

平成 22 年 5 月 25 日現在

研究種目： 若手研究 (B)  
研究期間： 2008 ~ 2009  
課題番号： 20740169  
研究課題名 (和文) 強磁性体 Mn 酸化物のスピンドル分極の実時間イメージング  
研究課題名 (英文) Real time imaging of polarized spin in ferromagnetic Mn oxides  
研究代表者  
上岡 隼人 ( KAMIOKA HAYATO )  
筑波大学・大学院数理物質科学研究科・助教  
研究者番号： 40431671

## 研究成果の概要 (和文)：

強磁性相において励起されたスピンドル分極状態の時間・空間発展の観測および発展機構の解明を行うために、時間分解顕微鏡イメージ測定系の構築を行いました。現在、スピンドル分極状態をイメージで測定するために必要となる、空間分解能と検出感度が得られた段階です。これから、この方法を通じて、当初目標である Mn 酸化物のスピンドル分極伝播の検出に向けた実験を試みていくところです。

## 研究成果の概要 (英文)：

I constructed a system for time-resolved imaging measurements to observe the time-space development of spin polarization and investigate the mechanism through microscope optics. Now I have reached the stage for successfully detecting spin polarization images with the necessary space resolution and sensitivity. From now on, I am trying the highly precise measurements through this method, aiming for the detection of the spin polarization spread in the Mn oxide as originally scheduled.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2009年度	1,600,000	480,000	2,080,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野： 凝縮系物理 (強相関物性)  
科研費の分科・細目： 物理学・物性 I  
キーワード： 光物性

## 1. 研究開始当初の背景

近年、超短パルスレーザーを光源に用いたポンプ・プローブ法において、プローブ光スポットや試料を平面走査することにより、固体中の素励起状態を可視化する研究が盛んに行われるようになってきました。例えば、音響フォノンやポラリトンが二次元的に空間発展する様子は、反射率の強度変調を得ることで観測されています (Y. Sugawara, et al., Phys. Rev. Lett. 88, 185504, 2002. / R. M. Koehl, et al., J. Phys. Chem., A103, 10260, 1999.)。磁性体におけるスピン分極状態の空間発展に関しても、半導体 GaAs 中で励起された伝導電子スピンの一次元的な拡散 (J. M. Kikkawa, et al., Nature 397, 139, 1999.) や、強磁性金属  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  や Co の薄膜における、磁化ベクトルの振動の様子 (A. Barman, et al., Appl. Phys. Lett. 82, 3065, 2003. / Y. Acremann, et al., Science 290, 492, 2000.) などが、光 Kerr 効果を通じた同様の方法で、観測されています。

これらの方法では、プローブ光スポットや試料を平面走査するために、測定に時間が掛かります。また、光源の強度揺らぎや試料および光学系の揺れから生じる、信号強度のドリフトや雑音の影響を受けやすくなります。我々は、これら従来の方法を改良し、拡大プローブ光と多チャンネルロックイン検出器を用いるイメージングの手法により、高速かつ高感度に二次元像を取得できる時間分解測定系を構築しています。この測定系により、雑音を排した信頼あるデータの形で、スピン分極状態の空間発展の可視化を試みます。また、多チャンネル高速 A/D 変換器を擬似 boxcar 検出器として利用する、もう一つのイメージング方式の開発も行っています。

これまで多くの研究者が、時間分解分光測定を通じて、ペロブスカイト型 Mn 酸化物  $\text{R}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  (R:La, Pr, Nd, Sm) における光誘起効果の研究を行ってきました。 $(\text{Nd}_{0.5}\text{Sm}_{0.5})_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  では、光励起すると強磁性相関が抑制されることが、松田らにより示されています (K. Matsuda, et al., Phys. Rev. B 58, 4203, 1998.)。  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  においては、小笠原らにより、パルス光励起後のスピン分極状態の時間発展が詳細に調べられています (T. Ogasawara, et al., Phys. Rev. B 68, 180407, 2003.)。我々は、特に後者の Kerr 回転角の測定結果に現れる構造に着目しています。これは、150K で 100ps 程度の周期を持つ、励起直後の振動的な応答であり、この周期は顕著な温度依存性を示していま

す。これらの特異なスピン分極状態の変化の詳細を、我々のイメージング手法による空間発展の観測を通じて解明したいと考えています。

## 2. 研究の目的

Mn 酸化物  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  の単結晶試料を作成し、その磁気光学特性の測定および確認を行います。その後、構築した高速・高感度な時間分解イメージング測定法により、強磁性相において励起されたスピン分極状態の時間・空間発展の観測を行い、結果の考察を行います。その後、希土類元素置換により、系統的にスピン交換相互作用 (J) を変化させた Mn 酸化物  $\text{R}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$  (R:Pr, Nd, Sm) の単結晶試料を作成します。これらの磁気光学特性の測定と確認の後、強磁性相におけるスピン分極状態の時間発展を観測し、その J 依存性を確認します。その後、スピン分極状態の空間発展の観測を行い、その発展機構に関して考察を行います。

