

研 究 報 告 書

「フェムト秒光波制御による超高速コヒーレントスピン操作」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成22年10月～平成26年3月

研 究 者: 佐藤 琢哉

1. 研究のねらい

磁性は不揮発性を持つことから記録媒体として広く利用されてきたが、他にも多種多様で特異な性質をもつ。たとえば反強磁性体は磁場を印加しなくてもテラヘルツオーダーの共鳴周波数を有するため、超高速に動作する素子としてポテンシャルがある。また最近では絶縁体中でも磁気波(スピン波)が伝わる事が報告され、省エネデバイスとしても注目されている。

物質の磁性を光照射によって制御しようとする研究は古く 1960 年頃から始まった。また応用面では、光磁気(MO)ディスクやミニディスク(MD)としても商品化されたが、照射する光の偏光は直線偏光であり、光は単なる熱源として利用されている。円偏光を照射することで、物質にスピン角運動量を付与できることが示されたが、まだ基礎的な研究レベルにとどまっていた。また、物質の磁性が持つ多種多様な特性をフェムト秒パルスによって積極的に制御する試みはほとんど行われてこなかった。

本さがけ研究では、単なる直線偏光、円偏光などの偏光状態のみならず、光が本来もっている時間・空間特性を積極的に活用し、波形整形された超短パルス光を磁性体に照射することで、より高い自由度でかつ非熱的にコヒーレントスピン操作することを目的とした。具体的には、時間的に整形されたねじれ偏光ダブルパルスを用いて反強磁性体の磁化を 3 次元的に自在に制御すること、空間的に整形された円偏光パルスを用いてフェリ磁性体中にスピン波を生成し、その伝播方向を制御することを目的とした。

2. 研究成果

(1)概要

3 回対称性を持つ反強磁性体 YMnO_3 に直線偏光パルスを照射することにより、周波数縮退した 2 つの面内振動モードを独立に励起できることを示した。この結果を利用して、時間整形された光パルスを用いることで、任意のヘリシティに回転運動するテラヘルツ・磁化振動モードを単結晶系で励起することに初めて成功した。

一方、円偏光パルスをガーネットに照射することで逆ファラデー効果によりスピン波を非熱的に生成し、時間分解イメージングすることに成功した。また、スポット形状を楕円形に空間整形した光を用いて生成したスピン波の伝播方向を、長軸方向によって制御できることを示した。

(2) 詳細

研究テーマA「時間整形光パルスを用いたベクトル磁化制御～テラヘルツ・スピントロニクス」

従来の MO ディスクや、次世代の光磁気ハイブリッド記録(TAMR)などの光磁気記録では、光は磁気媒体の温度を一時的に上昇させる熱源として利用されている。この方式では熱冷却速度や熱拡散のため、記録速度や密度に限界がある。また磁化を直接制御するのは外部磁場であり、光は照射加熱により磁気媒体の保磁力を下げることで、低磁場でも磁化制御が可能になるように補助する役割に留まっている。

また、磁気記録媒体は主に強磁性体であり、磁化の速度は、それが歳差運動の周波数に比例するため、GHz オーダーに限られてしまう。私は、反強磁性体が交換相互作用により、全ての磁性体中で最速のテラヘルツ・オーダーの歳差運動周波数を有することに着目した(論文1、2参照)。さらに、六方晶 YMnO_3 は3回対称性をもつため、磁化のベクトル制御が可能であると予想した。

そこで本研究では、外部磁場を用いずに光が主役となって、磁化を非熱的かつ超高速に制御する手法を研究した。時間整形された光パルスを反強磁性体 YMnO_3 に照射することで、磁化の超高速・ベクトル制御を目指した。具体的には、図1のようなねじれ偏光ダブルパルスによって、磁化を二次元的に右回り、左回りにテラヘルツ・オーダーで円運動させる。

