

# 反強磁性スピンドायナミクス of 線形・非線形磁気光学測定

## Linear and Nonlinear Magneto-optical Measurement of Antiferromagnetic Spin Dynamics

佐藤琢哉 東京工業大学理学院

T. Satoh, School of Science, Tokyo Institute of Technology  
Tel: +81-3-5734-2716, E-mail: satoh@phys.titech.ac.jp

Antiferromagnets have promising functions that will lead to advances in information technology. The magnetic order of antiferromagnets has spin resonance in the terahertz region, suggesting the possibility of coherently controlling antiferromagnetic devices much faster than conventional electronics. However, to study antiferromagnetic spin dynamics, there are serious problems to overcome, such as the required time resolution, complicated sublattice interaction, and optical inaccessibility. In this review, the dynamics of antiferromagnetic vectors will be clarified directly in the time domain. The antiferromagnetic vector of hexagonal YMnO<sub>3</sub> was modulated by coherent spin precession, and the accompanying motion of the vector was tracked by time-resolved magnetic second-harmonic generation and the magnetic-optical Faraday effect. The reduction in dynamic symmetry due to the movement of the antiferromagnetic vector allows the thermal dynamics and non-thermal spin dynamics to be separated. Since the reduction in transient symmetry is common to coherent excitation, it can be concluded that we have a general tool for tracking the ultrafast dynamics of antiferromagnetic vectors.

**Key words:** antiferromagnet, dynamics, magneto-optics, inverse Faraday effect, magnetic second-harmonic generation

### 1. はじめに

反強磁性体は複数の磁気副格子を有し、基底状態で磁化のベクトル和、つまり正味の磁化がゼロになる。そのため、強磁性体と比べて基礎・応用の両面から研究が進んでこなかった。しかし、反強磁性体では磁気副格子間の強い交換相互作用が働き、反強磁性磁気共鳴周波数がTHzオーダーに達する。これは共鳴周波数が磁気異方性によって決まる強磁性体と比べて2~3桁も高い周波数である。最近、反強磁性の光学的<sup>1)</sup>、電気的<sup>2)</sup>スイッチングが報告されるなど、反強磁性スピントロニクスが急速に進展している。これは、反強磁性体が応用面で有望な磁性材料であることを示している<sup>3)~5)</sup>。

一般に、光学的手法を用いることで、物質の電子状態に関する知見を得ることができる。強磁性体の場合、ファラデー効果やカー効果等の磁気光学効果により磁気状態がわかる。一方、反強磁性体は基底状態でこれらの(線形)磁気光学効果の手法を用いることができない。

反強磁性体の副格子磁化を光学的に検出するため、これまで磁気秩序に伴う磁気複屈折や磁気第二高調波発生(magnetic second-harmonic generation; MSHG)が用いられてきた。磁気複屈折は磁化の2乗に比例するため、磁化の方向に関する情報が失われ、その結果、スピン反転したドメイン状態を区別することができない<sup>2),6)~8)</sup>。一方、反強磁性体のMSHGは1993年以来、M. Fiebigらによって精力的に研究されてきた<sup>9)</sup>。MSHGは磁気対称性に敏感な技術であり、反強磁性ベクトルに線形に応答し、その方向情報を維持する<sup>10),11)</sup>。MSHGに対する主要な寄与は、

$$P_i(2\omega) = \epsilon_0 \chi_{ijk} E_j(\omega) E_k(\omega) \quad (1)$$

で与えられる。ここで、 $\epsilon_0$ は真空の誘電率、 $\mathbf{E}$ は入射光の電場、 $\chi_{ijk}$  ( $i, j, k = x, y, z$ )は2次非線形磁気光学テンソル、 $\mathbf{P}$ は周波数 $\omega$ の2倍で振動する誘導分極である<sup>12)</sup>。 $\chi$ が反強磁性ベクトルに直接結合するため、MSHGは反強磁性体の静的特性評価に最適である<sup>11),13),14)</sup>。

反強磁性体は強磁性体よりも数桁高速なダイナミクスを示すことが期待されていたものの、反強磁性スピンドायナミクスの時間分解測定に関する報告は限られていた。MSHGをプローブとして用いて、反強磁性体の超高速スピンドાયナミクスを時間分解ポンプ・プローブ法で検出する試みがなされてきた<sup>15),16)</sup>。しかし、式(1)の $\chi_{ijk}$ に影響を与える反強磁性ベクトルのダイナミクスに加えて、 $\omega$ および $2\omega$ における線形光学特性に影響を与える電子ダイナミクスが実験結果に反映されるため、解釈が困難であった<sup>17)</sup>。実際、反強磁性スピンドાયナミクスと電子ダイナミクスを区別することは、一般に「實際上、不可能」であると考えられていた<sup>18)</sup>。これは、共鳴励起された電荷キャリアの再分布が線形光学特性の大幅な変化につながる熱励起に特に当てはまる<sup>16),19)~21)</sup>。

反強磁性体は基底状態においては正味の磁化が消失しているが、ポンプ光の照射によって生じるコヒーレントスピン歳差運動状態では正味の磁化が現れ、振動する。これは線形磁気光学ファラデー効果、もしくはカー効果で検出することができる<sup>22)</sup>。しかし、反強磁性体のスピンドાયナミクスを理解するためには、反強磁性ベクトルの全次元

