

# フェムト秒レーザー励起によるテラヘルツ電磁波発生を利用した分極ドメイン・磁気ドメインの観測

物質系専攻 47-136013 木下 雄斗

指導教員：岡本 博（教授）、貴田 徳明（准教授）

キーワード：磁気ドメイン、分極ドメイン、非線形光学、テラヘルツ電磁波

## 【背景・目的】

強誘電体・強磁性体では、全体の静電エネルギー・静磁エネルギーを最小にするために、磁化や分極の方向が互いに異なるミクロな磁気ドメインや分極ドメインが形成される。これらの特徴的なドメイン構造を利用することで様々なデバイスが開発されてきた。このような強誘電性・磁性デバイスの性能をさらに向上させるためには、ドメイン構造を観測し、電場・磁場・光といった外場下でのダイナミクスを詳細に明らかにすることが重要である。この観点から、電子線・X線・可視光ビームを用いた様々な手法が、ドメイン構造のプロブとして開発されてきた。例えば、時間反転対称性の破れた強磁性体や、空間反転対称性の破れた強誘電体では、二次の非線形光学係数 $\chi^{(2)}$ が非零である。この結果、高強度の光を照射すると二次の非線形光学効果を介して、入射周波数の二倍の周波数の光(第二高調波, SHG)が発生する。SHG光をプロブすることで分極や磁化の知見が得られる。しかしながら、通常のSHG法では光の強度のみを測定し、位相の情報が失われるため、分極の正負や磁化の正負を区別することができないという欠点がある。近年、この欠点を克服した新たなドメイン構造観測手法として、テラヘルツ電磁波発生を利用したイメージング方法が報告されている [1-3]。強誘電体では、フェムト秒レーザーを照射すると、二次の非線形光学効果の差周波過程を介してテラヘルツ電磁波が発生することが知られている。テラヘルツ電磁波の測定では、位相の情報を含む電場波形を直接観測することが可能である。すなわち、発生するテラヘルツ電磁波をプロブとすることで、分極ドメイン構造を分極の正負を区別して可視化できる。一方、強磁性体においても、同様の差周波過程に由来したテラヘルツ電磁波発生の観測例が報告されている[4]。このテラヘルツ電磁波をプロブとすると、磁気ドメイン構造を磁化の正負を区別して可視化できることが期待される。

本研究では、(1)強磁性体・強誘電体におけるテラヘルツ電磁波発生現象の観測、(2)テラヘルツ電磁波発生現象を利用した強磁性体内の磁気ドメイン構造および強誘電体内の分極ドメイン構造の可視化技術の開拓の2点を目的として実験を行った。研究対象として、フェリ磁性を示す $\text{LiFe}_5\text{O}_8$ 、強誘電性を示す $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$ 、 $\text{BiFeO}_3$ 、 $\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{Nb}_2\text{O}_6$ を用いた。実験の結果、これらの物質からテラヘルツ電磁波が発生することを見出した。 $\text{BiFeO}_3$ では数 mm 程度の巨大な分極ドメインを観測した。さらに、 $\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{Nb}_2\text{O}_6$ においては、電場下のドメイン構造の変化を可視化し、そのダイナミクスを明らかにした。ここでは $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$ 、 $\text{LiFe}_5\text{O}_8$ を対象としたテラヘルツ電磁波の発生ならびにドメイン構造可視化の研究結果について述べる。

