

光渦レーザーによる磁性体ナノ構造の超高速制御法についての理論的提案

Theoretical Study for Ultrafast Control of Nano-Magnetic Structures with Optical Vortices

佐藤正寛*, 藤田浩之**

*茨城大学 理学部 および 大学院量子線科学専攻
(〒310-8512 茨城県水戸市文京 2-1-1)

**東京大学 物性研究所
(〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5)

Masahiro SATO*, Hiroyuki FUJITA**

*Ibaraki University, Department of Physics,
(2-1-1 Bunkyo, Mito, Ibaraki 310-8512, Japan)

E-mail: masahiro.sato.phys@vc.ibaraki.ac.jp

**University of Tokyo, The Institute for Solid State Physics
(5-1-5 Kashiwa-no-ha, Kashiwa, Chiba 277-8581, Japan)

近年、光渦ビーム（軌道角運動量を持つレーザー）の多彩な応用が提案されている。特に可視光領域の光渦の研究が精力的に実施されており、光渦によるmmから μm スケールの物質加工や微粒子の運動制御が実現している。しかしながら、光渦の研究において、より微視的または量子的自由度の制御はこれまでほとんど考察されていない。本研究では、 μm 程度からそれ以下のスケールまで集光された光渦を磁性体に巧く照射することで、ナノ磁気構造やトポロジカルな磁気欠陥を超高速（ピコ秒程度）に生成・制御する方法を理論的に考察する。我々は、磁気秩序状態のスピンダイナミクスを良く記述するランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式に基づく数値解析により、(i)可視光を含む高周波数光渦の加熱効果を利用する方法と(ii)プラズモニクス技術を利用して回折限界を超えて集光されたテラヘルツ帯光渦を利用する方法を提案する。

Applications of optical vortex (laser beam carrying orbital angular momentum) is one of hottest topics in current optics. Particularly, the optical vortex in visible-light range has been intensively studied, and as a result, the control of milli- or micro-meter scale objects have been realized with the beam. However, so far most of studies have not well argued the application of controlling more microscopic degrees of freedom such as electrons or atoms. This study considers new ultrafast ways of generating nano magnetic structures or topological magnetic defects with optical vortices. On the basis of numerical calculations with Landau-Lifshitz-Gilbert equation, we have succeeded in proposing two applications of vortex beams: (i) Way of utilizing heating effect of high-frequency optical vortex (visible, ultraviolet, and X-ray ranges) and (ii) Way of using superfocusing Tera Hz vortex beam with plasmonics techniques.

Key words: Optical vortex, Orbital angular momentum, Topological magnetic defects, Landau-Lifshitz-Gilbert equation

1. はじめに

光渦とは軌道角運動量をもつレーザービームであり、円筒座標系において円筒の軸方向に進行する電磁波（真空中のMaxwell方程式の解の1つ）として定義される。このビームは、1992年にAllenらによってはじめて提案され¹、現在まで高周波数帯（X線、紫外線、可視光）からテラヘルツ帯までを含む幅広い周波数領域において、その生成方法が確立・発展している²。特に、可視光領域の光渦の応用は

活発に議論されており、通常のガウシアンビーム（軌道角運動量ゼロのレーザー）とは異なる光渦特有の性質を利用した物質加工法や微小粒子の運動の制御などが実現している。しかしながら、固体物性科学において主要な研究対象である電子・電子スピン・結晶格子などを含む微視的自由度の運動を光渦により制御する方法はこれまでほとんど考察されていない。これは、最近10年ほどの間に通常のガウシアンビーム（直線・円偏光レーザー）による固体物性研究^{3,4,5}が飛躍的に発展していることと対照的であ

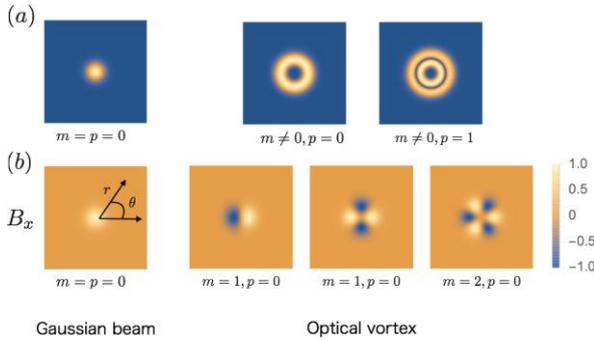


図1 (a) 光渦の電磁場強度分布と(b) x 方向に直線偏光した光渦の磁場振幅のスナップショット. 両図とも z 軸方向に進行する光渦の z 軸に垂直面内の分布を表している. 光渦には, 軌道角運動量の量子数 m (整数), 動径方向の節 (ゼロ点) の数を決定するパラメータ p (ゼロまたは正の整数), 光渦の広がりを表すウェスト W (正の実数) の3つの重要なパラメータがある.

る. 本研究では, 光渦を磁性体に適切に照射することで μm から nm スケールの磁気構造を高速で変化させる方法を理論的に考察する^{6,7}.

これまでの光渦による物質加工・制御の研究の中で, 尾松らによる金属板に光渦を照射する実験^{8,9}は光渦ビームの特性を明白に示す典型的な実験の一つと言える. この実験では, 強力な光渦を金属板に照射し金属を蒸発させている. ガウシアンビームと異なり, 光渦は軌道角運動量を持つ為に, 照射光の中心部で強度がゼロとなるリング状の強度分布を持つ (2.1 節参照). それ故, ガウシアンビームによる金属板蒸発では単純な穴の構造が生成されるのに対して, 光渦では穴の中心に蒸発せずに針状 (ニードル) の構造が生き残ることになる. このとき, 照射する光渦の軌道角運動量の正負に応じて, ニードルに時計回りまたは反時計回りのらせん構造が刻まれる. この実験結果は, 光渦の軌道角運動量の情報が金属板のニードルに「転写」された, と解釈することができる. 我々は本研究において, これの微視的バージョンを狙う. すなわち, 光渦の軌道角運動量に代表される特徴的な情報を, 磁性体の電子スピン配置の中に「書き込む」方法を提案する.

