(海外特別研究員事業)

平成 31 年 4 月 20 日

海 外 特 別 研 究 員 最 終 報 告 書

独立行政法人 日本学術振興会 理事長 殿

採用年度 H29 受付番号 580 氏 名 来你真之

(氏名は必ず自署すること)

海外特別研究員としての派遣期間を終了しましたので、下記のとおり報告いたします。 なお、下記及び別紙記載の内容については相違ありません。

記

1. 用務地(派遣先国名)<u>用務地: コンスタンツ大学 (国名: ドイツ )</u>

研究課題名(和文)<u>※研究課題名は申請時のものと違わないように記載すること。</u>
高強度テラヘルツ波を用いた非熱的な超高速磁気秩序制御

3. 派遣期間:<u>平成 29 年 4 月 7 日 ~ 平成 31 年 3 月 31 日</u>

4. 受入機関名及び部局名

コンスタンツ大学物理学科 Alfred Leitenstorfer 研究室

 所期の目的の遂行状況及び成果…書式任意 書式任意(A4 判相当3ページ以上、英語で記入も可) (研究・調査実施状況及びその成果の発表・関係学会への参加状況等) (注)「6.研究発表」以降については様式10-別紙1~4に記入の上、併せて提出すること。

所期を通じてテラヘルツ(THz)波及び赤外光を用いた光源技術の開拓及び磁気ダイナミクス制御 に関する様々な新規手法の提案と原理実証を行なった。当初最終目的としていた高強度 THz 波に よるスピン反転の実現には至らなかったが、赤外光を用いた非熱的なスピン制御に関する知見及 び新規 THz 光源技術の進展が得られた。所期の主要な成果を以下に記す。

## ①超高強度サブ THz プラズマ光源の物性応用

1MV/cm オーダーを超える高電場強度の新規 THz 光源として、レーザープラズマからの THz 放射 に関する研究を行った。PW~TW レベルの近赤外フェムト秒パルス光を金属表面に照射するとアブ レーションが起きるが、この際大量の光熱電子放出に伴いサブ THz 帯域の電磁波が生じる。これ を集光した際のピーク電場強度は数 MV/cm~数 10MV/cm という通常のテーブルトップ光源に比べ て一桁近く上の強度を得られることが最近になって報告され始めており、多くの物質における非 線形応答を観測し得る新規光源としてのポテンシャルを持つことが示唆されていたものの、これ まで固体物性への応用例は無かった。我々はこの光源の詳細な検証を行うとともに、固体電子系 へ初めて適用した。

実験は Jena 大学 Helmholtz Institute と共同で行った[FIG.1 (a)]。Ti:Sapphire 再生増幅器 (Jena Ti-Sapphire laser system: JETI)の出力光(時間幅 30fs,パルスエネルギー約 1J,中心波 長 800nm)を真空槽中に置かれた厚さ約 10µm の Al または Ti 薄板に照射すると,面直方向に熱電 子・光電子が放出される。この電気双極子放射によって THz 放射が生じるが,それを高 NA 楕円面 鏡によってコリメートし,放物面鏡によって集光した。焦点には電気光学(E0)結晶(GaP 結晶)を 設置し,プローブと THz ビームを非平行配置にしたシングルショット THz 時間分解 E0 イメージン グ<sup>1</sup>計測によって波形および電場強度を見積もった[FIG.1 (b)]。その結果,焦点における電場強 度は最高約 3MV/cm, E0 結晶外部では 4.4MV/cm に達することが分かった。これは通常用いられて いる高強度 THz 光源の電場強度(~1MV/cm)を大幅に上回る値であり,固体電子の非摂動論的ダイ ナミクスを誘起するのに十分な強度と考えられる。そこでデモンストレーションとして,真空槽 中における楕円面鏡の焦点位置に高抵抗 Si を設置し,ビーム伝搬方向(Z)の複数位置で THz 透過 波形を比較する Z スキャン分光測定を行ったところ,焦点付近において Si の非線形屈折率 n<sup>(3)</sup>の 劇的な増大が確認された[FIG.1 (c)]。これは焦点位置の強い THz 電場によって Si 内部の電子が 加速され,衝突イオン化などの機構を介したキャリア増幅が生じたものと解釈できる<sup>2</sup>。この他 THz 領域に共鳴吸収を示すラクトース等においても焦点付近で僅かに屈折率の変化が見られた。

