

令和 4 年 5 月 27 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2021

課題番号：18H01859

研究課題名(和文)フォノンとマグノンの相互作用を用いた反強磁性ナノ薄膜中のスピンドYNAMICSの解明

研究課題名(英文) Spin dynamics in antiferromagnetic nanofilms studied by phonon-magnon interaction

研究代表者

長久保 白 (Nagakubo, Akira)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号：70751113

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,800,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では反強磁性体におけるフォノン-マグノンカップリングの解明と応用を目指し、NiOの基礎的なフォノン特性の究明と高周波縦波フォノンの相互作用の解明を達成した。Pt/NiO/Pt3層膜に対する高精度な弾性率計測からNiO薄膜の弾性特性は成膜条件によって大きく異なることが明らかとなり、また単結晶バルク体に対する音響共振計測からは反強磁性結合と格子振動特性は大きく関連しており曲げやねじりといった振動モードに応じてその度合いは大きく異なることが明らかとなった。これらの成果は今後反強磁性ナノ薄膜のフォノン特性を応用する上で重要な知見となる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

反強磁性体のフォノン特性およびマグノンとの相互作用は未だに不明な点が多い。本研究ではバルク単結晶体に対するモード毎の詳細な音響共振計測から反強磁性結合とフォノン特性との相関について知見をもたらし、また薄膜化した際の弾性特性は基板や成膜温度によって大きく変化することも見出した。これらは今後反強磁性体中におけるフォノン-マグノン相互作用を考察する上で非常に重要な役割を果たす。また強磁性体中における縦波フォノンと磁気モーメントの相互作用を解明した結果は今後さらなる高周波帯域におけるフォノン-マグノン相互作用の解明に貢献する。

研究成果の概要(英文)：In this study, we studied the fundamental phono properties of NiO and the interaction between magnon and GHz-range longitudinal phonon to reveal and apply the phonon-magnon coupling in antiferromagnets. Our measurement for Pt/NiO/Pt nanofilms revealed that the elastic constant of NiO largely changes depending on deposition conditions and substrates. From ultrasound resonance spectroscopy measurement for a single bulk crystal, we also found that the antiferromagnetic order seriously affects the phonon properties, which change with deformation modes. These results will contribute to further study and application of the phonon properties of antiferromagnetic films.

研究分野：音響物理学

キーワード：超音波 磁性体 フォノン マグノン 相互作用 NiO フェムト秒パルスレーザ TR-MOKE

### 1. 研究開始当初の背景

電流とは電荷とスピンをもった電子の流れであり、現代技術の根幹をなす。近代になるまでそのスピンについては注目されることは少なかったが、nm オーダの微細加工技術の発達により電子のスピンが脚光を浴びている。その結果、例えばスピンの方向によって電気抵抗が大きく変化する巨大磁気抵抗効果・トンネル磁気抵抗効果はハードディスクの容量を大幅に増加させナノテクノロジーの飛躍的な発展に貢献した。また電流や熱エネルギーとスピンの流れの相互変換現象であるスピン Hall 効果・スピン Seebeck 効果などが発見され、次々と新しい物理現象を開拓している。

この中で今まで重要な役割を担ってきたのが強磁性体(磁石)である。強磁性体は原子それぞれが電子のスピンに由来する強力な磁石であり、特定の方向に揃って自発磁化を有する。一方、反強磁性体という原子それぞれは強力な磁石だが互いに逆向きに整列しているため自発磁化を有さない材料が近年注目を集めている。正味の自発磁場を有さないため漏れ磁場が小さく、メモリとして用いることができれば高密度化できる。また各スピンは強力に結合しているため磁気共鳴周波数が高く、情報媒体に利用出来れば高速化につながる。

しかし同時にこれら反強磁性体の優れた特性は外部からの磁場やスピンの影響を受けにくくさせ、THz または ps オーダでの計測技術を要求するためその計測・応用を困難にしている。特にスピンを操るにおいてナノ薄膜は必須だが、計測はさらに難しくなる。つまりナノ強磁性体をナノ反強磁性体に置き換えてデバイスの高性能化や超高速スピンドYNAMIKSの開拓を実現できるか否かはスピントロニクス分野を通した大きな核心的問いである。

