（ 続紙 1 ）

京都大学	博 士（ 理 学 ）	氏名	章　振亜
論文題目	Nonlinear coherent spin dynamics in antiferromagnets initiated by Tesla-class terahertz magnetic fields （テスラ級のテラヘルツ磁場パルスによる反強磁性体の非線形スピンダイナミクスの研究）		

（論文内容の要旨）

レーザー光などの高強度な周期的外場が引き起こす多体スピン系の非平衡現象の理解は、物性物理学における重要な研究の一つである。近年、テラヘルツ（THz）周波数帯にスピン歳差運動を持ち、強磁性体よりも高速なスピンデバイスへの応用が期待される反強磁体のスピンダイナミクスが精力的に研究されている。THzパルスを用いた励起手法は、従来の可視光域の光パルスを用いた手法に比べてサンプルの加熱を抑制でき、様々な物質におけるスピンの運動を時間領域で観測できる。しかし、自由空間を伝播するTHzパルスは磁場強度が弱いためにスピンの運動は線形領域に制限され、非線形なスピン運動の励起機構や磁気ポテンシャルとの関係は未解明であった。

第1章では、本研究が対象とする反強磁性体である希土類オルソフェライト($RFeO_3$、R:希土類元素)において、従来の光パルスやTHzパルスを用いた弱励起極限でのスピン励起に関する研究を概説している。第2章では、オルソフェライトの基礎光学特性と磁気光学効果について述べ、スピンの運動を特徴付ける反強磁性(AFM)モードと強磁性(FM)モードを説明している。第3章では、高強度THzパルスの発生・検出法や螺旋型金属マイクロ構造によるTHz磁場の増強など、実験手法を説明している。

第4章では、オルソフェライト$HoFeO_3$においてAFMモードを高強度THz磁場によって励起し、スピン運動の非線形性を時間分解磁気光学分光によって観測した結果について述べている。対応する周波数スペクトルにはAFMモードの基準振動周波数(0.58 THz)に加えて第2、第3高調波成分が含まれることを示している。また、THz磁場強度の増加に伴いAFMモードの基準振動周波数は0.53 THzにレッドシフトする。Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式を用いた解析から、観測した非線形応答の起源が磁気ポテンシャルの非調和性に由来することを示している。

第5章では、オルソフェライト$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$における、高強度THz磁場によるスピンの非線形励起とスピンスイッチング現象の観測について述べている。この物質は室温付近(310 K)でスピン再配列転移を示し、高温では異なる2つの方向に磁化の安定点が存在する。サンプル温度が311 Kの場合において、面直方向に高強度THz磁場を印加することで、FMモード(0.05 THz)とAFMモード(0.54 THz)を励起した。THz磁場強度が1 Tを超えると、時間波形に長寿命のオフセット成分が現れ、磁場強度に対して急峻な依存性を示すことがわかった。この閾値的な応答は、初期の磁化方向とは異なるもう一つの安定点に磁化が変化したことを示している。強度依存性に加え温度依存性を観測し、LLG方程式から導出したsine-Gordon方程式によって実験結果を定量的に説明できることを示した。さらに、sine-Gordon方程式から、初期状態の磁気ポテンシャルに加えて、AFMモードとFMモードの結合効果とTHz振動磁場が加えられることにより生じる有効ポテンシャルを導出した。これにより、FMモードに対して非共鳴的なTHz磁場によって磁化が励起され、続いて磁化は磁気ポテンシャル障壁から遠ざかる方向に運動して高いエネルギーを獲得することを見出した。そして、THz磁場パルスが消えると、ポテンシャルの変調も消滅し、磁化は慣性効果によって障壁を超えてスイッチングすることを見いだした。

第6章では本研究から得られた結論と今後の展望を述べている。

（続紙　２　）

（論文審査の結果の要旨）

多体スピン系の外場に対する応答は、基礎物理学ならびに応用上の観点からも重要である。近年のレーザー技術の進歩により、スピン緩和過程よりもはるかに速いフェムト秒の時間スケールでスピンダイナミクスを調べられるようになった。そして、スピン間に働く交換相互作用によりテラヘルツ（THz）周波数帯に共鳴モードがある反強磁性体のスピンダイナミクスの研究が可能となった。本論文では、最大磁場強度が1 Tを超えるTHz磁場パルスを発生させ、反強磁性体におけるスピンの非線形な応答やスピンスイッチング現象を観測した。Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)方程式を基にした解析を行い、観測結果と磁気ポテンシャルの非調和性や変調効果との関係を明確にした。

希土類オルソフェライト$HoFeO_3$は、磁化の反強磁性(AFM)モードがテラヘルツ周波数帯にある。従来の可視光パルスを用いた励起法では、サンプルの加熱効果などからAFMモードの運動は線形領域に制限されてきた。本研究では、螺旋状の金属マイクロ共振器を用いることにより1 Tを超える高強度THz磁場パルスをサンプル内部に発生させ、スピンの非線形な運動を観測した。発生させたTHz磁場パルスは、鉄イオンが担うスピンにゼーマントルクとして外力を与え、直接的にスピン歳差運動を誘起できる。誘起されるスピンの運動は、秩序変数である磁化の変化に伴う可視光の偏光楕円率角変化として観測している。測定した時間分解信号の周波数スペクトルには、非線形な磁化の振動に由来する明瞭な第三高調波が観測されている。また、THz磁場強度を増加すると、AFMモードの周波数がレッドシフトすることを見出している。観測された非線形な磁化の応答は、磁化が磁気ポテンシャルの非調和領域まで駆動されたことに起因することを、LLG方程式に基づいた解析によって明確にした。

希土類オルソフェライトは内部の希土類電子系の状態に応じて磁気異方性が変化し、特定の温度領域において磁化の方向が温度に応じて回転するスピン再配列転移を示す。転移点近傍においては外場に対して磁化が敏感に応答することから、THz磁場パルスによる高速なスピンスイッチング現象が期待される。しかし、十分な強度のTHz磁場パルス光源が不足していたため、振動磁場によるスイッチング現象は観測されていなかった。本研究では、室温付近でスピン再配列転移を示す反強磁性体$Sm_{0.7}Er_{0.3}FeO_3$を対象物質として、高強度で多周期のTHz磁場パルスを印加すると、磁場強度に対して磁化の方向が閾値的に変化するスピンスイッチングを実現した。この応答は、多周期のTHz磁場で励起されるAFMモードと強磁性(FM)モードとの結合効果、また周期的なTHz磁場パルスがもたらす磁気ポテンシャルの変調に起因することを明確にした。

以上のように、本論文では高強度なTHz磁場パルスを生成し、反強磁性体におけるスピン運動の非線形性を明確にした。また、高強度THz磁場パルスによって巨視的な磁気秩序の超高速な制御手法を確立したものであり、今後の当該分野の研究発展に大きく寄与するものである。よって、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。また、令和6年7月22日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

要旨公表可能日：　　年　　月　　日以降