させることに成功した。また、これまでにない長寿命のスピン歳差運動を発見し、その時間波形の試料形状依存性から、多数の固有モードが同時励起されていることを示した。これらの結果は、超高速磁気記録やスピントロニクスへの進展に寄与するものと期待される。

研究成果の概要(英文)：We performed an experimental research on the spin control and non-linear phenomena by utilizing the magnetic field components of the electromagnetic wave in terahertz frequency range. We observed nearly one order of magnitude enhancement of magnetic field due to near-field effect in metamaterial structures consisting of split ring resonators. By combining this enhanced field and near infrared excitation pulse, macroscopic magnetization is successfully produced in erbium-orthoferrite crystals. In addition, exceptionally long-lived precession motion was found in the same material. From the shape dependence of the waveform, it has been shown that many sideband modes are excited simultaneously. These results are expected to contribute significantly to the ultrafast magnetic information storage and spintronics.

研究分野：光物性

キーワード：光物性 テラヘルツ スピン制御 オルソフェライト メタマテリアル スピン再配列転移

1. 研究開始当初の背景

近年、スピントロニクス進展に伴って、スピンの超高速制御に注目が集まっている。特に超高速でスピンを自由に操り、その秩序を変えることができれば、メモリー、スイッチなどの機能が実現できるので、その実証が強く望まれている。図1に示すように、z方

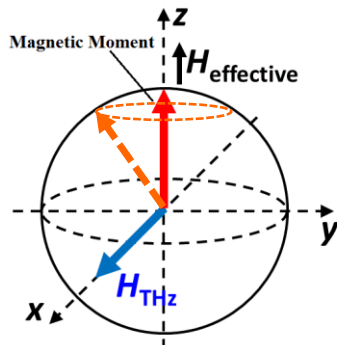


図1 THz 波の磁場成分によるスピン歳差運動の励起。

向に整列したスピンに半周期のテラヘルツ (THz) 波を照射すると、その磁場成分 (ここでは x-軸方向) が超短パルス磁場として作用し、スピンを平衡位置から y-軸方向に瞬時に傾け、歳差運動を開始させることができる。われわれは、テラヘルツ (THz) 波によって励起された強磁性体からスピンの歳差運動を反映した円偏 THz 波が放射されることをいち早く発見し (中嶋他 2010 年)、この分野の研究に先鞭をつけた。その後、科研費基盤 A の資金により強力な THz 光源を導入してスピンの THz 制御の研究を推進した。その結果、オルソフェライトにおいて、歳差運動のビート現象、高強度 THz 励起下でのみ現れるモードなどいくつかの新規な現象を見出した。またスピンの超高速な集団運動やスピン再配列転移を超高速でプローブする方法を確立した (山口他 2010, 2013 年)。

2. 研究の目的

本研究ではこれまでの研究成果を踏まえ、前項で言及した新規な現象の解明を進めるとともに、フォトンエネルギーが可視光より 3 桁以上小さいテラヘルツ波を用いることにより、電子励起や過剰な熱の発生を回避し、THz 磁場による「静かなスピン配列制御」を実証することを目的とする。

3. 研究の方法

本研究では、cant 型の弱強磁性体オルソフェライト $R\text{FeO}_3$ ($R=Y, \text{Er}, \text{Dy}$) を対象物質とする。良質の単結晶試料が必要であるが、 $R=Y$ 以外は入手が困難なので、フローティングゾーン法により育成する。今回は特に試料の組成比がスピン共鳴に大きな影響を与えることが明らかになってきたので、原料の調達段階から特段の注意を払った。スピン系の励起には、主に高出力フェムト秒レーザーパ