### 2. 研究の目的

本研究の目的はフォノン-マグノンカップリングという新たな手法を反強磁性薄膜に対して取り入れることで、ナノ薄膜中の反強磁性共鳴の観測やスピン波・スピンポンピングといった磁気共鳴を利用したスピンドYNAMIKSを THz 領域において切り開くことである。これは反強磁性ナノ薄膜の磁気共鳴周波数の磁場・温度依存性の計測や、交換結合定数・異方性エネルギーや Neel 点といった磁性体の根幹をなすパラメータのナノ薄膜化の影響の解明につながる。そのためにはまず反強磁性体の基礎的なフォノン特性の解明および高周波フォノンとマグノンの相互作用の解明が欠かせない。そこで本研究では (1) 反強磁性 NiO 薄膜の弾性率計測、(2) Ni 薄膜中における縦波高周波フォノンとマグノンの相互作用の究明、(3) バルク体 NiO の Neel 点前後における弾性異常性の解明を行った。

### 3. 研究の方法

#### (1) 反強磁性 NiO 薄膜の弾性率計測

誘電体ナノ薄膜の弾性率を高精度で計測することが可能な新たな手法として、金属/誘電体/金属 3 層構造の作製とピコ秒超音波法による高周波フォノン計測を提案した。金属などの材料にフェムト秒パルスレーザー (ポンプ光) を照射すると、その材料およびレーザー光の波長に応じた光の吸収長領域内の電子温度が瞬間的に上昇する。これは~1 ps 程度の時間で格子温度、つまり熱膨張へと変わる。これが駆動力となり、吸収長と同程度の波長を有するサブ THz 超音波パルスが試料の深さ方向に伝わっていく。しかし非金属材料の多くは可視光の吸収率が低いため、この手法で超音波を発生させることができない。そこで図 1 のように酸化ニッケル NiO (反強磁性誘電体) を白金 Pt (金属) で挟み込んだ 3 層構造を提案する。このようにすることでポンプ光は表裏の Pt で吸収され高周波フォノンを励起することができる。またこのような 3 層自立膜中を超音波が伝播すると表面で反射し、定在波を形成する。その変位分布を固有方程式から算出し、ひずみエネルギー分布を計算すると図 1 のように中央の NiO 層に集中する。従ってこのような共振周波数は NiO の弾性定数への依存性が大きく高精度で決定することができる。

試料は高真空 RF マグネトロンスパッタリング法を用いて(0001)面 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、熱酸化膜付 Si 基板、(100)面 Si 基板上に基板温度 300-700 K の範囲で成膜した。

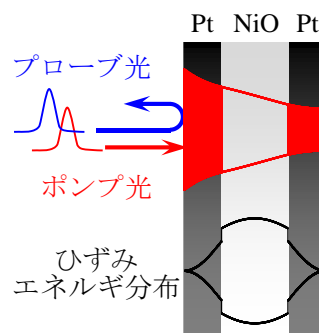


図 1 誘電体の弾性率を計測するための 3 層構造におけるポンプ光強度およびひずみエネルギー分布

(2) Ni 薄膜中における縦波高周波フォノンとマグノンの相互作用の究明

Ni 薄膜に外部磁場を印可しつつ GHz-サブ THz 帯の縦波超音波を励起するためにチタン/サファイアフェムト秒パルスレーザと超伝導磁石または永久磁石を組み合わせた図2のような光学系を本研究において独自に構築した。光源にはパルス幅約 150 fs, パルス発生周波数約 80 MHz, 中心波長 800 nm, バンド幅約 7.0 nm, 出力約 3.7 W のチタンサファイアフェムト秒パルスレーザを用いた。光源より発信したレーザ光を偏光ビームスプリッタによってポンプ光とプローブ光に分離する。ポンプ光の光路内にはコーナーリフレクタとステッピングモータによって形成した可変遅延光路を組み込み、その光路長を短縮することでプローブ光を相対的に遅延させる。またポンプ光によって励起した過渡応答をロックイン計測により抽出するために音響光学結晶変調器を用いてポンプ光に 100 kHz の強度変調を施す。プローブ光と光軸を合わせて試料に入射するため波長 800 nm 近傍の光のみを反射するダイクロイックミラーによって反射し、対物レンズを通して試料へ入射する。

