

## 論文の内容の要旨

### 論文題目 Observation and control of the magnetic order dynamics using terahertz magnetic nearfields enhanced by metallic microstructures

(金属微細構造による増強テラヘルツ近接磁場を用いた  
磁気秩序ダイナミクスの観測と制御)

氏名： 栗原 貴之

#### [背景]

テラヘルツ(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。この THz 磁場の特徴を活かしてこれまで様々な磁性体における超高速スピンドイナミクスが研究されてきたが、特に最近では、近年発達の目覚ましい高強度 THz 光源を用いることで THz 磁場によるスピン系への摂動をより大振幅に行い、スピン反転等の基礎応用両面で重要な様々なスピン制御を実現しようという動きが活発化している。ところが、通常 THz 帯に磁気共鳴を持った磁性体(反強磁性体等)は強い磁気異方性を持つため線形応答領域から外れた大振幅の摂動を実現するには数 10 Tesla オーダーの THz 磁場強度が必要とされ、実験的に巨視的磁気秩序を THz 磁場で制御することに成功した例は報告されていない。

これを行うためには入射 THz 波の強度増大と同時に、THz 磁場によって摂動を受けやすい物質側の選定も重要である。例えば、一般的に磁気相転移点近傍では磁気感受率が発散し、スピン系がソフト化する。このような相転移の動的過程を THz 磁場によって摂動することで、現実的な THz 磁場強度を用いても磁気秩序の劇的な変化を起こし得ることが期待できる。

他方、サブ波長の金属微細アンテナ構造におけるプラズモン共鳴、特にメタマテリアル構造の一種である分割リング共振器(Split-Ring Resonator, SRR)を用いると電磁波の磁場成分を選択的に増幅できる。高強度 THz 波発生技術とこのような増強 THz 近接磁場を用いれば、入射電磁波を増幅し、スピン歳差運動振幅を大幅に増強し得ることが期待できる。

#### [研究目標]

本研究では上記のような状況の下、THz 磁場による巨視的磁気秩序の制御を行うために、以下のアプローチを考案・実現した：

- (i) SRR 構造を用いたスピン歳差運動振幅の増大
- (ii) スピン再配列相転移(Spin-Reorientation Phase Transition, SRPT)の初期過程に THz 磁場で摂動を加えることによる、再配列相転移の動的過程及び巨視的磁気秩序の制御。

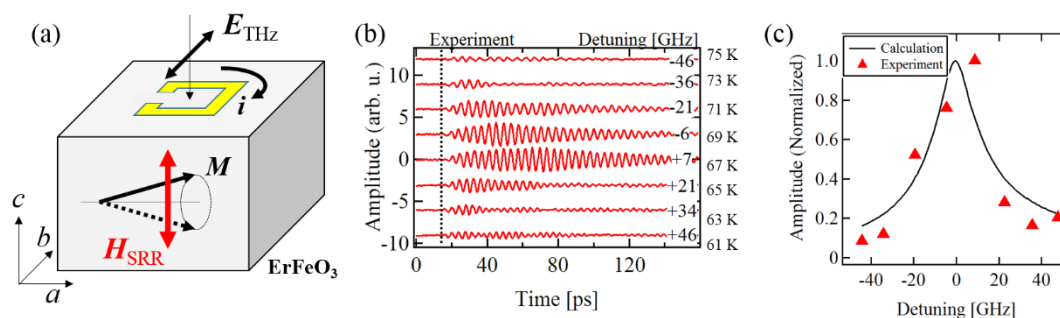


図 1: (a) 実験配置図。(b) THz ポンプ-光ファラデープローブ測定によって得られた、SRR 磁場によるスピン歳差運動波形の温度変化。Detuning は、SRR 共鳴周波数( $\sim 0.24$  THz)からのずれを表す。(c) (a)のフーリエスペクトルピーク強度をデチューニングに対してプロットしたもの。

本研究ではこれらの実現のため、THz 帯にスピン共鳴を持ち、かつスピン再配列相転移を示す典型的な物質であるエルビウムオルソフェライト( $\text{ErFeO}_3$ )をターゲットとした。 $\text{ErFeO}_3$ は副格子磁化がジャロシンスキー・守谷相互作用によってわずかに反強磁性から傾き、強磁性成分  $M$  を持った弱強磁性体である。その磁気異方性エネルギーは強く温度依存し、90 K 付近を境として磁気秩序が  $M \parallel a$  (低温相)から  $M \parallel c$  (高温相)連続的に  $90^\circ$  回転する、回転型の SRPT を示す。この相転移は fs レーザー照射によって数 10 ps 程度の時間スケールで誘起できる。スピン共鳴周波数は磁気異方性の温度変化を反映して SRPT 温度領域付近でソフト化することが知られている。この物質を用いて、以下に記す二つの実験(第 3・4 章)を行った。

