

称号及び氏名	博士（工学） 後藤 佑太郎
学位授与の日付	令和 3 年 3 月 31 日
論文名	「Twisted light-induced spin behavior in a chiral helimagnet」 (キラルヘリ磁性体中の光渦誘起スピン挙動)
論文審査委員	主査 石原 一 副査 戸川 欣彦 副査 魚住 孝幸 副査 余越 伸彦

論文要旨

磁気と人間との関係は有史以前から続いてきたものであり、現在も連綿と続いている。磁気は現代の生活に欠かせない役割を果たし、我々はその性質を利用して方向を知ること以外にも様々な目的に利用している。このような磁気をどのように理解し、制御するかという問題は基礎・応用の両面で重要な課題である。その制御技術の一つに光の利用が考えられる。電磁気学の発展の中で、光と磁気は物質を介して相互作用することが知られ、量子力学の発展とともにスピンの存在が磁気の本質を理解する鍵であることが理解されてきた。

電子工学・磁気学・光学の 3 つの重要な領域は物性物理学、材料物理学において互いに密接に関連している。それらの重なる領域は特に重要であり、多くの研究により知見が蓄積されてきた。電子工学と光学の間には光エレクトロニクスが広がり、光を送信・検出・制御するための電子デバイスの応用に関係する技術分野へと発展した。光エレクトロニクスデバイスは、医療機器・遠距離電気通信機器などの中で、光子を電気に、またはその逆に変換する。磁気学と光学の間にまたがる磁気光学は、準静的磁場の存在により変化した媒質を介した電磁波の伝播について多くの現象とその応用可能性を明らかにし、利用している。スピントロニクスは電子工学と磁気学からなり、電子の電荷とスピンの自由度の両方を積極的に利用している。例えば、巨大磁気抵抗効果やトンネル磁気抵抗効果は、コンピュータハードディスクの実用化とその産業発展に大きく貢献してきた。本論文では電子工学・磁気学・光学を統合した光スピントロニクスと呼ばれる領域を対象とする。光スピントロニクスは、固体中の電荷を制御しながらにして材料の磁氣的性質と電氣的・光学的性質の相互作用を利用するという特徴を持つ。この領域では革新的な研究領域が切り開かれ、新しい磁気デバイスが

将来の産業で応用されることが期待されている。

磁性体の光学応答は磁気光学の理論では、光の角運動量が電子系へ遷移して電子の角運動量に変換されることに由来するとされる。通常このような場合の光の角運動量とは、スピン角運動量、すなわち円偏光の自由度のみを指していた。光のスピン角運動量が電子に伝達できるのならば、光の軌道角運動量もスピン軌道相互作用を介して伝達することができることは、容易に推測される。実際理論・実験の両面で、光渦による光学遷移が従来の平面波とは異なることが示されている。これまでに光学遷移が影響する磁性体の電子状態の変化が伴う物性の探索は、直線偏光・円偏光ともに多く為されてきたが、光の軌道角運動量と電子スピンのスピン軌道相互作用を通じた光学遷移を基にした研究はほとんど知られていない。また、電磁波と磁性体との相互作用は通常 GHz~MHz 帯の磁場との磁気共鳴や光による熱励起を議論することがほとんどであり、光の軌道角運動量は間接的にしか考慮されていない。本論文では、特に可視光領域付近において光と電子スピンのスピン軌道相互作用による光学遷移に着目することで、直接的に光の軌道角運動量が影響した磁性体の電子状態の変化を取り扱う。

さて、光渦はキラリティを持つものとしても理解される。キラリティは、3次元の物体や現象が、その鏡像と重ね合わせることができない性質のことを指す。光渦は等位相面がらせん状になっており、らせんの巻く方向・数によりトポロジカルな性質を表現する。これは光渦の軌道角運動量そのものであり、スピン角運動量の持つ2値の自由度以上の、原理上は無限大の高い自由度を有する。それに加え中心は位相特異点により光強度は零になる。こうした高い自由度やトロイダル状の場を利用して、物質へ角運動量を転写することによる運動の制御、高調波やもつれ光子対を生成する非線形・量子光学、光通信での応用や誘導放出抑制顕微鏡法に見られる超解像イメージングなど、光渦は新たな光源として、光を扱うあらゆる分野に侵透してきた。

