

論文の内容の要旨

論文題目 Ultrafast spin dynamics induced by pulsed terahertz wave in canted antiferromagnet

(傾角反強磁性体におけるテラヘルツ波パルス誘起超高速スピンドYNAMIKSの研究)

氏名 山口 啓太

近年発達が著しいテラヘルツ波パルスを用いた研究は主に電場成分が利用されたものが行われており、磁場成分の利用は行われてこなかった。テラヘルツ波パルスの磁場パルスとしての利用により、電子スピンのサブピコ秒時間スケールでの操作が可能になると期待される。スピントロニクスのように電子スピンを積極的に利用する技術が注目を集めていることもあり、このような超高速スピン制御の研究が幅広く研究されるようになってきている。代表的な例としては逆ファラデー効果や逆コットン・ムートン効果など電子の実励起を介さずスピンのみ励起する手段が見出されており、これらを用いた高速動作スピントロニクスデバイスの実現が期待される。これらの方法で用いる可視光のフォトンエネルギーはスピン系のエネルギーと大きく異なり、光の磁場成分が直接スピんに働きかけることは出来ないが、光の電場成分との誘電的な作用によりスピン系の励起が生じる。本論文ではよりスピン系のエネルギーと近いエネルギーを持つテラヘルツ波パルスを用い、磁氣的相互作用によるダイレクトなスピン励起を試み、その超高速ダイナミクスを観測した。

本研究では希土類オルソフェライト RFeO_3 (R:希土類元素) という磁性酸化物を対象として用いた。オルソフェライトは約 600 K のネール温度以下で鉄イオンスピンの反強磁性的秩序に従って配列し、さらにジャロシンスキー・守谷相互作用によって副格子スピン間のなす角度が 180 度から少しずれてマクロな磁化が発生する。このため、オルソフェライトは傾角反強磁性体もしくは弱強磁性体と呼ばれている。2つの異なる反強磁性共鳴モード

がサブテラヘルツ帯に存在し、それぞれマクロ磁化の歳差運動を伴う強磁性共鳴に似た F モード、およびこのような歳差運動を伴わない AF モードと呼ばれる。本研究ではこの 2 つのモードのテラヘルツ波パルスによる励起・観測に着目した。また、常磁性的な希土類スピンの磁化の大きさに応じて鉄イオンスピンに加わる異方性磁場が変化し、鉄スピンの容易軸が 90 度回転する「スピン再配列転移」を示すことも知られている。このようにオルソフェライトは多彩な興味深い性質を示すスピン系を有しており、テラヘルツ波による強励起などによって今まで報告されていない特殊な振る舞いを示す可能性も期待できるためサンプルとして使用した。

本論文では第 1 章から 3 章で背景・実験手法を述べた後、4 章から 6 章にかけて実験結果を述べる。

第 4 章ではオルソフェライト YFeO_3 におけるテラヘルツ波パルス誘起スピンドイナミクスを、テラヘルツ時間領域分光法 (THz-TDS) を用いて観測した。図 1 のシングルパルス励起時の波形が示すようにテラヘルツ波パルスがスピンを瞬時に励起し、その直後から数十ピコ秒の間、スピンの振動による磁気双極子放射が確認された。この磁化の振動による放射は自由誘導減衰 (Free induction decay, FID) とも呼ばれる。入射テラヘルツ波の偏光によって励起される振動の周期が異なり、磁場成分がマクロ磁化に平行なとき AF モードが、磁場成分がマクロ磁化に垂直な場合 F モードがそれぞれ励起されることが判明した。また、テラヘルツ波パルスを時間的に 2 分割して 2 度スピン励起を行うことで磁気共鳴のコヒーレント制御を試みた。図 1 に示したように 2 つのテラヘルツパルスの時間間隔を調整するとスピンの歳差運動の増幅やキャンセルなどが自在に制御可能であることを実証した。さらに、スピンの運動が増幅される場合と打ち消される場合の 2 発目のテラヘルツメインピークの差に着目したところ、スピンを止めた場合の方が、ピーク値が高いことが判明した (図 2)。この差をエネルギー差に換算し、スピン増幅時に FID として徐々に放出されるエネルギーと比較したところ同じオーダーの値であった。この一致はコヒーレント制御によって