次に発生した THz 波の偏光特性評価を行ったところ,放物面鏡の焦点付近では通常の偏光状態 と異なり Z 偏光と呼ばれるビーム伝搬方向と同軸の電場成分を主とする特殊な偏光状態となって いることが判明した。THz 波のコリメート用に用いている楕円面鏡の焦点はプラズマ発生位置に 配置しているのであるが,アブレーション時に生じた電荷の運動は主に面直方向に沿っているた め,電気双極子は面直方向に生じ,THz 波は面内方向 360°円対称に放射される。よってこれを円 対称にコリメートし集光した際にはいわゆるラジアル偏光状態となり[FIG.1 (d)],放物面鏡で集 光すると Z 方向電場が主成分になることが分かった。実際,焦点位置における面内方向電場強度 分布 (Ip)と Z 電場強度分布 (Iz)を比べたところ[FIG.1 (e)], Ip は焦点付近で強度がゼロに落ち 込むダブルピーク形状となる反面, Iz は焦点において最大となるシングルピーク形状となり,こ れはラジアル偏光を集光した際の強度分布と一致する。それぞれの成分における電場強度は3 MV/cm 及び 1.5 MV/cm に及び,これは Z 偏光 THz 電場として報告された中で現状世界最大の値で あった<sup>3</sup>。用いられた EO 結晶の応答特性を校正すると,実際の値はさらに大きい可能性がある。

最後にこの THz 光源を弱強磁性体 ErFe0<sub>3</sub>の磁気ドメインに照射し磁区形状の定常変化を 800nm プローブ光のファラデー回転イメージングによって観察してみたが,最大強度(~4MV/cm)に至る まで定常的な磁区形状の変化は見られなかった。このことは(1.)ラジアル偏光の焦点においては THz 磁場がゼロに漸近するため,スピンダイナミクス励起に必要な THz 磁場強度が十分に得られ ていなかった可能性,(2.)バルク単結晶 ErFe0<sub>3</sub>では磁気異方性が強すぎ,局所的な磁化反転を誘 起するために必要な THz 磁場強度が大きすぎる可能性,などを示していると考えられる。それぞ れの解決方針としては今後,(1.)ラジアル偏光を直線偏光に変換する THz 波長板の導入,(2.)外 部磁場により均一配向した微粒子結晶試料の利用,等が考えられる。これらの結果については出 版論文 2 件 <sup>2,3</sup>の他,国際会議 1 件(IRMW-THz 2018)において発表を行った。



FIG. 1: (a) Schematic illustration of the laser-plasma based intense THz radiation setup. (b) Electric field waveform corresponding to the longitudinal (Ez) and transversal (Ep) components. (c) Z-scan results for high-resistivity Si at room temperature. (d) Temporal waveforms of the longitudinal and transversal electric fields measured with GaP (100) and GaP (110) crystals. (e) Intensity profiles of the longitudinal (Iz) and transversal (Ip) electric field components at the focus.  $^{2,3}$ 

## ②二次元 THz 分光装置の開発

赤外~THz 領域の非線形応答をクリアに観測するための実験装置として、二次元 THz 分光系 (2D-THz)の開発を行った。これは複数のポンプパルス光を試料に照射した際のスペクトル応答を 測ることで、励起準位・プローブ準位間の相互相関を 3 次の非線形性として検出できる技術であ る。時間遅延τをつけた二つのポンプパルス E<sub>4</sub>、 E<sub>8</sub>を試料に入射すると[FIG. 2 (a)]、 E<sub>4</sub>×E<sub>8</sub>に対 応した過渡回折格子が生じ、ここにプローブパルス E<sub>c</sub>を入射すると一部が回折され、運動量保存 則を満たす方向に放射が生じる。通常のポンププローブ分光と異なり、τを掃引して得られた E<sub>c</sub> のスペクトルをフーリエ変換することによって、光学応答のポンプ波長依存性を高分解能測定で きるという特徴がある。プローブ光 E<sub>c</sub>としては位相制御された周波数約 20-30THz の THz 波を用 いて THz 帯域のダイナミクスを観測する。なお E<sub>c</sub>は GaSe 結晶を用いた可視プローブ短パルス光 (Ep)の電気光学サンプリング(EOS)によって電場波形を直接時間領域測定できる。ポンプ光 E<sub>4</sub>、E<sub>8</sub> としては数 MV/cm 程度の電場振幅を持った高強度 THz 波(波長可変 0PA の非線形結晶(GaSe, SiC<sup>4</sup> など)による差周波発生)または精密に遅延制御された可視光のダブルパルスを用いた。これまで こういった実験ではある程度のポンプ光強度を得るために比較的低繰り返し(1kHz)のチタンサフ ァイヤレーザー等が光源として用いられることが多いが、ここでは繰り返し(fo = 50kHz)・高出 力(10W)の Yb:KGW 固体レーザーを用いることで高い S/N とポンプ強度を得ることができた。プロ ーブ THz 波 Ec は fo/2=25kHz, ポンプ光 Ea&Eb は fo/2=12.5kHz で変調し、デジタルボックスカー積 分器でダブルロックイン検出を行うことで感度を稼いだ[FIG.2 (b)]。