一方で、凝縮系物理学におけるキラリティとは、巨視的な秩序状態の安定化のための、物質中のキラル対称性の破れのことである。こうした対称性の破れが自発的に生じる物質としてキラルヘリ磁性体が知られている。このヘリ磁性構造には二つのタイプがあり、一つは吉森型構造と呼ばれる。このタイプの磁気構造の微視的なメカニズムは、対称的な交換相互作用の間のスピンプラストラーションである。もう一つは、キラルヘリ磁性構造と呼ばれている。このタイプの磁気構造は、反対称な交換相互作用によって与えられる。またその微視的な構造はスピン軌道相互作用によるものであることが知られている。スピン磁気モーメントのらせん構造は、対称相互作用と反対称相互作用との競合の程度で特徴づけられる。特に本論文ではクロム二硫化物ニオブ (CrNb_3S_6)に着目した。この物質はキラル磁性体の一つとして注目されており、理論的にも実験的にも広く研究されてきた。この物質の磁性は遍歴電子を介在させた局所的なスピン間の相互作用によってよく説明されている。光渦とキラルヘリ磁性は、幾何学的にキラリティーの観点から見て類似した空間構造を有しており、両者のキラリティーに基づく非自明な相互作用が期待できる。本研究は、これまで取り入れられてこなかった光の軌道角運動量とスピンの相互作用をより広い枠組みでの磁気光学の原理に組み込むための基礎的な現象の解明を目的とする。磁気秩序の光応答を理論的に解明することで、光による磁気秩序制御の可能性を提示し、光スピントロニクス研究の分野に道を拓くことができると期待する。

本論文では、これらの研究成果を以下の5章にまとめた。

第1章では本研究の背景と目的をまとめた。

第2章では、光渦場を吸収することにより誘起される金属キラルヘリ磁性体 CrNb_3S_6 中での新たな局所スピン間相互作用を提案した。またこのスピン間相互作用を、一次元のスピン系における電子と光渦の間の微視的相互作用をもとに基礎方程式から緻密に定式化することで、従来とは全く異なる方法で1次元のキラル磁気秩序を制御できることを示した。磁性体と光渦との相互作用は通常、GHz~MHz帯の光磁場との磁気共鳴や光による熱励起として考えられてきたが、本成果では3dバンド内の近赤外~可視光領域の光渦の軌道角運動量と遍歴電子スピンのスピン軌道相互作用を基にする吸収励起過程を介した、新しい局在スピン間相互作用を導き出した。さらに、系としてヘリ磁性体のらせん軸と同軸と垂直な2つの入射光渦の幾何的配置を考慮し、ランダウ・リフシッツ・ギルバート(LLG)方程式を用いて局在スピン磁気モーメントの光渦照射による変調を確認した。結果として、物質が光の軌道角運動量を使って光を吸収するならば、その限りにおいて遍歴電子を介した様々な磁気構造を制御することが可能であることが分かった。また光渦のパラメータ、例えば強度、ビーム半径、偏光、軌道角運動量などには多くの自由度があり、これらの自由度は柔軟な磁気構造制御に役立つ。第3章で議論する、スピン波のような準粒子の輸送特性に影響を与えることや、第4章で議論するように、空間的に制約された光は局所的に磁気構造を変調することなどが期待される。

