

# レーザー駆動超高速スピントロニクスに向けた理論研究 Theoretical Study Towards Laser-Driven Ultrafast Spintronics

佐藤 正寛  
Masahiro Sato

茨城大学 理学部 物理コース  
Department of Physics, Ibaraki University

310-8512 茨城県水戸市文京 2-1-1  
2-1-1 Bunkyo, Mito, Ibaraki 310-8512 Japan  
E-mail: masahiro.sato.phys@vc.ibaraki.ac.jp

**あらまし** 近年、(i)低周波数帯(テラヘルツ周辺)レーザーと電子スピンの直接的相互作用や(ii)高周波数帯レーザーの加熱効果による固体結晶の磁性の超高速制御方法が精力的に研究されている。しかしながら、これらの超高速現象のメカニズムの多くは十分解明されていない。さらに、このレーザー誘起超高速磁気現象の分野において、既存の実験結果を超えて新しい予言を与える試みはほとんど成されてこなかった。このような状況を踏まえて、我々は最近、フロケの定理やランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式を用いて、幾つかの新しいレーザー誘起超高速磁気現象を予言している。本講演では、我々の最近の成果の中で、(a)円偏光テラヘルツレーザーを強誘電磁性体に照射することでスパイラル磁気秩序やスピン流を発現させる方法と(b)軌道角運動量をもつ光渦レーザーをカイラル磁性体に照射しトポロジカル磁気欠陥(スキルミオンやスキルミオニウム)を高速生成する方法の提案について解説する。

**Abstract** In the last decades, ultrafast control of magnetism has been actively explored by making use of (i) the direct coupling between magnets and low-frequency (typically Terahertz) lasers or (ii) the heating effect of high-frequency (X-ray, visible, etc.) lasers. However, mechanisms of various ultrafast phenomena have not been understood enough. In addition, so far the theoretical research for new ultrafast dynamics has not gained a foothold in the field of ultrafast spintronics. Motivated by these facts, we have recently tried to propose novel laser-driven ultrafast magnetic phenomena by applying powerful theoretical techniques such as Floquet theorem and Landau-Lifshitz-Gilbert equation. In this presentation, some recent progresses of our proposals are reported. Particularly, I would like to emphasize two of our predictions: (a) a way of creating a spiral spin order or spin current in multiferroic magnets with a circularly polarized laser and (b) a way of creating topological magnetic defects such as skyrmions and skyrmioniums in chiral magnets with vortex beams carrying an orbital angular momentum.

## 1. はじめに

レーザー光を含む電磁場と固体結晶中の電子との間の最も強い結合は、当然、電場と電荷の間の相互作用である為、これまでの光物性科学やレーザー科学における電子物性制御において主要な対象は半導体や金属やメソスコピック系の電流や電荷自由度であった。しかし、前世紀末から、高強度レーザーによる加熱効果や磁気光学効果を利用して磁性体の磁化を超高速に増減または反転させる実験研究が精力的に実施されはじめた。現在では、レーザーによる電子スピン自由度の超高速(典型的にはピコ秒程度)制御に関わる研究は光物性科学やス

ピントロニクス領域において大きなブランチに発展している[1-3]。しかしながら、一般にレーザーを固体に照射する際、レーザーの電磁場と電荷・格子・スピンの複雑な相互作用をしながら、それらが時間発展する為、多くの超高速磁気現象のメカニズムは十分解明されていないのが現状である。また、この現象の複雑さに加えて、レーザー誘起超高速磁気現象に関わる実験研究の進展が非常に速いこともあり、実験を超えて新しい高速現象を予言する理論研究—特に微視的量子論的研究—はこれまであまり発展していない。このような状況を踏まえて、我々は最近、フロケの定理やランダウ・リフシ

ツ・ギルバート方程式などの強力な理論的道具を活用し、新しいレーザー誘起超高速磁気現象を予言する研究に注力している[4-9]. 本稿では、我々の最近の成果の中で特に、(i) 円偏光テラヘルツ (THz) レーザーを強誘電磁性体(マルチフェロイクス)に照射することでスパイラル磁気秩序とスピン流を発現させる方法[6]と (b) 軌道角運動量をもつ光渦レーザーをカイラル磁性体に照射しトポロジカル磁気欠陥(スキルミオンやスキルミオニウム)を高速生成する方法[7,8]の提案について解説する.

第1章の最後に、レーザーをはじめとする光学的な手段に基づく磁性制御法の特性1点について強調する. エレクトロニクス研究の中で磁性制御を考察する際は、電気的な信号を用いた磁性制御を指すことが多いだろう. 交流電流や電気信号の切替えは高々ギガヘルツ (GHz =  $10^9$ Hz) 程度のスピードが限界だろう. しかし言うまでもなく電磁波の周波数は GHz を含む低周波数から X 線の高周波数まで広い領域をカバーしており、例えばペタヘルツ (PHz =  $10^{15}$ Hz) 帯の可視光を使えば、電気信号より圧倒的に高速の磁性制御が原理的に可能である. この高速性がレーザー駆動磁性制御の魅力の一つと言える.

## 2. フロケ・エンジニアリング

本章では、フロケ・エンジニアリングの考え方に基づいた磁性の高速制御についての理論を紹介する[6]. 以下で紹介するフロケの定理は、一般に、時間的に周期的な外場中の非平衡量子系が静的な有効模型に変換できることを示す. この有効模型から、元の周期外場なしの系では実現せず、周期外場を印加して初めて実現する新しい現象を探索するのがフロケ・エンジニアリングの基本戦略である.

