

研 究 報 告 書

「フェムト秒パルス・レーザによる超高速スピン制御・計測」

研究期間：平成19年10月～平成23年3月

研究者：塚本 新

1. 研究のねらい

現在ポスト半導体デバイスとして、電子のスピン情報を利用したスピントロニクスデバイスの研究が活発に行われ、その高集積化のみならず、高速化が極めて重要な課題となっている。磁性の超高速制御・計測法を得ることは、ハードディスクドライブ、磁気ランダムアクセスメモリ(MRAM)に代表される情報記録の高速化、さらなる新規高速スピントロニクスデバイスへの道を開くものと期待される。一方、従来型磁化制御法の主流である磁性体への高速交番磁界印加においては、磁化反転速度の増加に伴い磁性材料の磁気損失が増大し、磁化反転が不能となる問題がある。これは、強磁性共鳴(FMR: Ferro Magnetic Resonance)限界として知られる不可避な問題である。磁性体の共鳴現象に係る磁化の歳差運動、ダンピング特性は磁化反転速度を決定する重要な指標となるが、いまだ研究は十分ではなく、サブナノ秒時間領域での動的磁化特性の理解・進展が急務であると共に、FMR 限界をも超えるためには、詳細な超短時間現象の理解に基づく超高速磁化制御法と、高速磁化応答可能な材料の双方を研究する事が重要である。

以上の背景の下、本研究では、主に情報ストレージ分野への応用を目指し、超高時間分解磁化動特性計測に基づき、高速磁化応答可能な媒体形成・評価、超短パルス光を積極的に利用した光/熱アシスト・スピン動特性制御を軸とし、飛躍的高速化を目的とした光とスピンの新規相互作用解明とともに、超高速スピン制御法の原理確立を図るものである。

具体的には、さきがけ研究開始当初に大きく次の3つのテーマを掲げ、検討を行った。

- (1) フェリ磁性体補償点利用スピン動特性制御
- (2) 極短時間加熱利用超高速スピン制御
- (3) 光-スピン直接制御による超高速磁化反転

2. 研究成果

(O) 超高時間分解磁化動特性計測システムの構築

本提案研究を実施するに当たり、数十 nm 厚の磁性薄膜に対し、サブ ps 時間領域で磁化動特性を計測するため、高感度かつ超高時間分解計測が要求される。本研究では、半値全幅(FWHM)90fs 程度の超短パルス・レーザ光源を用い、ポンプ・プローブ法と呼ばれるストロボスコピック計測法を用い、新規に測定システムを構築した。基本測定系を図1に示す。高強度ポンプ光を照射してから、弱強度のプローブ光を用いた磁化状態検出までの遅延時間を徐々に変え、測定を繰り返すことにより極短時間磁化応答の時間領域計測が可能となる。

さきがけ研究において構築したシステムの主な仕様としては、(1)磁化状態検出用に、磁気ファラデーおよび磁気カー効果、光学応答計測用に、透過率および反射率の変化量、磁区観察のため磁気光学顕微鏡像、を同時計測でき、(2)光源として、再生増幅器を利用し数 mJ 級の光照射が可能、かつオプティカル・パラメトリック増幅器により波長変換可能、また、(3)試料環境として、電磁石により外部磁場印加可能、クライオスタット・システムにより試料温度可変、等が挙げられる。ポンプ・プローブ計測の最小遅延時間分解能は 3.3fs である。