## 【強誘電体 $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$ からのテラヘルツ電磁波発生と分極ドメインの可視化】

強誘電体 $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$ の結晶構造は室温において立方晶である。点群は $\bar{4}3m(T_d)$ に属しており、空間反転対称性が破れている。一方、190 K以下では斜方晶へ構造相転移し、点群は $mm2(C_{2v})$ となる。その結果、 $[001]_{\text{cub}}$ 方向に自発分極が誘起され強誘電性を示す。図1(a)に、実験の模式図を示す。励起にはTi:sapphireレーザー(パルス幅100 fs、中心波長800 nm、繰り返し周波数80 MHz)を用いた。単結晶 $(110)_{\text{cub}}$ 面の試料を、東京大学大学院新領域創成科学研究科の有馬孝尚教授に提供頂いた。入射するフェムト秒レーザーの偏光を試料の $[001]_{\text{cub}}$ 方向である水平に固定し、同じく水平方向に偏光したテラヘルツ電磁波を光伝導スイッチによって検出した。図1(b)は、この配置で測定した10 K(強誘電相)におけるテラヘルツ電磁波の時間波形である。0 ps付近にパルス幅1 ps程度のテラヘルツ電磁波が観測された。また、詳細な入射偏光角度依存性の測定によりテラヘルツ電磁波の発生機構が二次の非線形光学効果の差周波過程であることが明らかとなった。発生したテラヘルツ電磁波の電場ベクトルは、自発分極のベクトルに比例している。すなわち、発生したテラヘルツ電磁波をベクトルとして測定すると、自発分極の符号を含めた簡便な強誘電ドメイン構

造可視化が行える。測定では、偏光子を用いて発生するテラヘルツ電磁波の水平成分ならびに鉛直成分を測定しベクトル合成することで、自発分極のベクトル像を得た。図1(c)は、試料の光学顕微鏡像である。強誘電相の50 Kにおいて、同じ領域で自発分極をベクトル分解した結果が図1(d)である。矢印の長さや向きが、それぞれ、分極の大きさ、方向に対応する。中心部において、ベクトルが90度回転していることが観測された。すなわち、head to tail 90度ドメイン構造の可視化に成功した。