### 2.1 フロケの定理

固体へレーザー光を照射して生じる物理現象を理論的に研究する為には、いやおうなしに非平衡(時間発展)現象を記述する理論的戦略が必要になる. 熱平衡系や平衡系近傍に比べて、非平衡系を記述する物理理論の構築は一般に難しく、実際未発達である. しかし、レーザーのような時間方向に周期性のある外場中の量子系は、非平衡系の中でも取り扱いが比較的簡単なクラスに分類され、フロケの定理[10-14,9]を応用することが出来る. フロケの定理とは、固体物理学で馴染みのあるブロッホの定理

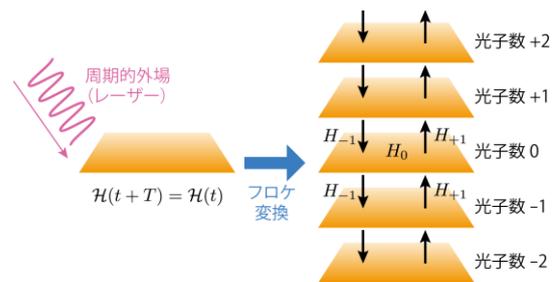


図1: フロケの定理によって、周期外場中の非平衡量子系が有効な静的模型に変換される概念図.

[15]の時間版であり、周期外場中の量子系に対する運動方程式(シュレディンガー方程式)を時間方向への離散的フーリエ変換を介することであらわには時間依存性のない一般化固有値問題に変換する方法を提供する. 一般に、静的な物理系は非平衡系より取り扱い易い為、このフロケの定理が周期外場系を理解するために有用な情報を提供してくれる.

もう少し正確に説明しよう. 周期外場中の量子系を表すハミルトニアン  $H(t)$  は ( $t$  は時刻を表す) 時間方向の周期性  $H(t+T)=H(t)$  を持つ. ここで  $T$  は周期外場の1周期の時間である. このときシュレディンガー方程式の解(波動関数)は、 $|\Psi(t)\rangle = \exp(-i\varepsilon t) |\Phi(t)\rangle$  と書くことが出来て ( $\varepsilon$  を擬エネルギーと言う)、ブロッホ関数  $|\Phi(t)\rangle$  は  $|\Phi(t)\rangle = |\Phi(t+T)\rangle$  の周期性を持つ、という主張がフロケの定理である. その結果、外場の振動数  $\Omega = 2\pi/T$  の整数倍の振動数  $n\Omega$  を持つ波動  $\exp(i n \Omega t)$  を用いてハミルトニアンやブロッホ関数  $|\Phi(t)\rangle$  のフーリエ成分を定義することが出来る:

$$\mathcal{H}_n = T^{-1} \int_0^T dt e^{in\Omega t} \mathcal{H}(t)$$

$$|\Phi_n\rangle = T^{-1} \int_0^T dt e^{in\Omega t} |\Phi(t)\rangle$$

この  $\mathcal{H}_n$  と  $|\Phi_n\rangle$  を用いて、元の時間依存シュレディンガー方程式が頭には時間依存性のない固有値問題に変換できるのである.

物理的イメージを膨らませるために、周期外場をレーザーと仮定しよう. このとき振動数  $\Omega$  はレーザーを構成する光子(フォトン)1個のエネルギーと解釈できる(今は  $\hbar=1$  の単位系で議論をしており  $\Omega = \hbar\Omega$  の意味である). したがって  $|\Phi_n\rangle$  は  $n$  個の光子を持つ光子数確定状態と言える. 実際、フーリエ変換後に現れる一般化固有値問題において、状態  $|\Phi_n\rangle$  の空間に作用する行列の対角成分は  $H_0 + n\Omega$  で与えられる.  $H_0$  が時間平均化された ( $n=0$ ) のハミルトニアン

であり  $n\Omega$  が光子  $n$  個のエネルギーであることから、上記  $|\Phi_n\rangle$  の解釈について納得できる。一方、固有値問題の行列の非対角成分は有限の整数値  $m$  を持つハミルトニアン  $H_{\pm m}$  のフーリエ成分  $H_{\pm m}$  で与えられる。  $H_{\pm m}$  は周期外場が存在するときのみ現れる項であり、それが異なる光子数を持つ状態  $|\Phi_n\rangle$  間の遷移を司る。この固有値問題のイメージを絵で表したのが図 1 である。この図は、元々レーザー中におかれた非平衡量子系が、フロケの定理を介して、光子数確定状態間に量子的遷移(量子トンネリング)が存在する静的な模型にマップされることを示している。

さて、フロケの定理のおかげで、周期外場中の非平衡系を解析するには静的な有効模型を解析すればよいことが分かった。しかし、この有効模型そのものはそれほどご利益がない場合が多い。有効模型の出現により時間依存性を考察する必要性が消えたものの、新しくフーリエ変換の指標  $n$  が現れて、光子数が異なるすべての空間を含む問題を解かねばならなくなったのである。つまり元の問題から比べると、ヒルベルト空間が 1 次元( $n$  の増減方向)増えてしまったのだ。しかし、外場振動数  $\Omega$  が外場なしの系のエネルギースケールより十分大きい場合、静的有効模型を効果的に解析するための近似法が存在する。すなわち、 $\Omega$  が大きな世界では、量子トンネリング  $H_{\pm m}$  の効果が相対的に小さく、 $H_{\pm m}$  を摂動と考えると各光子数確定空間(元の系と同じ大きさのヒルベルト空間)における有効ハミルトニアンを導出することが許される。有効ハミルトニアン  $H_{\text{eff}}$  は

$$H_{\text{eff}} = H_0 + \sum_{m \neq 0} \frac{[H_{-m}, H_m]}{2m\Omega} + \mathcal{O}(\Omega^{-2})$$

で与えられる。  $H_{\text{eff}}$  を導く摂動展開はしばしばフロケ・マグナス展開[12-14,9]と呼ばれ、  $1/\Omega$  の冪展開になっている。実際、周期外場中の量子系の時間発展は、短時間であれば  $H_{\text{eff}}$  で記述できることが示されている[14](長時間では外場による加熱効果や環境の効果が無視できない)。この  $1/\Omega$  展開法には未解決の数理的・統計力学的問題が含まれているのだが、多くの理論研究者は、この  $H_{\text{eff}}$  の基底又は熱平衡状態に近い状態が外場印加中に実現すると期待している。

$H_{\text{eff}}$  の右辺第 1 項は時間平均ハミルトニアンであり、第 2 項以降が周期外場により新たに系に産み出された項である。もしこの外場誘起相互作用の中に元の外場なしの系では実現しない秩序や物理現象を引き起こす項が含まれて

