

磁気分光学的手法による光誘起強磁性 の動的挙動の解析

姫路工業大学理学部教授

高木 芳弘

磁気分光学的手法による光誘起強磁性の動的挙動の解析

1 研究の背景と目的

磁性体を瞬間光励起することにより、非熱平衡系での磁気秩序発生と伝搬のダイナミクス、特に磁性イオン間の磁気結合の増強機構を分光学的手法によりミクロな視点で解明する。

光照射が磁性に及ぼす効果は大きく3つに分類できる：

a) 光が熱源として作用し磁気秩序を減少させる。b) 光の持つ角運動量が電子スピンを配向させる（常磁性効果）。c) フォトキャリアが磁性イオン間の超交換相互作用を増強させ、磁気秩序が助長される（強磁性効果）。現在光を用いた磁性の制御法として実際に応用されているのは（a）の光の熱源としての利用、しかも熱平衡状態に於ける磁性であり高速応答性には限界がある。光の特性である高速性、角運動量（偏光）、可干渉性等を利用した磁性の制御はまだ行われていない。また（b）の方法で磁気秩序系（磁性体）での研究は殆どない。非秩序系（常磁性体、反磁性体）では研究代表者によってモード同期レーザーによるスピンの歳差運動の直接検出が行われたほか、数十種の遷移金属錯体や芳香族分子の励起三重項で光照射による磁化の生成が観測されている。（c）は本研究課題である。これまでにロシアを中心に強磁性体の光照射の効果が報告されている。測定は誘起磁化をピックアップコイルで検出する方法なので、磁気秩序が変調されるナノ秒以下の速い過程はまだ捉えられていない。同様の観測は研究代表者らによって予備実験で確認された。磁化の変化は常磁性効果に比べ、2桁強く、入射光の光子1個が1個のスピンの配向を与える（b）の効果よりも光子が磁気秩序を変調する効果の方がはるかに効率的であることを示している。本研究ではミクロな時間・空間領域からマクロな時間・空間領域に及ぶ磁気応答の詳細を明らかにする。

2 研究方法・研究内容

測定の時間領域によって2つの測定法を用いる。

- 1) 1ナノ秒以上：ピックアップコイルによる磁化の直接検出。光照射によって生じた磁化の変化を誘導起電力として取り出し、広帯域増幅器（バンド幅500MHz）を通してデジタルオシロスコープ（バンド幅500MHz）上で信号を積算する。試料は磁性半導体 CdCr_2Se_4 単結晶を用いる。
- 2) 0.1ピコ秒～10ナノ秒以下：ポンプ・プローブ法による磁化（スピン偏極）の光学的検出。新しい超高速分光測定法を実用化した。¹コイル法では応答の時間分解能が及ばない時間領域では間接的であるが、光励起後のスピンの過渡状態がプローブ光の透過光強度に反映される効果（吸収飽和の偏光依存性）を用いる。通常の方法では同一の光源（超短パルスレーザー）からのパルス光を励起とプローブ用に2分し、両者の時間差を光路長の差で加減しながら信号の時間プロファイルを測定する。このとき励起とプローブは波長変換をしなければ同一波長すなわち励起後の同一エネルギー状