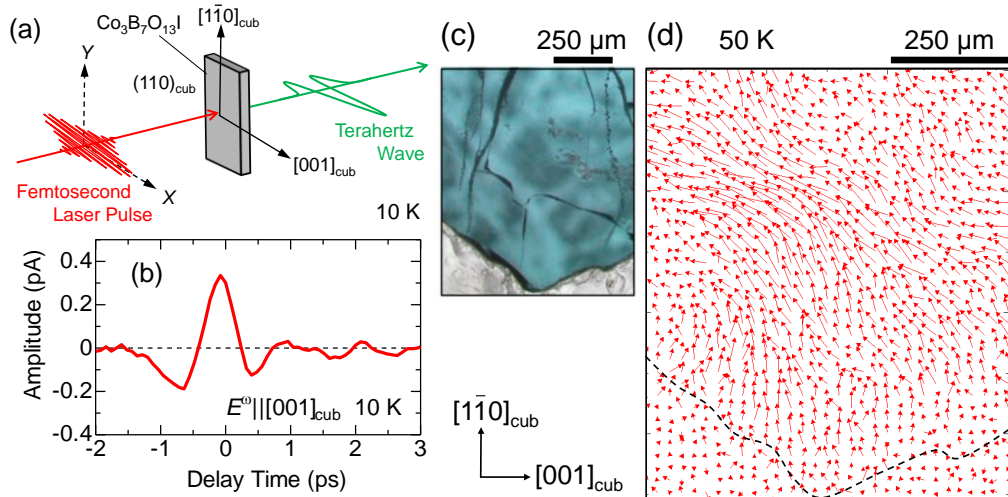


図 1 (a)テラヘルツ電磁波発生の実験配置。(b)発生したテラヘルツ電磁波の時間波形。(c)試料の光学顕微鏡像。(d)ベクトルマッピング像。

【強(フェリ)磁性体  $\text{LiFe}_5\text{O}_8$  からのテラヘルツ電磁波発生と磁気ドメインの可視化】

フェリ磁性体  $\text{LiFe}_5\text{O}_8$  は、室温で結晶構造が立方晶のスピネル構造であり、空間群  $P4_332$ (点群 432) に属している。図 2(a) に結晶構造の模式図を示した。Fe の価数は 3 価であり、4 配位の四面体構造および 6 配位の八面体構造を成す。1 価の Li は 6 配位である。~1000 K 以上で八面体構造を成す Fe と Li は無秩序に存在するが、1008 K-1028 K 以下で相転移が生じて、 $[110]$  方向に 3:1 の比で整列する秩序相となる。また、室温では  $S = 5/2$  の高スピン状態の 6 配位と 4 配位の Fe スピンが反強磁性的に整列する。単位格子当たり 6 配位の Fe と 4 配位の Fe の割合は 3:2 であり、巨視的な磁化が生じ、フェリ磁性となる。図 2(b)に、実験の模式図を示す。励起には前述した Ti:sapphire レーザーを用いた。電磁石によって飽和磁場以上の 60.5 mT の磁場を水平方向に印加した。入射するレーザーの偏光を水平方向とし、磁化に垂直な鉛直偏光のテラヘルツ電磁波を光伝導スイッチによって検出した。試料は、東京大学大学院総合文化研究科関連基礎科学系の小野瀬佳文准教授に提供頂いた。図 2(c)に実験結果を示す。横軸は時間、縦軸はテラヘルツ電磁波の電場振幅である。実線が 60.5 mT の磁場を印加した場合、破線が -60.5 mT の磁場を印加した場合の結果を表す。0.5 ps 付近にパルス幅 1 ps 程度のテラヘルツ電磁波が観測された。さらに、磁場の反転に対して時間波形の振幅も反転しており、テラヘルツ電磁波発生が試料内の磁化と密接に関連していることを見出した。また、テラヘルツ電磁波発生の外部磁場依存性、ならびに入射するフェムト秒レーザーの偏光角度依存性を詳細に測定し、テラヘルツ電磁波の発生機構がフェムト秒レーザー誘起高速磁化変調による磁気双極子放射であることを明らかにした。

磁化とテラヘルツ電磁波の偏光が対応しているため、テラヘルツ電磁波の偏光方向を決定することで磁化方向のベクトル分解が可能である。図 3(a)は、実験に用いた試料の光学顕微鏡像である。この範囲でイメージングを行った結果が図 3(b)、(c)である。薄い灰色の領域がテラヘルツ電

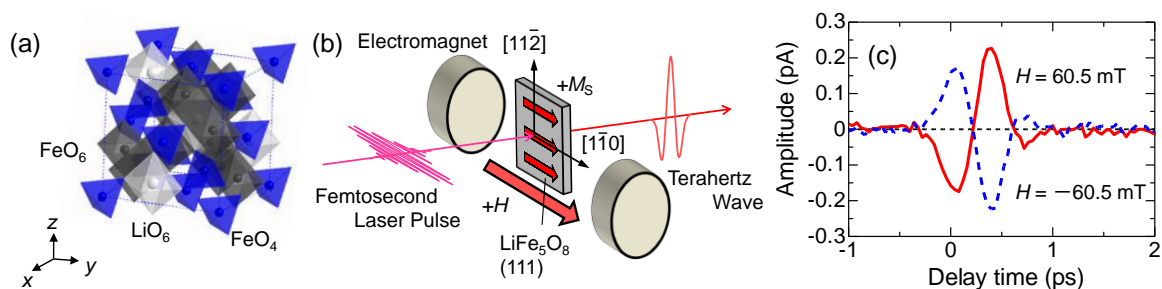


図 2 (a)  $\text{LiFe}_5\text{O}_8$  の結晶構造。(b)テラヘルツ電磁波発生の実験配置。(c)発生したテラヘルツ電磁波の時間波形。

磁波の振幅がプラス、濃い灰色の領域がマイナスを表し、白い領域は振幅がゼロの領域である。図 3(b)は、図中の太矢印の方向に 60.5 mT の磁場を印加した場合の結果である。試料全体に渡って磁化の方向はほぼ一様であることが観測された。さらに、点線の範囲で偏光のベクトル分解を行い、磁化方向のベクトルマッピングを行った結果が図 3(b)下図である。矢印の向きが磁化の方向、長さが磁化の大きさを表す。空間分解能は、試料上におけるフェムト秒レ