ルスを LiNbO_3 結晶に照射して発生させた高強度 THz パルスを用いる。測定には、THz 波の放射 (吸収) を用いる場合と、近赤外パルスのファラデー回転を用いる場合がある。いずれも、基本的にはこの数年間で整備した装置を用いるが、目的に応じて空間分解能や S/N 比の向上など最適化を行う。今回から新たにメタマテリアル構造の利用を試みるので、単結晶試料の上に Au または Al で微小なパターンを作る必要がある。これについては、千葉大学 (音研究室) および理化学研究所 (大谷研究室) の協力を得た。オルソフェライト結晶基板の微細加工には、自作のレーザー加工機を用いる。スピン再配列転移温度近傍における振舞いに特に興味があるので、測定には He クライオスタットを用いる。以上のような手法により、温度磁場相図上の相境界近傍における THz 照射効果を調べ、最終的には THz 波誘起スピン再配列の発見を目指す。

4. 研究成果

THz 波の磁場成分を用いると、磁気双極子相互作用によって電子スピンのピコ秒ダイナミクスを共鳴的に直接駆動することができるが、磁化の反転などのマクロな現象を起こすにはサブ THz の周波数領域で数 10 Tesla オーダーの THz 磁場強度が必要と予測されており、通常の実験室で発生可能な THz 強度では実現は難しい。この現状を踏まえ、本研究では高強度 THz 磁場による巨視的磁気秩序の制御を実現するために、(1)金属微細構造近傍に局在した近接 THz 磁場を用いた磁場の増強、(2)スピン再配列転移温度近傍での磁気異方性エネルギーの低下の利用を考えた。

(1)メタマテリアル構造による THz 磁場の増強

上記の戦略の第一段階として、SRR (分割リング共振器) の近接磁場によって共鳴励起されたスピン歳差運動の基本的な振舞いを調査した。 ErFeO_3 単結晶上に作成した金属 SRR 構造の周回電流モードを、 LiNbO_3 結晶を用いた光整流法により発生させた高強度 THz 波の電場成分 ($|\mathbf{E}_{\text{THz}}| \sim 200 \text{ kV/cm}$) によって励起すると、リング電流が作る近接磁場によって ErFeO_3 の強磁性 (F) 共鳴モードに対応するスピン歳差運動を誘起することができる。この際生じる面直方向の磁化成分を、試料面に垂直方向から入射したプローブ光の過渡ファラデー回転によって観測した。その結果を図 2 (a) に示す。F モードの共鳴周波数を試料温度によって変化させたところ、この歳差運動の振幅はスピンの共鳴周波数が SRR の固有周波数に一致したとき (detuning = $-6 \sim +7$) に劇的に増大し、入射 THz 波の磁場成分によって直接励起した際に比べて約 8 倍に至ることが確認された。この振舞いはスピン系の歳差運動を記述する Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程式と SRR を表す

LCR 回路方程式を誘導結合させたモデルによって非常によく再現することができた (図 2(c)). 共鳴周波数が一致したときに振幅が増大している様子は、図 2(b), (d)のフーリエスペクトルからはっきり見ることができる。

また、リングとの結合がある場合とない場

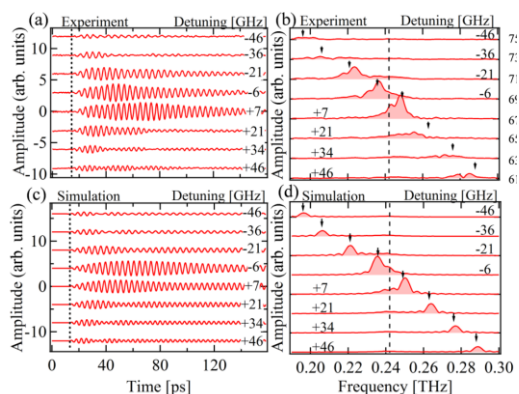


図 2 SRR によって増強されたスピン歳差運動。(a), (b)は実験、(c), (d)は計算、(a), (c)は時間波形、(b), (d)はフーリエスペクトルである。Phys. Rev. B 90, 144408 (2014)

