

高調波発生光プローブが ホイスラー化合物内の スピンドYNAMIXを解明

サリー・コール・ジョンソン

研究者らは、ホイスラー化合物内の各元素の磁気共鳴に合わせて、極端紫外高調波発生光プローブを調整し、その電子スピンの変化を追跡した。

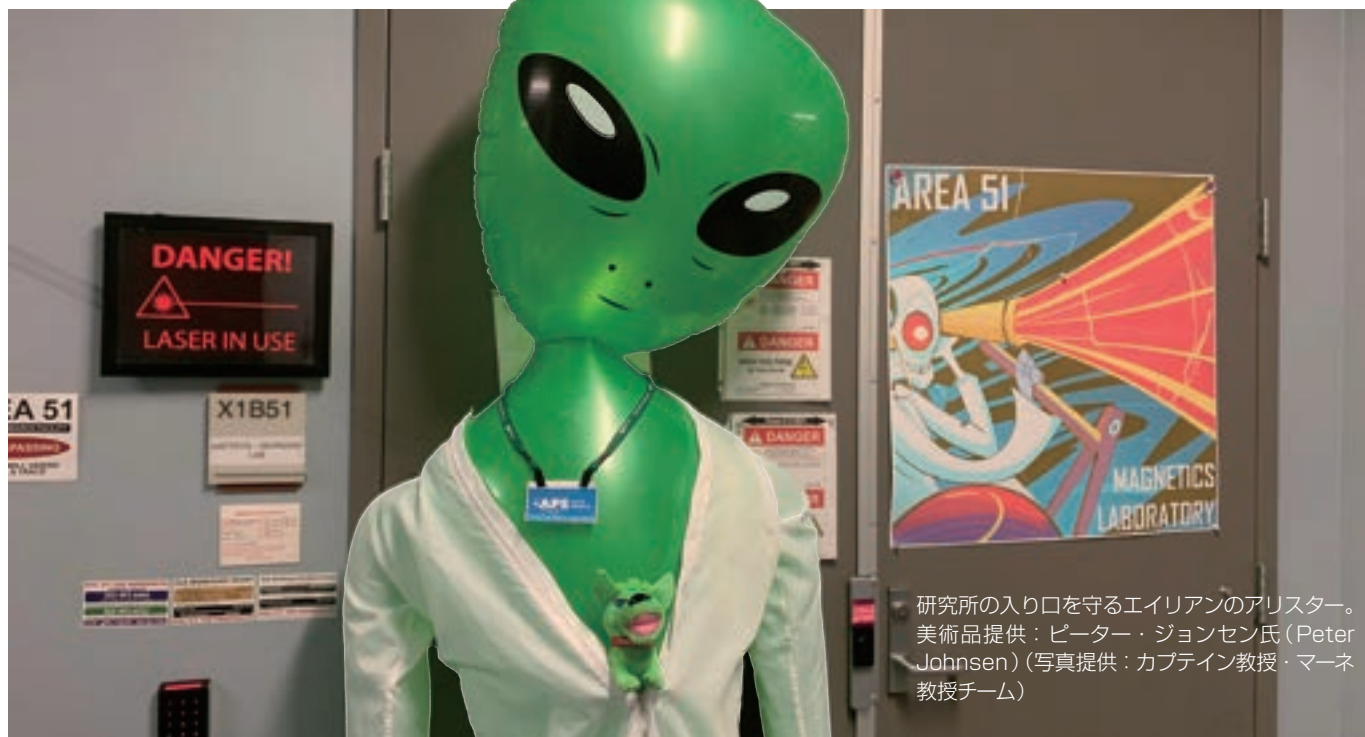
マーガレット・マーネ教授 (Margaret Murnane) とヘンリー・カプテイン教授 (Henry Kapteyn) が率いる米コロラド大ボルダー校 (University of Colorado-Boulder) のJILA (旧名: 共同実験室天体物理学研究所 (Joint Institute for Laboratory Astrophysics)) 研究チームは、金属内の電子スピンドYNAMIXを調査している。このスピンドYNAMIXは量子力学の原理に基づいているが、特に超高速の時間スケールでは、ほとんど解明されていない。

それを解明する鍵は何か。パルスフェムト秒レーザーと極端紫外高調波発生 (EUV HHG) により、研究者はスピンドYNAMIXをフェムト秒の精度で測定および操作できるようになる。エレクトロニクスとデータストレージの将来の可能性を再定義できるのだ。

この研究のために、JILA チームとスウェーデン、ギリシャ、ドイツの共同研究者らは、ホイスラー化合物である Co_2MnGa のスピンド

YNAMIXを詳しく調査した。この化合物は単一の磁性物質のように動作する金属の混合物である。この化合物の興味深い特性は、下向きに整列したスピンに対しては絶縁体として働くが、上向きに整列したスピンに対しては伝導体として働くことである。