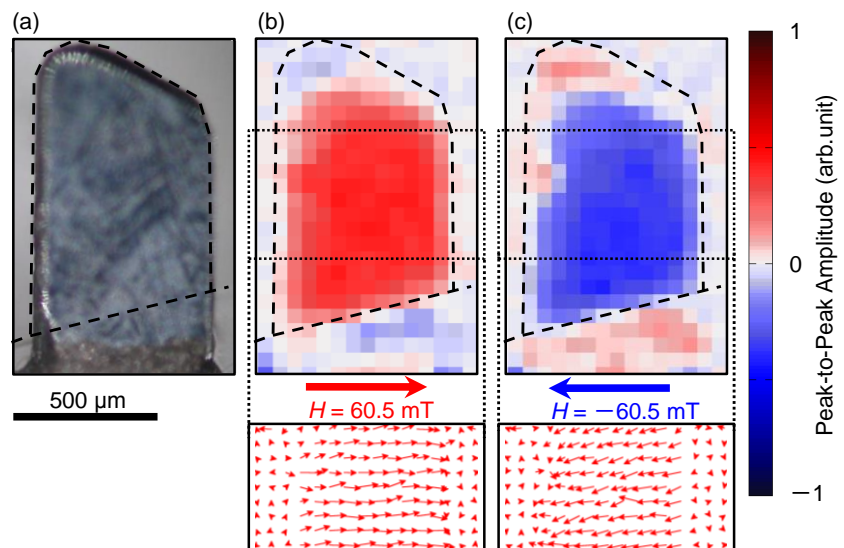


図 3 (a)光学顕微鏡像。(b)プラス磁場下でのテラヘルツ像とベクトルイメージング。(c) マイナス磁場下でのテラヘルツ像とベクトルイメージング。

ーザーのビーム径によって決定し、本測定系では 25  $\mu\text{m}$  となっている。実際の測定でのステップ幅は 50  $\mu\text{m}$  とした。測定範囲で、磁化は一様に磁場方向に平行である。一方、図 3(c)は逆方向の方向に 60.5 mT の磁場を印加した場合の結果であり、図 3(b)と正負反転したイメージング像が観測された。以上の結果は、テラヘルツ電磁波発生を利用して磁気ドメイン構造をベクトル分解して可視化できることを示している。

#### 【まとめ】

本研究では、フェムト秒レーザー照射によるテラヘルツ電磁波発生を利用した、磁気ドメイン・分極ドメイン構造の観測を行った。190 K 以下で強誘電性を示す  $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$  にフェムト秒レーザーを照射することで二次的非線形光学効果の差周波過程を介したテラヘルツ電磁波の発生を観測した。さらに、テラヘルツ電磁波発生をプローブとすることで、head to tail 90 度ドメイン構造が観測された。一方、室温でフェリ磁性を示す  $\text{LiFe}_5\text{O}_8$  においてもフェムト秒レーザーの照射によるテラヘルツ電磁波発生を見出した。また、テラヘルツ電磁波発生の外部磁場依存性や入射するレーザーの偏光角度依存性の詳細な測定を行うことで、発生機構がフェムト秒レーザー誘起高速磁化変調による磁気双極子放射であることが明らかとなった。さらに、自発磁化と発生するテラヘルツ電磁波が比例することを利用し、試料内の磁気ドメイン構造をベクトル分解して可視化できることを示した。

#### 【参考文献】

- [1] K. Takahashi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 117402 (2006).
- [2] M. Sotome *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 041101 (2014).
- [3] Y. Kinoshita *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, 09PD08 (2014).
- [4] D. J. Hilton *et al.*, *Opt. Lett.* **29**, 1805 (2004).

#### 【学会・論文発表】

1. 日本物理学会 2013 年年次大会「 $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$  酸化物からのテラヘルツ電磁波発生とドメインイメージング」木下 雄斗他
2. 日本物理学会 2014 年年次大会「THz 電磁波発生を利用した  $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$  における強誘電ドメインの可視化」木下 雄斗他
3. 日本物理学会 2014 年秋季大会「光整流効果による強誘電体  $\text{Sr}_{0.61}\text{Ba}_{0.39}\text{Nb}_2\text{O}_6$  からのテラヘルツ電磁波発生」木下 雄斗他
4. 日本物理学会 2015 年年次大会「 $\text{LiFe}_5\text{O}_8$  からのテラヘルツ電磁波発生」木下 雄斗他
5. 第31回強誘電体応用会議「光整流を利用した磁性強誘電体  $\text{Co}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$  からのテラヘルツ電磁波発生」木下 雄斗他
6. Y. Kinoshita *et al.*, "Visualization of ferroelectric domains in boracite using emission of terahertz radiation", *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**, 09PD08 (2014) (5 pages).「Spotlights 論文に選出」