プローブ光は波長でポンプ光と区別するために 1 軸非線形性が大きいβ型ホウ酸バリウムβ-BaB<sub>2</sub>O<sub>4</sub> を第 2 次高調波発生源として使用して中心波長を 400 nm に変換した。波長変換後のバンド幅は約 2.3 nm である。また変換の際に効率向上のため 2 組の平凸レンズで SHG 部のみ局所的にエネルギー密度を上昇させた。波長 400 nm のプローブ光をビームスプリッタによって反射し、ダイクロイックミラー透過時にポンプ光と光軸を重ね、対物レンズを通してポンプ光と共に試料へ垂直に入射する。試料で反射したプローブ光は光路を逆順にたどり、ビームスプリッタを透過したプローブ光の偏光角を半波長板で調整し、Wollaston プリズムで偏光方向に応じて分離する。垂直に入射した光の偏光角は極 Kerr 効果によって試料面外方向の磁化成分に応じて変化する。従ってこのバランスディテクタの出力をロックインアンプへ出力し、変調を施した 100 kHz の成分の信号強度を抽出することでポンプ光によって励起した過渡応答の面直方向磁化成分を ps オーダで観測することができる。

試料は高真空 RF マグネトロンスパッタリング法を用いて熱酸化膜付 Si 基板上に 650 K で Ni を 300 nm、SiO<sub>2</sub> を 2 nm 成膜した。

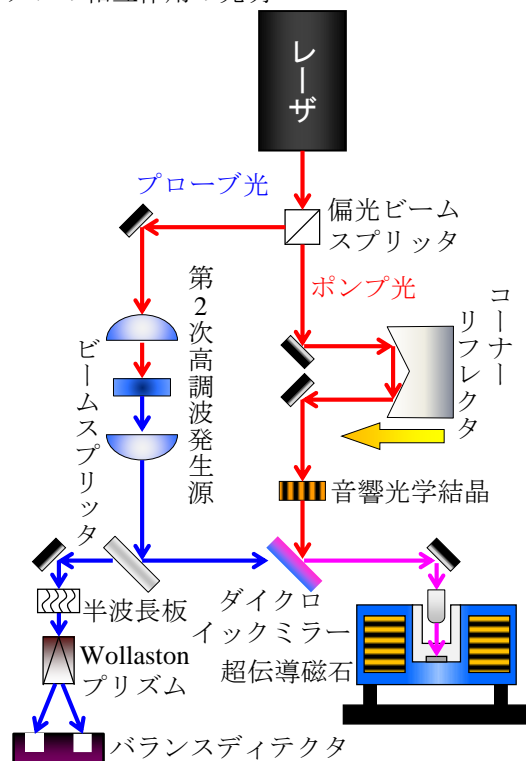


図2 本研究によって構築した超伝導磁石組込型光学系の模式図

(3) バルク体 NiO の Neel 点前後における弾性異常性の解明

バルク試料の弾性定数及び音響減衰を正確に計測するために図3に示すような系を構築して超音波共鳴スペクトロスコピ法を用いた。圧電ピンデューサの先端にガラス製バッファロッドを取り付けた 2 本のトランスデューサと 1 本の熱電対の先端に試料を静置する。その状態で信号発生器から一定周波数の交流信号を圧電ピンデューサに入力することで試料を励振し、試料の振動をもう 1 本の圧電ピンデューサを通して検出する。受信信号をレシーバにより受信し、信号発振器と同期したデジタルサイザを介して波形データとして PC に取り込んだ後に励起周波数の振動振幅と位相を算出する。周波数を掃引しながらこの処理を行うと試料の形状・密度・弾性定数によって決まる共振周波数と一致した時に振幅が大きくなり位相遅れが生じる。従って試料の形状と密度と共振周波数を計測することによって弾性定数を決定することができる。また音響減衰の大きさは共振スペクトルの半値幅の大きさに比例するため、同時に音響減衰も計測することができる。試料上部には小型の加熱炉と温度コントローラを取り付け、300-570 K の範囲において共振スペクトルを取得した。試料は(100)方位の単結晶基板を購入した。