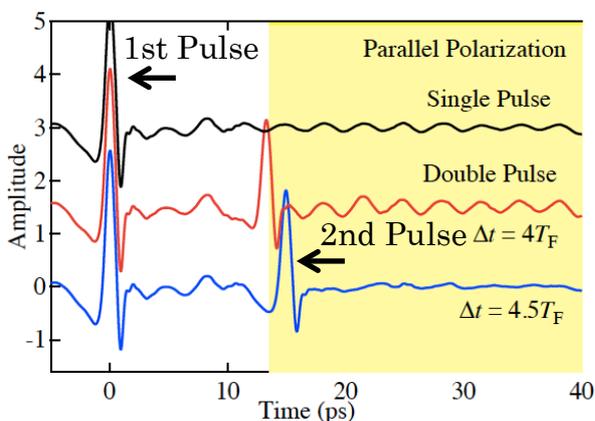


図 1 テラヘルツ波ダブルパルスによる YFeO_3 の F モードのコヒーレント制御。 Δt :ダブルパルスの間隔、 T_F : F モード共鳴の振動周期

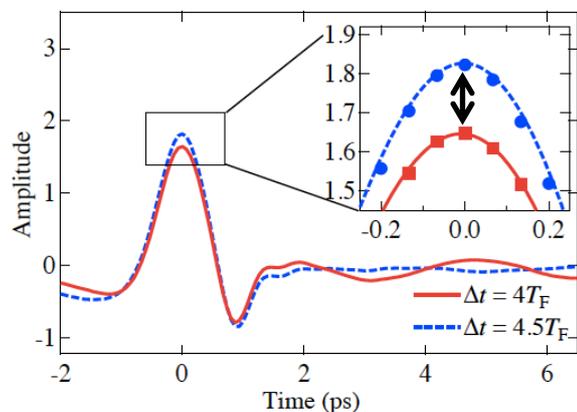


図 2 ダブルパルス励起時の 2nd パルスメインピークの比較

スピンの運動を止める際にテラヘルツパルスがスピン系からエネルギーを回収していることを示している。この例のようにスピン歳差運動やコヒーレントフォノンなどのコヒーレント制御において、光子系へエネルギーが瞬時に返還される様子を観察することが出来たのは初めての例である。

次に5章では「スピン再配列転移」の観測を THz-TDS を用いて試みた。サンプルとして ErFeO_3 、 DyFeO_3 という2種類のオルソフェライトを選び実験を行った。これら2つのオルソフェライトはそれぞれ異なる再配列転移を示す。 ErFeO_3 は転移温度を境に磁化容易軸が徐々に回転し、最終的に変化量が90度になったところで相転移が終了する。 DyFeO_3 は転移温度に達すると瞬時に容易軸が90度変化し、同時に低温相ではマクロ磁化が消失する。これらの相転移が発生する温度領域ではスピンが置かれているポテンシャルが不安定であると予想でき、高強度テラヘルツによる強励起効果が現れやすいのではないかと考え、その前段階の調査として再配列転移近傍における磁気共鳴の振る舞いを調べた。測定の結果、図3に示すように磁化の向きが変化することから生じる FID シグナルの偏光変化から高温相・低温相のピコ秒スケールでの判別が可能であることを示した。また2つのモードのテラヘルツ波の偏光に対する励起選択則の変化や、過去に報告されている相転移点近傍での共鳴周波数のソフト化などによっても相転移が観測できることが確認できた。さらに DyFeO_3 において外部静磁場によって相転移温度が低下する様子なども観測した。次に、可視ポンプパルスサンプルに照射し、その結果生じる熱による高速な温度上昇を磁気共鳴の周波数シフトを介して測定した(図4)。この図が示すように ErFeO_3 の場合、可視光による励起直後から約20ピコ秒の時間をかけ徐々に温度上昇している様子が分かる。 DyFeO_3 の場合温度上昇が遅く、100ピコ秒程度要した。この差は Er イオンと Dy イオン