いれば、周期外場を印加することで新しい物理現象の発現が期待される。すなわち、  $1/\Omega$  展開を応用することで、興味深い有効ハミルトニアン  $H_{\text{eff}}$  が生じるように外場と量子系を設定し、新しいレーザー誘起現象を探索することが可能となる。フロケの定理と  $1/\Omega$  展開などの戦略に基づいて、周期外場を印加することで対象とする系の物性を高速で制御することをフロケ・エンジニアリングと呼ぶ。

## 2.2 レーザー誘起カイラリティとスピン流

我々は、前節のフロケ・エンジニアリングの考え方を応用してレーザーで磁性を高速制御する幾つかの方法を提案している[4-6]。本節ではその一つを紹介する[6]。対象とする系は、マルチフェロイクス[16-19]という磁性体と誘電体の両性質を併せ持つ絶縁体物質群である。外部電磁場を標準的な磁性体に印加すると、ゼーマン相互作用  $-\mathbf{B} \cdot \mathbf{S}$  により電子スピン  $\mathbf{S}$  と外部磁場  $\mathbf{B}$  が結合する。一方、誘電体に電磁場を印加すれば、電気分極  $\mathbf{P}$  が電場  $\mathbf{E}$  と結合して  $-\mathbf{E} \cdot \mathbf{P}$  項がハミルトニアンに加わる。マルチフェロイック物質では、系に内在する磁気自由度(電子スピンに由来)と電気分極自由度との間にスピン軌道相互作用などを介して強い結合が存在する。その結果、電気分極がスピン演算子の関数で表現できることが知られている。最も代表的なマルチフェロイック物質群で実現している電子スピンと電気分極の関係は

$$\mathbf{P}_{\mathbf{r},\mathbf{r}'} = g\mathbf{e}_{\mathbf{r},\mathbf{r}'} \times (\mathbf{S}_{\mathbf{r}} \times \mathbf{S}_{\mathbf{r}'})$$

で与えられる[16,17]。ここで  $\mathbf{S}_{\mathbf{r}}$  と  $\mathbf{S}_{\mathbf{r}'}$  は隣接サイト  $\mathbf{r}$  と  $\mathbf{r}'$  上の磁気モーメント(電子スピン)、  $\mathbf{P}_{\mathbf{r},\mathbf{r}'}$  はボンド  $(\mathbf{r},\mathbf{r}')$  上の局所的な電気分極、  $\mathbf{e}_{\mathbf{r},\mathbf{r}'}$  はボンド  $(\mathbf{r},\mathbf{r}')$  を結ぶ単位ベクトル、  $g$  は電気分極とスピン間の結合定数である。この分極とスピンの結合は、反対称電気磁気(ME)結合、または逆ジャロシンスキー守谷(DM)結合[17]などと呼ばれている。2 スピンの外積  $\mathbf{S}_{\mathbf{r}} \times \mathbf{S}_{\mathbf{r}'}$  は磁性分野でベクトルスピンカイラリティと呼ばれる量であり、これの発生は空間反転対称性が破れていることを意味する。上の ME 結合は、マルチフェロイック物質において、電場を印加し電気分極を生成することがスピンカイラリティの生成を同時に意味し、逆にスピンカイラリティ秩序が発現すれば電気分極も発生することを示唆している。カイラリティはスピンの外積で定義されている為、強磁性や反強磁性(ネール)秩序のようなスピンの特定の方向に揃った共線的な磁気秩序相ではカイラリティは現れない。典型的なカイラリティを有する磁気構造

は、2つの隣接スピンの適当な角度だけずれて異なる方向を向いていて、磁気結晶内をある適当な方向に進むときスピンの向きが次々と角度を変えてゆくスパイラル磁気秩序相(非共線的かつ共面的秩序の例)である。実際、多くのマルチフェロイクスでは、低温でスパイラル秩序が発生し局所的にスピнкаイラリティが発生すると同時に電気分極も自発的に発現することが知られている。このような電気と磁気自由度の間の非自明な相互作用は交差相関と呼ばれている。

さて、このマルチフェロイクスに円偏光テラヘルツ(THz)レーザーを印加した状況を考えよう。既に述べたように、レーザーの電場と磁場が各々系の電気分極とスピンと結合する。マルチフェロイクスや反強磁性体の典型的な磁気励起エネルギースケールが THz 領域に存在する為、THz 帯で ME 結合やゼーマン相互作用が最も強いと考えられる。電気分極はスピнкаイラリティに比例する為、結局、レーザー中のマルチフェロイクスを表すハミルトニアンはスピン自由度だけで記述されることになる。またレーザーは周期的に振動する外場である為、当然ハミルトニアンは  $H(t+T)=H(t)$  の周期性を持つ。T はレーザー電磁場が 1 回振動する時間である。従って、この系に対してフロケの定理と  $1/\Omega$  展開を応用することが出来る。

計算の詳細は省くが、 $1/\Omega$  展開の結果、レーザー誘起相互作用として、有効ハミルトニアン  $H_{\text{eff}}$  に隣接スピン間のベクトルスピнкаイラリティに比例するジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用[20]  $\mathbf{D}_{rr} \cdot (\mathbf{S}_r \times \mathbf{S}_{r'})$  が発生することが示される( $\mathbf{D}_{rr}$  は DM ベクトルと呼ばれる)。発生する DM ベクトルの向きは光渦の伝搬方向と垂直で、円偏光の向きを反転することでその符号を変えられる。DM 相互作用はレーザーなしのマルチフェロイクスにも存在するが、通常結晶構造を決定すれば、その結合定数である DM ベクトル  $\mathbf{D}_{rr}$  の大きさや向きは確定してしまう。円偏光レーザー中のマルチフェロイクスにおけるフロケ・エンジニアリングは、固体中で変化させることがほぼ不可能な DM 相互作用を系に追加させる、ということである。レーザー印加前の標準的なマルチフェロイクスにおいて支配的な磁気相互作用は隣接スピン間の内積で表されるいわゆる交換相互作用  $\mathbf{S}_r \cdot \mathbf{S}_{r'}$  である。交換相互作用エネルギーを低下させるには隣接スピンを平行または反平行にさせれば良い。一方、DM 相互作用を得するには隣接スピンのできるだけ 90 度に近い角度を保つのが良い。この 2 つの競合が存在する系ではスパイ