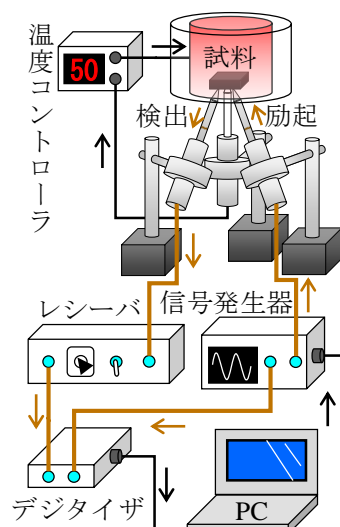


図3 超音波共鳴スペクトロスコピ法の実験系概略図

#### 4. 研究成果

##### (1) 反強磁性 NiO 薄膜の弾性率計測<sup>[1]</sup>

各基板に異なる温度で成膜した Pt/NiO/Pt 薄膜試料の構造を X 線回折により評価した結果を図 4(a)に示す。室温で成膜した場合は約 50 度の回折角度に Pt(200)由来のピークが発現したが、温度上昇に伴いそのピーク強度は減少すると同時に 40, 45, 90, 110 度近傍の Pt(111)または NiO(111)面由来の回折ピーク強度が上昇した。これは成膜時の温度を上昇させることにより最密面である(111)面の原子配列が優勢となり結晶性が向上したことを示す。ただし Si 基板の場合は 706 K で成膜すると Ni(111)面由来のピークが発現し、これは NiO が分解してしまったことを示唆する。

温度と基板を変えて成膜した NiO 薄膜の弾性率を高精度で決定するために最適な Pt の膜厚を求めため、Pt の厚さを変更しながら Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上に室温で成膜した Pt/NiO/Pt 多層膜の音響応答を取得した結果を図 3(b)に示し、この振幅の積分値と本研究で提案する多層膜の励起検出効率関数を図 3(c)に示す。励起および検出効率は多層膜中における光の多重反射を考慮したうえで、ポンプ光の強度分布と共振モードのひずみエネルギー分布の内積およびプローブ光の強度分布と共振モードのひずみ分布の内積で定義した。Pt の厚さが増加するにつれて吸熱量が増えるため励起効率は上昇するが、それと同時にひずみエネルギーが Pt 内部と NiO に集中するため表面ひずみが減少し、励起および検出効率が低下する。これらの兼ね合わせにより図 3(c)の実線のように最適な励起検出効率の Pt 膜厚が存在し、実際に計測した振幅の積分値と同様の傾向を取るモデルの導出に至った。また Pt の厚さが小さいほうが NiO の弾性率の貢献度が高い。これらの結果に基づき Pt の厚さを約 18 nm として試料を作製した。

NiO の弾性率は成膜温度の上昇とともに最大 60%以上上昇し、これは結晶性の向上と対応している。また基板に応じて弾性率の値も 10%以上異なり、バルクの報告値とも大きく異なる。これらの結果から NiO 薄膜の弾性特性が成膜条件に応じて大きく変化することが明らかとなり、フォノン-マグノン相互作用を利用する際にも薄膜の作製条件に応じた音響特性の変化を考慮する必要性を示唆している。