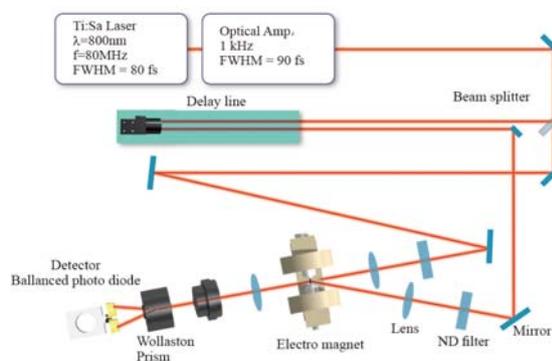


図1 超高時間分解磁化動特性計測システム

(1) フェリ磁性体補償点利用スピン動特性制御

～磁氣的補償現象による強磁性共鳴周波数/磁気ダンピング特性増大効果の実証～

高速磁化反転可能な記録媒体を実現するためには、(1)強磁性共鳴限界を引き上げるため磁気回転比 γ の増大、(2)すみやかな磁化スイッチングおよび磁化歳差運動の収束が行われるよう適切な制動特性を有する事、が課題となる。制動特性の指標となる Gilbert ダンピング定数 α に対し、臨界制動値 $\alpha=1$ で磁化反転時間は最短となり、過制動でも不足制動でも増大する。一方、フェロ磁性体において、これらの値は主に材料種で決まり、一般に、合金組成や、添加元素等により大きく変わるものではない。また、現在磁気記録媒体材料の主流である CoCrPt では約 $\alpha=0.04$ 程度と低いダンピング特性を示し、如何にして高 γ 値、高ダンピング特性を有する媒体材料を実現するかが具体的課題である。

本研究では、高い γ 値、 α 値を有する材料を得るため、フェリ磁性体の示す磁氣的な補償現象に注目した。半平行に結合した副格子からなるフェリ磁性体において、各副格子磁化の γ 値が異なる場合、正味の角運動量は打ち消し合うが、磁気モーメントは有限値をとる条件が存在し得る。これが角運動量補償状態である。この補償状態に近づくにつれ、正味の磁化の運動に対する実行的 γ 、 α 値が増大発散すること、また、大きな組成/温度依存性を生じ得る事が、Landau Lifshits Gilbert (LLG) 方程式に基づく計算により導かれ、期待される。

本効果を、前述の時間分解磁化動特性計測により実験的に検証した。対象物質には、光磁気記録用媒体材料として実績を有する事から GdFeCo を選択した。垂直磁気異方性を有し、希土類 (RE) 遷移金属 (TM) からなるアモルファス・フェリ磁性合金薄膜である。マグネトロンスパッタ法により作成した SiN (60 nm) / Gdx(Fe_{87.5}Co_{12.5})_{100-x} (20 nm) / SiN (5 nm) / AlTi (10 nm) / glass sub.[x:20.5~28.0] に対し、実測した磁化歳差運動の様子を図2に、歳差運動周波数、 α 値の組成依存性を図3に示す。正味の角運動量がゼロとなる角運動量補償組成 C_A ($x \doteq 23.6$ at%) に向かうにつれ、歳差運動周波数とともに実効的 α 値が増大し、磁化運動が高速化する事を示す。GdFeCoは本組成範囲で約10倍の α 値変化($\alpha \doteq 0.04 \sim 0.31$)が得られた。同様に、副格子磁化毎の温度特性が異なる事に起因し、同等の効果が温度特性として得られる事を確認している。すなわち、同じ元素からなる合金材料において、組成、温度により動特性を大幅に調整可能である事が実証できた。高速応答材料探求においてフェリ磁性体の示す角運動量補償現象が重要な原理と成り得る事が示された。