レーザー光やレーザーパルスによる磁気構造の制御は, エレクトロニクスや固体物性研究で良く知られている電流や静磁場による伝統的な磁性制御方法に比べて圧倒的に高速である. これはレーザー光の特徴的な時間スケールが当然レーザーの周波数で決定するためである. 本研究では, 特にスキルミオンなどのトポロジカルな磁気欠陥^{10,11,12} (2 節参照) の光渦による高速生成法に焦点を当てる. これらの磁気欠陥群はエネルギー的に安定で長寿命であることが知られており, それ故, 次世代のスピン트로ニ

クス^{13,14} デバイスの新しい情報伝達キャリアとしても注目されている. このような背景から, 本研究で提案する光渦の応用方法は, 基礎科学的成果としてだけでなく, 工学的観点からも新しい成果に成り得ると期待することができる.

2. 光渦ビームと磁性体

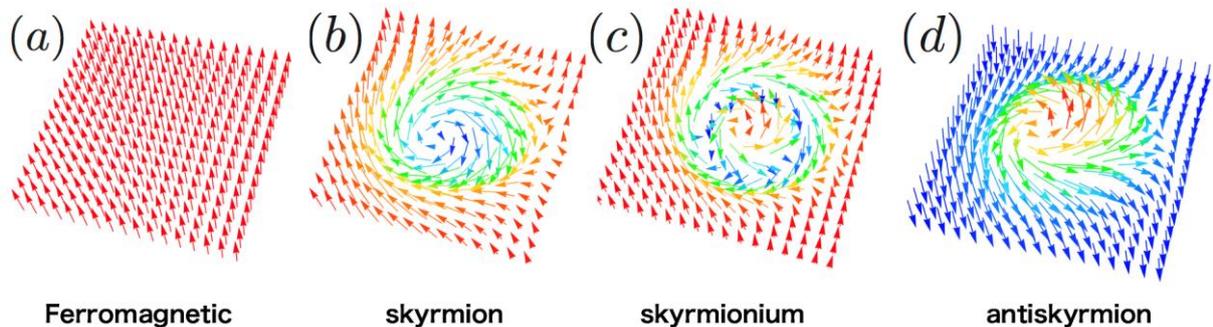
2.1 光渦の特性

ここでは光渦ビーム^{1,2}の特性を簡単に解説する. 繰り返しになるが, 光渦とは軌道角運動量をもつレーザービームである. 光渦はしばしば円偏光と混同されるが, 左右円偏光レーザーはスピン角運動量が $+1$ と -1 のレーザー光であり, スピンは光渦が持つ軌道角運動量は別の概念である.

円筒座標系 (r, θ, z) において, レーザーの伝搬方向を z 方向と指定し, z 軸と垂直な面の動径方向を r , 角度方向を θ で表すことにする. 原点 $r=0$ を光渦の中心とすると, 光渦が軌道角運動量を持つ為, $r=0$ でその電場 (または磁場) 強度がゼロにならねばならない. これが1つ目の光渦の特性である. 光渦の軌道角運動量は角度 θ 方向の過度で定義され, 原点 $r=0$ は過度が定義できない特異性を持つ. 原点での強度消失は, この特異性を回避するために光渦が満たすべき条件である. 水素原子の電子軌道の中で, 軌道角運動量がゼロの s 軌道のみが原子核の位置における存在確率を有することを思い出せば, 光渦のこの特性も容易に理解できるだろう. この特性のため, 光渦の (r, θ) 面内における電場強度分布は図1(a)のように必ずリング状になる. 一方, 通常の軌道角運動量を持たないガウシアンビームでは, 原点 $r=0$ に特異性は存在せず原点で電磁場強度が最大値をとる.

もう一つの光渦の特性は, やはり軌道角運動量を持つという点である. z 方向に伝搬する円偏光ガウシアンビームの (r, θ) 面における電磁場の向きは, 時間とともに回転するが, 空間的には任意の時刻で等方的である. 一方, 光渦の場合, 任意の時刻での (r, θ) 面における電磁場の大きさは角度 θ に依存して変化する. 図1(b)に示したように, 軌道角運動量量子数 m (m は整数) の光渦では, 時刻を止めて θ を原点周りで 0 から 2π まで1周させたとき, 電場 (または磁場) 振幅がゼロになるゼロ点が $2|m|$ 回現れる. 以上のように, リング状の電磁場強度分布 (動径方向の特性) と角度方向に非一様な電磁場分布 (角度方向の特性) の2つが, 光渦ビームの特性と言える.

2.2 光渦と磁性体の相性



(a) Ferromagnetic **(b) skyrmion** **(c) skyrmionium** **(d) antiskyrmion**

図2 幾つかの磁性体の磁気構造. 矢印は電子スピンの向きを表している. (a) 強磁性相. 全スピンの上向き状態. (b) スキルミオンの構造. 上向き強磁性秩序の背景の中で, 中心部でスピンの下を向いた状態. (c) スキルミオニウムの磁気構造. 外側から内側に向かってスピンのアップ-ダウン-アップと変化し, リング構造が形成されている. (d) アンチ・スキルミオンの構造. (a)-(c)とは異なり, 下向き強磁性秩序の中で中心が上を向いた構造である. スキルミオニウムは, スキルミオンとアンチ・スキルミオンが結合した構造とみなすことが出来る.

本研究では, 光渦ビームに特有の性質を有効に利用して, 光渦による磁性体の超高速スピンドYNAMIKSの制御方法を提案する. そのためには, どのような光渦をどのような磁性体に照射すべきか, という問いを考察する必要がある. 2.1 節で解説したように, 光渦の特性は, その空間異方的な電磁場分布にあるといえる. 従って, 磁性体に空間依存性のある磁気構造の生成させることが, 光渦ならではの新しい物性制御法を提案する近道と考えられる.

まずは, 光渦のターゲットとなる磁性体を考えよう. 磁性研究¹⁵には非常に長い歴史があり, 現在まで多彩な磁気秩序状態を持つ磁性体が発見・合成されている. この中でターゲットとして最初に連想されるのは, やはり強磁性体(いわゆる磁石)である. 強磁性体では, すべての磁性イオンの電子スピンの特定の方向に分極しており, 空間的に一様な磁気秩序が形成されている. この強磁性相に光渦を照射して空間的に非一様な磁気構造を生成する方法を探索することは, 光渦の磁性制御特性を調べる上で, 最も単純で素直な方針といえよう.