合の歳差運動の寿命の比較から、SRR 振動磁場がスピン歳差運動を一方向的に励起するだけでなく、基板内におけるスピン歳差運動のエネルギーが SRR に移乗してジュール熱によって消費されるという逆過程が存在することも分かった。このように、メタマテリアル中で増強した近接磁場で励起されたスピン系の実時間応答を観測し、約一桁に及ぶ歳差運動振幅の共鳴増大を実現した他、スピン歳差運動とメタマテリアルの双方向エネルギー移動という現象を初めて確認した。

(2) スピン再配列転移におけるスピン方位の THz 放射を用いた観測

スピン再配列転移温度の近傍におけるスピンの振舞いを調べるために THz 時間領域分光を用いて、スピンの方位を決定する手法を開発した。

cant 型の弱強磁性体は、強磁性(F)モードと反強磁性(AF)モードの2種類のモードを持ち、それぞれが放射する THz 波の偏光特性が異なる。図 3(a)(b)に示すように、AFM は磁化の方向に平行な直線偏光を、FM は磁化に垂直な面内に電場ベクトルを持つ円偏光を放射するので、両モードからの放射電場の a 軸への射影成分の強度比から磁化の方向を決定することができることを着想し、 $Dy_xEr_{1-x}FeO_3$ 単結晶の(001)面を用いて実証実験を行った。この系は、 $x=0$ では磁化の方向がある温度範囲で連続的に a 軸(低温)から c 軸(高温)方向に回転する回転型の転移、 $x=1$ では、ある温度で不連続的に a 軸から c 軸方向に変化する瞬時型の転移を起こすこと、 $x=0.7$ 付近で両者の振舞いが入れ替わることが知られている。そこで本研究では、

スピン方位の振舞いに最も興味をもたれる $x=0.7$ の試料を作製し、THz 波による測定を行った。この温度範囲では、F モードは 0.25THz 付近、AF モードは 0.4THz 付近に現れることを確認しているため、2つのモードはスペクトルから同定することができる。図 3(c)は各モードの強さを温度の関数としてプロットしたものである。低温では、AF モードのみが観測されることから、スピンは a 軸方向を向いていることが分かる。温度を上げていくと 10~16K で F モードと AF モードの強度が入れ替わって、高温の極限では F モードの強度だけが残残り、スピンが c 軸に整列したことが分かる。このデータから、

$$\theta = \arctan \sqrt{\frac{A_{AF}}{A_F}}$$

によって磁化の角度 θ を求めることができる。ここで、 A_{AF} と A_F は、それぞれ AF モードと F モードの吸収強度である。

通常の SQUID による磁化率測定では、外

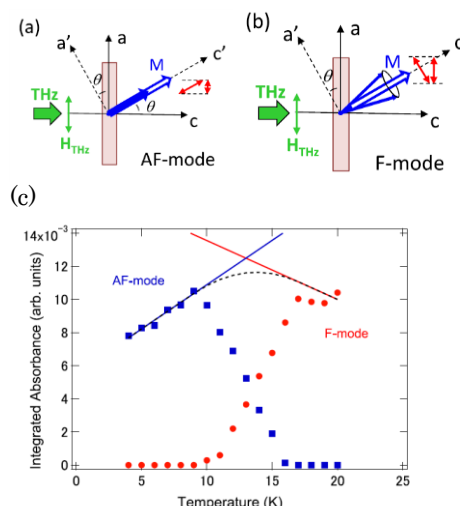


図 3 スピン再配列転移におけるスピン方位の THz 波による追跡。(a) AF モードからの THz 放射、(b) F モードからの THz 放射、(c) THz 放射強度の温度依存性。Appl. Phys. Lett. 107, 042404 (2015)

部磁場によって磁区を揃える必要があるが、この THz 波による測定では磁区はランダムなままでよいので、ゼロ磁場下でのスピン方位の測定が可能という特徴がある。この特徴を生かして、弱磁場下での cant 角の磁場依存性を測定することにも成功した。

(3) 長寿命歳差運動とビート現象

本研究計画の立案段階で未解明であった歳差運動のビート現象の解明を行うために、原料中の Er と Fe の比率を正確に調製した粉末試料を入手し、フローティングゾーン法によって良質の $ErFeO_3$ 結晶を作成した。この試料における F モードを THz 波によって励起し、減衰を調べたところ、図 4(a)に示す