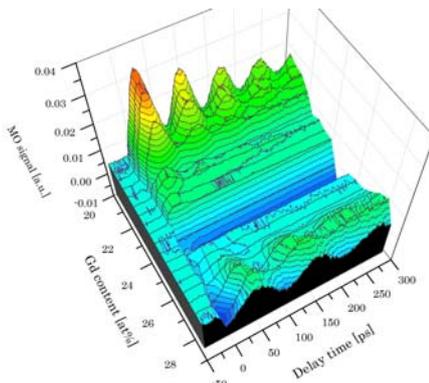


図2 時間分解磁化応答計測結果

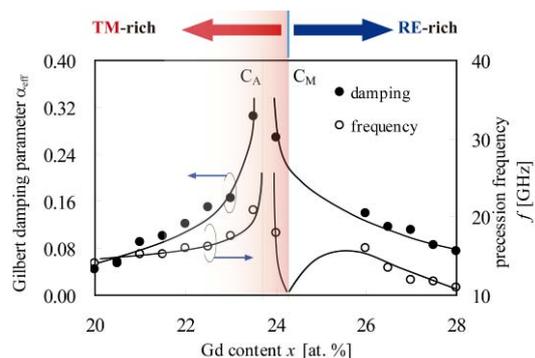


図3 歳差運動周波数 f 、ダンピング定数 α のGd組成依存性

(2) 極短時間加熱利用超高速スピン制御

2-1 光照射による磁性材料加熱速度限界の解明

本テーマでは、光照射による磁性材料加熱効果と、その速度限界につき検討を行った。

光磁気記録に代表されるよう、レーザー光照射による短時間加熱と磁性材料の温度特性を利用し磁化状態を制御する手法は実用化されている。熱磁気特性を利用する際の高速化限界、その機構を明らかにすることは、理学、工学の観点から重要かつ興味深い課題である。従来、上記熱磁気特性として、キュリー則に従う磁化の温度特性が多く用いられている。ここ

で温度とは格子温度を意味する。しかしながら、光照射時間が数 10ps を下回る時間領域となると、従来型の格子温度のみに基づく熱力学的取り扱い是不可能になる。すなわち、光子によりもたらされるエネルギーが、物質内の、電子系、格子系、そしてスピン系の間で授受、強い非平衡状態の出現、平衡化するプロセスにより各系の状態推移の時間スケールが決定され、その物質の成り立ちに大きく依存することになる。

本研究では、前項(1)で述べた、磁化動特性が大きな温度/組成依存性を有する希土類遷移金属フェリ磁性合金の熱的磁化動特性制御を目的とし、 $Gd_{20}Fe_{70}Co_{10}$ 薄膜の時間分解磁化応答計測を行った。上記プロセスの時間スケールを見積もるため、波長 800nm、FWHM 90fs のパルス光による励起後、磁気光学効果計測と同時に、電子温度の時間変化を見積もるため反射率変化量 ΔR も測定した。図4に示す通り、電子温度は約 0.5ps で最大値をとり、磁気光学応答は、同じ時間スケールで急峻に変化した後、やや緩やかに変化を続け、約 2~3ps 程度で変化が飽和、すなわち熱的準平衡状態へ移行することが分かる。上記、磁化の減磁時間スケールは、遍歴電子磁性体である 3d 遷移金属 Ni において約 0.5ps、4f 局在スピン系が主である Gd 単体では約 50~100ps との先行研究報告と比較すると、遍歴電子磁性体に近いシステムであると言える。これは、(1) 可視光域の光吸収を全体の約 80at.% を占める遷移金属の遍歴電子および Gd 原子の 5d 遍歴電子が担い、(2) Gd-Gd 間に比べ約一桁強い Gd-遷移金属間の結合が存在する事から、遷移金属の特性が律速した高速減磁効果が引き起こされたものと考えられる。

以上のように、パルス光照射により ps オーダーで熱的準平衡状態への移行が可能である事は、次世代情報記録方式の候補として精力的研究が推進されている熱アシスト磁気記録、そして本邦主導で培われた光磁気記録に関する知見を、原理的には ps オーダーにまで高速化・発展できる可能性を示すものである。

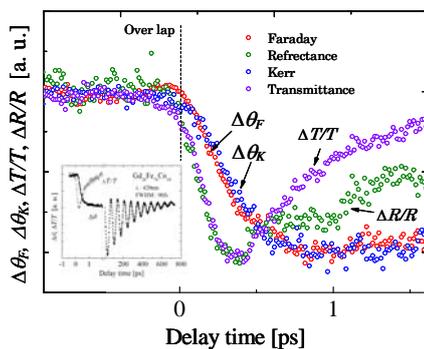


図4 極短時間磁化/光学応答計測結果

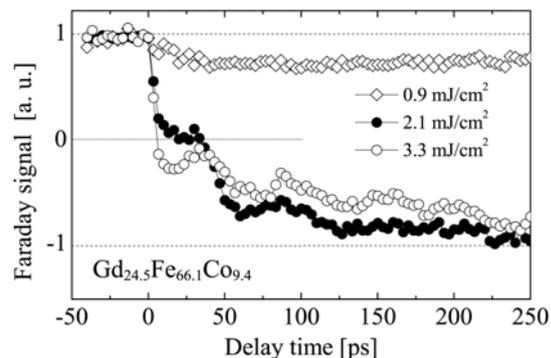


図5 超短パルス光照射による超高速プリセッションナルスイッチング過程計測

2-2 超短パルス光照射による超高速プリセッションナルスイッチングの誘起実証

前述の研究成果の集大成として、(1) 強磁性共鳴周波数が高く、かつダンピング特性の大きな温度領域へ、(2) 超短時間パルス・レーザー光照射による超短時間加熱を行うことにより、超高速プリセッションナルスイッチングが誘起可能であることを実証した。