### [内容 1: スピン歳差運動の共鳴励起]

第 3 章では、第一段階としてまず SRR 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る舞いを調査した。 $\text{ErFeO}_3$  単結晶上に作成した金属 SRR 構造の周回電流モードを THz 波の電場成分によって励起したところ[図 1 (a)],  $\text{ErFeO}_3$  の強磁性共鳴モード(FM モード)に対応するスピン歳差運動を選択的に誘起でき、これを 800 nm 透過光の過渡ファラデー回転によってプローブすることに成功した。FM モードの共鳴周波数を温度によって変調したところ、この歳差運動振幅は SRR 周波数に一致したときに劇的に増大し[図 1 (b)], 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[図 1 (c)]。この系の基本的な振舞いはスピン系の歳差運動を表す 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表すことができた。

また、SRR 近接磁場によってスピン系を励起した場合と、入射 THz 磁場によって直接スピン系を励起した場合の歳差運動波形を比較したところ、SRR によって励起した場合には元のスピン系の寿命に比べて歳差運動の寿命が短縮されることが観測された。これは 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、SRR リング内のスピン歳差運動がリング上に誘起する誘導起電力によって「スピン系→SRR」という逆方向のエネルギー移動過程が存在することを示唆している。この定性的な振舞いは上述の LLG と LCR 方程式を結合させたモデルによって理解することができ、SRR 中のジュール損失によってスピン系のエネルギー散逸が促進され、結果として

歳差運動の寿命が短縮するという機構が存在することがわかった。

## **[内容 2: 光誘起 SRPT 過程の SRR 磁場による巨視的磁化のコヒーレント制御]**

第 4 章では、上述の SRR によって増強した THz 近接磁場を用いて、SRPT 過程の THz 磁場による動的制御を試みた [図 2 (a)]。

前章の高強度 THz ポンプ・800 nm 光ファラデープローブ実験系にフェムト秒 800 nm ポンプ光を導入し、これによって ErFeO<sub>3</sub> スピン系を加熱することで温度誘起 SRPT を生じさせた。この際、加熱後、通常  $M // +c$  と  $-c$  方向を向いた磁化は等量生じ、試料全体としての巨視的磁化はゼロであるが、THz 磁場によってスピン系に歳差運動を誘起しておくことで[図 2 (a)-(1)]、過渡的に系の磁気的対称性を崩すことができる[図 2 (a)-(2)]。歳差運動と位相を合わせて加熱光を加えたところ[図 2 (a)-(3)]、SRPT におけるスピン系の回転方向に指向性が生じ[図 2 (a)-(4)]、試料全体の磁化の大きさに対して 60 % 以上が一様に揃った巨視的な終状態を生成することに成功した。THz に対する加熱光の入射時刻  $dt$  を変化させるとこの生成磁化はスピン歳差運動に同期してコヒーレントに変化・反転した[図 2 (b)]。生成磁化量の入射 THz 強度依存性、試料初期温度依存性などを調べたところ、相転移時におけるスピン系の過渡的な傾きによって相転移の方向が決定されていることが示唆された。

さらに、スピン歳差運動波形[図 3 (a)黒線]と、各時点の光照射で生成された磁化の時間プロファイル[図 3 (a)赤線]を詳細に比較したところ、THz 励起後十分時間が経過し歳差運動振幅が減衰した後にも、SRR 磁場に同期してマクロ磁化が生じていることが確認された。これは上述の「磁化誘起」による再配列指向性制御機構の他に、磁化の傾きが小さい領域においては THz 「磁場誘起」による直接的な再配列指向性の変調が起きていることを意味する。