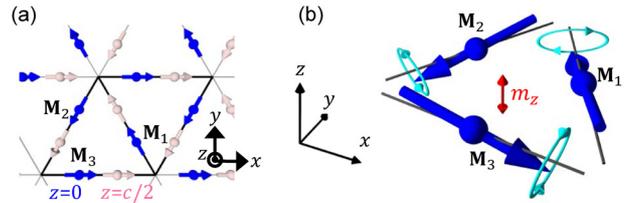
( $x, y, z$ ) 成分の直接観測することが望まれる。実際、強磁性体では、スピン歳差運動中の 3 次元成分の詳細な測定により、予期しない運動が明らかになっている<sup>23),24)</sup>。MSHG を用いれば、反強磁性ベクトルを直接検出できる可能性はあるが、MSHG を用いて反強磁性体のコヒーレントスピン歳差運動を時間分解測定した例はこれまでなかった。

本解説では、反強磁性体  $\text{YMnO}_3$  を用い、線形磁気光学ファラデー効果と非線形 MSHG を組み合わせて、コヒーレントスピン歳差運動中の反強磁性ベクトルの全次元 ( $x, y, z$ ) 成分の時間分解測定について述べる<sup>25)</sup>。コヒーレントなスピン歳差運動が磁気点群の対称性を一時的に低下させ、それが新しい MSHG テンソル成分の出現につながる。これは、SHG 異方性の周期的変調から結論付けられる。面外 ( $z$  方向) スピン成分に敏感なファラデー回転とは対照的に、MSHG 変調が  $xy$  面内スピン成分を反映していることを示す。さらに、面内と面外の両方のスピン傾斜角を定量化することで、スピン歳差運動の顕著な楕円率が求められる。この概念の実証により、反強磁性スピンドायナミクスにおいて時間分解 MSHG が、他の手法ではアクセスできない情報を提供しうることを示す。

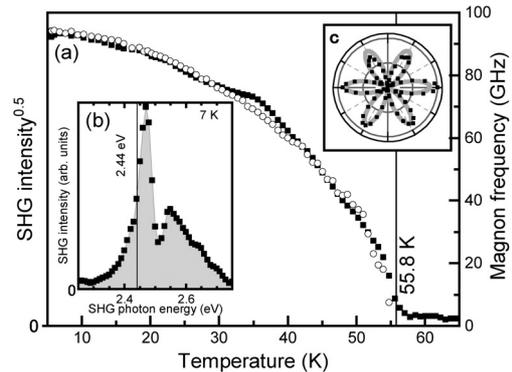
非熱的にコヒーレントスピン歳差運動を引き起こす手法として、逆ファラデー効果がよく知られている<sup>18)</sup>。ここでは、円偏光パルスが光の進行方向に平行に有効磁場  $\mathbf{H}_{\text{IFE}}$  を生成する。この磁場は、パルス光の持続時間にのみ物質中に存在する。インパルスで非共鳴的な励起は、スピン歳差運動の明確な初期位相をもたらす。この逆ファラデー効果は、磁化が完全に補償された反強磁性体でも有効に作用することが知られている<sup>7),22),26)~30)</sup>。このようによく理解された励起法は、われわれにとって理想的なテストケースとなる。熱的電子ダイナミクスを非熱的スピンドાયナミクスから分離し、かつ反強磁性ベクトルの 3 次元的ダイナミクスを得ることが期待できる。

## 2. 材料と方法

六方晶  $\text{YMnO}_3$  は、 $T_C \approx 1250$  K 以下で強誘電性 (分極  $\mathbf{P} \parallel \hat{z}$ ) を示す<sup>31)</sup>。3 つの  $\text{Mn}^{3+}$  磁気副格子  $\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2, \mathbf{M}_3$  は、ネール温度  $T_N \approx 70$  K 以下で反強磁性的に秩序化し、 $xy$  面内で準 2 次元三角格子を形成する (図 1(a))<sup>27)</sup>。副格子磁化は、サイトごとに定義された  $x$  軸方向に揃う<sup>11)</sup>。基底状態の磁気空間群は  $P6'_3cm'$  であり、これにより、強誘電体および反強磁性ベクトル<sup>10)</sup> に双線形に結合するような SHG が生じる (図 2)。この磁気構造では、3 つの直交したスピン歳差運動モードが生じ、われわれは  $X, Y$ 、および  $Z$  モードとよぶことにする<sup>27)</sup>。これらのモードは、励起状態で現れる正味の磁化成分  $\mathbf{m} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2 + \mathbf{M}_3$  の方向により定義されており、 $Z$  モードは  $\mathbf{m}$  が  $z$  方向に振動する (図 1(b))。個々のモードは、ポンプとプローブ光の偏光に応じて、選択的に励起し、選択的に検出することがで



**Fig. 1** Antiferromagnetic  $\text{YMnO}_3$ . (a) antiferromagnetic three-sublattice ordering of the magnetic  $\text{Mn}^{3+}$  moments. (b)  $Z$  mode spin precession. The figures are reused from ref. 27 under Nature Portfolio author licence policy.