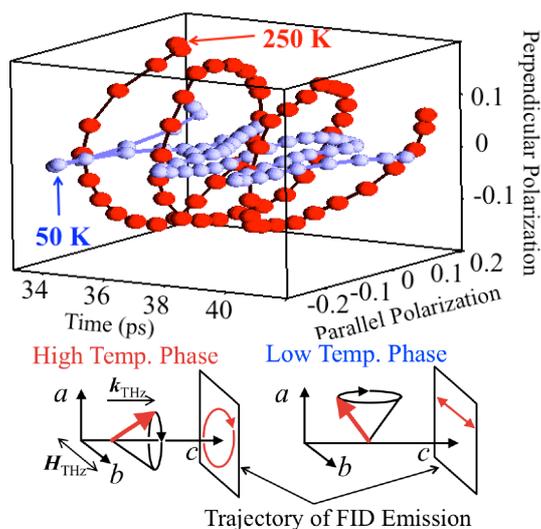


図3 ErFeO_3 における F モード FID の偏光の変化を用いたスピン再配列転移の検出

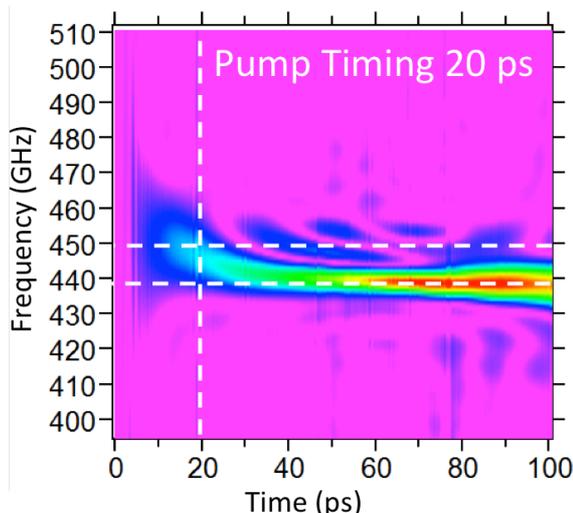


図4 ErFeO_3 における F モード共鳴周波数の可視光パルス励起による変化の様子

の 4f 電子の電子-格子相互作用の大きさの違いに起因すると考えられ、相互作用の大小関係も過去の報告から予想される結果と一致する。

第 6 章では高強度テラヘルツ波によって誘起されたスピンドYNAMICS を可視光プローブのファラデー回転を介して観測した。ErFeO₃ を対象にした実験では図 5 に示したように F モード共鳴のピークに TDS 測定では見られなかった分裂が確認できた。このような F モードの分裂は筆者の知る限り報告されておらず、今回が初めての発見である。このスプリットの有無がテラヘルツ振幅に依存しないことから、強励起効果の一種ではなく、従

来不均一性などにより見えなくなっていた微細な分裂であると考えられる。この実験では可視プローブを用いて微小な領域のスピンドYNAMICS を観測したためこのような微細な分裂を観測できたと解釈できる。この分裂の機構として本論文では従来用いられている 2 副格子スピン近似ではなく、4 つの副格子スピンを考えることで、ジャロシンスキー・守谷相互作用による分裂が発生することを示し、このモデルから得られる分裂の大きさが実験とある程度良く一致することを確認した (図 6)。また、DyFeO₃ での測定では AF モードのピークの消失によって低温相から高温相への相転移が観測できたが、TDS での結果 (約 65 K) と比較してピークが消失する温度 (61 K) が 4 K ほど低かった。同様の実験を、より弱いテラヘルツ波を用いて行ったところ、61K より高温でも AF モードのものと思われるピークが出現した。この結果から高強度テラヘルツ波によって、定常磁場を印加したときと似た転移温度のシフトが発生していると解釈することが出来る。

以上のように本研究では、テラヘルツ波パルスの磁場成分を用いた傾角反強磁性体においてスピン歳差運動の超高速励起とその実時間観測が可能であることを示した。また、この超高速励起・実時間観測という特徴を用いることでスピンのコヒーレント制御や可視ポンプ光による超高速加熱の観測など、従来の磁気共鳴の実験では実現不能な測定を行うことが可能になった。最後に、高強度テラヘルツ波パルスによる励起を行い、これまで観測されることの無かったオルソフェライトのスピン系の特徴的な振る舞いを観測することが出来た。

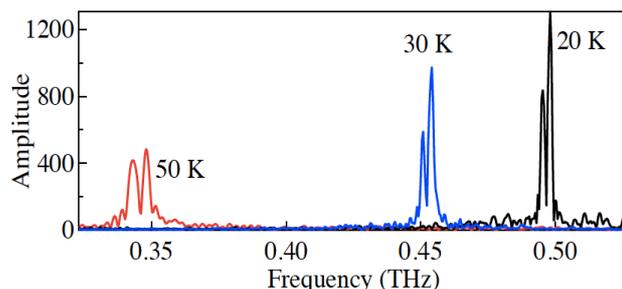


図 5 ErFeO₃ の高強度 THz 励起によって得られた F モードのスペクトル

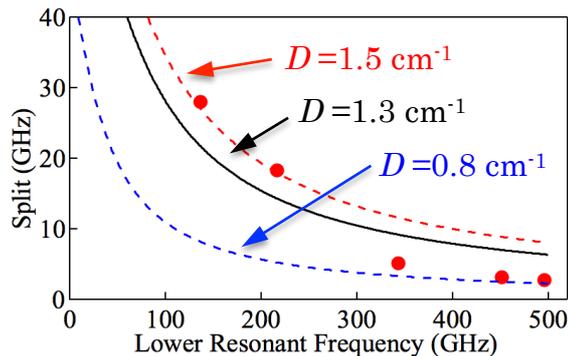


図 6 観測された分裂 (赤丸) および提案した分裂機構による分裂の計算値