## 3. 研究の方法

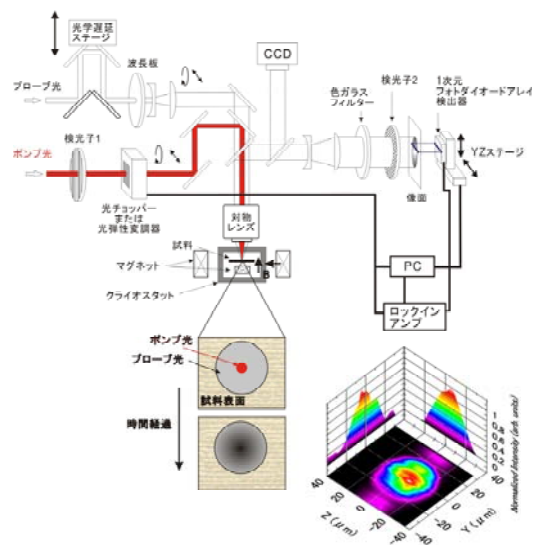


図 1: イメージング測定系概略図。

スピン分極状態の時間・空間発展の測定は、チタンサファイアレーザーを光源とする、ポンプ・プローブ光学系で行います (図 1)。ここでは、Kerr 効果によるプローブ光の偏光回転を通じ、スピン分極状態を検出します。この測定系の特徴は、プローブ光をポンプ光より大きなスポット径となるよう、ポンプ光と同心状に試料上に集光し、その反射像全て

を、1次元フォトダイオード検出器で平面的に走査する点です。プローブ光スポット内の各箇所での微小変化を、多チャンネル(32ch)検出器(同期取り込み、ロックイン等)により同時検出することで、プローブ領域のスピンの分極状態のイメージを高感度かつ高速に取得できます(空間分解能 $\sim 2\mu\text{m}$ 、時間分解能 $\sim 200\text{fs}$ )。

測定に際しては、試料に対し永久磁石(0.5T)で垂直磁界を与えます。そこに円偏光したポンプ光を入れ、スピン選択励起することで強磁性金属相におけるスピン分極状態を生成させます。熱揺らぎを抑えるために、クライオスタットで低温( $\sim 10\text{K}$ )にした状態で、スピン分極状態の空間発展を、イメージング測定法により観測します。我々は既に、作成した $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ の単結晶試料において、プローブ光スポットの反射強度の時間発展を、室温下(300K)で観察しています。得られたプローブ像の空間積分値の時間発展は、小笠原らの報告(T. Ogasawara, et al., Phys. Rev. B 68, 180407, 2003.)と同等であることが確認できています。

Mn 酸化物 $\text{R}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ (R:Pr, Nd, Sm)試料は、浮遊帯域溶融炉を用いて単結晶の形で作成し、その表面を光学研磨します。この試料の反射スペクトルは、FT-IR(赤外)および通常光学系(可視-紫外)で、磁気光学スペクトルは、円偏光変調法を用いた光学系で測定します。これらの温度依存性を確認し、SQUIDによる磁化特性の測定と併せて、定量解析のための基礎データとします。イメージング測定系を構築し、改良してゆく際には、随時こうして作成された Mn 酸化物 $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{MnO}_3$ 試料の測定を行いました。

#### 4. 研究成果

本研究は、時間分解イメージング測定法を用いて、強磁性相において励起されたスピン分極状態の時間・空間発展の観測および発展機構の解明を行うことを目的としています。この測定では、超短パルスレーザーを光源とするポンプ・プローブ光学系で行い、Kerr 効果によるプローブ光の偏光回転を通じ、スピン分極状態を検出することになります。スピン分極状態に基づいた Kerr 効果による偏光回転は、Mn 酸化物等の磁性体の典型値で $0.001\sim 0.01$ 度程度であり、これは $10^{-4}\sim 10^{-5}$ の強度変調を検出する感度を必要とします。既存の0次元検出の場合には、これはプローブ光の縦横偏光成分をバランス検出することで行っています。この検出をイメージング手法で行うのが、本申請課題の核心部分となります。これまでの方法はイメージングには使用できないので、まず初めに差分検出の方

法を採用しました。この方式の検出系を検証するため、まず観測例のある他の素励起の空間伝播の可視化を行いました。ここでは、強誘電体 $\text{LiTaO}_3$ 上の分極波を測定対象として選択しています。実験においては、ポンプ光パルスを1つおきに間引き、各場合のプローブ光の強度変化の差分を取り出しています。その結果、試料表面上に過渡的な分極状態を作り出し、その分極状態の波束が、励起後に光速の15%の速度で同心円状に拡大してゆく様子が明確に観測されました。これは、文献”J. Phys. Chem. A 103, 10260 (1999)”で示された同物質における実験結果を、本手法を用いながら正確に再現しています。また、透過(反射)率変化として $\Delta T$ ( $\Delta R$ ) $\sim 0.001$ 程度の変化まで検出できる感度特性を持つことが確認できました(図2)。