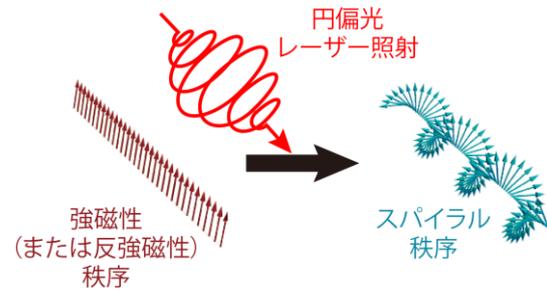


図 2: マルチフェロイクスに円偏光 THz レーザーを印加した際のフロケ・エンジニアリングの概念図。レーザーによりスパイラル秩序が高速発生することが期待される。

ラル秩序が期待される。以上の考察から、マルチフェロイクス系に適切な円偏光 THz レーザーを印加すると、図 2 に示したように、共線的秩序からスパイラル秩序を超高速で生成できると考えられる。実際、我々は  $1/\Omega$  展開からの予言を超えて、円偏光レーザー中の有限サイズのマルチフェロイック磁性体模型の運動方程式(シュレディンガー方程式)を近似なしで数値的に解き、レーザーによりスピнкаイラリティが発生することを確認している。さらに、スピнкаイラリティの発現はスピントロニクスにおいて重要な概念であるスピン流[21,22]の発生にも結び付く。もしスピнкаイラリティが空間変調して発生すれば、その変調方向にスピン流が流れることを運動方程式から簡単に推測することができる。我々はこのアイデアに基づいて、空間変調を持つレーザーを印加したマルチフェロイクス模型の時間発展を数値解析し、その結果、レーザーで発現するスピнкаイラリティにも空間変調が現れることを示した。近年、メタマテリアルやプラズモニクス技術の発展により、マイクロまたはナノメートルスケールで変調するレーザー光(近接場)の発振が可能になりつつある。この技術を用いれば、マルチフェロイクスにおけるレーザー駆動超高速スピン流生成を期待できる。より詳しい解析結果は原論文[6]を参照して欲しい。

### 3. 光渦レーザーによる超高速磁性制御

2 章では、フロケ・エンジニアリングの考え方に基づいたマルチフェロイクスにおけるスピнкаイラリティ及びスピン流の高速制御についての理論を紹介した[6]。本章では、磁性体に照射するレーザーを工夫することで新しい磁気現象の予言を目指す理論的試みを紹介する[7,8]。光渦と呼ばれる空間構造を持つレーザーによる高速磁性制御を考えよう。

### 3.1 光渦レーザー

まずは光渦レーザー[23-25]について説明する。光渦とは軌道角運動量をもつレーザーを指している。数学的には、円筒座標系 $(r, \phi, z)$ において、シリンダーの筒方向( $z$  軸)に伝搬するマクスウェル方程式の解として定義される電磁波が光渦である。光渦レーザーが最も集光する面を円筒座標系  $z=0$  の $(r, \phi)$ 面に設定すると、この面内における光渦の電場又は磁場は

$$E(r, \phi, z=0) \propto e_{pl} \left(\frac{r}{w}\right)^{|m|} L_p^{|m|} \left(\frac{2r^2}{w^2}\right) e^{im\phi} e^{-r^2/w^2}$$

で与えられる。ここで振動因子  $e^{i\Omega t}$  は省いている。 $e_{pl}$  は電磁場の振動方向を表す分極ベクトル、 $L_p^{|m|}(x)$  は一般化ラゲール関数である。大事なパラメータが3つ存在する： $w$  はウェイトと呼ばれ、おおよその光渦のサイズを表している。整数  $m$  が軌道角運動量子数であり  $\hbar m$  が光渦の光子1個が持つ軌道角運動量である。ラゲール関数を指定する整数  $p$  は動径方向の電磁場分布と関係しており、光渦は動径方向の電磁場分布で  $p+1$  個の節(ゼロ点)を持つ。光渦の軌道角運動量は、左右の円偏光が持つスピン角運動量とは別の概念であることに注意されたい。

図3は、光渦レーザーの集光面での電磁場の強度分布とスナップショットの典型例である。上記の数式と図3から、光渦の2つの特徴が見えてくる。1つ目は、光渦の強度は必ず集光面の中心( $r=0$ )でゼロになるということである。これは水素原子の電子の波動関数を考えると理解し易い。軌道角運動量をもたない  $s$  軌道だけが原子の中心で有限の存在確率を有し、他の軌道角運動量を持つ電子軌道では中心で波動関数がゼロとなる。 $s$  軌道以外の電子軌道は原子の中心で位相が定義できなくなる特異性を持ち、それを回避する為にゼロ点が生じている。光渦も、位相の特異性を回避する為に  $r=0$  で強度がゼロとなるのである。従って、光渦の電磁場強度分布は図3 上段のように必ずリング状になる。もう一つの特徴は図3 下段のスナップショットから読み取ることが出来る。軌道角運動量を持たないガウス光では、電磁場の向きが空間的に一様であるのに対して、光渦では  $r=0$  を中心として電磁場の向きが角度  $\phi$  の変化とともに回転している。この空間非一様な電磁場分布が光渦の特性と言える。

光渦はそもそも1992年にAllenらによって提案され[23]、その後、その空間構造や軌道角運動量を利用した様々な応用が考察されてきた。現在では、X線からTHz帯までの非常に広範な周波数領域で光渦の生成方法が確立・発

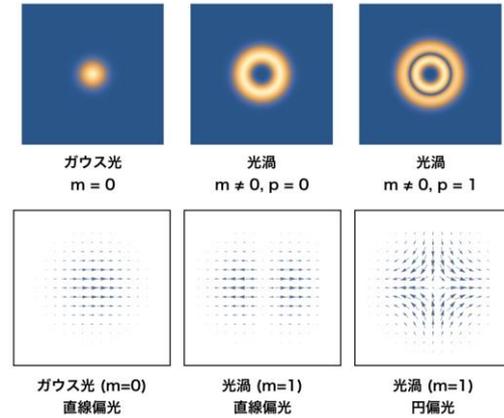


図3：光渦の集光面における電磁場強度分布(上段)と適当な時刻における電磁場のスナップショット(下段)。下段では各点の矢印が電磁場の大きさと向きを表している。比較対象として、左パネルに軌道角運動量ゼロの通常のガウスレーザーの結果も示してある。