ここで、2種類の補償現象が重要な働きを担う。高速高ダンピングな磁化のプリセッションナルスイッチングは、直流外部磁場印加中において、磁化補償温度を跨ぎ、角運動量補償温度付近へ高速加熱することにより実現する。磁化補償点を跨ぐことにより、正味の磁化と外部印加磁場の関係が、平行から反平行へと反転し、加熱後の冷却時定数に比べ十分短い時間で、磁化反転トルクが誘起される。すなわち、正味の磁化に対し、印加磁場方向が超高速反転したのと同等の効果が誘起される。そして、トルクにより磁化反転が行われる際、高 γ 値、高ダンピング特性を有するため、磁化は歳差運動を伴い高速に反転し、かつ揺り返しはすみやかに収束する事となる。図5に示すよう、比較的低い照射エネルギー(0.9mJ/cm²)においては、初期状態へ回復するが、上記条件を満たす高エネルギー照射(3.3mJ/cm²)に

においては、照射後急峻な減磁を生じた後歳差運動を開始、最初の回転において約 6ps以内に磁化の膜面垂直成分の符号が反転し(約 30GHzに相当)、約 50psで反転状態に達した後、高い減衰振動を数回繰り返して約 200ps程度で収束することが分かる。

一方、照射エネルギーを高めることにより、約 2ps 以内に完全に消磁状態とし、隣接磁化の形成する漏洩磁界による磁化反転も可能であることを確認している(図6(a)参照)。いわゆる光磁気記録におけるキュリー点記録方式が、単一超短パルス光照射により可能であることを意味する。但し、この場合には、高周波数の歳差運動は生じず、加熱後数 ns に渡る冷却過程が律速した磁化反転が行われ、媒体の熱伝導特性に大きく依存する事となる。前述のプリセッションナルスイッチングの場合には、余剰の熱エネルギーを与えず、磁化反転トルクの誘起と高速磁化応答温度への移行にのみ熱エネルギーを利用し、磁化反転自体は歳差運動を利用するため一桁以上の高速化が実現したとも言える。

(3) 光-スピン直接制御による超高速磁化反転 ～非熱的偏光依存光誘起磁化現象の実証～

ここでは、外部磁界を必要としない光のみによる超高速磁化誘起現象につき検討した。

前述の ps 時間スケールでの超短時間加熱/減磁効果は、光入射による電子系へのエネルギー移動後に、従属して生じる熱的現象に根ざし、光照射時間に比べまだ遅いプロセスであった。そこで、(1)さらなる高速化、(2)光のみによる磁化方向の任意制御、を可能とする新たな原理を見出す事が課題である。その要請は、前者に対し非熱的な光-スピン系間のより直接的な作用である事、後者に対しては、符号を有する光の自由度である角運動量(左右円偏光)に依存し、磁化反転を誘起可能な巨大作用である事、である。

非熱的な光と磁性体の相互作用の代表的なものとして、磁性体中を透過する直線偏光の偏光面が磁化に応じて回転する磁気ファラデー効果が知られている。あまり知られていないが、その逆効果である逆ファラデー効果が存在する。左右円偏光照射によりその波数ベクトルに沿ったそれぞれ逆向きの磁化を誘起するものである。これまで、反強磁性体(DyFeO₃、TmFeO₃)、磁性ガーネット(LuYBiFeGaO)等、幾つかの材料においてその効果が確認されているが、磁化反転を誘起する程大きな効果ではなく、またNi等遷移金属系金属磁性薄膜においては効果自体見られず、現実の応用への見通しは課題となっていた。

本研究では、前項同様GdFeCoを対象材料とし、偏光依存光誘起磁化現象の検討を行った。これは、光磁気記録用媒体として応用実績があり、かつ巨大な磁気光学効果(DyFeO₃の約 200 倍)を有する材料なためである。また、アモルファス構造故に組成を連続に可変、磁気、熱磁気特性の設計自由度が高い、等の利点を有する。図6(b)にGd_{26.0}Fe_{64.7}Co_{9.3} 試料表面で直線偏光と円偏光のパルス光を走査した後の磁気光学像を示す(図中、A→B 方向へ走査