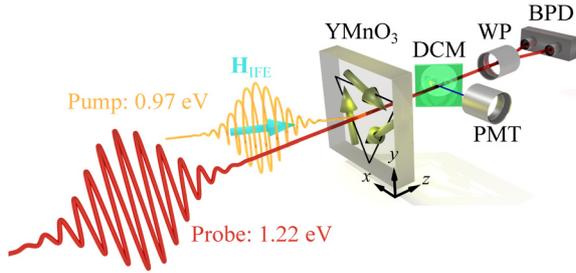


**Fig. 2** Coupling of  $\chi_{ijk}$  with antiferromagnetic vector. (a) Temperature dependence of magnon frequency and SHG intensity. Solid squares and open circles correspond to SHG intensity and magnon frequency, respectively. Both measurements show rising behavior below 56 K (Néel temperature). (b) SHG spectra measured at 7 K showing good agreement with literature<sup>32)</sup>. Electronic transition from  $^5\Gamma_1$  ground state to  $^5\Gamma_6$  state at  $2\omega$  causes resonance enhancement of SHG intensity. High transmission at fundamental probe photon energy allows all measurements to be made in transmission configuration. Probe photon energy was set to  $2\omega = 2.44$  eV for all measurements. (c) Reflecting  $P6'_3cm'$  symmetry in magnetic ground state, SHG anisotropy has six-fold symmetry. The figures are reused from ref. 25 under Nature Portfolio author licence policy.

きる<sup>27)</sup>。ここでは、 $A_2$  対称性<sup>35)</sup> を持つ  $Z$  モードに焦点をあてる。

スピン歳差運動の周波数  $\Omega$  は副格子の磁化  $|\mathbf{M}|$  に比例し<sup>36),37)</sup>、これは反強磁性ベクトル  $\ell$  に比例する。さらに、 $\chi_{ijk}$  は  $\mathbf{P} \cdot \ell$  と双線形結合する<sup>38)</sup>。図 2(a) のように、SHG 強度 ( $\propto \chi_{ijk}^2$ ) とスピン歳差運動周波数の温度依存性の振る舞いがよく似ていることは、測定温度範囲で  $\mathbf{P}$  の変化が無視できるほど小さいことを示している。したがって、SHG は反強磁性ベクトル  $\ell$  と  $\chi_{ijk} \propto \ell$  のみを実効的にプローブする。

$\text{YMnO}_3$  の光学特性は詳細に研究されている<sup>33)</sup>。六方晶の結晶構造により、結晶は光学的一軸異方性をもつため、光が主軸 ( $\parallel z$  軸) に平行に入射すると複屈折の影響を受けない。誘電率スペクトルは、 $1.6$  eV<sup>39)</sup> 周辺の電荷移動遷移と近赤外領域<sup>34)</sup> での低い光吸収によって特徴づけられる。インコヒーレントな熱的電子ダイナミクス<sup>28)</sup> を最小



**Fig. 3** Pump and probe measurement system. Circularly polarized 130-fs pump light pulse of 0.97 eV induces spin rotation in  $\text{YMnO}_3$  (0001) via inverse Faraday field  $H_{\text{IFE}}$ . Subsequent spin precession is detected on basis of Faraday rotation [using Wollaston prism (WP) and balanced photodiode (BPD)] and MSHG signal [photomultiplier tube (PMT)] with probe light pulse of 1.22 eV. DCM: dichroic mirror. The figure is reused from ref. 25 under Nature Portfolio author licence policy.

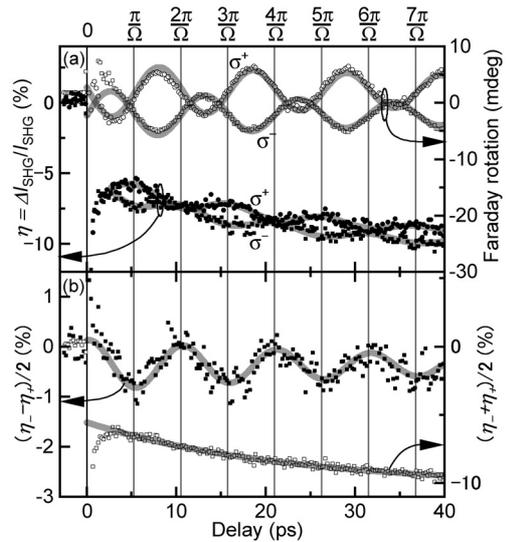
限に抑えるために、0.97 eV の非共鳴エネルギーのポンプ光で励起した。プローブ光エネルギーは  $\hbar\omega = 1.22 \text{ eV}$  とした。高い透過率によってファラデー回転の測定が可能である一方、図 2(b) に示されているように  $2\hbar\omega$  での  $\text{Mn}^{3+}$  イオンの  $d-d$  遷移によって効率的な SHG が得られるためである<sup>32)</sup>。