展している。光渦の研究の中でも特に、光渦の軌道角運動量の情報を照射物質に何らかの意味で転写しようという試みが活発である。しかしながら、これまでの光渦による物質制御に関わるほぼ全ての研究では、光渦の照射対象はマイクロメートル以上の巨視的な物体である。我々は、光渦を巧く利用して、微視的な自由度である電子(特に電子スピン)を高速制御する方法を理論的に考察している。

### 3.2 カイラル磁性体と光渦の相性

本章では、光渦の照射対象として、ありふれた強磁性体や反強磁性体の他に、カイラル磁性体を考える。本節ではカイラル磁性体について簡単に解説する。

カイラル磁性体とは、空間反転対称性が破れたカイラルな結晶構造をもつ磁性体であり、そのような系ではしばしばDM相互作用  $\mathbf{D}_{rr'} \cdot (\mathbf{S}_r \times \mathbf{S}_{r'})$  が現れることが知られている。2章でも議論したように、DM相互作用はスパイラル秩序を含む非共線的な磁気構造を生み出す源泉となる。特にここでは B20 合金や MnSi や  $\text{Cu}_2\text{OSeO}_3$  などのカイラル強磁性体薄膜[26]に注目しよう。これらの系では、薄膜2次元面の  $x, y$  両方向にDM相互作用が存在し、その結果静磁場を印加すると、低磁場、中磁場、高磁場領域において各々スパイラル秩序相、スキルミオン結晶相、強磁性相が現れることが知られている[26]。静磁場が弱いときは当然DM相互作用が優勢でスパイラル秩序が生じている。一方、静磁場は一般に強磁性状態を好むため、DM相

相互作用に打ち勝つ程度の高磁場を印加すると強磁性相が実現する。その中間領域において、静磁場と DM 相互作用の競合により、静磁場が誘導する強磁性秩序の海の中にスキルミオン(図 4)と呼ばれるトポロジカルな磁気欠陥が三角格子を組んだスキルミオン結晶相[27,26]が現れる。この系では、スキルミオンの他にも、外部から電流などの摂動を加えることで、スキルミオニウム(図 4)を含むより複雑な磁気欠陥が生じることが知られている。スキルミオンは、それが存在する 2 次元平面内のスピン配置で定義されるトポロジカル数(整数値)によって定義されており、この値はスピン配置を連続変形しても変化することはない。このトポロジカルな性質は、スキルミオンなどの欠陥が微小な摂動に対してエネルギー的に安定であり、あたかも個々のスキルミオンを粒子とみなせる可能性を示唆している。実際、近年スキルミオンを電流や温度勾配などの摂動により生成する、または移動させる複数の方法が提案されており[27]、これら磁気欠陥を用いた新しい情報処理法が模索されている。次節以降では、我々が提案したスキルミオンを含む磁気欠陥を光渦により高速制御する方法を解説する。

さて、我々の解析を紹介する前に、カイラル磁性体の磁気欠陥と光渦レーザーの相性について議論する必要がある。スキルミオンやスキルミオニウムは円形の構造体であり、一方、光渦もリング状の強度分布をもつレーザーであることを前節で見た。従って、ナイーブに妄想

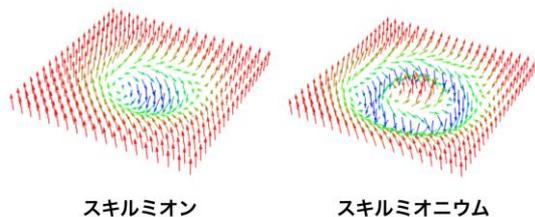


図 4 : カイラル強磁性体薄膜で発生する典型的なトポロジカル磁気欠陥：スキルミオンとスキルミオニウム。矢印は各磁性イオン上の磁気モーメント(電子スピン)の向きを表している。スキルミオンは、背景の上向きスピンの強磁性相の中で中心のスピンの下を向いた磁気欠陥である。一方、スキルミオニウムは、スキルミオンとアンチスキルミオン(中心で上向き、かつ、外側で下向き強磁性状態のスピン配置)が合成した欠陥と解釈することが出来て、外側から中心に向かってスピンの向きは up, down, up となる。

すれば、光渦はこれらの磁気欠陥を生成・消滅する為の有望な光源と考えられる。しかしながら、光渦によるカイラル磁性体の磁気欠陥制御を実現するには 2 つの問題を克服する必要がある。スキルミオンの典型的な大きさはカイラル磁性体の交換相互作用と DM 相互作用の比で決まっており、おおよそ 10-1000 ナノメートル程度である。一方、光渦の集光サイズの限界(回折限界)は当然その波長程度であり、10-1000 ナノメートルの波長をもつレーザーは可視光から紫外光領域に対応する。一方、可視光や紫外光の周波数はペタヘルツ( $\text{PHz}=10^{15}\text{Hz}$ )以上であるが、磁性体中のスピン集団運動の典型的な時間スケールは THz( $=10^{12}\text{Hz}$ )からギガヘルツ( $\text{GHz}=10^9\text{Hz}$ )程度である。スキルミオンのサイズ程度に集光された光渦の電磁場振動は、電子スピンにとってあまりにも早すぎてスピンは光渦の振動を感じ取れないのである。この光渦と磁性体の時空間スケールの差異の問題を克服しなければ光渦によるカイラル磁性体の磁性制御が実現できない。以下の 2 節で、この問題に対して我々が最近提案した 2 つの方法を紹介する[7,8]。以下の解析では、単純化のために、光渦の照射対象は常に 2 次元格子上の磁性体模型とする。