もう一つのターゲットとして, ここではカイラル強磁性体を考える. カイラル磁性体とは, 空間反転対称性が破れた結晶構造を持つ磁性体であり, そのような系ではしばしば, 強磁性や反強磁性秩序を誘導する通常の2つのスピン間の交換相互作用の他に, 2スピンの外積で定義されるジャロシンスキー守谷(DM)相互作用^{16,17}が見れる(3.2節参照). あるクラスのカイラル磁性体では, 交換相互作用とDM相互作用の競合により図2のようなスキルミオンやスキルミオニウムと呼ばれるナノスケールの磁気構造^{10,11,12}が発生することが知られている(3.2節参照). スキルミオンの大きさはDM相互作用と交換相互作用の大きさの比で決定し, これまでの研究から, 10nmから1000nm(1 μ m)程度の大きさのスキルミオンを持つカイラル磁性体が発見・合成されている. この円形の磁気構造は, 光渦の空間構造と相性が良いように予想される訳である.

続いて, 光渦による磁性制御を考える上で, 光渦と磁性体両者の空間及び時間スケールを考えなければならぬ. 磁性結晶において最小の空間スケールは結晶格子の格子間隔(磁性イオン間の距離)であり, これはオングストロームからnm程度の長さである. また上で触れたスキルミオンの典型的な大きさは高々1000nmである. 従って, 光渦の空間構造を磁性体に「刻み込む」には, やはり1000nm程度に絞られた光渦が最適であろうと推測される. 一般に, レーザー光の広がり極小値は, おおよそレーザーの波長(回折限界)に等しい. 従って1000nm以下に絞られた光渦を得るには, 可視光(波長800nm以下)からX線(波長10nm以下)の波長領域の光渦が必要となる. この光渦の周波数帯は, 100テラヘルツ(Tera Hz: テラ=10¹²)から100ペタヘルツ(Peta Hz: ペタ=10¹⁵)の範囲にある. ところが, 磁性体中の電子スピンの集団運動(スピン波など)の典型的な時間スケールは, 1テラヘルツから1ギガヘルツ(Giga Hz: ギガ=10⁹)程度である. すなわち, 高周波数帯光渦の振動は, 磁性体のスピンにとっては速すぎて, スピンはそれを直接感じ取ることができない.

この光渦と磁性体の時空スケールのミスマッチを解決するために, 本研究では以下の2つの戦略を採用する. 一つ目は, 可視光からX線領域の高周波数帯光渦の加熱効果により磁性を制御する方法である. 上記のように, 高周波数の光渦の電磁場をスピンは直接感じ取ることができないが, 磁性体にはスピン以外の電荷や格子振動などの自由度があり, 少なくともそれらの一部は高周波数レーザーの電磁場と直接結合し, 超高速で様々な励起モードが発生する. それら励起によるエネルギーは, スピンドYNAMIKSよりも高速で(ピコ秒程度で)他の自由度に受け渡され(緩和過程), 最終的にスピンは熱として他自由度の高速ダイナミクスを感知することになる. 磁性体の各点で発生する温度上昇は光渦強度の空間分布に比例するはずであり, この加熱効果をモデル化することで光渦による磁性制御の理論的予

言を得ることができると考えられる。

もう一つの戦略は、最近発展の著しいプラズモニクス技術に基づいた近接場^{18,19,20}を利用する方法である。既に触れたように、光渦と磁性体を直接相互作用させるには、Tera Hz 領域の光渦が最適といえる。近年、高周波数帯のみならず Tera Hz 帯の光渦も実現しているが、その回折限界は 1000-100 μm 程度である。この程度の広がりを持つ光渦を磁性体に照射しても、スピンにとって光渦の電磁場の空間変化があまりにも緩やかである為、スピンは空間的に一様な電磁場を持つガウシアンビームを照射されているように誤解してしまうだろう。しかし、近年、周波数をほとんど変えずに回折限界を超えてレーザー光を絞る方法がプラズモニクス技術に基づいて近年急速に発展している。実際ごく最近、京都大学田中グループにより、数 100 μm 程度の広がりを持つ Tera Hz 光渦を数 10 μm 程度まで絞り込むことに成功している^{19,20}。本研究では、Tera Hz 光渦が 1 μm またはそれ以下まで絞り込まれることを仮定して、光渦と磁性体の相互作用を微視的に解析し、新しい光渦による磁性制御法を提案する。

3. 磁性体模型とスピンドイナミクス

光渦ビームを照射された磁性体の理論解析に入る前に、磁性体の模型とその静的（熱平衡状態における）性質、さらに磁性体のスピンドイナミクスを記述するランダウ・リフシッツ・ギルバート方程式について簡単に解説する。光渦の強度が十分強ければ、3次元の磁性体に光渦を照射した際に、表面近傍だけでなく、かなり内部のスピンまで光渦を感じ取ることができるだろう。しかし本研究では、現象の本質を見極める為に、単純な2次元薄膜の磁性体のみを考察することにする。

3.1 強磁性体

強磁性体¹⁵とは、その名の通り、ある相転移温度以下で磁性結晶のスピンがすべて同じ方向に分極し、強磁性秩序相が実現する系を指している。この系を表現する最も典型的現実的模型の一つは、強磁性ハイゼンベルグ模型である。2次元正方格子上で定義されるハイゼンベルグ模型のハミルトニアンは

$$H_{\text{FM}} = -J \sum_{\mathbf{r}} \mathbf{m}_{\mathbf{r}} \cdot (\mathbf{m}_{\mathbf{r}+a\mathbf{e}_x} + \mathbf{m}_{\mathbf{r}+a\mathbf{e}_y}) - H_z \sum_{\mathbf{r}} m_{\mathbf{r}}^z$$

で与えられる。ここで $\mathbf{m}_{\mathbf{r}} = (m_{\mathbf{r}}^x, m_{\mathbf{r}}^y, m_{\mathbf{r}}^z)$ が格子点 \mathbf{r} における電子スピンを表しており ($|\mathbf{m}_{\mathbf{r}}| = 1$ に規格化する)、第1項の隣接スピン間の内積型結合が交換相互作用である。結合定数 J を正 ($J > 0$) に設定することで隣接スピン同士が同じ方向を向いた方がエネルギー的に安定化することになり、強磁性秩序が実現する。パラメータ a は格子間距離を表し、 $\mathbf{e}_x =$