ポンプ・プローブ測定系を図 3 に示す。ポンプ光・プローブ光はともにほぼ  $z$  軸に平行に入射する。円偏光ポンプ光パルスによる逆ファラデー効果で生成された有効磁場パルス  $H_{\text{IFE}}$  によって、副格子磁化を角度  $\gamma\mu_0 H_{\text{IFE}}\tau$  だけ  $xy$  平面内で回転させる<sup>40)</sup>。ここで、 $\gamma$  は磁気回転比、 $\mu_0$  は真空の透過率であり、 $\tau$  は  $H_{\text{IFE}}$  の時間幅である。透過した直線偏光プローブ光パルスは、ダイクロミックミラーによって基本波と SH 波に分割され、ファラデー回転と SHG 強度の相対変化 ( $\eta = \Delta I_{\text{SHG}}/I_{\text{SHG}}$ ) が別々に時間分解測定される。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 ファラデー回転と MSHG による Z モードの観測

図 4(a) は温度 10 K での測定結果である。ファラデー回転は、周波数  $\Omega/2\pi = (95.2 \pm 0.3) \text{ GHz}$  の正弦波を示した。これは逆ファラデー効果を介した Z モード励起<sup>27)</sup> であり、ポンプ光の円偏光ヘリシティ ( $\sigma^\pm$ ) を反転すると初期位相が  $\pi$  変化する。図 2(c) に示される結晶学的  $x$  軸からのプローブ偏光方位角  $\phi \approx 15^\circ$  の場合、SHG 応答  $\eta$  にコヒーレントな変調が見いだされた。図 4(b) のように、ポンプ光パルスのヘリシティ ( $\sigma^\pm$ ) に対応して  $\eta_\pm$  とし、 $(\eta_- - \eta_+)/2$  と  $(\eta_- + \eta_+)/2$  を取ることで、ヘリシティに依存する成分とヘリシティに依存しない成分を分離した。 $\eta$  の振動成分はヘリシティに依存する寄与に完全に含まれているのに対し、ヘリシティに依存しない寄与は、酸化物系に典型的な時定数<sup>16)</sup> をもつ単一の指数関数的減衰に従う結果が得られた。したがって、ヘリシティに依存しないダイナミクスは熱的



**Fig. 4** Experimental observation of coherent magnetization dynamics by Faraday rotation and MSHG. (a) Magnetization dynamics excited by  $\sigma^+$  (circles) and  $\sigma^-$  (squares) circularly polarized pump light pulses. Open and solid indicate Faraday rotation and relative change in SHG intensity, respectively. Solid lines: attenuated sine (Faraday rotation) and cosine (MSHG) fits. (b) Difference (solid squares) and average (open squares) of time-resolved MSHG changes indicate helicity-dependent and helicity-independent contributions, respectively. Solid lines represent fitting with decaying sine wave and single exponential decay. The figures are reused from ref. 25 under Nature Portfolio author licence policy.

過程に起因すると考えられる。

図 4(b) におけるヘリシティ依存 MSHG 成分  $(\eta_- - \eta_+)/2$  は、ファラデー回転と同じ周波数  $\Omega$  での変調を示している。したがって、ファラデー回転と同様に、MSHG 変調は逆ファラデー効果で励起された Z モードによるものと結論づけられる。ただし、面外磁化成分  $m_z$  に比例するファラデー回転に対して、MSHG 変調は  $\pi/2$  だけ位相がずれている。したがって、MSHG 変調は  $m_z$  に由来していないことになる。 $\omega$  と  $2\omega$  での透過率も周期的な変化を示していなかったことから、SHG 変調が補償された面内磁化成分のダイナミクスを反映していると考えられる。つまり反強磁性ベクトル  $\ell$  の動的变化によって引き起こされる  $\chi_{ijk}$  の変調が観察されたと結論づけられる。 $\chi_{ijk}$  から  $\ell$  に影響を与える可能性のある 2 つのメカニズムが考えられる。(i) 基底状態においてすでに存在する  $\chi_{ijk}$  成分が振幅変調するような、対称性を維持するダイナミクス<sup>41),42)</sup>、交換相互作用の変化<sup>43),44)</sup>、熱的に誘発された消磁ダイナミクス<sup>16),21)</sup> がある。または (ii) 基底状態の  $\chi_{ijk}$  ではゼロだった、新しい成分の出現につながるような、対称性を变化させるダイナミクス。例えば、スピン再配向<sup>45)</sup> および反強磁性スイッチング<sup>1)</sup> がある。