### 3.3 高周波数光渦の加熱効果

紫外から可視光領域の光渦はスキルミオンのサイズまで集光することが比較的容易である。ところが、前節で説明した通り、この高周波数光渦の電磁場振動はスピンの集団運動の時間スケールに比べて超高速である為、光渦の電磁場と電子スピンの直接相互作用することは難しい。しかし、磁性体内部には電子スピンの他に電子(電荷)そのものの運動や格子振動などの別の自由度があり、特に電荷自由度は高周波数の電磁場と結合し超高速ダイナミクスが生じる。この運動の緩和過程で電荷が光渦から受け取ったエネルギーは他の低エネルギー自由度に流されて、系は加熱されることになる[3]。この加熱(温度上昇)を電子スピンは感じ取ることが出来る[28]。そこで我々は、光渦照射による磁性体の各点での温度上昇は同じ点における光渦の電磁場強度(図 3)に比例すると仮定し、その空間非一様なリング状の加熱により発生する新しい磁気構造の高速変化を理論的に探索した[7]。

リング状の温度上昇を取り込んだカイラル磁性体薄膜のスピンダイナミクスを解析する為、我々は stochastic なランダウ・リフシッツ・ギルバート(LLG)方程式を用いた[26,28]。

LLG 方程式は、電子スピンの磁気モーメントを古典的 3 次元ベクトルで近似するスピンの半古典的運動方程式であるが、磁気秩序をもつ磁性体のスピンドायナミクスを非常によく記述することが知られている[26]. 光渦を照射する前の磁性体の初期状態として、相図上はスキルミオン結晶相領域に位置するが強磁性秩序(全スピンの上向き)が実現している準安定な強磁性相を用意する. これは、できるだけ磁気欠陥が生成し易くする為の、つまりスキルミオンを作り易くする為の工夫である. 強磁性相とスキルミオン結晶相の間の相転移が 1 次転移である為、実際このような準安定強磁性相を実現することが可能である.

図 5 に典型的な光渦による超高速温度上昇を加えたときの準安定強磁性状態の時間発展の様子を示した. 数値解析では、まず瞬間的に温度が磁性体の交換相互作用オーダーまで増加しその後ゆっくりと温度が低下していく、という温度プロファイルを採用した. これは強力な光渦パルスを磁性体に照射することで実現可能と考えられる. 光渦のサイズ、リングの枚数を調整することで、スキルミオンやスキルミオニウムを含む複数種類の磁気欠陥を系統的に生成されることを図 5 から読み取ることが出来る. 光渦の加熱効果でカイラル磁性体に磁気欠陥を高速生成する為の温度や光渦のサイズなどの最適な条件については原論文[7]を参照して欲しい. この加熱効果による磁気欠陥生成方法は、図 5 に示したカイラル強磁性体だけでなくカイラル反強磁性体に対しても適用可能である. また磁性体が金属か絶縁体にも依らずに適用できる方法であることも強調したい.

### 3.4 テラヘルツ光渦による超高速磁性制御

前節では、高周波数光渦のリング状の電磁場強度分布を利用して、カイラル磁性体に多彩なリング状の磁気欠陥を生成する方法を解説した. 3.1 節で述べたように、リング状の強度分布は光渦の特徴の一つである. が、強度分布には光渦の軌道角運動量の情報は含まれていない. 軌道角運動量の存在は、図 3 下段に示したように、集光面における電磁場の向きが円筒座標系の角度 $\phi$ とともに回転する、という 2 つ目の光渦の特徴に反映される.

この電磁場の向きの空間非一様性を磁性体の電子スピンの感じ取ることができれば、前節の加熱効果以上に多彩な光渦誘起現象を期待することが出来る. この為には、光渦の周波数がスピンドायナミクスの典型的周波数に匹敵

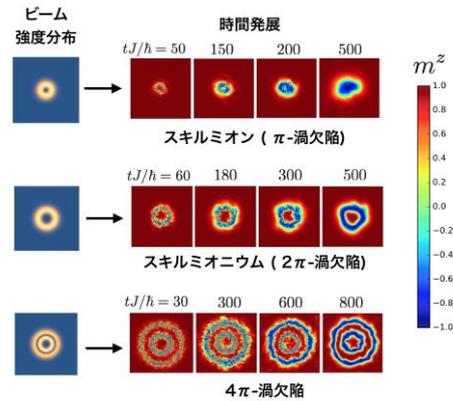


図 5: カイラル強磁性体薄膜の準安定強磁性相に 3 種類の高周波数光渦を照射した際の加熱効果で発生する磁気欠陥の時間発展の様子(時刻  $t=0$  で加熱開始). 色の濃淡が各点の磁化の  $z$  成分( $m_z$ )の値を表している: 濃い色がスピン上向き, または下向きに対応する. 小さいリングの光渦, 適度なサイズの光渦, 2 重リングの光渦を照射すると, 各々, スキルミオン, スキルミオニウム(スキルミオンとアンチスキルミオンの結合体),  $4\pi$ 渦欠陥(スキルミオンとアンチスキルミオン 2 個ずつの結合体)が発生している. 無次元化された時間  $tJ/h=1$  がおおよそ 0.1-1 ピコ秒 ( $10^{-12}$  秒)に相当する.

する値に調整する必要がある. すなわち, THz から GHz 帯の光渦が必要になる. THz 帯の光渦パルスの生成方法は確立されているが, 3.2 節で述べたように, この領域の光渦の集光サイズはスキルミオン(高々マイクロメートル程度)より遥かに大きい. 大きなサイズの光渦を照射しても, 磁性体中の電子スピンにとって光渦の電磁場の空間変動が緩やか過ぎる為, 各スピンはほとんど空間一様な電磁波が照射されているように感じてしまうだろう.