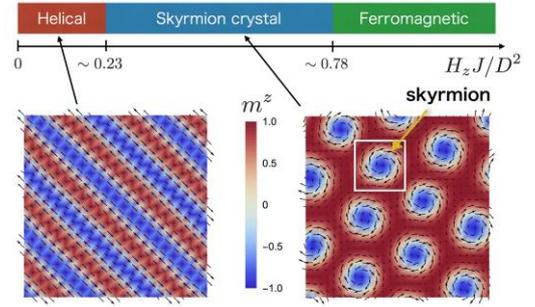


図3 2次元カイラル強磁性体模型の磁場中基底状態相図。磁場を増加させていくと、ヘリカル相、スキルミオン格子相、強磁性相が現れる。スキルミオン格子相では、スキルミオンが周期的に配列し、スキルミオンの3角格子が形成されている。下段の2図はヘリカル相とスキルミオン格子相のスピン配置である。色の濃淡が各点のスピン z 成分を、小さな矢印がスピン x, y 成分を表している。

$(1,0)$ と $\mathbf{e}_y = (0,1)$ は各々 x, y 方向の単位ベクトルである。第2項は、 z 方向に印加した外部静磁場 H_z によるゼーマン相互作用である。磁場 H_z を加えることにより、強磁性相においてスピンは z 方向に分極することになる。

3.2 カイラル強磁性体薄膜

近年、強誘電磁性体（マルチフェロイクス）^{21,11} やスピントロニクス^{13,14}の分野において、カイラル磁性体の研究が精力的に行われている。2.2節でも少し触れたが、カイラル磁性体とは空間反転対称性が破れた結晶で実現する磁性体であり、そのような系ではしばしばDM相互作用が現れる。代表的な2次元正方格子上のカイラル強磁性体模型¹¹のハミルトニアンは

$$H_{\text{Chiral}} = -J \sum_{\mathbf{r}} \mathbf{m}_{\mathbf{r}} \cdot (\mathbf{m}_{\mathbf{r}+a\mathbf{e}_x} + \mathbf{m}_{\mathbf{r}+a\mathbf{e}_y}) - H_z \sum_{\mathbf{r}} m_{\mathbf{r}}^z + \sum_{\mathbf{r}, i} \mathbf{D}_i \cdot (\mathbf{m}_{\mathbf{r}} \times \mathbf{m}_{\mathbf{r}+a\mathbf{e}_i})$$

で与えられる。第1, 2項は強磁性体模型と等価であり、第3項がDM相互作用^{15,16,17}である。 x, y 方向に延びるボンドのDMベクトルが $\mathbf{D}_{x,y}$ であり、この値や向きは磁性結晶の種類に大きく依存する。ここでは、 $\mathbf{D}_{x,y} = D\mathbf{e}_{x,y}$ のDMベクトルを採用する。この模型は、カイラル磁性体薄膜 MnSi や Cu_2OSeO_3 の磁性を記述するミニマル模型¹¹として広く知られている。交換相互作用が隣接スピンを平行に並べて強磁性状態を生成しようとするのに対して、DM相互作用は隣接スピンの外積で定義される為、隣接スピンの相対角度を90度（すなわち垂直）にしてエネルギーを低下させようとする。この2つの相互作用の競合により強磁性体とは異なる磁気構造が現れることになる。

このカイラル強磁性体模型の熱平衡状態は詳しく調べられており、基底状態の静磁場 H_z 中の相図は図

3の通りである。磁場が弱い領域では、交換相互作用とDM相互作用の競合により隣接スピン間角度がゼロ度と90度の間の適当な角度をとり、らせん型の（ヘリカル）磁気秩序が現れる。中程度の静磁場を印加すると、磁場 H_z によるゼーマンエネルギーの利得を増加させる為、できるだけスピンを磁場と同じ方向を向かせて強磁性状態を実現しようとするが、一方でDM相互作用によるエネルギーも低下させたいという要請から、ところどころで隣接スピン間角度がゼロ度からずれて、結果として図3に示したように、スキルミオン（図2参照）が周期的に並んで3角格子を成したスキルミオン格子相が実現する。さらに磁場 H_z を強めると、DM相互作用を損なわせても交換相互作用とゼーマン相互作用を得させる為、強磁性相が実現する。

スキルミオンが安定的に存在するスキルミオン格子相はカイラル磁性体模型の最も特徴的な磁気秩序相と言える。4節において光渦をカイラル磁性体に照射する際は、このスキルミオン格子相に焦点を当てておくことにする。

1節の最後でも触れたが、このカイラル磁性体模型で実現するスキルミオンやスキルミオンウムはトポロジカルに安定な磁気欠陥の代表格であり、一度生成されるとすぐには消滅せず存在し続ける（寿命が長い）ことが知られている^{10,11,12}。またスキルミオンは、電流や熱勾配などの外圧により比較的容易に移動可能であることが示されている^{22,23}。これらの性質から、この磁気欠陥群は、基礎科学的な観点からだけでなく、スピントロニクスにおける新デバイスの情報伝達のキャリアとしても注目され、その研究が活発に実施されている。

3.3 スピンドायナミクス

上の2つの節において、本研究で考える磁性体の平衡状態における性質を解説した。ここでは、その磁性体に光渦ビームを照射した際のスピンドायナミクスをどのように記述するか、について解説する。第1原理的には、強磁性体またはカイラル磁性体の模型に従って、量子力学的な運動方程式であるシュレディンガー方程式やハイゼンベルグの運動方程式を解けば、各格子点 \mathbf{r} 上の電子スピンの時々刻々の変化を予言することができる。しかしながら、我々がここで考える強磁性相やスキルミオン格子相のような磁気「秩序」状態におけるスピンドायナミクスは現象論的（半古典的）な運動方程式であるランダウ・リフシッツ・ギルバート（LLG）方程式¹¹で良く記述できることが知られている。LLG方程式は

$$\frac{d\mathbf{m}_{\mathbf{r}}}{dt} = -\mathbf{m}_{\mathbf{r}} \times \mathbf{H}_{\text{eff}} + \alpha \mathbf{m}_{\mathbf{r}} \times \frac{d\mathbf{m}_{\mathbf{r}}}{dt}$$