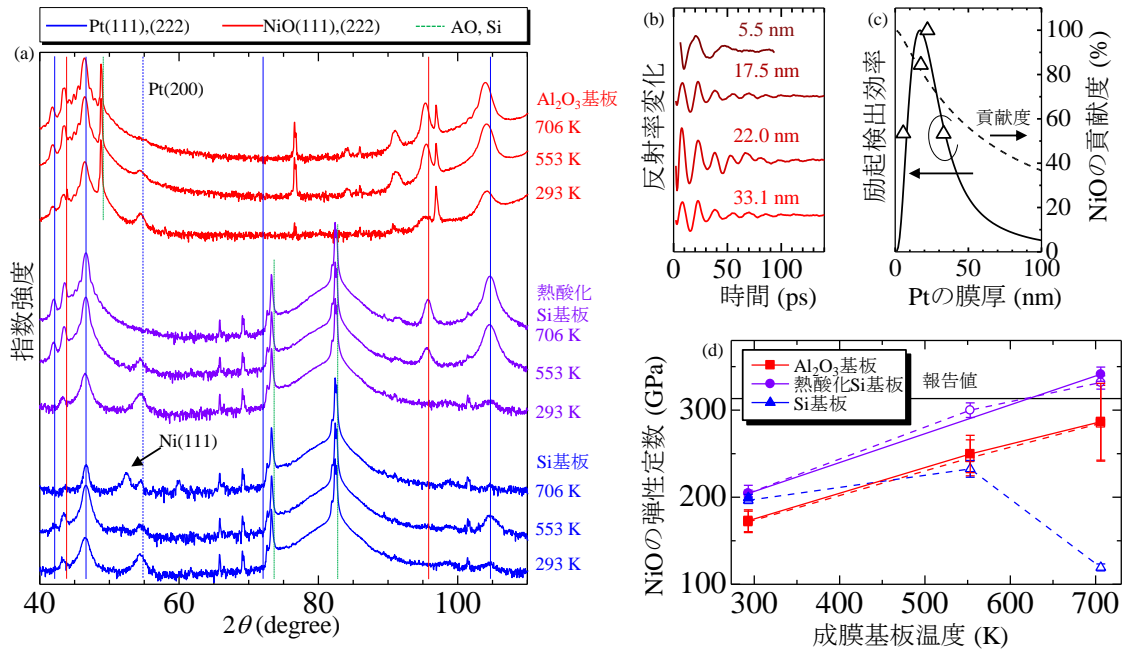


図 4(a)異なる温度、基板で成膜した Pt/NiO/Pt 多層膜の X 線回折スペクトル。(b)Pt の厚さを変更しながら室温で Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上に成膜した Pt/NiO/Pt 多層膜の音響共振と、(c)プロットはその積分値。実線は本研究で提案した励起検出効率のモデル関数の Pt 膜厚依存性で、破線は共振周波数に対する NiO の弾性率の貢献度。(d)計測した NiO 薄膜の弾性率

##### (2) Ni 薄膜中における縦波高周波フォノンとマグノンの相互作用の究明<sup>[2]</sup>

Ni 薄膜の音響応答を無磁場と 0.5 T の磁場下で取得した結果、図 5(a), (b)のように時刻 100 ps あたりで音響パルスが現れた。またこれら取得波形に高速 Fourier 変換を施したところ図 5(c)のように磁場下では約 10 GHz あたりにスペクトルが現れた。

磁化応答を取得するために 0.5 T の磁場を試料面直方向に異なる角度で印可しながら反射プローブ光の極 Kerr 回転角を時間分解計測した結果、図 5(d), (e)のように 10 - 20 GHz の振動のほか特定の磁場角度の場合にのみ約 100 ps にパルス応答が現れた。極 Kerr 回転角は表面垂直方向の磁気モーメントに応じて変化するため、このパルスは表面に到達したひずみパルスが特定の磁場角度の場合にのみ磁気モーメントに変化を及ぼしていることを表し、磁場角度依存性を図 5(f)に示す。またこれを解析的に評価するため、Landau-Lifshitz-Gilbert 方程式に磁わい効果によ