しかしながら, 近年, メタマテリアルやプラズモニクスの技術に基づいて回折限界を超えてレーザーを集光する技術が急速に発展している. 特に最近, THz 光渦を 10-100 マイクロメートルまで集光する実験が実現している[29]. そこで我々は, THz 光渦が近い将来マイクロメートル程度まで集光できることを仮定して, または磁性及びスピントロニクス研究の発展によりマイクロメートル以上に大きなスキルミオン[30]を持つカイラル磁性体が合成されることを期待して, スキルミオンのサイズと同程度にまで集光された THz 光渦パルスをカイラル磁性体や標準的な強磁性体に照射した際のスピンドायナミクスを解析した[8]. 前

節と同様に、カイラル磁性体では初期状態として磁気欠陥を産み出しやすい準安定強磁性状態を用意した。THz 光渦の電磁場とスピンはゼーマン相互作用や電気磁気結合を介して直接結合する。温度の効果は THz 光渦照射では本質的ではない為、本解析では絶対零度の LLG 方程式を用いて光渦とスピンの直接相互作用項を含んだ磁性体のハミルトニアンの下でのスピンダイナミクスを数値解析した。

まず、静磁場中の標準的なハイゼンベルグ強磁性体に磁気共鳴周波数をもつ光渦レーザーパルス照射した際のスピンダイナミクスの結果を説明する。異なる軌道角運動量  $\hbar m$  を持つ光渦を照射した際の横磁化の空間分布のスナップショットが図 6 である。  $m=0$  のガウス光照射による磁気共鳴では、照射スポットから同心円状に横磁化の振動が伝搬する一つまりスピン波が伝搬する一が、光渦の場合、角度  $\phi$  方向に節(ゼロ点)を持つ角度依存性のあるスピン波伝搬が発生していることが分かる。しかも節の数が軌道角運動量子数  $m$  とともに増加している。この結果はまさに軌道角運動量の情報が強磁性体に転写されていることを示している。スピン波は長波長の物理を司る励起であることから、この光渦磁気共鳴による非一様スピン波伝搬には回折限界を超えた光渦の集光は必要ないことを強調したい。光渦磁気共鳴により異なる位置のスピンが異なる方向に揺らいでいるということは、スピнкаイラリティが発生していることを期待させる。我々は、スカラースピнкаイラリティと呼ばれる隣接 3 スピンのスカラー 3 重積  $\mathbf{S}_r \cdot (\mathbf{S}_r \times \mathbf{S}_{r'})$  の 2 次元面全体に渡る総和  $\chi$  を評価し、光渦の軌道角運動量の符号に応じて発生するスカラーカイラリティ  $\chi$  も符号を変えることを明らかにした。金属強磁性体では、スカラースピнкаイラリティを持つ磁気相において電流を印加すると、カイラリティに比例して異常ホール電流が流れることが知られている[31-34]。従って、我々の図 6 の光渦誘起スピン波は、金属磁性体において光渦誘起ホール効果を発現することを示唆している。

続いて THz 光渦をカイラル強磁性体に照射する場合を考えよう。光渦は軌道角運動量という回転の強さと符号を表す指標を保有しているが、一方、カイラル強磁性体も系に内在する DM 相互作用のためにスピンが回転しやすい方向が磁性体内で確定している。このように光渦とカイラル磁性体の両者が回転に対する内因的な非対称性を有する為、両者が相互作用する際はお互いが好む回転の向きの相対関係が

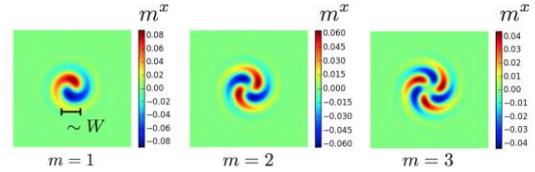


図 6：静磁場中の 2 次元磁性体に共鳴周波数をもつ光渦レーザーパルス照射した際の横磁化  $x$  成分( $m^x$ )のスナップショット。光渦照射前の磁性体の初期状態をスピンの  $z$  方向に完全分極した強磁性状態に設定している( $m^z=1$ )。色の濃淡が光渦によって発生する  $m^x$  の大きさと符号を表している。光渦の軌道角運動量  $m$  の値が増加すると、角度  $\phi$  方向に 1 回転する際に  $m^x$  が符号変化する節の数が増加している。

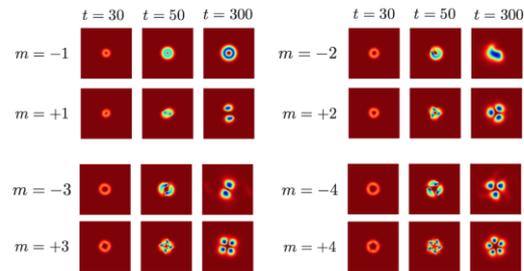


図 7：強力かつ集光された THz 円偏光光渦ハーフサイクルパルス照射した際の典型的なスピンダイナミクスの様子(時刻  $t=0$  で照射開始)。濃淡が各点の磁化  $m^z$  の大きさと符号を示している。  $t=1$  がおよそ 0.1-1 ピコ秒に相当する。丸い生成物 1 つがスキルミオン 1 個に対応する。光渦の軌道角運動量子数  $m$  に対して、  $\text{sgn}(m)(m+1)$  個のスキルミオンが生成している。  $m=-1$  のときだけは、スキルミオンではなくリング状のスキルミオニウムが生成する。

重要になると予想される。図 7 に、カイラル強磁性体薄膜の準安定強磁性状態に 1-10 テスラレベルの磁場強度を持つ THz 円偏光光渦ハーフサイクルパルス照射した際の磁化の時間発展を示してある。予想通り、光渦の軌道角運動量の符号に対して非対称な磁気欠陥の生成が起きている。すなわち、量子数  $m$  をもつ光渦パルスの照射で  $\text{sgn}(m)(m+1)$  個のスキルミオンが生成している。強磁性体における光渦磁気共鳴と同様に、図 7 の THz 光渦パルスによる複数スキルミオン高速生成も軌道角運動量の情報がカイラル磁性体に転写される新しい現象といえる。スキルミオンが 10-100 ピコ秒程度で生成しており、これは 2 章の加熱効果によ

る磁気欠陥生成や既存の電流によるスキルミオン生成より圧倒的に高速な現象である。また、複数のスキルミオンを同時に生成できることは光渦の大きな特性である。

図 6 や 7 の高速スピンドYNAMICSを生成する為の光渦や磁性体のパラメータ(電磁場強度, 集光サイズ, DM 相互作用の大きさ, など)については原論文[8]を参照されたい。