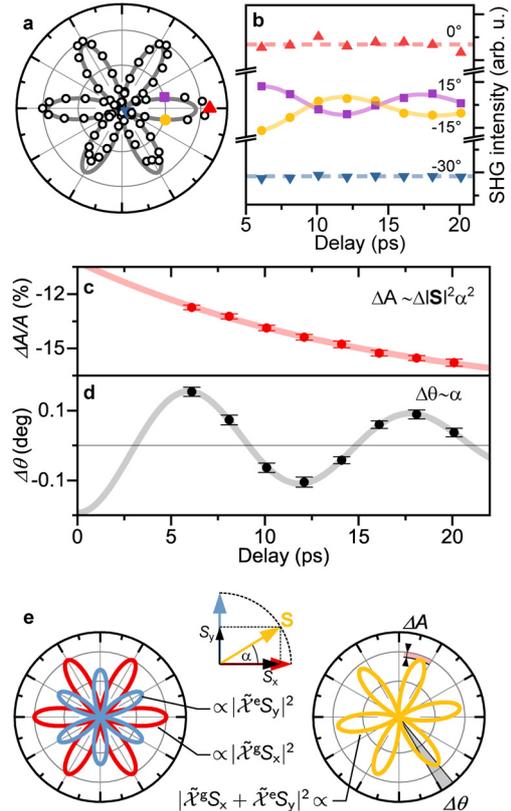
### 3.2 MSHG 異方性の時間分解変調

上記の2つのメカニズムは、励起前後のMSHG信号のプロブ偏光方位依存性(異方性)を測定することにより区別できる。図4ではMSHG異方性のある角度成分( $\phi \approx 15^\circ$ )のダイナミクスを示していたが、SHG異方性を測定することで、生じる可能性のあるいかなる対称性変化も特定できる。図5(a)は、励起前のSHG異方性を示している。これは、 $\text{Mn}^{3+}$ スピンの等価な結晶学的 $x$ 軸に沿って配向した磁気基底状態の $P6_3cm'$ 対称性と一致している。異方性は、振幅 $A$ の6回対称なピークを示しており、それらの方向を $\theta=0^\circ$ と定義する。

図5(a)における1つのピークにおける4つの代表的な角度成分(逆三角, 三角, 四角, 丸)を選び、それらのMSHG強度の時間依存性を図5(b)に表した。ピークの両側(四角と丸)で逆位相の正弦波のような時間依存性が見られたが、最小値(逆三角)または最大値(三角)ではMSHG強度の変調は見られなかった。この振る舞いは、メカニズム(i)MSHG異方性の対称性を維持するような「呼吸振動」では説明できない。このような呼吸は、ピークの両側で同位相の変調として現れる。一方、実測されたダイナミクスは、メカニズム(ii)MSHG異方性のコヒーレントで周期的な小角回転に一致している。MSHG異方性をフィッティングすることにより、振幅 $A$ と方向 $\theta$ のポンプ光による変化を抽出し、その結果をそれぞれ図5(c)と5(d)に示す。

振幅 $A$ は、10%のオーダーの指数関数的な減少を示す。 $\omega$ と $2\omega$ での透過率のわずかな変化は $A$ の10%減少を説明するのに十分ではないため、 $A$ の変化は光学特性の変化によって引き起こされたとは考えられない。代わりに、等方的、つまり偏光に依存しないふるまいはインコヒーレントな緩和を示す。したがって、この緩和は、ベクトルの縦方向のダイナミクス、つまり、光励起された電荷キャリアの緩和に関連する総副格子磁化 $|\mathbf{S}|$ の減少に起因すると考えられる。

図5(b)ですでに示されているように、図5(d)は、MSHG異方性の明瞭な周期的変調を表している。 $\Delta\theta$ の変調周波数は、ファラデー回転の変調周波数と一致することから、 $\Delta\theta$ の変調が磁気的な起源をもつことが確認できる。図5(e)に示すように、回転した6回対称パターンは、 $\theta=0^\circ$ (スピン $\parallel x$ 軸, 空間群 $P6_3cm'$ )および $\theta=90^\circ$ (スピン $\parallel y$ 軸, 空間群 $P6_3c'm'$ )の2つの6回対称パターンの重ね合わせとして理解できる。この重ね合わせは、スピンの $x$ 軸から $y$ 軸に向かってコヒーレントに回転することに対応し、したがって、 $P6_3$ もしくはそれ以下への対称性の低下に対応する。 $\tan\alpha = S_y/S_x$ とすると、動的なMSHGテンソルを $\chi(t) = \cos\alpha(t)\tilde{\chi}^e + \sin\alpha(t)\tilde{\chi}^o$ と書ける。ただし、 $\tilde{\chi}^e$ および $\tilde{\chi}^o$ は時間に依存しないテンソルである。したがって、スピン歳差運動における磁化補償されてい

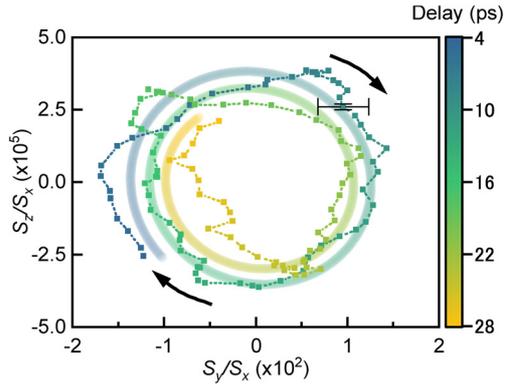


**Fig. 5** Time-resolved modulation of MSHG anisotropy. (a) Measured ground-state MSHG anisotropy. (b) Time-dependent normalized MSHG intensity at various points of anisotropy. (c) Time dependence of relative amplitude change. (d) Time-dependent rotation angle of MSHG anisotropy after excitation. (e) Left panel: MSHG anisotropy calculated assuming  $\mathbf{S} \parallel \hat{x}$  and  $\mathbf{S} \parallel \hat{y}$ . Spins tilted at angle  $\alpha$  lead to superposition of  $S_x$ - and  $S_y$ -related MSHG contributions. Their interference leads to rotations and amplitude changes in MSHG anisotropy (right panel). The figures are reused from ref. 25 under Nature Portfolio author licence policy.