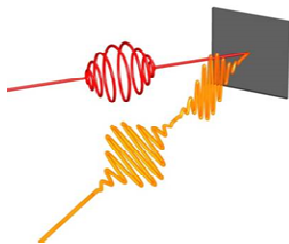


図1 ねじれ偏光ダブルパルスを用いたポンプ・プローブ測定配置

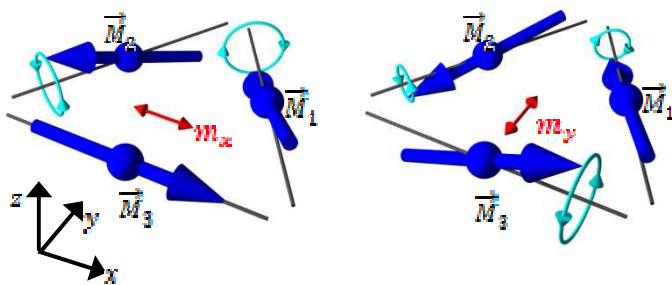


図2 六方晶 YMnO_3 の面内磁化振動モード

六方晶 YMnO_3 は3副格子系反強磁性体(Neel 温度 70K)であり、磁気共鳴実験で(0001)面内に1.3 THzの縮退した磁化振動モード(図2)が報告されている。本研究においても、予備実験として、波形整形されていない直線偏光フェムト秒パルスを YMnO_3 (0001)面に照射し、逆コットン・ムートン効果によって、縮退した2つの磁化振動モードが偏光方向に依存して選択的に励起できることを示した。さらに、ねじれ偏光ダブルパルスを用いて実験を行った。振動周

期の $3/4$ または $5/4$ だけ時間差をつけたダブルパルス、偏光面を互いに 45 度ねじって YMnO_3 に照射したところ、ヘリシティが異なる磁化の回転モードを誘起できた(図3)。このような運動モードは、単一磁場パルスのトルクや、単一の直線偏光パルス、円偏光パルスでは誘起不可能である。また、ねじれ周波数によって、マグノンやフォノンの選択的励起が可能になる。

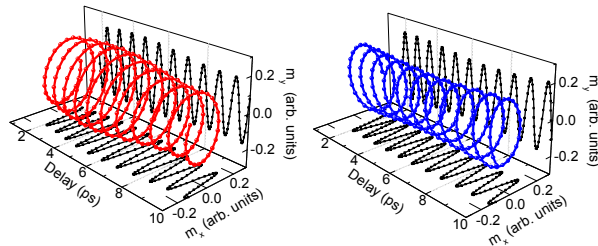


図3 振動周期の(左) $3/4$ 、(右) $5/4$ だけ時間差をつけた、ねじれ偏光ダブルパルスを用いた磁化の回転モード

研究テーマB「空間整形光パルスを用いたスピン波励起と伝播方向制御～光マグノニクス」

現代の情報社会を支えるエレクトロニクスでは、電子の持つ電荷の自由度や電荷流が情報を担ってきた。しかし電流に伴う発熱が避けられず、デバイスの高密度化が限界に達しつつある。一方、電子が持つもうスピンの自由度を積極的に利用する技術、スピントロニクスが盛んに研究されている。個々の電子スピンは磁場下で歳差運動を行い、その集団運動(スピン波)は、電流と違って原理的には発熱の問題がない。そのため、スピン波は新しい情報媒体として期待されており、マグノニクスとして近年注目を集めている。スピン波の伝播に関する制御技術の確立が望まれてきた。

これまでスピン波は微細加工されたアンテナからのマイクロ波か、スピン偏極電流によって誘起されてきた。しかし、一旦アンテナや電極が加工され、磁場が印加されると、スピン波の伝播特性を直接変えることは容易ではなかった。われわれは、約 100 fs のパルス幅を持つ光パルスを磁性体に集光することでスピン波を発生させたときの、スピン波の波数分布に関するモデルを提案した。具体的には、まずフェリ磁性体に高強度の円偏光パルス(ポンプ光)を直径 $50\text{ }\mu\text{m}$ の円形スポットに集光すると、逆ファラデー効果によりスポット内でスピン歳差運動が始まる。また歳差運動は、ポンプ光のスポット外にもスピン波として二次元的に伝播していく。ポンプ光パルス照射によって誘起されたスピン波の初期状態の波数分布は光パルスの空間強度分布のフーリエ変換によって決まる、というモデルである。