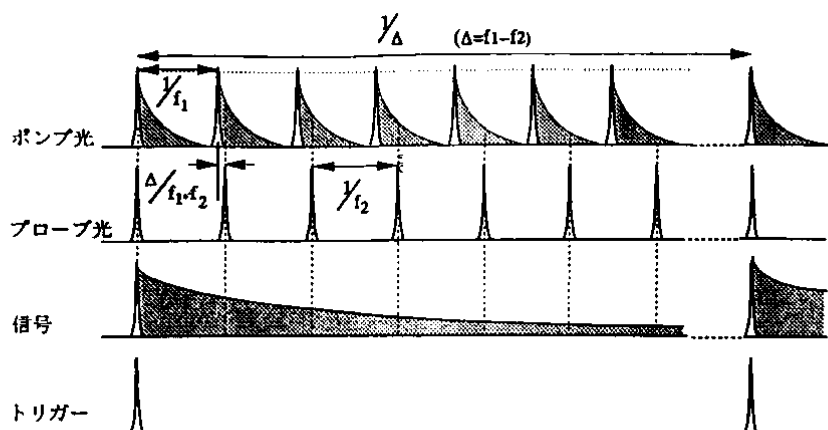


図 1 a 光サンプリング分光法の原理図

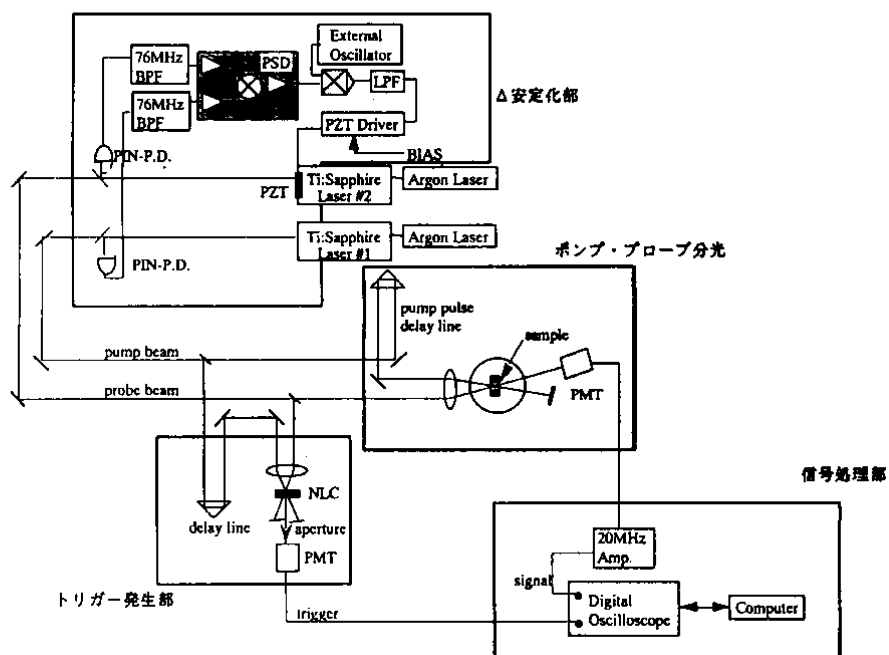


図 1 b 光サンプリング分光システムのブロック図

態の時間発展が観測される。エネルギー緩和する系では励起と異なるエネルギー状態の時々刻々の情報が必要になるが、複数の波長の超短パルス光源を制御されたパルスタイミングで実用的な条件下で得ることはかなり厄介である。通常、複雑なレーザー増幅装置や、波長変換装置を要する。2台の超短パルスレーザーのパルス周波数を電氣的に制御し、同期させることも可能であるが、レーザー装置に極めて高い安定性が要求される。我々の用いた方法の原理とシステムのブロック図を図1に示す。2台の超短パルスレーザーを用いて両者のパルス周波数を僅かにずらせて励起とプローブに用いれば、空間的に光路差を変えることなくパルスタイミングを一定の割合で掃引することが出来る。パルス周波数の差を小さくすれば時間的

に細密に掃引することができ、いわば起こっている現象の時間を引延ばしてゆっくり観測できる。例えば周波数差200Hzのとき時間拡大率はおおよそ300,000倍で、汎用のオシロスコープ上に信号を捕らえることが出来る。時間精度はパルス周波数の差の安定性で決まり、パルス周波数自信には殆ど依存しない。パルス周波数の差を安定化させるためにピエゾ素子を一方のレーザー共振器の一端のミラーに取付け共振器の長さを微調出来るようにした。パルス周波数の差周波信号を基準周波数(100~200Hz)にロックさせて、相対周波数の変動を+1Hz以内に抑えた。これによって時間誤差は励起後1psで10fs以内、10psで100fs以内(1%)と、実用上十分な結果が得られた。この方法で得たレーザーパルス同士の相互相関幅は300fsで、これが測定系の時間分解能を与えた。