#### 4. まとめと展望

本稿では、主に磁性絶縁体に焦点を当て、レーザー光により磁性を高速制御する方法に関する我々の最近の理論研究成果を、できるだけ数式を使わずに、紹介した。2章では、フロケ・エンジニアリングの基本的アイデアを解説し、それを応用することで、反対称ME結合を持つマルチフェロイクス物質群に円偏光レーザーを印加するとスピнкаイラリティやスピ流が生成可能であることを予言した[6]。3章では、軌道角運動量を持つレーザーである光渦による高速磁性制御についての研究を紹介した[7,8]。高周波数光渦の加熱効果を利用すると、カイラル磁性体において円形の磁気欠陥であるスキルミオンやスキルミオニウムを系統的に生成可能であることをLLG方程式に基づく数値解析から明らかにした。十分集光されたTHz光渦を利用すれば、強磁性体において空間非一様なスピ波を伝搬させ、スカラーカイラリティや異常ホール効果を誘導させられることを示した。さらに高強度THz光渦ハーフサイクルパルスをカイラル磁性体にうまく照射すると、光渦の軌道角運動量の値に応じて複数のスキルミオンを同時に超高速生成することも明らかにした。我々が理論的に発見したTHz光渦による超高速磁気現象は、光渦の軌道角運動量を磁性体への転写させる方法を提供している。

レーザー駆動スピントロニクスの研究はまだまだ広い未開拓領域を有している。光誘起現象は本質的に非平衡現象であり、それを微視的に表現できる理論のさらなる発展が今後望まれる。磁性及び光科学はそれぞれ長い歴史を持つ。これら2分野の知識を融合すれば、さらに多彩なレーザー駆動現象を実現できるに違いない。例えば、これまでのレーザー駆動磁気現象では、強磁性体や反強磁性体などのありふれた磁性体のみを対象としているが、より多彩な磁気構造や磁気励起を保有する磁性体が無数に存在する[35]。一方、光渦を含む空間構造を持つ電磁場は光科学分野では既に市民権を得ているが、そのスピントロニクスへの応用は

我々の研究[7,8]がほぼ初めてといっても良い。今後も、次々と未開拓のレーザー駆動磁気現象が予言・発掘されていくだろう。

#### 謝辞

2章の内容は、高吉慎太郎氏(ジュネーブ大)と岡隆史氏(マックスプランク研究所)との共同研究に基づいている。3章の内容は、藤田浩之氏(東京大学物性研究所大学院生)との共同研究に基づいている。これらの共同研究者の方々に感謝申し上げたい。また本稿の成果は、科研費(17K05513, 15H02117), 新学術領域「ナノスピ変換科学」の公募研究(17H05174), ERATO 齋藤スピ量子整流プロジェクトの支援を受けて実施された。

#### 参考文献

- [1] A. V. Kimel, et al., *Nature* **435**, 655 (2005).
- [2] C. D. Stanciu, et al., *Phys. Rev. Lett.* **99**, 047601 (2007).
- [3] A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and T. Rasing, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731 (2010).
- [4] S. Takayoshi, M. Sato, and T. Oka, *Phys. Rev. B* **90**, 214413 (2014).
- [5] M. Sato, Y. Sasaki, and T. Oka, arXiv:1404.2010.
- [6] M. Sato, S. Takayoshi, and T. Oka, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 147202 (2016).
- [7] H. Fujita and M. Sato, *Phys. Rev. B* **95**, 054421 (2017).
- [8] H. Fujita and M. Sato, *Phys. Rev. B* **96**, 060407 (R) (2017).
- [9] 佐藤正寛, 高吉慎太郎, 岡隆史, *日本物理学会誌* vol. **72**, 783 (2017).
- [10] T. Oka and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **79**, 081406 (R) (2009).
- [11] T. Kitagawa, et al., *Phys. Rev. B* **84**, 235108 (2011).
- [12] A. Eckardt, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 011004 (2017).
- [13] T. Mikami, et al., *Phys. Rev. B* **93**, 144307 (2016).
- [14] T. Kuwahara, T. Mori, and K. Saito, *Ann. Phys.* **367**, 96 (2016).
- [15] 例えば, 斯波弘行, 「基礎の固体物理学」(培風館, 2017).
- [16] T. Kimura, et al., *Nature* **426**, 55 (2003).
- [17] H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 057205 (2005).
- [18] Y. Tokura, S. Seki, and N. Nagaosa, *Rep. Prog. Phys.* **77**, 076501 (2014).
- [19] 有馬孝尚, 「マルチフェロイクス」(共立出版, 2014).

- [20] 例えば, 芳田圭, 「磁性」 (岩波書店, 1991).
- [21] *Spin Current*, edited by S. Maekawa, et al., (Oxford Univ. Press, UK, 2012).
- [22] 齊藤英治, 村上修一, 「スピン流とトポロジカル絶縁体」 (共立出版, 2014).
- [23] L. Allen, et al., Phys. Rev. A **45**, 8185 (1992).
- [24] *The Angular Momentum of Light*, edited by D. L. Andrews, and M. Babiker (Cambridge Univ. Press, 2012).
- [25] 戸田泰則, 物性研究・電子版 (2015年2月号) 041205.
- [26] 例えば, S. Seki and M. Mochizuki, *Skyrmions in Magnetic Materials* (Springer, Berlin, 2016).
- [27] A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio, Nature Nanotechnol. **8**, 152 (2013).
- [28] W. Koshibae and N. Nagaosa, Nature Comm. **5**, 5148 (2014).
- [29] T. Arikawa, S. Morimoto, and K. Tanaka, Opt. Express, **25**, 13728 (2017).
- [30] K. Shibata, et al., Nature Nanotechnol. **8**, 723 (2013).
- [31] K. Ohgushi, S. Murakami, and N. Nagaosa, Phys. Rev. B **62**, R6065(R) (2000).
- [32] Y. Taguchi, et al., Science **291**, 2573 (2001).
- [33] R. Shindou and N. Nagaosa, Phys. Rev. Lett. **87**, 116801 (2001).
- [34] G. Tatara and H. Kawamura, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 2613 (2002).
- [35] 例えば, L. Balents, Nature **464**, 199 (2010).