である。左辺は格子点 \mathbf{r} のスピン $\mathbf{m}_{\mathbf{r}}$ の時間微分を表

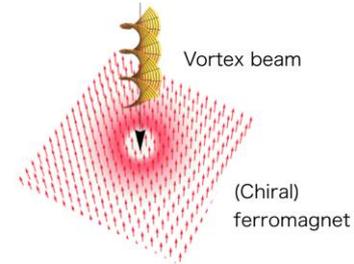


図4 本研究で考える実験設定。磁性体薄膜に十分に集光された光渦レーザーを照射する。

し、右辺第1項は格子点 \mathbf{r} のスピン $\mathbf{m}_{\mathbf{r}}$ が周りのスピンによって構成される有効磁場 \mathbf{H}_{eff} を感じて歳差運動する効果を表している。この有効磁場は模型のハミルトニアン H を用いて $H'_{\text{eff}} = -\partial(H/J)/\partial \mathbf{m}'_{\mathbf{r}}$ で定義される ($\gamma = x, y, z$)。Tera Hz の光渦を磁性体に照射する際は、3.1と3.2節で定義した磁性体の静的ハミルトニアンに、光渦と磁性体の相互作用 $H(t)$ を加えたもの (t は時刻) が、LLG方程式の有効磁場の定義に現れる H に対応する。本論文では、 $H(t)$ として、電磁波とスピンの最も基本的な相互作用であるゼーマン相互作用 $-\mathbf{B}(\mathbf{r}, t) \cdot \mathbf{m}_{\mathbf{r}}$ を考えることにする。 $\mathbf{B}(\mathbf{r}, t)$ は光渦の位置 \mathbf{r} 時刻 t における光渦レーザーの磁場である。右辺第2項は、模型の中には取り込まれていない双極子相互作用や周囲の環境の影響で生じる歳差運動の緩和を表す現象論的な項（ギルバート緩和項）である。通常の磁性体では、緩和の強さを表す無次元パラメータ α の値は 0.1 からそれ以下程度である。

上記 LLG 方程式は、温度 $T = 0$ の基底状態、または十分低温で磁気秩序状態が安定に実現している状況におけるスピンドायナミクスを記述する。しかし、2.2節で述べた光渦の加熱効果を議論するには、有限温度や加熱効果を考慮に入れた運動方程式を扱う必要がある。詳細は省略するが、有効磁場 \mathbf{H}_{eff} に時間変動するランダムな外場を付け加えることで LLG 方程式の枠組みの範疇で温度効果を取り込んだスピンの運動方程式 (stochastic LLG (sLLG) 方程式と呼ばれる) を構築できる¹¹ことが知られている。光渦の加熱効果はこの sLLG 方程式を用いて解析する。

4. 光渦ビームによる磁性制御

本節では、2.2節で提案した(i)高周波数の光渦の加熱効果による磁性制御法⁶と(ii)回折限界を超えて集光された Tera Hz 光渦による方法⁷の解析結果を紹介する。光渦が誘導するスピンドायナミクスを3節で解説した理論的道具を用いて定量的に解析する。本研究で考える実験設定は極めてシンプルである。図4のように、磁性体薄膜に光渦レーザーを印加する状況を考える。本節の内容が本研究の主要な結果

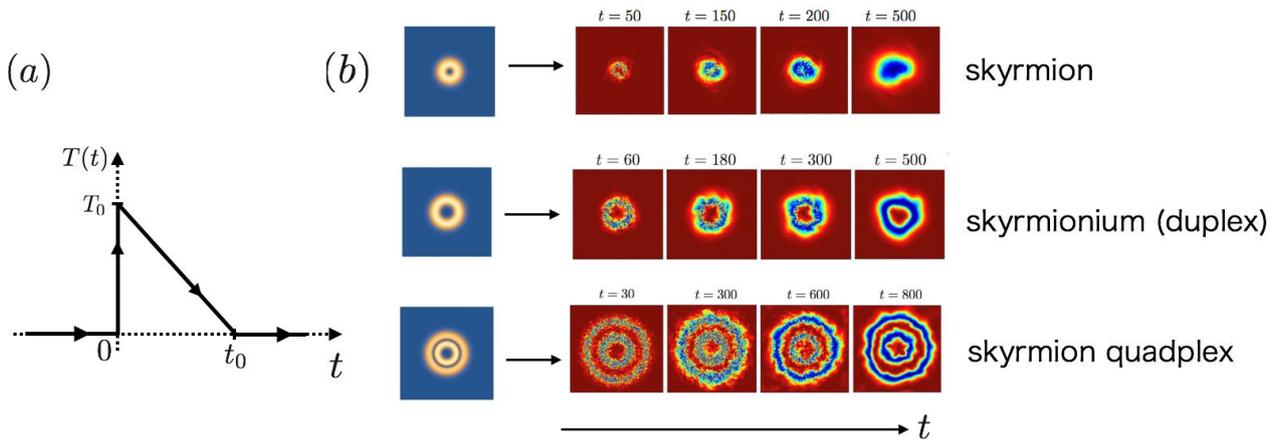


図5 (a) 本研究では、高周波数光照射で生じる磁性体の温度変化として、この図のような関数形を採用する。時刻 $t=0$ で光渦を印加し一気に温度を上昇させ、その後ゆっくり温度を低下させる。(b) 3種類の光渦を照射した際の典型的な磁気欠陥の生成過程。時間発展の図において、色の濃い部分が磁化の z 成分 m_z が+1と-1に対応する。薄い部分は、 m_z が小さくスピン x,y 成分が大きい領域である。リング半径が小さい光渦を照射するときはスキルミオンが、ある程度大きなリングを持つ光渦を照射するとリング構造の磁気欠陥であるスキルミオニウムが、2重リングの光渦を照射すると2重リングの磁気欠陥 (quadplex) が生成する。150a×150aの正方形の強磁性体模型 ($J=1$, $H_z \cong 0.01$, $D=0.15$) の準安定強磁性状態にウェスト $W=10a-30a$ 程度の広がりを持つ光渦を照射している。ギルバート緩和項は $\alpha=0.1$ に設定し、 $J=h/(2\pi)=1$ で各パラメータを規格化している。加熱において、 $T_0=1-4$ 程度、 $t_0=500$ 程度に設定している。例えば $J=1[\text{meV}]$ の場合、 $H_z=0.17[\text{T}]$ であり、温度 $T=1$ と時間 $t=1$ は各々 $11.6[\text{K}]$ と $0.7 \times 10^{-12}[\text{sec}]=0.7[\text{ps}]$ に対応する。

である。

4.1 高周波数帯光渦の加熱効果

まず、高周波数帯 (可視光、紫外線、X線) 光渦を磁性体に照射して磁性体を加熱した際の磁気構造の超高速変化を解析する⁶。レーザーによる温度上昇は各点における光渦の電磁場エネルギー (電磁場振幅の絶対値の2乗) に比例すると仮定すると、ガウシアンビームでは円形の、光渦ビームではリング状の温度上昇が発生することになる (図1参照)。この温度効果は前節の sLLG 方程式を用いて取り込むことができる。光渦を強磁性体に照射する場合、照射後に十分時間が経過すると、系が元の強磁性相に緩和してゆくことが容易に推測できる。一方、カイラル強磁性体ではスキルミオンなどの安定な磁気欠陥が存在できる為、カイラル磁性体に光渦を巧く照射して磁気欠陥が発生すれば、照射後もそれらは生き残ることが予想される。このような考察から、以下では、カイラル強磁性体に限定して光渦の加熱効果を解析する。