ない $m_z$ に敏感なファラデー回転を補完するものとして、MSHG異方性の回転は、 $xy$ 平面内の補償されたスピン成分の横方向のダイナミクスを反映する。さらに、キュリーの原理<sup>46)</sup>によれば、熱励起の等方性効果は $\chi$ の対称性を低下させない。したがって、MSHG異方性の回転は、非熱的スピンダイナミクスの純粋な尺度といえる。このように、熱的ダイナミクスと非熱的ダイナミクスを分離することができる。

### 3.3 議論

MSHG測定を使用して、 $3\Delta\theta \approx \rho\alpha$ に従ってスピン傾斜角 $\alpha$ を定量化できる。ここで、 $\rho = |\tilde{\chi}^e|/|\tilde{\chi}^o| = 0.6$ は、実感受性 $\tilde{\chi}_{ijk}$ の振幅比である<sup>13),47)</sup>。 $\rho$ はプロブ光パルスの線幅内で $\pm 0.3$ 変化するため、そのオーダーの系統誤差が生じる。図5(d)から、 $\Delta\theta(0) = 0.198 \pm 0.007^\circ$ 、したがって、 $\alpha(0) = 1.0^\circ$ を推定した。ここで統計的誤差はそれぞれ $0.035^\circ$ および $0.5^\circ$ である。これにより、逆ファラデー



**Fig. 6** Spin precession (Z mode). Magnetization dynamics in  $yz$  plane obtained by combining MSHG and Faraday rotation measurements. Solid line shows spin precession of damped ellipsoid. The figure is reused from ref. 25 under Nature Portfolio author licence policy.

効果の有効磁場を  $\alpha(0) = \gamma\mu_0 H_{\text{IFE}}\tau$  として定量化できる。ここで  $\tau = 130$  fs ( $\gamma$  の自由電子値を想定) に対して、 $1^\circ$  は  $\mu_0 H_{\text{IFE}} \approx 760$  mT に相当する。逆ファラデー効果を介した非共鳴励起による光学的に誘導されたスピン傾斜は、強い THz パルスの磁場成分を介した共鳴励起に匹敵するといえる<sup>48)</sup>。

Y<sub>2</sub>MnO<sub>5</sub> (0001) 面内のスピン傾斜角  $\alpha$  の定量化に加えて、時間分解ファラデー回転を使用して、面外方向の最大スピン傾斜角を 2.4 mdeg と推定できる。このような異方的なスピン歳差運動は反強磁性体の一般的な現象であり、“exchange enhancement” とよばれる<sup>4),7),26),49)–51)</sup>。  $S_y$  の時間依存性、つまり  $\alpha$  は、周期的な MSHG 変調に反映される。これを  $S_z$  に敏感なファラデー回転と組み合わせて、完全な反強磁性ベクトルの動きが得られる。図 6 に得られたスピン歳差運動の減衰楕円運動 (実線) を示す。

#### 4. 結 論

本解説では、反強磁性ベクトルダイナミクスの全 3 次元成分を追跡する概念実証実験を提示した。反強磁性体 Y<sub>2</sub>MnO<sub>5</sub> においては、面外スピン傾斜は、ファラデー回転を引き起こす補償されていない強磁性成分を誘発するが、面内スピン傾斜は、MSHG 測定に反映される。逆ファラデー効果で生成したコヒーレントスピン歳差運動を、MSHG とファラデー回転を組み合わせて時間分解測定した。光学的に誘発された面内傾斜を約  $1^\circ$  として定量化した。これは、760 mT の逆ファラデー効果の有効磁場に対応する。このコヒーレントスピン歳差運動は、磁気基底状態対称性を保持した運動ではなく、 $A_2$  モードのコヒーレント励起中の過渡的な対称性の低下を伴うものであった。この対称性の低下の結果、MSHG 異方性に直接影響し、非熱的スピンドイナミクスを熱的ダイナミクスから分離することが可能になった。本手法により、1 つの反強磁性ベクトル成

分だけでなく 3 次元ベクトルの動きを追跡することが可能になり、超高速スイッチング、スピン再配向、およびその他の非平衡現象中に生じる複雑なダイナミクスを理解する助けになることが期待される。

謝 辞 本解説は、著者が 2007 年に科研費・若手研究 (スタートアップ) 「線形・非線形磁気光学を用いた反強磁性磁化ダイナミクスの観測と超高速制御」(19860020) を開始して以来、15 年以上継続中の研究プロジェクトの一部を紹介したものです。多くの共同研究者、特にスイス ETH の Manfred Fiebig 教授、Christian Tzschaschel 博士 (現 Harvard 大研究員) に深く感謝いたします。