まず光アイソレータとして広く使われているガーネット・フェライト単結晶に、面内に 1 kOe の磁場を試料表面と平行に印加する。試料表面に高強度の円偏光パルス(ポンプ光)を直径 $50\text{ }\mu\text{m}$ の円形スポットに集光すると、逆ファラデー効果によりスポット内でスピン歳差運動が始まる。その様子を時間遅延をつけた低強度の直線偏光パルス(プローブ光)のファラデー回転角を測定することで時間分解測定する。また歳差運動は、ポンプ光のスポット外にもスピン波として二次元的に伝播していく。ポンプ光に対するプローブ光の相対位置を試料上でスキャンすることで、スピン波伝播を時間・空間分解して観測することにも成功した(図4左)。スピン波の波長は $200\sim 300\text{ }\mu\text{m}$ 、群速度は約 100 km/s であった。

上記のモデルに基づいたシミュレーションは、実験結果をほぼ完全に再現することができた（図4右）。このモデルに基づく、スピン波の伝播方向を制御するには、試料表面での光スポット形状を適切に変形すればよいことが予想される。そこで、ポンプ光の集光レンズの前側焦点面に長方形の開口を挿入し、試料表面でのスポット形状を楕円形にした。楕円の長軸が印加磁場に平行・垂直のとき、スピン波は磁場に対して垂直・平行方向に伝播することを実験（図5）およびシミュレーションで実証した。このように、光のスポット形状に依存して波の伝播方向を制御することに成功した。この結果は、Nature Photonics（論文3参照）に掲載された。

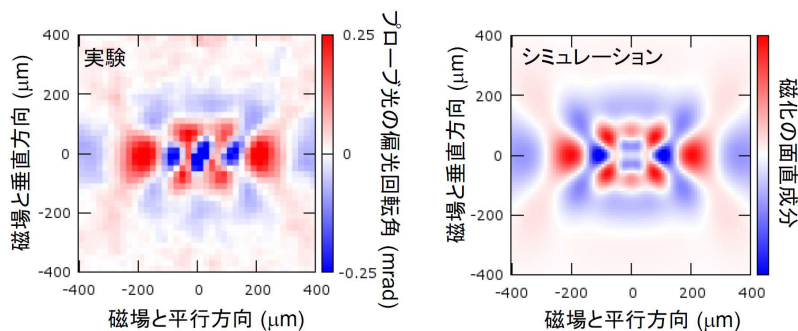


図4 直径 $50\ \mu\text{m}$ の円形ポンプ光パルスが原点に集光された、 $1.5\ \text{ns}$ 後のスピン波の波形（左：実験，右：シミュレーション）。

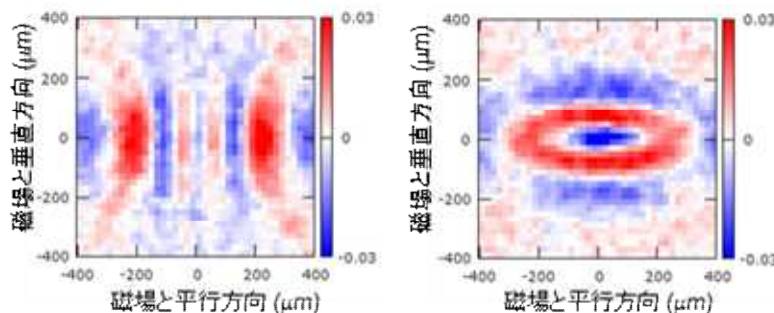


図5 長径 $280\ \mu\text{m}$ 、短径 $70\ \mu\text{m}$ の楕円形ポンプ光パルスが原点に集光された、 $1.5\ \text{ns}$ 後のスピン波の波形（楕円の長軸が磁場と垂直（左図）、平行（右図））。