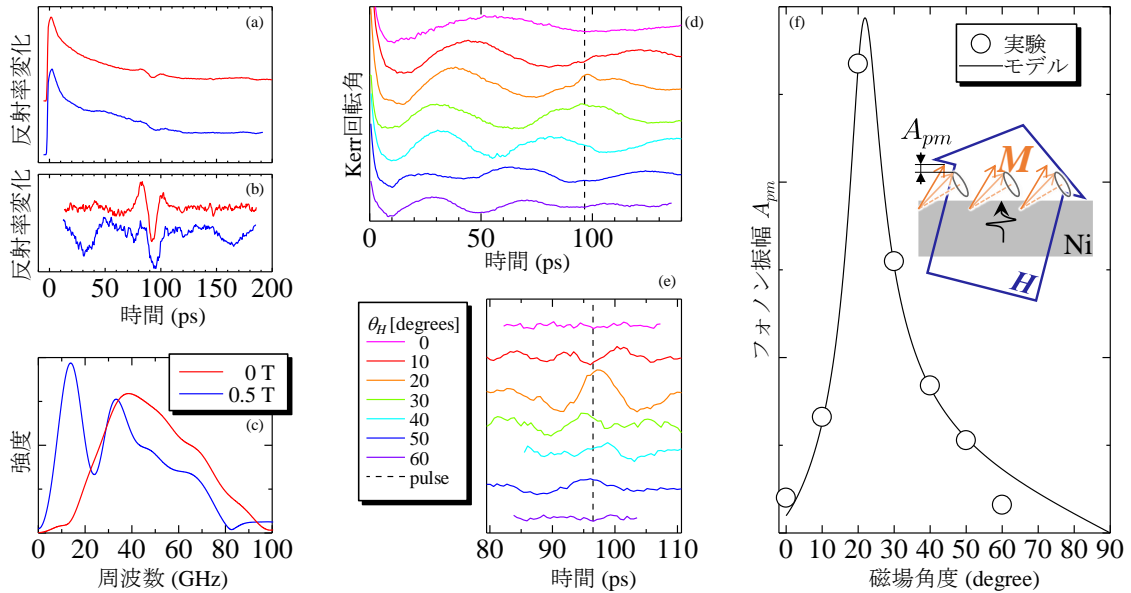


図 5 (a)無磁場、磁場下で取得した Ni 膜の反射率変化と (b)抽出したパルス応答および (c)その周波数スペクトル。(d)異なる角度で 0.5 T の磁場を Ni 膜に印可した際の時間分解 Kerr 計測結果と (e)抽出したパルス応答および (f)その振幅の磁場角度依存性。実線はモデル計算値。

るエネルギーと有効磁場を導入した固有方程式を用いて縦波超音波による面外方向の磁気モーメントの磁場角度依存性を導出した。計算した結果は図 5(f)に示すように実験値とよく一致し、10 GHz 付近でピークを取った。これは面外方向に伝播するひずみパルスにおいても特定周波数成分においてフォノン-マグノンカップリングが大きくなることを示しており、今後さらに高周波成分の縦波フォノンとマグノンの相互作用の解明への進展が期待される。

### (3) バルク体 NiO の Neel 点前後における弾性異常性の解明

長さ 60 mm 程度のガラスロッドを先端に取り付けた圧電トランスデューサ上に NiO(100)単結晶を静置し、ヒータで試料温度を変化させながら音響共振のスペクトルを取得した。ねじり振動の 1 次モードは室温で約 86 kHz 付近に発現し、図 6(a)のように温度上昇に伴いその周波数は 50%以上上昇した。またスペクトル形状は室温から 493 K まで大きな変化は現れなかったが、それ異常高温になると急激にスペクトル線幅が狭くなった。一方、曲げ振動の場合は図 6(b)に示すように周波数の変化率が 5%程度であり、半値幅の変化率もねじり振動の場合と比較すると小さい。

温度上昇に伴うこれら変化は NiO が反強磁性秩序を失うことに関連している。特に振動モードによってこれほど顕著な差が生じた今回の結果は反強磁性秩序とフォノン振動には大きな相互作用があり、また超音波共鳴スペクトロスコピ法は各振動モードの共振周波数と  $Q$  値の変化率を高精度で計測することができるためその相互作用を解明する有効な手段であることが本研究により明らかとなった。

以上、本研究では反強磁性体におけるフォノン-マグノンカップリングの解明と応用を目指し、NiO の基礎的なフォノン特性の究明と高周波縦波フォノンの相互作用の解明を達成した。これらの成果は今後反強磁性ナノ薄膜のフォノン特性を応用する上で重要な知見となる。

### 参考文献

- [1] H. Fukuda, A. Nagakubo, and H. Ogi, Jpn. J. Appl. Phys. **60**, SDDA05 (2021).
- [2] K. Tojo, A. Nagakubo, and H. Ogi, Jpn. J. Appl. Phys. **61**, SG1007 (2022).