#### References

- 1) A. V. Kimel, B. A. Ivanov, R. V. Pisarev, P. A. Usachev, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *Nat. Phys.*, **5**, 727 (2009).
- 2) P. Wadley, B. Howells, J. Železný, C. Andrews, V. Hills, R. P. Campion, V. Novák, K. Olejník, F. Maccherozzi, S. S. Dhesi, S. Y. Martin, T. Wagner, J. Wunderlich, F. Freimuth, Y. Mokrousov, J. Kuneš, J. S. Chauhan, M. J. Grzybowski, A. W. Rushforth, K. W. Edmonds, B. L. Gallagher, and T. Jungwirth: *Science*, **351**, 587 (2016).
- 3) T. Jungwirth, X. Marti, P. Wadley, and J. Wunderlich: *Nat. Nanotechnol.*, **11**, 231 (2016).
- 4) O. Gomonay, V. Baltz, A. Brataas, and Y. Tserkovnyak: *Nat. Phys.*, **14**, 213 (2018).
- 5) V. Baltz, A. Manchon, M. Tsoi, T. Moriyama, T. Ono, and Y. Tserkovnyak: *Rev. Mod. Phys.*, **90**, 015005 (2018).
- 6) V. Saidl, P. Němec, P. Wadley, V. Hills, R. P. Campion, V. Novák, K. W. Edmonds, F. Maccherozzi, S. S. Dhesi, B. L. Gallagher, F. Trojánek, J. Kuneš, J. Železný, P. Malý, and T. Jungwirth: *Nat. Photon.*, **11**, 91 (2017).
- 7) Ch. Tzschaschel, K. Otani, R. Iida, T. Shimura, H. Ueda, S. Günther, M. Fiebig, and T. Satoh: *Phys. Rev. B*, **95**, 174407 (2017).
- 8) Z. Zheng, J. Y. Shi, Q. Li, T. Gu, H. Xia, L. Q. Shen, F. Jin, H. C. Yuan, Y. Z. Wu, L. Y. Chen, and H. B. Zhao: *Phys. Rev. B*, **98**, 134409 (2018).
- 9) M. Fiebig, D. Fröhlich, B. B. Krichevstov, and R. V. Pisarev: *Phys. Rev. Lett.*, **73**, 2127 (1994).
- 10) D. Sa, R. Valentí, and C. Gros: *Eur. Phys. J. B*, **14**, 301 (2000).
- 11) M. Fiebig, V. V. Pavlov, and R. V. Pisarev: *J. Opt. Soc. Am. B*, **22**, 96 (2005).
- 12) Y. R. Shen: *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley-Interscience, Hoboken, 2003).
- 13) M. Fiebig, D. Fröhlich, Th. Lottermoser, and K. Kohn: *Appl. Phys. Lett.*, **77**, 4401 (2000).
- 14) J.-Y. Chaudhary, E. Haltz, C. Carrétéro, S. Fusil, and M. Viret: *Nat. Mater.*, **16**, 803 (2017).
- 15) N. P. Duong, T. Satoh, and M. Fiebig: *Phys. Rev. Lett.*, **93**, 117402 (2004).
- 16) T. Satoh, B. B. Van Aken, N. P. Duong, Th. Lottermoser, and M. Fiebig: *Phys. Rev. B*, **75**, 155406 (2007).
- 17) L. Huber, A. Ferrer, T. Kubacka, T. Huber, C. Dornes, T. Sato, K. Ogawa, K. Tono, T. Katayama, Y. Inubushi, M. Yabashi, Y. Tanaka, P. Beaud, M. Fiebig, V. Scagnoli, U. Staub, and S. L. Johnson: *Phys. Rev. B*, **92**, 094304 (2015).
- 18) A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and Th. Rasing: *Rev. Mod. Phys.*,