3. 今後の展開

研究テーマA「時間整形光パルスを用いたベクトル磁化制御～テラヘルツ・スピントロニクス」

時間整形された光パルスを用いることで、スピンをテラヘルツ・オーダーで二次元的に制御することに成功した。今後は空間光位相変調器によって、単一の光パルス内での偏光状態が時々刻々と任意に変化する光パルスを生成する手法を開発し、さらに高効率・任意な超高速スピン制御をめざす。また、スピン振動は磁気双極子遷移によって電磁波を放出するため、たとえば円偏光テラヘルツ波など、新しいテラヘルツ光源になることが期待される。このように磁性体の磁化を非熱的にかつ高効率で自由にベクトル制御できれば、産業界へのインパクトも大きい。

研究テーマB「空間整形光パルスを用いたスピン波励起と伝播方向制御～光マグノニクス」

微細加工が必要なマイクロ波や電流を一切使わず、空間整形された光パルスのみでスピン波を発生させ、その伝播方向が制御可能になったことで、スピントロニクス設計自由度が大きく広がることが期待される。本成果は、例えば計算機ホログラムによる種々の形状の光スポットで自在にスピン波を時空間制御する技術、つまり“光マグノニクス”につながり、スピントロニクスにおける光－磁気スイッチング素子への展望が拓かれる。また、今回実証された原理は、スピン波のみならず、光で誘起可能なあらゆる波に対して適応可能であるため、例えば弾性波の方向制御も期待できる。

4. 評価

(1) 自己評価

本さがけ研究をスタートした当初の目的は、反強磁性体に光波制御された光パルスを照射することでテラヘルツ・オーダーのスピン操作を行い、最終的には磁化反転を目指すことであった。この目的に従って、まず適切な物質の選定を行い、予備実験によって原理検証をした。そして、時間制御された光パルスとしては最も単純なねじれ偏光ダブルパルスによって、実際にテラヘルツ・オーダーのスピン操作に成功した。次の課題として空間光変調器を用いたねじれ偏光パルスの作成にむけて、現在進行中である。また、磁化反転に至る方法論は、今後の課題となった。結論として、当初の目的の大部分は達成されたと評価できる。

一方、空間整形された光パルスを用いたスピン波制御は、当初の目的の中には含まれていないものであった。別のプロジェクトにおいて、円偏光パルスを磁性体に照射することで非熱的にスピン波を生成し、観測することに世界に先駆けて成功したが、この過程で、さがけ研究の一部として、円偏光パルスを空間的に整形することで生成するスピン波の伝播方向を制御できることを思いつき、実証に成功した。この研究成果は高く評価され、Nature Photonics に掲載されたほか、応用物理学会の光学論文賞の受賞対象にもなった。こうして、さがけ研究の幅が一気に広がったといえる。また、CCD カメラを用いてスピン波の伝播を時間分解イメージングする技術を開発し、測定時間をスキャニング法と比べて約 1000 分の1にまで短縮することに成功した。結論として、当初の目的には全く想定されていなかった、空間整形された光パルスによるスピン波制御が実現し、今後の発展も大いに期待される。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)研究成果の状況や、得られた成果の科学技術への貢献、その他領域独自の評価基準に基づいて事後評価を行い、評価結果及び今後の展開への期待を記載してください。

公開項目です。

この評価結果は、「領域活動・評価報告書」の「9. 評価結果」へ転記してください。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. A. Rubano, T. Satoh, A. Kimel, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and M. Fiebig, “Influence of laser pulse shaping on the ultrafast dynamics in antiferromagnetic NiO,” Phys. Rev. B **82**, 174431 (2010).
2. R. Iida, T. Satoh, T. Shimura, K. Kuroda, B. A. Ivanov, Y. Tokunaga, and Y. Tokura, “Spectral dependence of photoinduced spin precession in DyFeO₃,” Phys. Rev. B **84**, 064402 (2011).
3. T. Satoh, Y. Terui, R. Moriya, B. A. Ivanov, K. Ando, E. Saitoh, T. Shimura, and K. Kuroda, “Directional control of spin wave emission by spatially shaped light,” Nature Photon. **6**, 662–666 (2012).
(See also Nature Photon. 6, 643–645 (2012) and Nature Photon. 6, 706 (2012)).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 2件

1.