とおり 20K において周期約 2.2 ps の歳差運動が 2.67 ns 以上継続し、Q 値が 1000 を遙かに超えることが明らかになった。これまでの試料で見られていたビートに起因すると思われる振幅の顕著な変調 (図 4(b)) は消失し、指数関数と定数成分で近似される比較的なめらかな減衰を示すことがわかった。

このように、ビート波形が試料の質に大きく影響されることから、結晶の欠陥や疵、異物などが重要な役割を担っていることが示

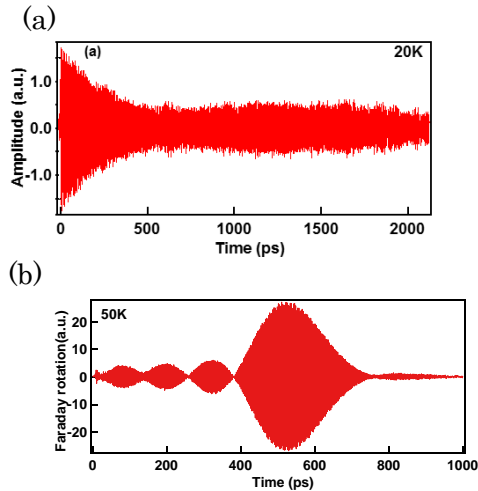


図 4 今回の良質の試料(a)と以前の試料(b)における波形。

唆された。そこで、厚さ 100 μm の良質の ErFeO_3 基板にレーザー加工によってスリットを切り (図 5(b))、幅の異なるロッド状の試料を作ってそれぞれにおける歳差運動をプローブ光のファラデー回転によって調べた。その結果を図 5(a)に示す。振舞いは非常に複雑であるが、スリットを入れることにより顕著なビート構造が現れ、その周期は太さの減少とともに短くなる傾向が見られた。これはロッド状試料の側面からのスピン波の散乱が干渉を起こした結果と推測される。波形の

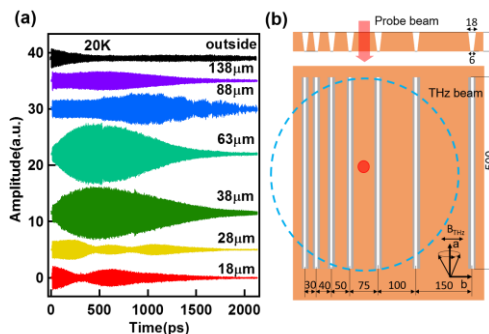


図 5 長寿命スピン歳差運動のロッド幅依存性(a)と試料の構造(b)。(Appl. Phys. Lett.投稿中)

フーリエスペクトルを詳細に解析したところ、等間隔に並んだ多数のモードが存在し、その相対強度比がロッド毎に異なっていることを仮定すれば、これらの波形がすべて理

解できることが分かった。多数のモードが生じる原因としては、試料の厚さ方向のスピン定在波、反磁場効果などが考えられるが、確実に特定するまでには至っていない。重要な結論として、スピン波は時間的なコヒーレンスが高いだけではなく、形状効果が現れるための必要条件として、少なくとも数十 μm の空間的コヒーレンス長を持っていることが分かる。以上により、良質の ErFeO_3 単結晶が高周波スピントロニクスや量子情報デバイスのプラットフォームとして有望であることが示された。

(4) THz 波によるマクロ磁化の動的制御

この項では、本研究の最終目標であったマクロなスピン秩序の制御について述べる。項目(1)で述べたとおり、微小な分割リング共振器によって THz 波の磁場を増強できることが分かったので、図 6(a)に示すような $200\mu\text{m}\times 200\mu\text{m}$ のリング構造を ErFeO_3 c-面基板の上に作成し、磁場が最も増強されていると考えられる内側コーナー付近 (白いスポット) にプローブ光を照射してファラデー回転を観測した。今回はさらに加熱用パルスとして波長 800nm のパルスを同じ位置に照射した。なおリングに電流を誘起するための THz 波のスポットは十分に大きくリング全体を覆っている。