- 82**, 2731 (2010).
- 19) M. Matsubara, Y. Kaneko, J.-P. He, H. Okamoto, and Y. Tokura: *Phys. Rev. B*, **79**, 140411(R) (2009).
  - 20) V. G. Sala, S. Dal Conte, T. A. Miller, D. Viola, E. Luppi, V. Vénier, G. Cerullo, and S. Wall: *Phys. Rev. B*, **94**, 014430 (2016).
  - 21) Y. M. Sheu, N. Ogawa, Y. Kaneko, and Y. Tokura: *Phys. Rev. B*, **94**, 081107(R) (2016).
  - 22) T. Satoh, S.-J. Cho, R. Iida, T. Shimura, K. Kuroda, H. Ueda, Y. Ueda, B. A. Ivanov, F. Nori, and M. Fiebig: *Phys. Rev. Lett.*, **105**, 077402 (2010).
  - 23) Y. Acremann, C. H. Back, M. Buess, O. Portmann, A. Vaterlaus, D. Pescia, and H. Melchior: *Science*, **290**, 492 (2000).
  - 24) N. Tesařová, P. Němec, E. Rozkotová, J. Šubrt, H. Reichlová, D. Butkovičová, F. Trojánek, P. Malý, V. Novák, and T. Jungwirth: *Appl. Phys. Lett.*, **100**, 102403 (2012).
  - 25) Ch. Tzschaschel, T. Satoh, and M. Fiebig: *Nat. Commun.*, **10**, 3995 (2019).
  - 26) B. A. Ivanov: *Low Temp. Phys.*, **40**, 91 (2014).
  - 27) T. Satoh, R. Iida, T. Higuchi, M. Fiebig, and T. Shimura: *Nat. Photon.*, **9**, 25 (2015).
  - 28) D. Bossini and Th. Rasing: *Phys. Scr.*, **92**, 024002 (2017).
  - 29) T. Satoh, R. Iida, T. Higuchi, Y. Fujii, A. Koreeda, H. Ueda, T. Shimura, K. Kuroda, V. I. Butrim, and B. A. Ivanov: *Nat. Commun.*, **8**, 638 (2017).
  - 30) P. Němec, M. Fiebig, T. Kampfrath, and A. V. Kimel: *Nat. Phys.*, **14**, 229 (2018).
  - 31) M. Lilienblum, Th. Lottermoser, S. Manz, S. M. Selbach, A. Cano, and M. Fiebig: *Nat. Phys.*, **11**, 1070 (2015).
  - 32) C. Degenhardt, M. Fiebig, D. Fröhlich, Th. Lottermoser, and R. V. Pisarev: *Appl. Phys. B*, **73**, 139 (2001).
  - 33) Y. T. Wang, C. W. Luo, and T. Kobayashi: *Adv. Condens. Matter Phys.*, **2013**, 104806 (2013).
  - 34) G.-J. Babonas, J.-C. Grivel, A. Reza, and R. Girkantaite: *Lith. J. Phys.*, **47**, 309 (2007).
  - 35) C. Toulouse, J. Liu, Y. Gallais, M.-A. Measson, A. Sacuto, M. Cazayous, L. Chaix, V. Simonet, S. de Brion, L. Pinsard-Godart, F. Willaert, J. B. Brubach, P. Roy, and S. Petit: *Phys. Rev. B*, **89**, 094415 (2014).
  - 36) T. J. Sato, S.-H. Lee, T. Katsufuji, M. Masaki, S. Park, J. R. D. Copley, and H. Takagi: *Phys. Rev. B*, **68**, 014432 (2003).
  - 37) O. P. Vajk, M. Kenzelmann, J. W. Lynn, S. B. Kim, and S.-W. Cheong: *Phys. Rev. Lett.*, **94**, 087601 (2005).
  - 38) M. Fiebig, Th. Lottermoser, D. Fröhlich, A. V. Goltsev, and R. V. Pisarev: *Nature*, **419**, 818 (2002).
  - 39) A. M. Kalashnikova and R. V. Pisarev: *J. Exp. Theor. Phys.*, **78**, 143 (2003).
  - 40) L. D. Landau, L. P. Pitaevskii, and E. M. Lifshitz: *Electrodynamics of Continuous Media* (Pergamon, Oxford, 1984).
  - 41) Y. M. Sheu, N. Ogawa, Y. Tokunaga, H. C. Chan, and Y. Tokura: *Phys. Rev. B*, **98**, 100301(R) (2018).
  - 42) R. Mankowsky, A. von Hoegen, M. Först, and A. Cavalleri: *Phys. Rev. Lett.*, **118**, 197601 (2017).
  - 43) A. Melnikov, I. Radu, U. Bovensiepen, O. Krupin, K. Starke, E. Matthias, and M. Wolf: *Phys. Rev. Lett.*, **91**, 227403 (2003).
  - 44) M. Matsubara, A. Schroer, A. Schmehl, A. Melville, C. Becher, M. Trujillo-Martinez, D. G. Schlom, J. Mannhart, J. Kroha, and M. Fiebig: *Nat. Commun.*, **6**, 6724 (2015).
  - 45) A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsvetkov, R. V. Pisarev, and Th. Rasing: *Nature*, **429**, 850 (2004).
  - 46) I. Hargittai and B. K. Vainshtein: *Crystal Symmetries* (Pergamon, Amsterdam, 1989).
  - 47) T. Iizuka-Sakano, E. Hanamura, and Y. Tanabe: *J. Phys.: Cond. Matter*, **13**, 3031 (2001).
  - 48) S. Baierl, J. H. Mentink, M. Hohenleutner, L. Braun, T.-M. Do, C. Lange, A. Sell, M. Fiebig, G. Woltersdorf, T. Kampfrath, and R. Huber: *Phys. Rev. Lett.*, **117**, 197201 (2016).
  - 49) A. M. Kalashnikova, A. V. Kimel, R. V. Pisarev, V. N. Gridnev, P. A. Usachev, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *Phys. Rev. B*, **78**, 104301 (2008).
  - 50) P. Khan, M. Kanamaru, K. Matsumoto, T. Ito, and T. Satoh: *Phys. Rev. B*, **101**, 134413 (2020).
  - 51) Ch. Tzschaschel, T. Satoh, and M. Fiebig: *Nat. Commun.*, **11**, 6142 (2020).

(2022年7月3日受理)

佐藤琢哉 さとうたくや

2004年 東京大学大学院工学系研究科博士課程修了, 2003年 ドイツ Max-Born 研究所研究員, 2005年 東京大学大学院総合文化研究科研究員, 2007年 東京大学生産技術研究所助教, 2010年 科学技術振興機構さきかけ研究者(兼任), 2014年 九州大学大学院理学研究院准教授, 2015年 スイス ETH Zurich 客員教授(兼任), 2019年 東京工業大学理学院教授, 現在に至る.  
専門 磁気光学, 非線形光学, 超高速科学 博士(工学)