同研究チームは、EUV HHGを光プローブとして用いることにより (図1)、化合物をフェムト秒レーザーで励起した後、化合物内部のスピンドYNAMIXを追跡できた。その結果、試料の磁気



研究所の入り口を守るエイリアンのアリスター。美術品提供：ピーター・ジョンセン氏 (Peter Johnsen) (写真提供：カプテイン教授・マーネ教授チーム)

特性が変化する。EUV HHGプローブ光の色を調整できるため、スピンドイナミクスを正確に解析することが可能になる。

「私がマーガレット・マーネ教授とヘンリー・カプテイン教授の研究室に入ったのは、両教授がシンクロトン光源の高エネルギー光子能力をテーブルトップ実験(小規模実験)に取り入れ、高度な研究を展開しているからだ」と、JILAの大学院生、シニード・A・ライアン氏(Sinéad A. Ryan)は言う(図2)。「このプロジェクトチームの一員になれることに大いに期待していた。このプロジェクトは、当チームや他の研究チームが過去に得た興味深い結果に基づいたものであり、磁性合金中の元素間でのスピン転移が、非常に短い時間スケールで行われることを実証したからである」。

EUV高調波プローブ

Co₂MnGaのスピンダイナミクスを調査するため、ライアン氏らは、ネオンガスで満たされたチューブ内に800nmのレーザー光を集光させ、EUV高調波プローブを作成した。このプローブでは、レーザーの電場が電子を原子から引き離し、電子が元の位置に戻るようになる。

電子が元の位置に戻る動作は、ゴムバンドが引き伸ばされた後に元に戻る動作に似ている。これにより、電子を放出するレーザーよりも高い周波数(とエネルギー)を有する紫色のバースト光が生成される。ライアン氏は、このバーストを試料中のコバルト(Co)とマンガン(Mn)のエネルギーと共鳴するように調整し、その結果同チームは、さらに制御可能な試料内にある、元素固有のスピンダイナミクスと磁氣的挙動を測定できたのだ。

「Co₂MnGaの試料では、磁性はMn原子とCo原子の結合によって生成される」と、ライアン氏は説明する。駆動レーザーの色を少しずつ調整すると、45eVから73eVまでのエネルギー範囲で高調波コムをスキャンすることができた。このエネルギー出力の調整可能な高調波プローブを使用すると、MnとCoの磁性から生じる特定の共鳴を測定できたのだ」。

ライアン氏は、ポンプレーザーで励起される際に、このような共鳴がどのように変化するかを個別に追跡することにより、CoとMnの間でスピンが励起される際に、CoとMnの磁性がどのように変化するかを解明できた。このようなスピン転移効果のこれまでの研究では、合金の各元素を1つか2つのエネルギーレベルで測定するのみだった。しかし、この新しい駆動レーザーの調整機能を活用すると、同氏はCoとMnの共鳴を数十レベルのエネルギーで測定できるようになった。

「つまり、ポンプレーザー励起中と励起後の物質全体におけるスピンの挙動について、さらに詳細な情報を取得できるのだ」と、ライアン氏は言う。「この実験結果を、共同研究者による広範な理論解析と組み合わせた。さらに、ポンプレーザーのフルエンス量を増減させると、ポンプレーザーの励起によって引き起こされる競合効果のバランスを変更できた」。

同研究チームが最も驚嘆したのは、レーザーのメンテナンスをしたときだ。駆動レーザーの波長がわずかに変化し、高調波エネルギーもわずかに変化したのだ。「Co₂MnGa試料のデータを再取得したところ、試料から測定した信号が全く異なっていたことに衝撃を受けた。試料のダイナミクスがプローブエネルギーへ非常に敏感に反応すること

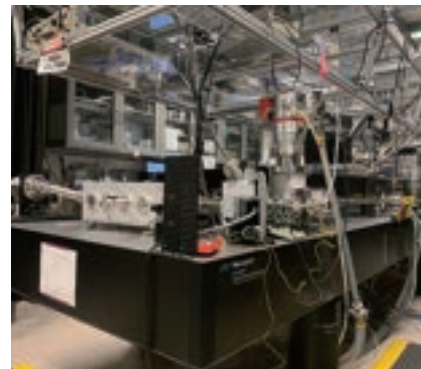


図1 EUVビームは常に真空状態に置かれ、カスタム分光器で測定する前に磁化された試料に照射される(写真提供:シニード・A・ライアン氏)

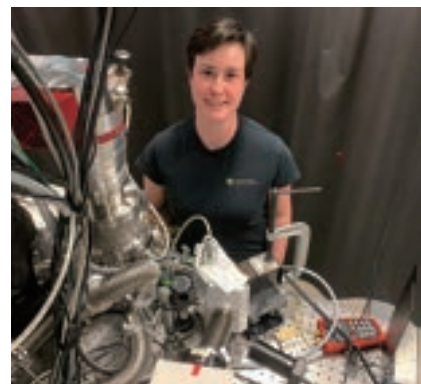


図2 試料チャンバーの後方に立つシニード・A・ライアン氏。試料は投影磁場電磁石によって磁化され、真空内移動ステージによって位置決めされる(写真提供:カプテイン教授・マーネ教授チーム)