さて、光渦の加熱効果を sLLG 方程式に基づき数値解析する上で、幾つかの重要なパラメータを決めなければならない。まず、どのような初期状態を選択すれば良いだろうか。ここでは、図2の相図中でスキルミオン格子相の位置ではあるが強磁性秩序が実現している準安定状態を初期状態とする。この状態は、光渦レーザーの加熱効果によりスキルミオンなどの磁気欠陥が生成しやすい環境といえる。強磁性相とスキルミオン格子相間の相転移が1次相転移であるため、この準安定状態を用意することは現実の系でも十分可能である。第2に、光渦のリングの

大きさを決める必要がある。磁気欠陥生成を第1目標とするならば、ターゲットとなるカイラル磁性体で実現するスキルミオンと同程度の大きさのリングを持つ光渦を用意することが最適と推測される。既に述べたように、スキルミオンの典型的な大きさは10-1000 nmであり、可視光以上の高周波数帯光渦であれば、同程度のサイズまで集光することが可能である。第3に、光渦により上昇する温度の値を設定しなければならない。磁気秩序は一般に対象とする磁性体の相互作用エネルギー (交換相互作用) により安定化されているため、交換相互作用 J またはそれ以上の温度上昇を誘導すれば各電子スピンの時々刻々大きく揺らぎ磁気欠陥が生成しうると考えられる。最後に、光渦の照射時間を決める必要がある。この値の最適値をすぐに推測することは難しい。我々は何度も sLLG 方程式による数値解析を試みた結果、図5(a)のような瞬間的に加熱しゆっくりと温度低下させるアニール型の温度変化を設定すると、磁気欠陥の生成確率が高くなることを突き止めた。

上記のような状況設定における sLLG 方程式の解析で得られる典型的な磁気欠陥の高速生成過程を図5(b)に示した。この図から、リングの大きさや数に応じて、異なる磁気欠陥を選択的に生成できることが分かる。これまでにスキルミオンを生成する方法は幾つか^{11,24,25}提案されているが、より複雑なスキルミオニウムや2重リングの quadplex を含めた複数種類の磁気欠陥を選択的に生成できるのは、光渦特有の性質である。我々は、準安定な強磁性初期状態、リングの大きさ、最高温度 T_0 、緩和時間 t_0 を巧く調整すると高確率で磁気欠陥が生成されることを sLLG 方程式から数値的に証明している。

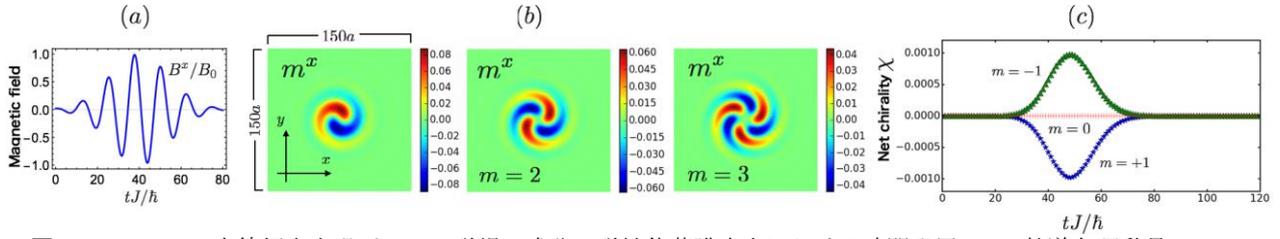


図6 (a) Tera Hz 直線偏光光渦パルスの磁場 x 成分の磁性体薄膜直上における時間発展. (b) 軌道角運動量 $m = 1, 2, 3$ で磁気共鳴周波数 ($\omega = H_z$) を持つ直線偏光光渦 (パネル(a)) を強磁性体に照射した際のスピン x 成分 m^x の時刻 $t = 80$ におけるスナップショット. m の増加とともに角度 θ 方向のゼロ点が増えていくのが分かる. $150a \times 150a$ の正方形の強磁性体模型 ($J = 1$, $H_z = 0.3$) にウェスト $W = 7.5a$, 周波数 $\omega = 0.3 = H_z$, 磁場強度 $B_0 = 0.05$ の光渦を照射している. ギルバート緩和項は $\alpha = 0.1$ に設定し, $J = \hbar/(2\pi) = 1$ で各パラメータを規格化している. 例えば $J = 5[\text{meV}]$ の場合, $H_z = 26[\text{T}]$, $\omega = 0.4[\text{THz}]$, $B_0 = 4.3[\text{T}]$ に対応し, 時間 $t = 10$ はおよそ $1.4 \times 10^{-12}[\text{sec}] = 1.4[\text{ps}]$ である. (c) 軌道角運動量 $m = +1, -1$ の光渦で強磁性共鳴を発生させた際に生じるスカラースピカイラリティ χ の時間発展. χ は隣接 3 スピンで定義されるスカラーカイラリティ χ_{local} の全系に渡る総和で定義されている. m の符号と生成するカイラリティ χ の符号が相関していることが分かる.

我々はカイラル「反」強磁性体においてもこの加熱効果の方法が有効であり, 磁気欠陥が生成されることも明らかにしているが, その詳細な解説は文献 6 に譲る. スキルミオンの生成方法の中で電流による方法が最も良く知られている¹¹が, それは当然磁性絶縁体には適用できない. ここで提案した加熱効果による方法は, 金属であるか絶縁体であるか, 強磁性体であるか反強磁性体であるか, に関わらず適用することができるというアドバンテージがある.

