

スピンをレーザーで制御する～レーザー照射で消磁と金属化を放射光で観測～

極限コヒーレント光科学研究センター 和達 大樹

Ni の 1 ps 以下の超高速消磁が Beaulieu らによる時間分解磁気カー効果測定[1]によって明らかになって以降、磁性体の磁気秩序を光で制御する研究が盛んになっている。このような超高速消磁現象の理解のために現象論的な「3 温度モデル」が提案されている。このモデルでは電子とスピンと格子が独立に温度を持ち、超高速消磁には電子とスピンの直接の相互作用が重要であると示されている。ここでは、強磁性絶縁体を示す BaFeO₃ 単結晶薄膜(T_C = 115 K)[2, 3]の時間分解 X 線磁気円二色性(XMCD)測定による研究について報告する[4]。同種の結晶構造を持つ SrFeO₃ が金属であることから、BaFeO₃ の金属化は容易と予想され、実際に磁化の消える消磁だけでなく絶縁体金属転移のダイナミクス観測に成功した。

BaFeO₃ 薄膜の時間分解 XMCD 測定は、ドイツ・ベルリンの BESSY II のビームライン UE56-1_ZPM[5]で行った。この測定により電子状態と磁性の両方が観測できるという長所がある。薄膜に対する X 線吸収分光と X 線光電子分光の測定により、Fe⁴⁺となっていることが確認できている[3, 4]。図 1 に測定の配置図を示す。放射光 X 線の円偏光の向きは固定し、薄膜面内に磁場をかける電磁石によって磁場の向きをスイッチさせることができる。磁場のプラスマイナスに応じて、反射率 R⁺と R⁻が得られる。平均反射率は(R⁺+R⁻)/2 で与えられ、電子状態を反映する。XMCD シグナルは(R⁺-R⁻)/2 で与えられ、試料の磁化を表す。パルス幅 50 fs のチタンサファイアレーザー（波長：800 nm、エネルギー：1.55 eV）をポンプレーザーとして用いた。ポンプレーザーのスポットサイズは 0.40 mm(水平)×0.25 mm(垂直)であり、プローブに使う放射光 X 線の方は 0.1 mm × 0.1 mm であった。時間分解測定の繰り返し周波数は 3 kHz であり、ポンプレーザーの周波数によって決まっている。ポンプしたシグナルとポンプしていないものを交互に測定している。この測定の時間分解能は、放射光 X 線のパルス幅である 70 ps である。

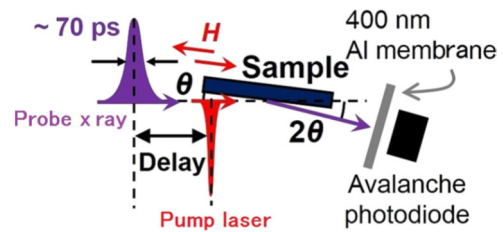


図 1: 時間分解 XMCD 測定の配置図。

図 2(a)が様々な励起レーザー強度での BaFeO₃ 薄膜の XMCD 強度の時間変化を示す。縦軸の値は、ポンプしていない場合の値で規格化している。ポンプレーザーがあつた t = 0 で XMCD 強度は減少する。ポンプ強度(F)の変化に伴い、XMCD 強度の時間変化は異なったふるまいを示す。F が 5.0 mJ/cm² 以下では、消磁は 150 ps 程度とかなり遅く、400 ps 程度後に磁化の回復が見られる。F が 6.6 mJ/cm² 以上では、消磁は放射光の時間幅である 70 ps 以下と速くなり、磁化の回復は最初の 800 ps の間では見られない。我々はこれらの消磁ダイナミクスの異なった振る舞いを、6.6 mJ/cm² 以上のレーザーによる絶縁体金属転移によるものと考えた。図 2(b)は X 線反射率の時間変化を示す。これによって、電子状態のダイナミクスを知ることができる。縦軸は(a)と同様に、ポンプしていない場合の値で規格化している。F が 5.0 mJ/cm² 以下ではポンプの効果が見えないが、F が 6.6 mJ/cm² 以上では効果が見えたと見られている。

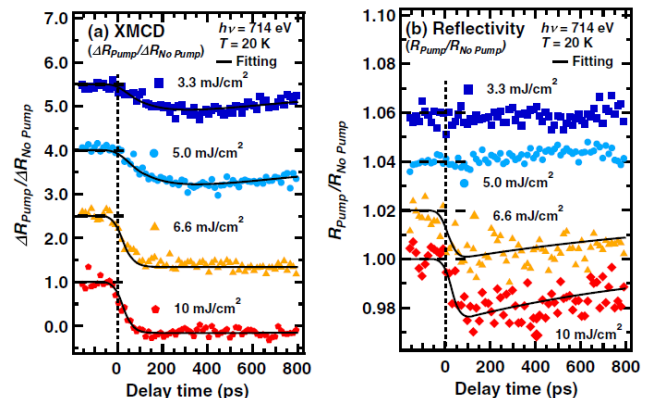


図 2: 様々な励起レーザー強度での BaFeO₃ 薄膜の (a) XMCD 強度と (b) X 線反射率の時間変化。10 mJ/cm² 以外の曲線は分かりやすさのためオフセットで上にあげている。