に気づいた瞬間だった」と、ライアン氏は述べる。

ライアン氏は、シードパルスを増幅器に導入することにより、高調波エネルギーを調整できることが判明した(図3、図4)。「64段階の異なるレベルのプローブエネルギーで物質の挙動を観察できたことには感銘を受けた。そのすべてにおいて優れた時間分解能を観測できたのだ」と、ライアン氏は言う。

これは研究史上、初の成果だった。さらにライアン氏は、フルエンス依存性についても調査し、これもまた初の成果だった。なぜなら、この種の包括的なデータセットを取得できるほどの、プローブの調整機能性とタイミングの

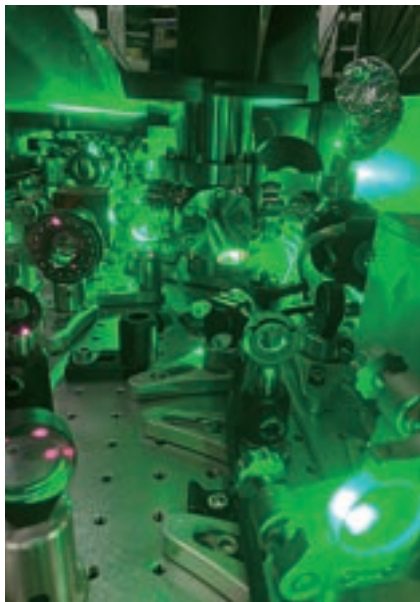


図3 増幅器内部の様子。高エネルギーの超高速パルス(赤色)は、チャープパルス増幅によって生成される。画像中央に見られるのは、低温冷却された増幅器結晶を格納するチャンバーであり、ポンプレーザ(緑色)によって励起される(写真提供:シニード・A・ライアン氏)

安定性を兼ね備えた研究は、これまで行われなかったためだ。

「当研究チームの最大の挑戦は、駆動レーザの波長を変化させることにより、高調波エネルギーを完全に調整する方法を見出すことだった。そして、この離調エネルギー領域内で実験を実施するために、十分な安定性を確保することだった」と、ライアン氏は述べる。

スピン効果の解明

同研究チームは、励起レーザの出力とHHGプローブの光子エネルギーを調整することにより、Co₂MnGa内の様々な時間枠において、どのスピン効果が優勢になっているかを解明した。

同チームは、実験測定結果を複雑な計算モデル(時間依存密度汎関数理論:TD-DFT)と比較した。TD-DFTは、様々な入力が増えられた際に、物質内の電子雲がどのように進化するかを予測する。



図4 増幅器での作業の様子。赤外線ビューアーでビームの位置を確認し、オシロスコープでレーザパルス測定する(写真提供:シニード・A・ライアン氏)

スウェーデンのウプサラ大(Uppsala University)からJILAに来校した博士課程の学生、モハメド・エルハノティ氏(Mohamed Elhanoty)は、TD-DFTを使用してスピン変化の理論モデルと同チームの実験データを比較した。ホイスラー化合物内に3種類の競合スピン効果が観測され、同モデルと実験データとの一致が確認できた。

エルハノティ氏は、初期の時間スケールではスピン反転が優勢であり、その後スピン転移が優勢になることを判明した。時間の経過に伴い、さらに減磁効果が優勢になり、試料は減磁していく。

スピン反転は、試料内の単一の元素で起こり、スピンの向き(上向きか下向きか)を変化させる。一方、スピン転移は複数の元素で起こる。今回の場合、その元素はコバルトとマンガンが該当し、両者同士で相互にスピン転移が観察された。その結果、各物質の磁性が時間の経過に伴い増減する。

同研究チームは、さまざまなエネルギーと時間枠でどのような効果が優勢

になるかを解明した。その結果、スピンをどのように操作すれば、物質により強力な磁気的特性と電子的特性を付与できるかを、さらに深く考察できた。

磁性の最速操作

同チームが研究しているスピン転移効果は、既知の磁性操作の中でも最も高速なものであり、レーザパルスそのものと同様に高速で、数フェムト秒の時間スケールである。

「将来的には、これらの技術を利用して、パルスレーザで制御可能なスピントロニクスデバイスを設計し、非常に高速かつ効率的なデバイス作りを実現したいと考えている」と、ライアン氏は言う。

ライアン氏と共同研究者らは現在、この物質と他の類似の合金から取得した実験測定値を比較するためのフォローアップ研究に取り組んでいる。「今後この研究には、モハメド・エルハノティ氏が率いるウプサラ大学の理論チームによる、新たな理論的知見も考慮していく」と、同氏は述べる。