最初に標準試料として、InSbに対する実験を行った。InSb はバンドギャップ Eg~約 44THz の 直接ギャップナローギャップ半導体である。入射 THz 波を約 Eg/2 にあたる中心周波数約 23THz 近 辺に設定すると線形吸収は生じず透明であるものの、2光子吸収による3次非線形応答は生じ得 ると考えられる。実験結果を[FIG.2(c)]に示す。横軸は EOS のプローブ時刻 t,縦軸は1番目の 励起パルス EA の到着時刻τである。まず t~600fs において EA と EB が重なったのち、プローブ パルス EC が入射(T~600fs) すると放射波が確認できるが、これは EA×EB によって 2 光子吸収が 生じてキャリアが励起され、過渡回折格子によって後続パルス EC が回折されているためと考えら れる。さらに,2T~1200fsの時刻にもわずかながら回折波が出てきており,これは2光子励起さ れたキャリアによるフォトンエコーを示唆している。これらから,構築した THz-2DS 系が THz 帯 域における 4 光波混合過程を調べるのに十分な感度(入射 THz 波に比べ 10<sup>-3</sup>程度の S/N 比)を持つ ことが確認できた。なお今回使用したポンプ THz 電場強度は 20~30THz 領域でピーク振幅およそ 2MV/cmのものであるが、これはある種の磁性体においてはブリルアンゾーン端付近のマグノン由 来の非線形応答を誘起し得る値である。例として,弱強磁性体 Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の2マグノン遷移(45THz)<sup>5</sup>付 近で透過測定を行うと、高強度励起時には透過波のスペクトルが大きくブロードニングした [FIG.2(d, e)]。これは2マグノン吸収によって生じた自己位相変調効果と考えられるが、今後 はここで開発した 2D-THz 手法を用いることでこういった THz 励起時における磁性体スピン由来の 非線形光学応答をさらに詳細に精査することが可能になる。また構築した装置では THz 帯域の低 エネルギー準位間の相関のみならず近赤外~可視ポンプによって数 eV の高エネルギー準位と THz 帯域の準位間の相関も調べることが可能である。例として, HOPG グラファイトに対して行った可 視-THz 2D 分光の適用例を FIG.2 (f)に示す。20-35THz 帯域における複素屈折率の可視励起波長 依存性が約1THz 近い高分解能で観察できており、このことは構築した装置が磁性体における色中 心や不純物準位、バンドギャップや電荷移動遷移などの共鳴的光励起時に生じる瞬間的脱磁過程 やマグノン励起過程の精密な励起波長依存性を調べるのにあたっても最適なツールであるという ことを示している。これらの結果については現在論文投稿準備中であり、国際会議 CLEO:US 2019, CLEO: EU 2019 等において発表予定である。



FIG. 2: (a) Schematic illustration of the THz two-dimensional spectroscopy experiment. Irradiation by three sequential pulses  $E_A$ ,  $E_B$ , and  $E_C$  produces radiation  $E^{(3)}$  towards phase matched direction due to the four-wave-mixing (4WM), which is probed by electrooptic sampling in GaSe. (b) Geometry of the experimental setup. Pump pulses  $E_A$  and  $E_B$  can be either THz or visible wavelengths. For generating THz pulse pair we constructed 4-arm THz interferometer to temporally separate the phase-locked pulses, while for the visible we used TWINS. (c) Full THz-4WM signals from InSb test sample plotted in 2 dimensional map. (d) Temporal waveform of the transmission of THz pulses from Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> at different positions near focal spot (corresponding to peak electric field of approximately 10MV/cm and 4MV/cm). (e) Fourier spectra of (d). (f) Change of the complex refractive indices  $\Delta n$  and  $\Delta k$  in HOPG measured by 4WM with visible pump and THz probe.