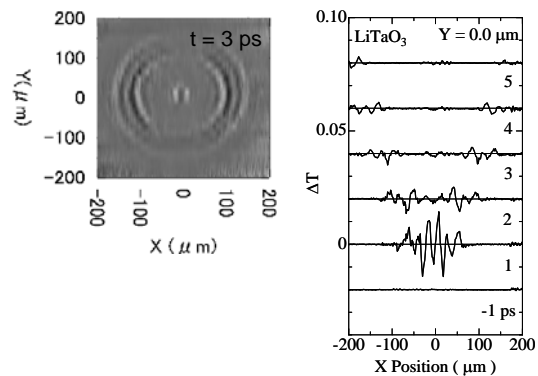


図2: ポラリトン伝播の二次元イメージ。

但し結果として、このポンプ光の有無の差分で変調を検出する方法では、Kerr 回転の変化量 $10^{-4}\sim 10^{-5}$ をイメージングできる精度は得られませんでした。実際、Mn 酸化物で測定を行いました。変調の大きさが測定系のS/Nと同程度であることから、スピン分極の伝播には至りませんでした。また、補完手段としてマルチチャンネルロックイン検出系での測定も行いましたが、検出系のダイナミックレンジ、および応答速度と時定数の制限等から、同様の結果となりました。

現在は、引き続き測定系の改良を行っている段階です。量子化に優れたデジタルと高繰り返し(76MHz)のチタンサファイアレーザー発振器、および高倍率(X20)の対物顕微鏡を使用することで、空間分解能で $0.4\mu\text{m}/\text{ch}$ 、 $10^{-4}$ の大きさの反射率変調まで安定して検出できるイメージング性能を出せています(図3)。これはロックインアンプによる検出水準に匹敵し、顕微イメージング手法による空間分解能と併せて、本件の差分検出法の極値を出せています。また同時に、同期取り込みの多チャンネル検出器と高繰り返しレーザー発振器、および光弾性変調器を用いた、偏

光回転のイメージング測定系の検証もっており、ここでは変調で  $2 \times 10^{-5}$  の検出感度が得られることを試験的に確認しています。他にも、サニャック干渉光学系を適用する方法も検討中です。

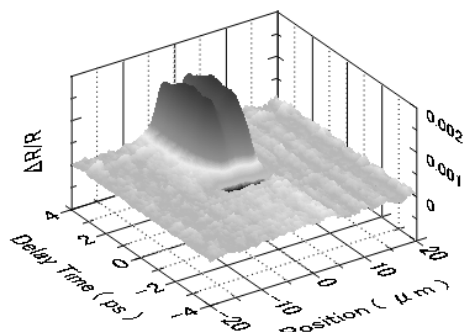


図3：高繰り返し測定系で得られた、InPの励起スポット位置での過渡反射率変調。

これらの方法を採用し、何れかが感度の問題を解消できれば、希土類置換した一連のMn酸化物  $R_{0.6}Sr_{0.4}MnO_3$  (R:Pr, Nd, Sm) の単結晶試料の作成を予定通りに行い、各々の磁気光学スペクトルを、円偏光変調法を用いた光学系で測定する予定です。そこでは、これらの温度依存性を確認し、SQUIDによる磁化特性の測定と併せて、定量解析のための基礎データとします。そして最初に、プローブ光スポットの空間積分値の形で、各々のスピン分極状態の時間発展を測定し、これらの結果と交換相互作用の大きさ (J) の関係を明らかにします。次いで空間発展を見るイメージングの測定を行い、これらの結果から、スピン分極状態の時間・空間発展の機構について考察します。また、スピン分極状態の時間・空間発展の温度依存性や外部磁場依存性も測定し、スピン分極の振る舞いを温度-磁場相図上で明らかにする予定です。以上のように、当初目標であるMn酸化物のスピン分極伝播の検出を引き続き目指して行きます。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[学会発表] (計3件)

① 上岡隼人、守友浩、フェムト秒時間分解イメージ測定用の小型顕微鏡筒の開発 (No. 31) 第4回ポリスケールテクノロジーワークショップ、2010年3月5日、東京理科大学カナル会館3階大会議室

② 上岡隼人、中田文也、五十嵐一泰、守友浩、価数制御されたCo-Feシアノ錯体膜のフェムト秒分光 (27aVD-1)、日本物理学会第64

回年次大会、2009年3月27日、立教大学

③ 上岡隼人、中田文也、守友浩、高坂亘、大越慎一、M-Feシアノ錯体 (M=Mn, Fe, Co) における過渡吸収スペクトルの観測 (21aYD-4)、日本物理学会2008年秋季大会、2008年9月21日、岩手大学

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

名称：ポンプ・プローブ型の測定装置

発明者：守友浩、上岡隼人

権利者：国立大学法人筑波大学

種類：特願

番号：2009-052199

出願年月日：平成21年3月5日

国内外の別：国内

[その他]

ホームページ等

本申請の研究内容を取り入れて行われた、多チャンネル同時計測器によって高速取り込み可能な、高精度過渡吸収スペクトル測定系の開発が、日本ナショナルインスツルメンツ株式会社の中に記載されています。

<http://sine.ni.com/cs/app/doc/p/id/cs-12595>

#### 6. 研究組織

(1) 研究代表者

上岡 隼人 (KAMIOKA HAYATO)

筑波大学・大学院数理物質科学研究科・助教

研究者番号：40431671