4.2 集光された Tera Hz 光渦による磁性制御

続いて, Tera Hz 光渦を磁性体に照射する場合⁷を考える. この場合は, スピンドダイナミクスの時間スケールが光渦の振動速度に匹敵する為, 光渦による加熱効果よりもスピンと光渦の電磁場の直接的な相互作用の効果が支配的である. 本論文では, すべての磁性体に普遍的に存在する光渦の磁場とスピン間のゼーマン相互作用の効果を LLG 方程式で取り込み, 磁気欠陥生成過程を探索する. 光渦の加熱効果の解析では, 光渦により同心円状の温度変化が生成するのであった. すなわち, 光渦の動径方向の非一様性が多様な磁気欠陥を生成する主要因であった. しかし, 光渦がスピンと直接相互作用する場合は, 図 1(b)から分かるように, 光渦の電磁場が角度 θ 方向にも変化し, それをスピンは感じることになる. 従って, 加熱効果の場合よりも, より多様で複雑なスピンドダイナミクスを期待することができる. 現状の技術では, Tera Hz 帯では, 連続波 (恒常的に継続するレーザー) を生成することはできず, パルス (高々数サイクルの周期を含むレーザー) のみが生成可能である. 以下の LLG 方程式による数値解析では, 光渦パルスのみを考えることにする.

はじめに, 強磁性体に Tera Hz 光渦パルスを照射し磁気共鳴を起こす場合を考える. ガウシアンビームによる磁気共鳴では, レーザーの中心部でマグノンが強く励起され等方的にスピン波が伝搬していくが, 光渦の場合は図 6(b)のように, 軌道角運動量の

値に依存して角度 θ 方向に波打ったスピン波が動径方向に伝搬してゆく. このような空間的に非一様なスピン波の高速生成自体が光渦で引き起こされる新しいダイナミクスであるが, この磁気共鳴のより興味深い点は, 図 6(c)にあるように, 軌道角運動量の符号に応じて正負のスカラースピカイラリティが発生している点である. 局所的なスカラースピカイラリティ χ_{local} は隣接する 3 つのスピン m_{r1} , m_{r2} , m_{r3} を用いて $\chi_{\text{local}} = m_{r1} \cdot (m_{r2} \times m_{r3})$ で定義される. これは 3 つのスピンがお互いに平行でない場合に有限の値をとる. 光渦中の異なる点のスピンは異なる値の磁場を感じて異なる軸周りで歳差運動をするため, スカラーカイラリティが成長し易いのである. 図 6(c)は数値解析している全系のスカラーカイラリティの総和の時間発展を示している. 考えている強磁性体が伝導電子を持つ金属強磁性体の場合, このカイラリティの発生は大きな意味を持つ. 即ち, スカラーカイラリティの背景の中で電圧を印加し電流を流すと, カイラリティの符号に応じて正負の横伝導度 (ホール伝導度) が発生する^{26,27,28,29}ことが知られている. 従って, 図 6(c)の結果は, 光渦を遍歴強磁性体に照射すると光誘起のホール効果が生じることを示唆している. これはガウシアンビームでは実現できない光渦による新しい超高速磁気現象である.

スピン波は長波長の物理を支配する励起である. 従って, 図 6 は回折限界を超えて集光された光渦の解析結果ではあるが, より広がった光渦を用いても異方的スピン波やカイラリティの高速生成が可能であることを注意したい. すなわち, 現在の Tera Hz 光渦の技術の範疇で図 6 の結果は十分に実現可能と考えられる.

次にカイラル強磁性体に Tera Hz 光渦を照射する場合を考えよう. カイラル磁性体では, DM 相互作用の符号や向きによって内在的にスピンが回転しやすい方向が確定している. 例えば, 図 2 に示したスキルミオンは (r, θ) 面内に渦構造を持つ欠陥であるが, 渦の巻く方向は DM 相互作用で決定している. 一方,

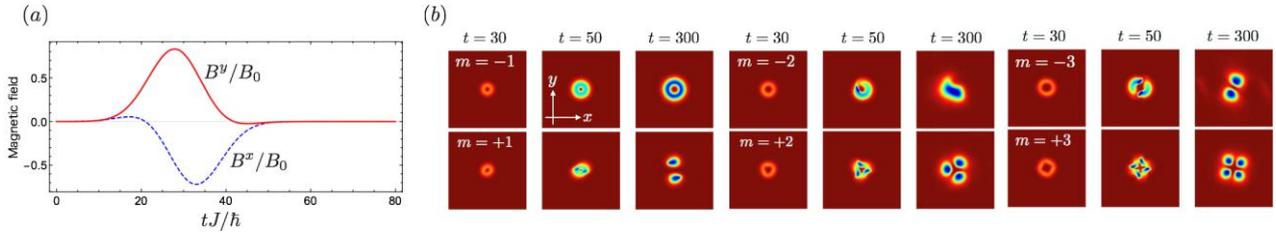


図7 (a) ハーフサイクルTera Hz円偏光光渦パルスの磁場 x, y 成分の磁性体薄膜直上における時間発展. (b) 軌道角運動量 $|m|=1, 2, 3$ のハーフサイクル円偏光光渦パルス (パネル(a)) をカイラル強磁性体の準安定強磁性状態に照射した際のスピン m_r の時間変化. 色の濃淡は, 図5と同様に, 各点における m^z の大きさを表している. リング状のナノ構造と粒子状のナノ構造は各々スキルミオニウムとスキルミオンを表している. $150a \times 150a$ の正方形のカイラル強磁性体模型 ($J = 1$, $D = 0.15$, $H_z = 0.015$) にウェスト $W = 10a$, 周波数 $\omega = 0.075$, 磁場強度 $B_0 = 0.15$ の光渦パルスを照射している. ギルバート緩和項は $\alpha = 0.1$ に設定し, $J = h/(2\pi) = 1$ で各パラメータを規格化している.

光渦も軌道角運動量の符号という回転の向きを自由度を保有している. カイラル磁性体と光渦の両者が内在的な回転の自由度を持つ為, その相対的な関係に応じて, 異なる高速ダイナミクスが引き起こされることが予想される.

このような予想の下, 様々な軌道角運動量 m を持つ光渦ハーフサイクルパルスをカイラル磁性体薄膜模型に照射した際の結果が図7に示してある. 4.1節と同様に, 磁気欠陥が生成しやすいように準安定な強磁性状態を初期状態として用意している. 図から分かるように, m の値に依存して異なる磁気欠陥が生成している. 軌道角運動量 m の光渦の照射で, $\text{sign}(m)(m+1)$ 個のスキルミオンが生成される. $m = -1$ のときだけはスキルミオニウムが生成される. この m 依存の結果は, まさに, 光渦の軌道角運動量が磁性体に「転写」されている, と解釈することができる. 複数のスキルミオンが同時に生成される点も光渦特有の事象である. さらに, この光渦によるスキルミオンの生成にかかる時間は, 既知の電流や熱による生成の方法^{11,24,25}の時間より1桁から2桁ほど高速であることを強調したい.