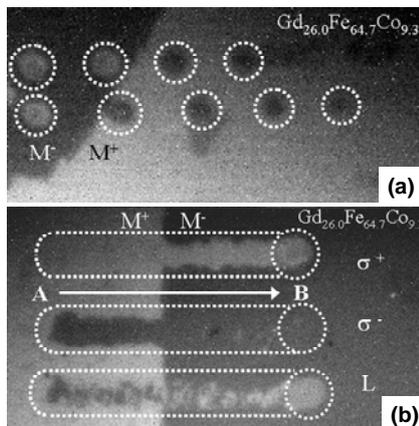


図6 磁気光学像(a)高強度パルス光照射 (b)左右直線偏光走査

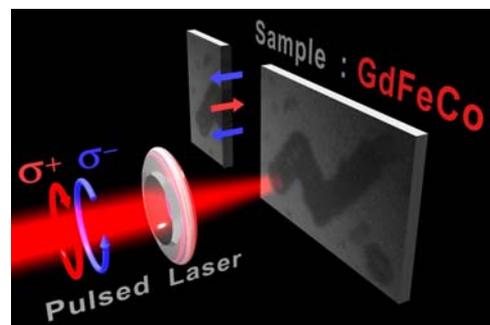


図7 偏光依存光誘起磁化現象利用 情報記録デモンストレーション

した)。直線偏光走査時(図6(b): L)、光エネルギーによる熱的効果が優位となり、形成磁区は複雑な多磁区構造となった。次に、パルス光を同じエネルギー密度の右回り円偏光(図6(b): $\sigma+$)、左回り円偏光(図6(b): $\sigma-$)とし、走査するとパルス光走査前の磁化方向に依存せず、円偏光の回転方向に一意に対応した磁化が誘起され、さらに $\sigma+$ と $\sigma-$ では互いに逆向き磁化となり、偏光に依存した磁化誘起現象を確認した。さらに、光照射条件の詳細調整により、同一の入射光エネルギーにおいて、直線偏光照射時には形成されない反転磁区が、円偏光において形成される事を確認している。

以上より、非熱的な光の角運動量に依存した磁化誘起現象が金属磁性材料において存在することが実証された。図7に示すよう(観察像中書込磁区形状は日本大学のロゴマークN.(エヌドット))、本成果は、超短パルス光照射のみで完全反転磁化を誘起可能で、かつ磁化方向を偏光により制御可能である事から、前述の要請に答えるものであり、超高速情報記録のみならず、超高速スピン制御に向けた基本原理として、スピントロニクスデバイス等多くの波及効果が期待される。

3. 今後の展開

本研究により得られた、新規光磁気光学効果、極短時間領域物性に関する知見、多角的磁気/光学応答評価システムにより、以下の事項につき検討を実施する。

- (1)非熱的光誘起磁化現象のマイクロな起源解明に向け、サブps時間領域での磁化誘起過程の詳細解明、系統的他元素材料への展開・検証・比較を実施
- (2)磁化状態初期化機構付加により、非可逆過程である磁化反転プロセスの詳細解明
- (3)微小磁性体の動特性評価・解明

4. 自己評価

「フェムト秒パルス・レーザによる超高速スピン制御・計測」と題し目標として掲げた3つのテーマにつき、核となる原理的現象を実験的に実証することができ、また、実用的記録媒体材料に対し、サブ ps 時間領域ダイナミクス計測、磁化反転誘起、光のみによる磁化誘起制御を達成した。未踏領域へ挑戦し、新たな知見を見出した事は、理学、工学領域へ少しでも貢献できたものとする。しかし、他元素系材料、系統的現象理解への展開については、手がけ始めた段階でプロジェクトの終了を迎えた。超高時間分解磁化動特性計測システムの構築に、研究期間の大部分を費やした事が主因であり、技術的問題解決の経緯につき反省する点多々あるが、超短時間現象研究に関し多角的検討を実施しうる計測システムを構築でき、本提案研究の継続展開のみならず今後の発展研究へと展開可能な拠点を形成できた。また、さきがけ研究を推進する過程で、領域内、国内外で多くの共同研究を開始し、また多くの派生したアイデアが蓄積された事は、今後に向け得られた非常に大きな成果である。