図3はレーザー照射による絶縁体金属転移のメカニズムを示す。ポンプレーザーの強度が 5.0 mJ/cm^2 以下では、 BaFeO_3 薄膜の磁化は 1000 ps 程度の時間スケールで回復する。この 1000 ps の時間スケールは、電子・スピン・格子が熱平衡に達した後に熱拡散によって磁気転移温度以下まで試料を冷やすのにかかる時間である。強いレーザー強度下での時間分解 X 線反射率の変化も 1000 ps 程度の時間スケールでの回復を示し、ここでも熱拡散が重要なメカニズムであることを示している。電子と格子の温度は 1 ps 程度で平衡に達することを考えると、この後者の結果は特筆すべきことである。 1000 ps 程度の時間でバンドギャップがゆっくり再び開くことは、強い励起によって系が準安定状態となっていることを示す。このような金属状態の長い寿命のメカニズムとしては、バンドギャップが閉じたことによって生まれた熱いキャリアが、電子間と電子格子の相互作用を弱めることによって、バンドギャップが再び開くことを妨げている、と考えられる。

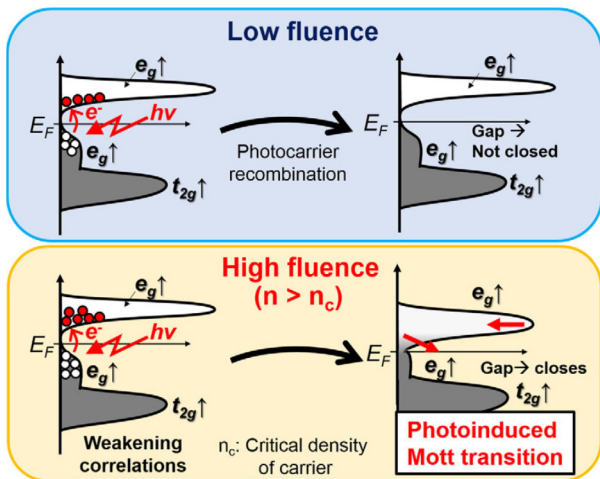


図3：レーザー照射による絶縁体金属転移のメカニズム。

まとめると、我々は強磁性絶縁体である BaFeO_3 薄膜の電子状態と磁性のダイナミクスを時間分解 XMCD によって観測した。ポンプレーザーの強度が 5.0 mJ/cm^2 以下では、絶縁体に特徴的な 150 ps 程度の遅い消磁が観測され、反射率には変化がなかった。その一方で、レーザー強度が 6.6 mJ/cm^2 以上の時は、反射率に変化があった。これは金属状態への転移を示し、その結果放射光の時間幅である 70 ps 以下の早い消磁が見られている。 BaFeO_3 薄膜が絶縁体金属転移の境界付近にあるため、絶縁相はキャリア密度に非常に敏感である。従って、絶縁体金属転移の起源は、電子間や電子格子の相互作用が遮蔽されることで安定化さ

れた準安定状態への光誘起モット転移であると考えられる。この結果は、強相関電子系における磁気ダイナミクスの局所的な制御への新しいアプローチを示している。金属化によって磁性操作の感受率を局所的に変化させ、空間的に磁気情報を書き込むことが可能であると考えられる。

[1] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
 [2] T. Tsuyama, T. Matsuda, S. Chakraverty, J. Okamoto, E. Ikenaga, A. Tanaka, T. Mizokawa, H. Y. Hwang, Y. Tokura, and H. Wadati, *Phys. Rev. B* **91**, 115101 (2015).
 [3] S. Chakraverty, T. Matsuda, N. Ogawa, H. Wadati, E. Ikenaga, M. Kawasaki, Y. Tokura, and H. Y. Hwang, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 142416 (2013).
 [4] T. Tsuyama, S. Chakraverty, S. Macke, N. Pontius, C. Schüßler-Langeheine, H. Y. Hwang, Y. Tokura, and H. Wadati *Phys. Rev. Lett.* **116**, 256402 (2016).
 [5] K. Holldack *et al.*, *J. Synchrotron Radiat.* **21**, 1090 (2014).