第3章では、第2章で導出した光渦とキラルヘリ磁性体 CrNb_3S_6 の結合による局在スピン間相互作用が影響する非自明なスピン波のエネルギー分散関係に注目した。線形スピン波近似したスピンハミルトニアンをボゴリューボフ変換すると、原点付近に分散関係が分岐する2つの例外点が現れ、その例外点の間では固有値に虚部を持つことを確認した。これは単に一樣な外部磁場を印加しても現れず、光渦とスピンの結合し、光渦の波数とキラルヘリ磁性体のらせん波数のずれによるうなりが相互作用の波数として有意に現れることで系が複雑化するからである。また例外点は、スピン波準粒子の「粒子」モード(エネルギーが正)と「正孔」モード(エネルギーが負)の重ね合わせによって生じている。本成果は分散関係に虚部が存在するときは系が「動的」となり、系の全エネルギーを保存した状態で、ある種の不安定性が増大していると結論づけた。同種のメカニズムによる例外点については、光格子中のボーズ・アインシュタイン凝縮体の準粒子について議論されているものの、量子スピン系についてはこれまで報告されておらず、極めて重要な結果であると言える。本成果はスピン波の制御性を向上させ、多値記憶領域を持つ光スピントロニクス素子としての利用の可能性を広げた。

第4章では、第2章に基づき、光渦場と一次元キラルヘリ磁性体の相互作用について、光渦場をパルス光源としたときの局在スピン磁気モーメントの変調がどのように時間変化するかを調べた。ここで時間発展はLLG方程式を用いて数値計算を行った。その結果、光渦パルスが通過するのに従って変調が育つように大きくなることがわかった。また、パルスが数波長を通過するのにかかる時間程度では光変調のない基底状態にまで緩和されない。そのため、変調されたスピンの基底状態に緩和する前に新しいパルスで励起すると、前のパルスの変調と重複してより大きな変調が生じることも

確認した。本成果は、時空間制御されたパルスビーム形成により、電子スピンと光渦との結合を利用してスピントクスチャを時空間的に柔軟に制御ができる可能性を示した。

第5章では、以上の成果を総括し、本論文を結んでいる。

審査結果の要旨

本論文は、軌道角運動量を持つ光（光渦）によるキラルヘリ磁性体の光学遷移を取り入れることで、磁性体の磁気構造を光により制御する新しい手法を理論的に提案したものである。光の吸収・放出により物質中の電子スピンを制御する試みは、古くより理論・実験の双方から研究されてきた。これらの研究は磁気光学効果として多くの成功を収めてきた一方で、光の持つ円偏光（スピン角運動量）のみならず軌道角運動量を積極的に利用するという試みは考慮されてこなかった。これに対して申請者は、光渦の軌道角運動量により変調された光学遷移則を考慮し、励起された遍歴電子に媒介される局在スピン間の相互作用を新規に導出することで、キラルヘリ磁性体の磁気構造を制御する新しい自由度を理論的に提案した。具体的にはキラルヘリ磁性体としてクロム二硫化ニオブ（ CrNb_3S_6 ）を想定し、（1）光渦照射により誘起される局在スピン間相互作用の存在とそれによる磁気構造の変調、（2）光渦誘起相互作用によるスピン波の分散関係への影響、（3）らせん磁化構造の光渦パルス照射による変調の時間発展について、理論的に明らかにした。得られた主な結果は、以下の項目に要約できる。

（1）光渦としてラゲールガウシアン（LG）ビームを採用し、 CrNb_3S_6 のらせん磁化の回転軸に同軸、及び垂直な入射方向を想定した。光渦の軌道角運動量により可能となった結晶場分裂したd-バンド内遷移を取り入れ、遍歴電子を媒介とする新規な局在スピン間の相互作用を微視的見地から導出した。またランダウ・リフシッツ・ギルバート（LLG）方程式を用いて、らせん磁化構造の変調を数値的に確かめた。

（2）光渦誘起スピン間相互作用による磁気構造の変化により、励起されるスピン波の分散関係を解析した。磁気構造が光渦の空間構造を反映して変調することにより、分散関係に例外点が発現し、スピン波は長波長領域で不安定化することを示した。

（3）パルスLGビームを照射することで、 CrNb_3S_6 の磁化構造の変調の時間発展をLLG方程式により解析した。周期的に光渦パルスが通過するに従って、磁気構造を大きく変調させることが可能であることを示した。

以上の成果は、光の軌道角運動量を考慮した磁気光学効果により、スピントロニクス技術の新展開を牽引する指導原理として期待される。また、申請者が自立して研究活動を行うのに必要な能力と学識とを有することを証したものである。