3 研究結果

1) CdCr_2Se_4 単結晶の光誘起磁化

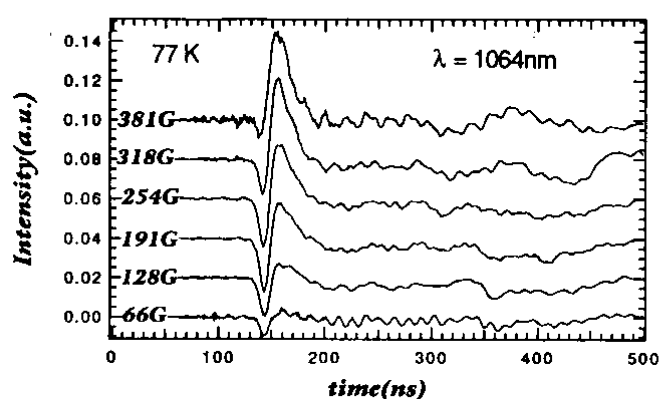


図 2 a 光誘起磁化信号波形

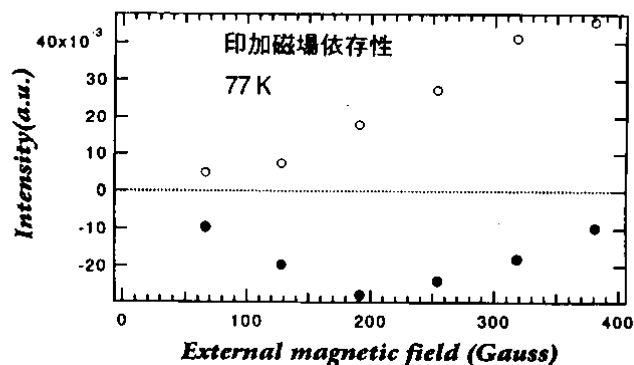


図 2 b 光誘起磁化信号の印加磁場依存性

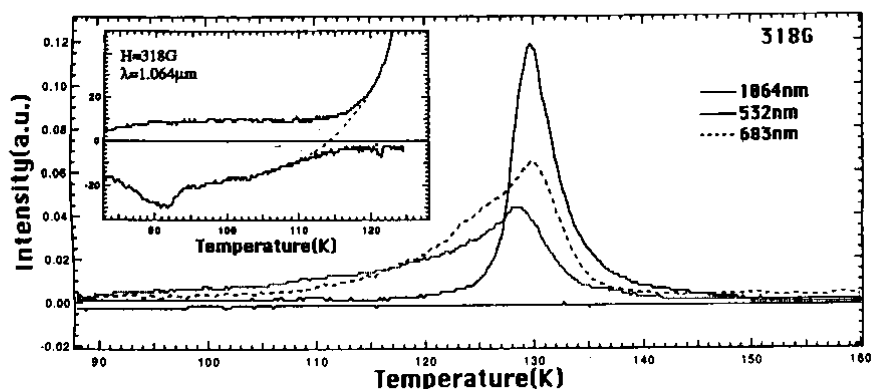


図 2 c 光誘起磁化信号の温度依存性

キュリー温度 $T_c=130\text{K}$ 以下の強磁性相における光誘起磁化信号の波形を図2 aに、信号の正負各ピーク強度の印加磁場と温度に対する依存性をそれぞれ図2 b、cに示す。信号は磁化の変化の時間微分に比例するので、パルス光（パルス幅 20ps ）の照射と同時に磁化が立ち上がり、減衰する過程が見えているように思われるが、単一成分の磁化の立ち上がりと減衰を仮定した波形では信号をフィッティングできないことから、正と負の成分は異なる機構に由来すると考えられる。ここで正負の成分はそれぞれ印加磁場の向きに反平行と平行の向きであることを別の方法で確認した。正の成分は比較的高磁場まで現れ温度範囲も広い。また光源の3種類の波長（ 1064nm 、 683nm 、 532nm ）に対して、波長 1064nm で低磁場の場合を除いて温度依存性は類似している。知られている磁化の温度依存性の曲線を温度に対して微分すると、図2 cの曲線の形と一致すること、その磁場依存性も類似していること、および用いたどの波長でも同様の振舞いをすることから、本質的には波長依存性は認められず、パルス光の照射によって熱的に磁化が減少したと結論した。

