

熱平衡下における超高速磁化揺らぎの観測に成功

— 超高速な乱雑現象の解明に向けた新手法を開発 —

物性研究所 板谷研究室助教 栗原 貴之

概要

超高速時間スケールにおける固体中の素励起の運動は、これまで主にポンププローブ法を用いて測定されてきました。ポンププローブ法とは、ポンプパルス光の照射によって生じた系の変化を、プローブパルス光の変化量として検出する摂動的な測定法です。一方で、摂動のない熱平衡状態であっても、有限温度では乱雑な熱揺らぎが常に存在します。例えば室温の熱エネルギーは $k_B T \sim 25$ meV で、これはおよそ 6 THz に相当します。すなわち、THz 帯にモードを持つ多くの素励起は恒常的にランダムな熱運動をしていることになります。こうした自発的な運動は、摂動応答を測るポンププローブ法とは相性が悪く、従来の光物性ではあまり注目されてきませんでした。

我々は最近、コンスタンツ大学(ドイツ)と共同で、こうした乱雑なダイナミクスの測定を可能とする「フェムト秒ノイズ相関分光法」(Femtosecond noise correlation spectroscopy, FemNoc)を提案・開発し、THz 帯域におけるこうした「揺らぎ」のダイナミクスを実時間領域で観測することに成功しました。この結果、オルソフェライト $\text{Sm}_{0.7}\text{Er}_{0.3}\text{FeO}_3$ のスピン再配列相転移における磁化揺らぎの臨界現象を、フェムト秒時間分解能で初めてとらえ、それが「ランダムテレグラフノイズ」と呼ばれる特殊な運動を表すことを見出しました[1]。

研究手法

測定手法の原理図を図1に示します。このシステムでは、測定試料の磁化揺らぎの「自己相関」を検出します。まず高繰り返し(40 MHz)のフェムト秒パルスレーザー(エルビウムドープファイバーレーザーの2次高調波)をスペクトル的に二つに分割して片方に時間遅延をつけ、両者をプローブ光として磁性試料に透過させます。試料の平均磁化が面内方向にあるとすると、熱による磁化揺らぎは面直方向に生じます。透過光は試料の熱的な磁化揺らぎを反映してファラデー効果による偏光回転を受けます。この信号は1/2波長板、偏光プリズム、バランス検出器により構成された偏光検出器によって、それぞれの色ごとに計測されます。二つのプローブパルスは試料への照射タイミングによ

ってそれぞれ別の偏光回転を生じますが、これらはお互いに完全に独立ではなく、磁化の熱運動のコヒーレンス時間程度の遅延時間の中では有限な相関を持つ点がミソです。つまり、レーザーの繰り返し時間(25 ns)程度の長い時間の中では、パルス毎の偏光回転は完全にランダムですが、光学的な時間遅延(ピコ秒程度)の時間内では一つ目のパルスと二つ目のパルスの偏光回転の間には遅延時間に依存した相関が生じます。このため、各チャンネルで検出されたプローブ偏光応答の中から、繰り返しごとに乱雑に揺らぐ信号成分のみをサブハーモニックロックイン検出[2]によって抽出し($\Delta\theta_N = \theta_N - \theta_{N+1}$)、高速なデジタル処理によって各チャンネルの出力をリアルタイムで掛け合わせて統計平均することで、偏光回転量の相関関数($\langle \Delta\theta_N(t) * \Delta\theta_N(t+\tau) \rangle_N$)を計算することができます。こうした処理によって、「平均値」を測るだけではわからなかった磁化の乱雑な熱揺らぎダイナミクスを、実時間領域で検出できます。

実験試料としてはオルソフェライト(RFeO_3 , R = 希土類+Y)の混晶系である、 $\text{Sm}_{0.7}\text{Er}_{0.3}\text{FeO}_3$ に注目しました。この物質は副格子中の4つの Fe^{3+} スピンが反強磁性秩序を形成し、ジャロシンスキー・守谷相互作用により磁化がわずかに傾いて弱強磁性を示す、キャント型反強磁性体と呼ばれるものです。多くのオルソフェライトはスピン再配列相転移(Spin Reorientation Transition, SRT)という相転移を示します。これはある温度領域でNéelベクトル(磁化方向)が特定の結晶軸から別の軸へと回転するもので、磁気異方性ポテンシャル中の2次相転移として解釈できます。相転移点付近では磁気異方性ポテンシャルが平坦化することが知られ、この領域ではポテンシャルの熱分布によって磁化の熱揺らぎが増大することが予想されます。

SRTの温度領域は希土類の種類によって異なり、典型的には室温以下です。しかし熱エネルギーによるノイズを測るうえではなるべく高温で相転移を生じる方が有利と考えられるため、今回の我々の試料ではSmとErを混ぜることで、室温よりやや上(約310–320 K近傍)になるよう調整しました。単結晶試料は物性研の結晶合成室に設置されているフローティングゾーン炉を用いて成長しました[3]。

に生じることが知られています。つまり、今回観測された「緩和成分」は、再配列相転移温度領域内で二重井戸型になった磁気異方性ポテンシャルの中で、熱励起によって磁化が準安定状態間の「スイッチング」を起こしていることの証左であることがわかりました。スピン系の RTN はこれまで磁気トンネルジャンクションなどのデバイスを用いて数 10 ナノ秒程度の時間スケールで実現されてきましたが[4]、今回観測されたピコ秒領域の RTN はこれを二桁近く上回る速度です。

結論

テラヘルツ帯域における反強磁性体のスピン反転は従来、主に光励起や高強度 THz 励起などを使って、系に強い摂動を与えるという観点から研究されてきました。これに対して今回の我々の結果は、光励起の無い定常状態でも「自発的に」スイッチングが生じていることを明らかにしました。今回開発された超高速ノイズ相関分光法は、スピン系のみにとどまらず、様々な固体における固体素励起の揺らぎに広く応用できる可能性があります。相転移以外にも、量子揺らぎ[5]や熱揺らぎが物性に影響を与える例は多く、今後こうした「インコヒーレントな超高速ダイナミクス」が本質的に重要となる物理現象の研究が進むことを期待しています。

参考文献

- 1) M. A. Weiss, *TK *et al.*, Nature Communications **14**, 7651 (2023).
- 2) M. A. Weiss, *TK *et al.*, Review of Scientific Instruments **95**, 083005 (2024).
- 3) G. Fitzky, *TK *et al.*, Phys. Rev. Lett. **127**, 107401 (2021).
- 4) K. Hayakawa, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **126**, 117202 (2021).
- 5) Riek, C. *et al.* Nature **541**, 376–379 (2017).