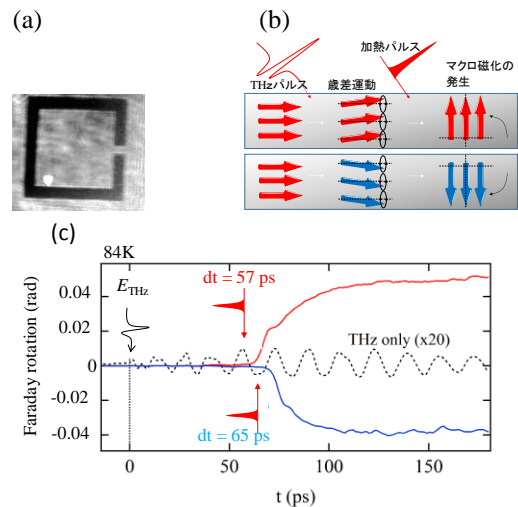


図 6 THz 波と近赤外パルスによるマクロ磁化の制御。(a) 分割リング共振器、(b) スピン制御の概念、(c) 磁化の時間発展。(Phys. Rev. Lett.投稿中)

図 6(b)はスピンの並びを基板側面 b-軸方向から見た模式図である。試料の温度はスピン再配列転移温度より少し低い 84K 付近に設定しているため、初期状態では磁化は a-軸方向を向いているが、c-軸方向の THz 磁場によって歳差運動が誘起される (スピンの傾きは 0.5 rad 以下)。次に近赤外パルスを照射して瞬時に試料温度を 96K 以上にすると磁化容易軸が c-軸方向になるので、スピンは、c または -c いずれかの方向に再配列しなければ

ならない。通常は、両者が同じ確率で生じるので、マクロな領域での磁化はゼロになるが、歳差運動のある瞬間に近赤外パルスを与えれば、わずかな傾きをきっかけとして、上下何れかの方向に揃えて転移を起こさせることが可能になると期待される。

図 6(c)に実験結果を示す。黒点線は $t=0$ で入射した THz 波によって励起された歳差運動に起因する磁化の c -軸方向成分の揺らぎである (20 倍に拡大して表示)。赤 (青) の曲線は THz 波パルスに加えて $t=57$ (65) ps に近赤外パルスを当てた場合の磁化である。ファラデー回転の値は正または負の方向に大きく変化し、歳差運動による揺らぎの約 80 倍と非常に大きな値に到達する。詳しい解析により、最終的に約 80% のスピンの同一方向に配向したことがわかった。近赤外パルスのわずか 8ps の時間差で磁化方向が選択できること、磁化の完成までに 30ps 程度しか要しないことから、高速磁気記録などの応用も含めたスピントロニクスに有用な手法を提供するものと期待される。

(5)まとめと展望

以上述べたとおり、「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」という研究テーマに応える十分な成果が上がったと考えている。当初は「非線形効果」として摂動の範囲に収まる比較的穏やかな効果を想定していたが、結果的には、不可逆的な大規模なスピン秩序の変更という、より顕著な現象を見出すことができた。THz 磁場によって制御、生成されたマクロな磁化は試料の冷却とともに元にもどるので、そのままではメモリーとしては使えない。しかしヒステリシスを持ったスピン再配列転移を持つ材料が開発されれば不揮発メモリーが実現する可能性が出てくる。今回のデモンストレーションは、90K という低温であったが、適当な転移温度を持った物質があれば原理的には室温でも実現可能である。

代表者の定年退職によって研究グループが解散となったため、研究の継続はできなくなったが、何かの形でこの研究が高速スピントロニクスの発展につながれば幸いである。

一連の研究に対する科研費補助金基盤 A および基盤 B の採択に感謝する。また本研究においては、研究分担者として登録された者の他に、大学院生 (当時) の山口啓太氏、栗原貴之氏、中村圭太氏の貢献が大きかったことを記して謝意を表す。また共同研究者として加わっていただいた、千葉大学の音教授、物性研/理研の大谷教授とそれぞれの研究室方々に感謝したい。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 (計 6 件)