負の成分は光照射によって磁化が増強されることを示している。信号は 400Oe 以下の比較的低磁場下でのみ現れることから磁区構造に関係すること、また 1064nm の励起でのみ現れること、強磁性相下で低温に向かって強度が増すこと（ 77K までの温度範囲）は、フォトキャリアによる磁性への何らかの関与があることを示唆している。透磁率や磁気ヒステリシスの報告されている光照射効果がやはり波長 $1000\sim 1100\text{nm}$ で顕著で、これは磁性を担っている $\text{Cr}3d$ 軌道の伝導帯にフォトキャリアが生成した後、伝導帯直下の、不純物や格子欠陥により生じた準位へ局在化し、 Cr イオンの価数を変え、磁性が変調されることによると考えられている。本実験結果はこのことを支持しているが、光励起緩和過程の詳細を見なければ確かではない。この信号は検出コイルの時間応答の限界（ 2ns ）までパルス光の励起に時間的に追従している。このことは多磁区状態でのみ現れるというものの、磁区構造が形を変える（結晶内の自由エネルギーが安定化する）のに要する時間（マイクロ秒程度）からすれば断熱的過程であり、磁壁内で交換力が増大したか、磁気異方性が局所的に発生したかどちらかの理由が考えられる。

パルス光の照射で磁壁が空間的に変位することを強く示唆する磁化変化の信号が、実際に照射後マイクロ秒の時間領域で観測された（図3）。この信号強度の印加磁場や温度依存性は上述の速い時間域での負の成分と同様である。振動波形は不規則であるが、おおよそ 1MHz の成分が主体で、 10MHz 程度に亘ってほぼ単調に減少している。振動波形は、印加磁場を磁化の飽和状態まで上げた後、再びもとの値に戻すと細部まで再現する。同様に温度を T_c 以上に上げた後、再びもとの値に戻すとやはり再現する。しかし異なる磁場や温度では波形も異なる。振動数は磁場に単純に比例していないので、スピンのジャイロ運動が直接現れているのではない。温度を 77K から 83K に上げたとき、 1MHz の振動成分は約8%振動数が上昇した。エネルギー的に安定な平衡状態の近傍での磁壁の運動を調和振動子とみなして、その振動数を見積もってみた。平衡状態は主に交換エネルギーと結晶の磁気異方性エネルギーとの釣り合い状態であると仮定した。一