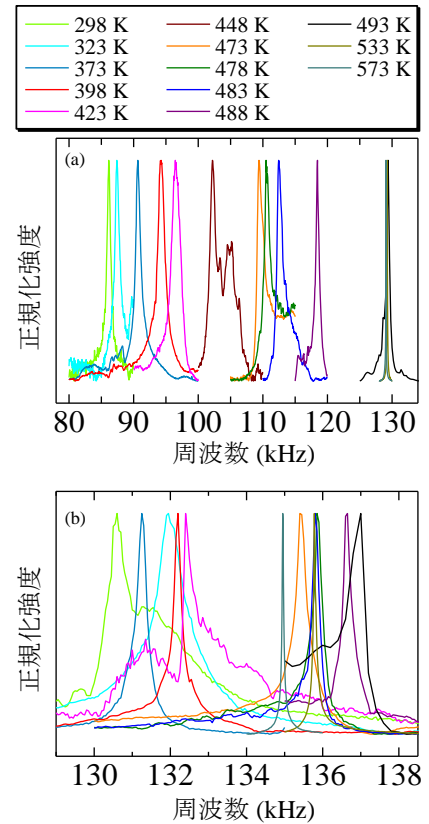


図 6 NiO(100)単結晶に対して各温度で計測した (a)ねじり振動と (b)曲げ振動の音響共振スペクトル

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Fukuda Hiroki, Nagakubo Akira, Ogi Hirotsugu	4. 巻 60
2. 論文標題 Elastic constant of dielectric nano-thin films using three-layer resonance studied by picosecond ultrasonics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SDDA05 ~ SDDA05
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/abec5a	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nagakubo A., Lee H. T., Ogi H., Moriyama T., Ono T.	4. 巻 116
2. 論文標題 Elastic constants of beta tungsten thin films studied by picosecond ultrasonics and density functional theory	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 021901 ~ 021901
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5131768	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nagakubo A., Lee H. T., Ogi H., Moriyama T., Ono T.	4. 巻 116
2. 論文標題 Elastic constants of beta tungsten thin films studied by picosecond ultrasonics and density functional theory	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 021901 ~ 021901
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5131768	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Nagakubo A., Kanai K., Tamura H., Tange A., Ogi H.	4. 巻 12
2. 論文標題 Variable repetition frequency asynchronous optical sampling method without a feedback loop	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 AIP Advances	6. 最初と最後の頁 045323 ~ 045323
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0083354	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 H. Fukuda, A. Nagakubo, H. Ogi
2. 発表標題 Acoustic properties of metal/antiferromagnet epitaxial multilayers
3. 学会等名 The 41th Symposium on Ultrasonic Electronics (USE 2020) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 坪井誠也, 荻博次, 長久保白, 松田聡, 壁義郎, 是枝聡肇, 藤井康裕
2. 発表標題 アモルファス酸化シリコン薄膜の音速の温度依存性: ゼロ温度係数の実現
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 長久保白, 土生善昭, Lee Heun Tae, 上田良夫, 荻博次
2. 発表標題 ピコ秒超音波法を用いたアルファ及びベータ型タングステンナノ薄膜の弾性率計測および重水素照射による機械特性の変化
3. 学会等名 第79回応用物理学会秋期学術講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Akira Nagakubo, Tokihiro Nishihara, Hirotsugu Ogi
2. 発表標題 Resonance frequencies of AlN and metal freestanding multilayers studied by picosecond ultrasonics
3. 学会等名 The 39th Symposium on Ultrasonic Electronics (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hiroki Tamura, Akira Nagakubo, Teruo Ono, Hirotsugu Ogi
2. 発表標題 Guided acoustic wave in a single Pt nanowire
3. 学会等名 2018 IEEE International Ultrasonics Symposium (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 A. Wake, H. Ogi, A. Nagakubo, K. Kusakabe, K. Murashima, M. Murakami
2. 発表標題 Picosecond-ultrasound study on interlayer interaction of monocrystal graphite
3. 学会等名 2018 IEEE International Ultrasonics Symposium (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 K. Tojo, A. Nagakubo, H. Ogi
2. 発表標題 Interaction between ultrasound and magnetization in ferromagnetic thin film studied by picosecond ultrasonics
3. 学会等名 The 42nd Symposium on Ultrasonic Electronics (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	森山 貴広  (Moriyama Takahiro)  (50643326)	京都大学・化学研究所・准教授    (14301)	



6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	塩田 陽一  (Shiota Youichi)  (70738070)	京都大学・化学研究所・助教     (14301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関