発明者: 佐藤琢哉, 黒田和男, 志村努, 照井勇輝

発明の名称: 波動の誘起・伝播制御システム及び波動の誘起・伝播制御方法

出願人: 東京大学

出願日: 2012/9/14

出願番号: 特願 2012-203693

2.

発明者: 佐藤琢哉, 志村努, 吉峯功, 飯田隆吾

発明の名称: スピン波の誘起・初期位相制御システム及び方法、スピン波の誘起・伝播制御システム及び方法

出願人: 東京大学

出願日: 2013/7/4

出願番号: 特願 2013-140635

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

国際会議における招待講演

1. T. Satoh, R. Iida, T. Shimura, K. Kuroda, and B. A. Ivanov, “Terahertz spin oscillation in antiferromagnetic transition-metal monoxides,” MORIS2011 (June 21–24, 2011, Nijmegen, The Netherlands).
2. T. Satoh, Y. Terui, R. Moriya, B. A. Ivanov, K. Ando, E. Saitoh, T. Shimura, and K. Kuroda, “Opto-magnonics: Spin-wave manipulation by light pulses in garnet ferrite crystals,” The 11th International Conference on Ferrites (ICF 11), 18pA1-I-4 (Apr. 15–19, 2013, Okinawa, Japan).
3. T. Satoh, “Generation and manipulation of spin wave by spatially shaped light spot,” SPIE Optics+Photonics 2013, 8813–17 (Aug. 25–29, 2013, San Diego, USA).

4. T. Satoh, “Generation and Directional Control of Spin Wave by Spatially-Shaped Light Pulses,” SSDM 2013, F-1-1 (Sep. 24-27, 2013, Fukuoka, Japan).
 5. T. Satoh, “Excitation and control of spin wave by light pulses,” umc 2013 (Oct. 28 – Nov. 1, 2013, Strasbourg, France).
- その他 2 件

国内会議における招待講演

1. 佐藤琢哉, 「光パルスで誘起されたスピン波の時間・空間分解測定」 日本磁気学会第 182 回研究会, 「光が拓く新しい磁気の世界」(2012.1.31, 日本化学会館).
 2. 佐藤琢哉, 「光パルスを用いた磁性体の超高速コヒーレント制御」 日本物理学会「第 68 回年次大会」, 27aEH-3(2013.3.26-29, 広島大学).
 3. 佐藤琢哉, 「光パルス照射による磁気の波の発生と伝播制御」 日本学術振興会 光エレクトロニクス第 130 委員会 第 287 回研究会(2013.5.15, 東京理科大学).
 4. 佐藤琢哉, 「光パルスで誘起したスピン波伝播の時間分解イメージングと伝播方向制御」 第 3 回超高速光エレクトロニクス研究会 第 20 回光波シンセシス研究グループ研究会 理研シンポジウム(2013.12.11, 理化学研究所).
 5. 佐藤琢哉, 「空間整形光パルスを用いたスピン波の生成・制御」 2014 年第 61 回応用物理学会春季学術講演会, 18p-E18-2(2014.3.17-20, 青山学院大学).
- その他 4 件

受賞

1. 佐藤琢哉, 日本物理学会 第 7 回若手奨励賞 「光パルスを用いた磁性体の超高速コヒーレント制御」(2013 年 3 月 27 日).
2. 佐藤琢哉, 応用物理学会 第 55 回光学論文賞 “Directional control of spin wave emission by spatially shaped light,” Nature Photon. **6**, 662-666 (2012) (2014 年 3 月 18 日).

その他出版物

1. T. Satoh, “Opto-magnonics: light pulses manipulating spin waves,” SPIE Newsroom (2013).
2. 佐藤琢哉, 「空間整形された光パルスによるスピン波生成と制御」 固体物理 **48**, 121-127 (2013).
3. 佐藤琢哉, 「光によるスピン波の生成と伝播」 O plus E **35**, 721-724 (2013).

プレスリリース

1. 佐藤琢哉, 「光パルス照射で磁気の波の発生と伝播制御に成功」(2012 年 9 月 5 日)