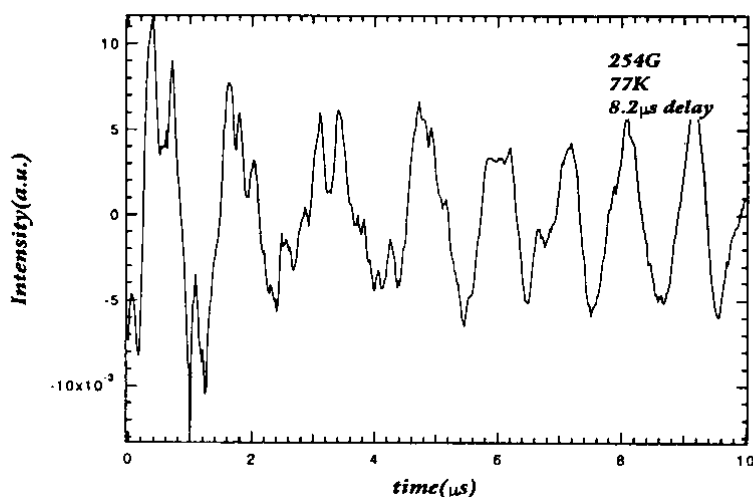


図3 遅い時間領域での光誘起磁化信号波形

般に磁壁の厚さ d の2乗は交換積分 J に比例し、異方性エネルギー K に反比例するので、磁壁の平衡点への復元力 k の2乗は d に比例し、磁壁の慣性質量 m （磁壁移動の運動エネルギーから求めた）は d に反比例することが直ちに導かれる。従って振動数は d に比例することになる。知られている J と K の値を用いて振動数は0.8MHzとなった。この値は実験値と非常に良く一致する。観測された磁化の振動は磁壁の空間的な振動によって右向き磁区と左向き磁区のサイズが振動することで説明できる。安定な磁区構造は結晶内で決まった位置に点在する格子欠陥や磁気異方性に引き込まれて定まると考えると、磁場変化や温度変化の後の波形の再現性が解釈できる。

2) GaAs/AlGaAs半導体超格子の光誘起スピン偏極

GaAs/AlGaAs半導体多重量子井戸の試料を用いて、励起子共鳴吸収の過渡飽和の時間分解測定から励起子スピンの緩和機構を解析した。^{2, 3} 図4は重い正孔の励起子について円偏光のポンプ光と同じ向きまたは逆回りの円偏光のプロープ光で観測された信号を示す。室温ではポンプ光パルスに追随して立ち上がる部分とその後に定常状態へゆっくり漸近する部分が見える。一方、低温では最初の急な立ち上がりは見え、フィッティングにより2重指数関数で緩和する波形が観測された。このことから励起子を構成する電子と正孔の各スピンの緩和が異なる時定数で生じることがわかる。詳しい温度依存性の測定から、40Kを境に低温では両者の緩和時間はほぼ一致し、40Kで正孔スピンのみ不連続的に速い緩和が現れ、それより高温では両者とも $T^{-3/5}$ に沿って変化することがわかった。励起子の電子と正孔のスピンにはスピン交換相互作用が働いていることが室温での励起光強度依存性からわかっているため、低温ではさらに効果的にスピン緩和が電子と正孔で連動して起きていることが示唆される。一方、高温では熱的に交換結合が断ち切られ、電子と正孔の固有の緩和過程が支配的になると思われる。温度依存性の結果と、別に行った縮退4光波混合の測定で得た運

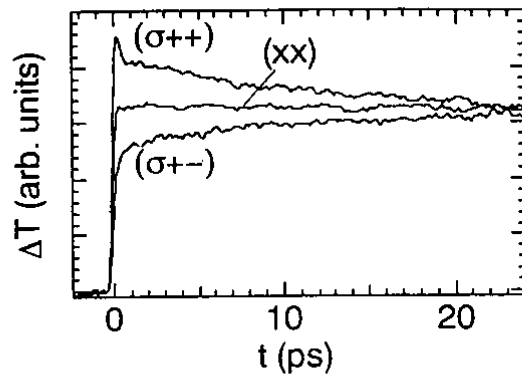


図4 GaAs/AlGaAs超格子の励起子スピン緩和

動量の緩和の知見をもとに解析の結果、Dyakonov-Perel型の緩和（運動量をもつ電子が生む磁場を電子スピンが感じて磁場の回りの歳差運動によって緩和する過程）が効いていると結論された。

室温で軽い正孔の励起子を共鳴励起したときのスピン緩和（円偏光の向き依存性）も検出された。緩和時間は励起パルス光の幅(150ps)でほぼ制限されている。また既述の光サンプリング法を用いて励起光とプローブ光の波長を変えて、軽い正孔を共鳴励起し、重い正孔の共鳴吸収でプローブする測定を行った結果、やはり時間分解能の限界に近い吸収飽和の立ち上がりが見えた。これは軽い正孔から重い正孔へのエネルギー緩和がこの時間で起きていることを示している。このとき円偏光依存性は確認できなかった。もし正孔スピンの緩和が極めて速く、電子スピン緩和のみが見えていけるとすると、エネルギー準位の構造から、軽い正孔の励起子でプローブしても重い正孔でプローブしても変わらないはずであるが、結果はそうではなかった。この解釈は今後の詳しい測定に委ねられる。