このような THz 「磁場誘起」の相転移方向制御機構はこれまで知られておらず、第 5 章ではその物理的描像を明らかにすることを目的としてシミュレーションを行った。オルソフェライトの再配列相転移を記述する標準的なモデルである、2 スピン自由エネルギーモデルと LLG 方程式によってスピンドYNAMICS を計算した結果、実験で見られたような「THz 磁場誘起」再配列制御が再現できた。THz 磁場下にて光照射した際のスピン系の自由エネルギー曲線と磁化の経時変化を計算したところ、この過程は本質的には THz 磁場によって相転移の瞬間に生じる自由エネルギー極大の位置がずれることにより、非平衡状態にあるスピン系の  $\pm c$  方向への分岐率が変化すると描像によって説明できることがわかった[図 4 (b)]。このような機構は、スピン系の応答時間よりも短い周期で変化するような SRR 中の THz 交流磁場を用いて初めて見いだされたものである。

このように、本研究では金属微細構造中の THz 近接磁場が持つ特性を有効活用し、「歳差運動の増大」と「相転移初期過程の動的コヒーレント制御による巨視的磁気秩序の制御」という二つの目標を達成することに成功した。これにより、将来的に超高速スピントロニクスデバイス等への発展可能性が期待される

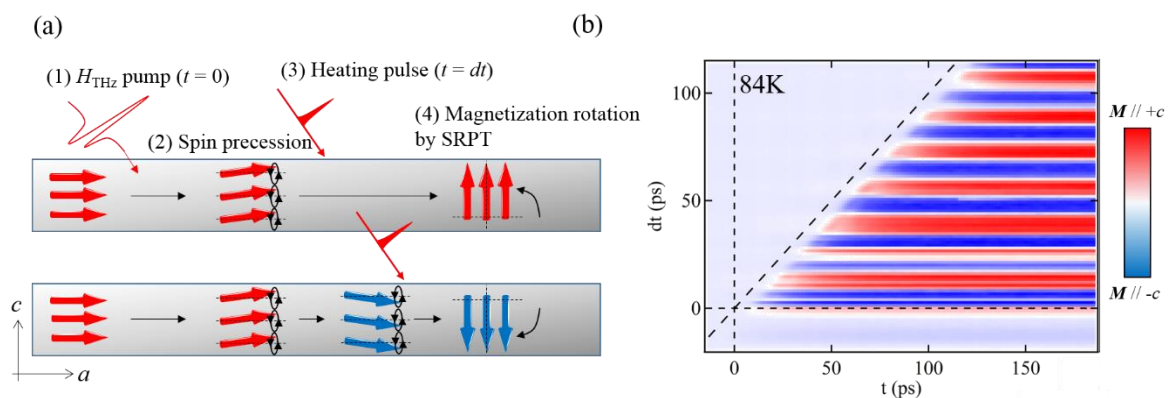


図 2: (a) 考案した THz 磁場+fs 光加熱パルス入射による SRPT 過程制御の概念図。THz 磁場入射(1)によってスピン歳差運動を生じさせ(2)、タイミングをずらして加熱パルスを加えることで(3)任意の方向に揃った磁化状態を実現できる(4)。(b)上記の実験結果。横軸は入射 THz 波とプローブ光の、縦軸は THz とポンプ光の遅延時間を示す。

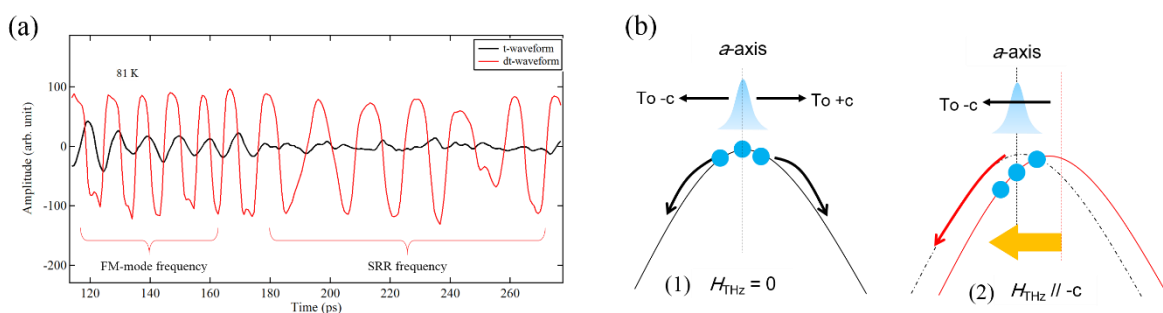


図 2: (a) スピン歳差運動(黒線)と、対応する各時点での光照射により生成された磁化量(赤線)。(b) THz 「磁場誘起」の再配列転移指向性制御機構の概念図。青丸はスピン系の現在位置を示す。