1. Enhanced spin-precession dynamics in a spin-metamaterial coupled resonator observed in

terahertz time-domain measurements, T. Kurihara, K. Nakamura, K. Yamaguchi, Y. Sekine, Y. Saito, M. Nakajima, K. Oto, H. Watanabe and T. Suemoto, Phys. Rev. B 90, 144408-1-5 (2014)

2. High-frequency millimeter wave absorption of indium-substituted epsilon-Fe₂O₃ spherical nanoparticles (invited), M. Yoshikiyo, A. Namai, M. Nakajima, K. Yamaguchi, T. Suemoto, S. Ohkoshi, J. Appl. Phys. 115, 172613 (2014)

3. Magnetization-free measurements of spin orientations in orthoferrites using terahertz time domain spectroscopy, Tohru Suemoto, Keita Nakamura, Takayuki Kurihara and Hiroshi Watanabe, Appl. Phys. Lett. 107, 042404-1-4 (2015)

4. Dynamics of photoinduced change of magneto-anisotropy parameter in orthoferrites probed with terahertz excited coherent spin precession, Keita Yamaguchi, Takayuki Kurihara, Hiroshi Watanabe, Makoto Nakajima, and Tohru Suemoto, Phys. Rev. B 92, 064404-1-5 (2015).

5. Magnetic-excitation-assisted photoluminescence from self-trapped exciton states in MnO, Junichi Nishitani, Takeshi Nagashima and Tohru Suemoto, J. Phys. Condens. Matter 28, 016004-1-6 (2016).

6. Investigation of insulator-metal transition in Ti₄O₇ using terahertz probe pulse, Hayato Kamioka, Junichi Nishitani, Hiroyuki Tsukada, Ryotaro Yamaguchi and Tohru Suemoto, Appl. Phys. Lett. 108, 071908-1-4 (2016)

7. Efficient optical terahertz-transmission modulation in solution-processable organic semiconductor thin films on silicon substrate, T. Matsui, H. Mori, Y. Inose, S. Kuromiya, K. Takano, M. Nakajima, and M. Hangyo, Jpn. J. Appl. Phys. 55, 03DC12 (MAR 2016).

8. Terahertz wave emission from plasmonic chiral metasurfaces”, T. Matsui, S. Tomita, M. Asai, Y. Tadokoro, K. Takano, M. Nakajima, M. Hangyo, H. Yanagi, Appl. Phys. A 122, 157 (MAR 2016).

9. Coherent radiation at the fundamental frequency by a Smith-Purcell free-electron laser with dielectric substrate, D. Li, Y. Wang, M. Nakajima, M. Tani, M. Hashida, M. R. Asakawa, Y. Wei, and S. Miyamoto, Appl. Phys. Lett. 110, 151108 (2017).

10. Quasi-dielectric characteristics of stacked metallic metamaterials, Yasunori Tokuda, Keisuke Takano, Yuki Yamaguchi, Koichiro Sakaguchi, and Makoto Nakajima, Jpn. Journal App. Phys. 56, 030306 (2017).

11. Application of Terahertz field enhancement effect in metal microstructures, M. Nakajima, T. Kurihara, Y. Tadokoro, B. Kang, K. Takano, K. Yamaguchi, H. Watanabe, K. Oto, T. Suemoto, and M. Hangyo, Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, 37, 1199-1212 (DEC 2016).