3) 今後の課題

1) 超高速磁化信号の観測

CdCr₂Se₄単結晶で行ったピックアップコイル検出法では磁化の変化が直接検出されたが、速い変化成分については測定の時間分解能が不十分であった。コイルの応答だけでなく、増幅器等の観測装置にも高い応答特性が要求されるので、この方法ではほぼ限界に近い。本研究課題の中で、これを改善する手法の開発を始めた。磁束の変化に伴う電界を検出するもので、電気光学効果をもつ素子（誘電体結晶）を測定試料に密着させ、素子に超短パルス光を通すことでその偏光の変化から素子に印加された電界信号を検出する。試料にはポンプ光パルスを加え、素子には時間遅延を与えられたいわばプローブ光パルス（サンプリングパルス）を通す。予備実験として、d-KDP結晶を用いて超短パルスレーザー光の高速フォトダイオード信号波形をこの方法で観測することが出来た。目的の磁束の信号はこれより微弱なため、高い電気光学素子と、高いサンプリング周波数の採用による感度の向上が必要である。

ロ)超高速非縮退ポンプ・プローブ法の開発

本研究課題で実用化に成功した光サンプリング分光法はエネルギー緩和する超高速過程を波長の異なるレーザーの組み合わせで観測できる利点があるが、磁化測定においては超高速過程の後に遅い現象が続く場合が多い。この条件ではサンプリング法の利点である高い時間精度と測定能率が失われる。これを改善するには、やはりレーザー間のパルス位相を電氣的に厳密に制御する試みは重要である。しかし既述のように、これにはレーザー自体の機械的・熱的安定度をさらに改善することが先決である。そこである程度制御できた条件下で、パルス位相の揺らぎを実質的になくす手法を考案したので、これを本研究課題の中で試みている。現在、共振器のフィードバック制御によりパルスジッターは40psまで抑えられた。

4 本研究の他分野への貢献度および波及効果

強磁性の半導体においてナノ秒パルス光に応答する光誘起磁化の増強が見いだされた。これは従来、光を用いた磁化の制御で行われている機構とは異なり、フォトキャリアで磁性を制御する手段への糸口を与える。磁性を制御するには磁化の生成と消去が出来なければならない。局在化したフォトキャリアを高い伝導帯へ光遷移させることにより、磁化を消去できる可能性がある。実用上はこれらの操作を室温で出来ることが重要であるが、このような機構の解明は例えば磁性金属と半導体のハイブリッド構造（超格子）など新しい材料設計技術の開発への指針となると思われる。

新たに見いだされた遅い時間領域の信号はパルス光照射でトリガーされた磁壁の振動と考えられるが、このような単純な方法で、磁区構造や交換積分、磁気異方性の評価が出来る可能性を示唆している。また従来の強磁性共鳴測定法で得られる知見との比較も興味深い。

本研究課題で継続中の超高速磁化検出法は研究代表者が以前に行った常磁性体中のコヒーレントスピン(FID)の観測に適用すれば超短時間領域（超広帯域）のフーリエ変換型電子スピン共鳴(FTESR)の測定法が実現できる。ここではマイクロ波は一切使用しない。

本研究課題で継続中の超高速非縮退分光測定法は遅い現象を伴う超高速現象の汎用的な手法となる。従来の同様な測定では複雑・高価な測定装置を要したが、これによりこの分野での研究の普及がはかれる。

5 発表論文

- [1] S. Adachi, S. Takeyama, Y. Takagi, "Dual wavelength optical sampling technique for ultrafast transient bleaching spectroscopy", Opt. Commun. Vol. 117(1995)71-77.
- [2] S. Adachi, S. Takeyama, Y. Takagi, A. Tackeuchi, and S. Muto, "Optical Sampling Pump-Probe Measurement of Exciton Spin Relaxation in GaAs/AlGaAs Multiple Quantum Wells", Appl. Phys. Lett. (in print).
- [3] S. Adachi, S. Takeyama, Y. Takagi, and A. Tackeuchi, "Experimental Study on Spin Dynamics in GaAs/AlGaAs Quantum Wells", Phys. Rev. Lett. (submitted).