## ③希土類オルソフェライトにおける近赤外励起スピン再配列転移の実現

赤外光による非熱的な巨視的スピン制御の新奇手法として、希土類オルソフェライト RFe0<sub>3</sub>に おける共鳴的光励起を用いた手法を考案し、検証実験を行った。オルソフェライトをはじめとし た鉄鏃磁性体の磁気異方性は多くの場合希土類 R イオンの持つ磁化によって支配されている<sup>6</sup>。 ErFe0<sub>3</sub>の場合は約 86K~96K の温度領域で鉄イオンの磁化方向が a 軸から c 軸へと変化するスピン 再配列相転移 (SRPT)を示すのであるが [FIG. 3 (a)]、これは常磁性 Er<sup>3+</sup>イオンの 4f 基底多重項 <sup>4</sup>I<sub>15/2</sub> 状態内部の電子状態が熱励起されることによって、Er<sup>3+</sup>4f-Fe<sup>3+</sup>3d 交換結合が磁気異方性を変 化させるためであることが知られている<sup>7</sup>。そこで SRPT 内の温度領域で Er<sup>3+</sup>イオンの ff 遷移波長 を選択的に励起することで、スピン再配列転移を光学的に誘起できると期待できる。実験には繰 り返し 50kHz の Yb:KGW レーザーを用い、自作波長可変 NOPA によって Er<sup>3+</sup>の ff 遷移 (<sup>4</sup>I<sub>15/2</sub>→ <sup>4</sup>I<sub>13/2</sub>;約 1550nm)を共鳴的に励起し、誘起された鉄スピンのダイナミクスを 800nm 光のファラデ ー回転によってプローブした [FIG. 3 (b)]。ポンプ光は左右円偏光に設定し、各へリシティでの信 号の和と差を取ることで、偏光非依存成分(電子励起)・偏光依存成分(光磁気効果)の両方の効果 を取得した。

再配列温度領域内で測定された共鳴(1518nm)及び非共鳴(1385nm)波長励起のファラデー信号(偏 光非依存成分)をFIG.3(c)に示す。ポンプ後スピン再配列転移が生じることによって面直磁化成 分が生じ、オフセット成分が生じているのがわかるが、この時非共鳴励起波形は磁化回転を開始 するまでポンプ後5ps程度の遅延時間を要するのに対し、共鳴波形では即座に再配列が生じてい る。これはEr<sup>3+</sup>の共鳴励起によって4f電子系の持つ磁気モーメント(基底状態ではJ=15/2)を瞬 間的に減少し(励起状態はJ=13/2)、磁気異方性が瞬時に変化したためと考えられる。また、最終 的に生じた面直磁化成分の大きさを励起波長に対してプロットすると[FIG.3(d)]、共鳴領域にお いて明らかな増大が見られた。これらから、f-f 遷移の共鳴励起によりフォノンを介した光熱的 な再配列転移に比べて高速かつ効率的に巨視的磁化を生じさせることに成功したと考えられる。

Er<sup>3+</sup>の磁気モーメントは常磁性であり,他の希土類磁性体<sup>8</sup>同様低温ではキュリー則に従って増 大することが知られているので,共鳴励起による鉄スピンへの影響も増大すると考えられる。そ こで約 20K まで冷却したところ,これまで知られていた ErFe0<sub>3</sub>の反強磁性共鳴モードのいずれと も異なる周波数スペクトルのスピンダイナミクスが Er<sup>3+</sup>を共鳴励起した際のみ現れることがわか った[FIG.3 (e, f)]。これらは短寿命かつスピン歳差運動(0.5 THz)よりも遅い成分(0.3THz)及 び,比較的長寿命で高周波数の成分(1-3THz)から成っている。後者の周波数は Er<sup>3+</sup>の基底多重項 <sup>4</sup>I<sub>15/2</sub>の持つ結晶場分裂の大きさにおおよそ一致することから,共鳴励起によって <sup>4</sup>I<sub>15/2</sub>内部にお ける結晶場分裂の量子ビートが共鳴ラマン的に誘起され,それが 4f-3d 結合を介して鉄スピンの ダイナミクスに重畳しているという描像で理解できる。このことは逆に THz 波を用いて 4f 系の低 エネルギー準位をコヒーレントにドライブすることによっても 3d 系のスピン歳差運動を制御でき る可能性を示唆しており,これは将来的に上記②の装置を用いた THz ポンプ-光プローブ測定によ り観測可能と考えられる。これらの結果については日本物理学会 2018 年度春季大会において発表 を行なったとともに,現在論文投稿準備中である。