強磁性体における異方的スピン波生成とは異なり, スキルミオンを含む磁気欠陥を生成するには, Tera Hz光渦が磁気欠陥と同程度の大きさ($1 \mu\text{m}$ 以下)まで集光されている必要がある. 従って, 図7の結果を実現するには, 現状の近接場技術で実現している集光の限界値 ($100\text{-}10 \mu\text{m}$ 程度)をもう1桁下げる必要があるかもしれない. しかしながら, 近接場やプラズモニクス, Tera Hz電磁波の技術は急速に発展しており, 近い将来に図7の実験設定が実現可能になることを期待することができる.

5 まとめ

本論文では, 光渦の微視的運動制御への応用を目指し, 磁性体に焦点を当て, 光渦によるナノ磁気構造 (トポロジカル磁気欠陥) の高速制御方法をLLG方程式に基づく数値解析から提案した. 光渦と磁性体の時空スケールのミスマッチを解消するために,

(i)高周波数帯の光渦の加熱効果による磁性制御の方法⁶と(ii)プラズモニクス技術により集光されたTera Hz光渦による磁気共鳴を利用する方法⁷を採用し, 各々の方法で新しい磁気欠陥生成法を提案した. (i)では, カイラル強磁性体において, 光渦のリング数に応じてリング型のトポロジカル磁気欠陥 (スキルミオニウムなど) を選択的に生成される仕組みを明らかにした. (ii)の戦略では, 強磁性体において空間異方的スピン波とそれに伴う異常ホール効果を生じさせる方法を, カイラル磁性体において軌道角運動量量子数 m に依存して同時に複数のスキルミオンを生成する方法を提案した. (i)(ii)のより詳細な結果は, 文献6と7で解説されている.

光渦による微視的自由度の制御に関する研究は開始されたばかりであり, 広大な未開拓地が残されている. 今後多くの実験理論研究が進展することが期待される.

佐藤は科研費 (Grant No. JP17K05513 と JP15H02117) 及びスピン量子整流 ERATO プロジェクトの支援を, 藤田は科研費 (Grant No. JP16J04752) 及びフotonサイエンス・リーディング大学院(ALPS)の支援を受けて, 本研究は実施された.

参考文献

- (1) L. Allen, M. W. Beijersbergen, R. J. C. Spreeuw, and J. P. Woerdman, Phys. Rev. A **45**, 8185 (1992).
- (2) D. L. Andrews, *Structured Light and Its Applications: An Introduction to Phase-Structured Beams and Nanoscale Optical Forces*, (Academic Press, 2008); *The Angular Momentum of Light*, edited by D. L. Andrews, and M. Babiker (Cambridge Univ. Press, 2012).
- (3) A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and T. Rasing, Rev. Mod. Phys. **82**, 2731 (2010).
- (4) 腰原伸也: 光誘起構造相転移, 共立出版 (2016).
- (5) 岩井伸一郎: 多電子系の超高速光誘起相転移, 共立出版 (2016).
- (6) H. Fujita and M. Sato, Phys. Rev. B **95**, 054421 (2017).
- (7) H. Fujita and M. Sato, Phys. Rev. B **96**, 060407(R)

- (2017).
- (8) K. Toyoda, K. Miyamoto, N. Aoki, R. Morita, and T. Omatsu, *Nano Lett.* **12**, 3645 (2012).
- (9) J. Hamazaki, R. Morita, K. Chujo, Y. Kobayashi, S. Tanda, and T. Omatsu, *Opt. Express* **18**, 2144 (2010).
- (10) A. Fert, V. Cros, and J. Sampaio, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 152 (2013).
- (11) S. Seki and M. Mochizuki, *Skyrmions in Magnetic Materials* (Springer, Berlin, 2016).
- (12) K. Shibata, X. Z. Yu, T. Hara, D. Morikawa, N. Kanazawa, K. Kimoto, S. Ishiwata, Y. Matsui, and Y. Tokura, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 723 (2013).
- (13) *Spin Current*, edited by S. Maekawa, S. O. Valenzuela, E. Saitoh and T. Kimura (Oxford University Press, Oxford, UK, 2012).
- (14) 固体物理特集号 (スピントロニクスの新展開) Vol.50 編集: 江藤幹雄, 大岩顕, 大谷義近, 齊藤英治, 村上修一 (アグネ技術センター2015 年 No.11 通巻597 号) .
- (15) 芳田圭: 磁性 岩波書店 (1991).
- (16) I. Dzyaloshinsky, *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 241 (1958).
- (17) T. Moriya, *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
- (18) R. W. Heeres and V. Zwiller, *Nano Lett.* **14**, 4598 (2014).
- (19) S. Morimoto, T. Arikawa, F. Blanchard, K. Sakai, K. Sasaki, and K. Tanaka, in *2016 41st International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz waves (IRMMW-THz)* (IEEE, Copenhagen, Denmark, 2016), pp. 1–3.
- (20) T. Arikawa, S. Morimoto, and K. Tanaka, *Opt. Express* **25**, 13728 (2017).
- (21) Y. Tokura, S. Seki, and N. Nagaosa, *Rep. Prog. Phys.* **77**, 076501 (2014).
- (22) X. Z. Yu, N. Kanazawa, W. Z. Zhang, T. Nagai, T. Hara, K. Kimoto, Y. Matsui, Y. Onose, and Y. Tokura, *Nature Comm.* **3**, 988 (2012).
- (23) M. Mochizuki, X. Z. Yu, S. Seki, N. Kanazawa, W. Koshibae, J. Zang, M. Mostovoy, Y. Tokura, and N. Nagaosa, *Nature Mat.* **13**, 241 (2014).
- (24) W. Koshibae and N. Nagaosa, *Nat. Commun.* **5**, 5148 (2014).
- (25) M. Finazzi, M. Savoini, A. R. Khorsand, A. Tsukamoto, A. Itoh, L. Duò, A. Kirilyuk, Th. Rasing, and M. Ezawa, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 177205 (2012).
- (26) K. Ohgushi, S. Murakami, and N. Nagaosa, *Phys. Rev. B* **62**, 6065(R) (2000).
- (27) Y. Taguchi, Y. Oohara, H. Yoshizawa, N. Nagaosa, and Y. Tokura, *Science* **291**, 2573 (2001).
- (28) R. Shindou and N. Nagaosa, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 116801 (2001).
- (29) G. Tatara and H. Kawamura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 2613 (2002).