〔学会発表〕 (計 11 件)

1. Observation and Control of Spin Dynamics by Impulsive Magnetic Fields of Terahertz Radiation (invited), T. Suemoto, K. Yamaguchi, T. Kurihara, K. Nakamura, H. Watanabe, T. Kato, K. Oto, and M. Nakajima, Fujihara Seminar, 2014 年 9 月 26 日 苫小牧
2. Ultrafast Dynamics of Photo-reversible Insulator-Metal Phase Transitions in Nanocrystalline Ti_3O_5 (invited), Tohru Suemoto, Akifumi Asahara, Hiroshi Watanabe, Hiroko Tokoro, and Shin-ichi Ohkoshi, Phase Transition and Dynamical Properties of Spin Transition Materials
東京大学 東京 11 月 19~22 日 2014 年
3. 超高速ダイナミクスと光物性ー テラヘルツから軟 X 線まで ー (チュートリアル講演) 末元徹、光物性研究会 神戸大学, 2014 年 12 月 12 日
4. $ErFeO_3$ における光誘起 スピン再配列相転移ドメインの THz 近接磁場による制御, 栗原貴之、渡邊浩、音賢一、中嶋誠、末元徹, 物理学会 2015 年 9 月 18 日 関西大学、大阪 18pPSA-22
5. スピンドイナミクスと磁気秩序の高強度テラヘルツ磁場による制御(応用物理学会講演奨励賞), 栗原 貴之、末元 徹、中嶋 誠 第 63 回応用物理学会春季学術講演会, 19p-H135-7, (2016.3.19-22, 東京工業大学).
6. $ErFeO_3$ の THz 誘起スピン再配列相転移初期過程におけるドメイン生成メカニズム, 栗原貴之、渡邊浩、軽部修太郎、音賢一、大谷義近、中嶋誠、末元徹, 日本物理学会 第 71 回年次大会, 21pBH-5 (2016.3.19-22, 東北学院大学) .
7. Coherent control of the spin systems by terahertz magnetic field (invited), T. Suemoto, T. Kurihara, M. Nakajima and H. Watanabe, International Research School: Electronic States and Phases induced by Electric or Optical, Impacts (IMPACT2016) (Cargese France, Aug. 26, 2016)
8. Coherent Manipulation of Laser-induced Spin Reorientation Dynamics in $ErFeO_3$ with Intense THz Magnetic Nearfields, T. Kurihara, H. Watanabe, M. Nakajima and T. Suemoto, IRMMW-THz 2016, Bella Center (Copenhagen, Denmark), Oral, W3E.3, 2016.9.28
9. Ultrafast spin dynamics and control using enhanced Terahertz magnetic fields by metallic microstructure (Invited), M. Nakajima, T. Kurihara and T. Suemoto, 5th EOS Topical Meeting on Terahertz Science & Technology (TST 2016, Pecs, Hungary), Oral, Oral_May9, 2016.5.8-11
10. Enhanced Terahertz Magnetic Near-field by Tapered Waveguide in Double Split-ring Resonator Coupled $Tb_3Ga_5O_{12}$ Crystal, Hongsong Qiu, Hirofumi Harada, Kosaku Kato, Keisuke Takano, Takayuki Kurihara, Tohru Suemoto,

Masahiko Tani, Nobuhiko Sarukura, Masashi Yoshimura, Makoto Nakajima, IRMMW-THz 2016, Bella Center, (Copenhagen, Denmark), Poster, W5P.14.08, 2016.9.28

11. Ultrafast control of macroscopic magnetization by terahertz magnetic pulses (Invited), M. Nakajima, T. Kurihara, H. Watanabe and T. Suemoto, EMN Terahertz meeting (Honolulu, USA), Oral presentation, Oral_April4, 2017.4.1-5

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.toyotariken.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

末元 徹 (SUEMOTO, Tohru)
公益財団法人豊田理化学研究所
フェロー事業部門・フェロー
研究者番号: 50134052

(2) 研究分担者

中嶋 誠 (NAKAJIMA, Makoto)
大阪大学レーザー科学研究所・准教授
研究者番号: 40361662
板谷 治郎 (ITATANI, Jiro)
東京大学物性研究所・准教授
研究者番号: 50321724
渡邊 浩 (WATANABE Hiroshi) (H28 年度のみ)
大阪大学生命機能研究科・助教
研究者番号: 50625316

(3) 連携研究者

(0)

(4) 研究協力者

(0)