FIG. 3: (a) Temperature-induced spin reorientation phase transition of  $ErFeO_3$ . (b) Absorption spectra of  $ErFeO_3$ . Inset shows the spectra of pump pulses tunable around the *f-f* transition wavelength. (c) Polarization-independent component of the Faraday rotation waveform measured in the SRPT temperature (84 K) with on-(1518nm) and off-(1380nm) resonant wavelengths. (d) Pump wavelength dependence of the offset signals at 84 K showing peak at resonant wavelengths. (e) Polarization-dependent waveform measured at around 20K, showing emergence of the possible quantum beating signature in the case of resonant pumping (1503 nm). (f) Fourier spectra of (e).

Reference:

- Shan, J.; Weling, A. S.; Knoesel, E.; Bartels, L.; Bonn, M.; Nahata, A.; Reider, G. A.; Heinz, T. F. Single-Shot Measurement of Terahertz Electromagnetic Pulses by Use of Electro-Optic Sampling. *Opt. Lett.* 2000, *25* (6), 426. https://doi.org/10.1364/OL.25.000426.
- (2) Woldegeorgis, A.; Kurihara, T.; Beleites, B.; Bossert, J.; Grosse, R.; Paulus, G. G.; Ronneberger, F.; Gopal, A. THz Induced Nonlinear Effects in Materials at Intensities above 26 GW/Cm2. *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* 2018, *39* (7), 667–680. https://doi.org/10.1007/s10762-018-0493-3.
- (3) Woldegeorgis, A.; Kurihara, T.; Almassarani, M.; Beleites, B.; Grosse, R.; Ronneberger, F.; Gopal, A. Multi-MV/Cm Longitudinally Polarized Terahertz Pulses from Laser–Thin Foil Interaction. *Optica* 2018, 5 (11), 1474. https://doi.org/10.1364/OPTICA.5.001474.
- (4) Fischer, M. P.; Bühler, J.; Fitzky, G.; Kurihara, T.; Eggert, S.; Leitenstorfer, A.; Brida, D. Coherent Field Transients below 15 THz from Phase-Matched Difference Frequency Generation in 4H-SiC. *Opt. Lett.* 2017, 42 (14), 2687. https://doi.org/10.1364/OL.42.002687.
- (5) Tanabe, Y.; Hanamura, E. Two and Three Magnon Excitation in α-Fe2O3. J. Phys. Soc. Jpn. 2005, 74 (2), 670–678. https://doi.org/10.1143/JPSJ.74.670.
- (6) Franse, J. J. M.; Kayzel, F. E.; Thuy, N. P. Exchange and Anisotropy in 3d-4f Compounds. J. Magn. Magn. Mater. 1994, 129 (1), 26–38. https://doi.org/10.1016/0304-8853(94)90426-X.
- (7) Belyaeva, A. I.; Baranova, K. V. Role of Er3+ Ion in the Formation of the ErFeO3 Magnetic Properties in the Region of Spin-Reorientation Phase Transition. *Bull. Russ. Acad. Sci. Phys.* 2009, 73 (8), 1056– 1060. https://doi.org/10.3103/S1062873809080127.
- (8) Kurihara, T.; Qiu, H.; Kato, K.; Watanabe, H.; Nakajima, M. Enhanced Detection Sensitivity of Terahertz Magnetic Nearfield with Cryogenically-Cooled Magnetooptical Sampling in Terbium-Gallium-Garnet. *Appl. Phys. Lett.* **2018**, *113* (11), 111103. https://doi.org/10.1063/1.5037521.