5. 研究総括の見解

塚本研究者の研究課題は、彼がオランダのグループと共同で見いだしたサブピコ秒の超高速の光磁気記録のメカニズムを解明し、次々世代の磁気記録デバイスの記録原理を確立することにあります。

外国からの脱却を図るため、当該装置と同等またはそれ以上の性能のレーザー光学系を彼の所属する日大の研究室に設置し、きちんと動作させるところからスタートするというハンディを背負っての出発でした。また、私立大学での厳しい教育業務の中で、このような意欲的研究を3年という短時間内に実施することにはかなりの困難があることは、採択の時点で予想されたことでありました。塚本研究者は、そのような厳しい状況を乗り越え、独特の粘り強さを発揮し、(1)フェリ磁性体補償点利用スピン動特性制御、(2)極短時間加熱利用超高速スピン制御、(3)光-スピン直接制御による非熱利用超高速磁化反転の3課題に取り組み、いずれも所期の成果を得ました。

塚本研究者は、希土類遷移金属の光磁気記録技術をバックグラウンドとした工学系の研究者でしたから、基礎研究的な知識と考え方には、必ずしもなじんでおりませんでした。しかし、

領域会議で、きちんとした基礎的アプローチの重要性を強く認識し、また、アドバイザーから多くの示唆をもらい、最後は、かなりの程度本領域の趣旨に沿った研究発表が行われるようになりました。その結果、当初設定された研究テーマで重要な結果が得られただけでなく、高速磁化反転時の磁気モーメントの挙動では当初予想を超える興味深い結果が得られました。とくに、超短パルス光照射によってピコ秒オーダーの超高速プリセッションスウィッチングができることを実証したことは、2Tbit/in² を超える超高密度磁気記録のキーテクノロジーである光アシスト磁気記録にひとつの方向性を与えたものと評価でき、今後、日本における超高速磁気記録技術を先導する存在になるものと期待します。今後、光-スピン直接制御による非熱利用超高速磁化反転の光波長依存性の測定など、やり残した基礎研究部分を継続して進め、理論家との共同研究などを通じて、超高速光磁気現象の学理の確立にも尽くされるよう願ってやみません。

6. 主要な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1.	A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh, "Precessional switching by ultrashort pulse laser: Beyond room temperature ferromagnetic resonance limit", J. Appl. Phys. 2011, 109., in press.
2.	K. Vahaplar, A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, D. Hinzke, U. Nowak, R. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, and Th. Rasing "Ultrafast Path for Optical Magnetization Reversal via a Strongly Nonequilibrium State", Phys. Rev. Lett., Vol. 103, 117201-(pp. 1-4) (2009).
3.	I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Durr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing and A. V. Kimel, "Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins", Nature (2011) in press.

(2) 特許出願 なし

(3) その他(主要な学会発表、受賞、著作物等)

国際会議口頭発表

1. A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh, "Precessional switching by ultrafast laser: beyond room temperature FMR limit", 55th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials, Nov. 15, 2010, Atlanta, Georgia, USA
2. A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi, and A. Itoh, "Laser-induced demagnetization of RE-TM GdFeCo", ISAMMA 2010 (International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications 2010), July 13, 2010, Sendai, Japan
3. A. Tsukamoto, T. Sato, T. Shimizu, S. Toriumi and A. Itoh, "Magnetic damping property near ferrimagnetic compensation points in GdFeCo", 11th Joint MMM-Intermag conference, Jan. 1, 2010, Washington DC USA
4. A. Tsukamoto, K. Kajiyama, S. Kawamura, T. Sato, A. Itoh, "Ultrafast magnetization dynamics near ferromagnetic compensation points in GdFeCo", International Conference on Magnetism 2009, July 30, 2009, Karlsruhe Germany

著書

1. 塚本新(分担), “スピントロニクス基礎と材料・応用技術の最前線”, シーエムシー出版, 2009年6月出版. (担当:第11章磁性金属における高速磁化応答と光誘起磁化反転 pp. 127-140)