

令和 5 年 6 月 16 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14218

研究課題名（和文）強磁性金属極薄膜を用いた狭帯域テラヘルツ波発生素子の創成

研究課題名（英文）Narrow band terahertz wave emitter using ferromagnetic ultrathin films

研究代表者

佐々木 悠太（SASAKI, Yuta）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・若手国際研究センター・NIMSポスドク研究員

研究者番号：60855782

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：テラヘルツ波は0.1-10 THz程度の周波数帯に位置する電磁波の総称であり、爆発物や薬剤などの分析用の光源として期待されている。従来、半導体材料を用いてテラヘルツ波を発生させていたが、最近、強磁性金属極薄膜からの高効率なテラヘルツ波発生が注目されている。本研究では狭帯域かつ高効率なテラヘルツ波放射を目指して材料開発を行った。特にCo<sub>2</sub>MnSiという材料はスピン角運動量の注入効率が非常に高いためこの材料がテラヘルツ波放射素子として有望な材料であることが明らかとなった。さらに、MnCrAlGe薄膜において、テラヘルツ波帯のスピンダイナミクスが高効率に励起出来ることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

テラヘルツ波帯の物性評価では、一般的な電気測定機器の周波数帯域を超えているため計測が困難であり、特に強磁性材料におけるテラヘルツ波帯のスピンダイナミクスはあまり調べられてこなかった。本研究では、そのような技術的困難を全光学的手法を用いて克服し、様々な材料についてテラヘルツ波帯のダイナミクスを明らかにした点で学術的意義がある。また、高効率なテラヘルツ波光源やMnCrAlGeおよびFePtといった磁性材料において実際にテラヘルツ波帯の磁化ダイナミクスを実証することで、今後強磁性金属極薄膜を用いたテラヘルツ素子の開発につながる点で社会的意義がある。

研究成果の概要（英文）：Terahertz waves are a collective term for electromagnetic waves with frequencies ranging from 0.1 to 10 THz. They are being explored as a valuable tool for the analysis of explosives, drugs, and other substances. Conventionally, terahertz waves have been generated using semiconductor materials. However, recently there has been a growing interest in efficient terahertz wave generation from ultrathin films of ferromagnetic metals. In this study, we aimed to develop materials for efficient and narrowband terahertz wave emission, which is crucial for practical applications.

We found that the material called Co<sub>2</sub>MnSi exhibits remarkably high efficiency in injecting spin angular momentum, making it a promising candidate for terahertz wave emission devices. Additionally, we discovered that MnCrAlGe films can efficiently excite spin dynamics in the terahertz wave range.

研究分野：強磁性金属薄膜

キーワード：テラヘルツ スピントロニクス 金属薄膜 全光学的時間分解分光 超短パルスレーザー

### 1. 研究開始当初の背景

テラヘルツ(THz)波とは、電磁波と遠赤外光の帯域の中間に位置する 0.1~10 THz 程度の周波数を有する電磁波である。特に高分子化合物材料固有の吸収スペクトルが THz 帯域に存在するため、有機分子の分析を行うことができる。電磁波のように、不透明な物質を透過することができるうえ、光のように指向性が高い特徴を利用して、郵便物や空港の持ち込み物の薬物・爆発物検査、薬剤タブレット中の成分検査などの非破壊・非接触検査への応用が検討されている。一般に、バルク半導体にレーザー光を照射することで THz 波が発生する。しかし、バルク半導体では光の入射角度や結晶方位、また励起光源や発生する THz 波の帯域によって放射効率が大きく変化するため、取り扱いが難しい。

他方、ごく最近、強磁性金属と非磁性重金属のヘテロ構造を有する数 nm 程度の金属極薄膜にてスピンを介した THz 波放射が報告された[1]。THz 波の電場強度が半導体(ZnTe)を用いた素子と同程度、周波数帯域が ~20 THz と広帯域であるため、新たな THz 波光源として注目されている。しかしながら、新しい現象であるゆえに現象の理解が進んでおらず材料開発の設計指針が乏しい。今後の強磁性金属極薄膜を活用した THz 波技術の発展には THz 波帯域でのスピン・磁化のダイナミクスの理解が必要不可欠である。

また、強磁性金属極薄膜を用いた THz 波放射に関してはパルス電磁波発生に着目した報告が多く、広帯域であるものの周波数分解能に限界があり周波数の近い吸収スペクトルを区別することが難しい。一方、連続波の THz 波放射では、帯域幅を狭めることで周波数分解能の向上が期待できる。

### 2. 研究の目的

本研究では、高効率な狭帯域の連続 THz 波放射を金属極薄膜において実現することを目指して、THz 波帯域でのスピン・磁化のダイナミクスを調べ、金属極薄膜中のスピン流発生の周波数特性や発生効率を明らかにし、光励起スピン流発生機構を解明する。

### 3. 研究の方法

本研究では、THz 波帯域でのスピン・磁化のダイナミクスを調べるために超短パルスレーザーを用いた全光学的時間分解分光法を用いた。

また、高い THz 波放射効率が予想される Co 基ホイスラー合金薄膜や THz 波帯の周波数発振が期待される  $\text{Cu}_2\text{Sb-MnCrAlGe}$  や  $\text{L1}_0\text{-FePt}$  といった磁気異方性の大きな強磁性金属薄膜を対象に研究を行った。薄膜試料の作製には超高真空マグネトロンスパッタ法を用いた。

### 4. 研究成果

#### (1) Co 基ホイスラー合金薄膜における高効率な THz 波放射およびスピン流変換

MgO 基板上に製膜した  $\text{Co}_2\text{MnSi}(7\text{ nm})/\text{Pt}(2\text{ nm})$  の積層構造について、製膜後にチャンバー内熱処理を行った際の結晶構造に関して XRD の熱処理温度依存性を図 1(a)に示す。 $\text{Co}_2\text{MnSi}$  の(002)ピークが熱処理温度増大とともに大きくなっており、図 1(b)に示した  $\phi$  スキャンの結果における(111)ピーク強度の大きさから、熱処理温度  $T_a=400, 500^\circ\text{C}$  試料では  $B2$  構造を有しており、 $T_a=600^\circ\text{C}$  では  $L2_1$  構造を有していることが分かる。また、 $T_a=300^\circ\text{C}$  以下では  $A2$  構造であった。また、 $\text{Co}_2\text{MnSi}$  の THz 波放射スペクトルおよび THz 波放射強度について熱処理温度依存性を図 2(a), 2(b)にそれぞれ示した。参照試料として、一般的な強磁性材料である CoFe のデータも記載

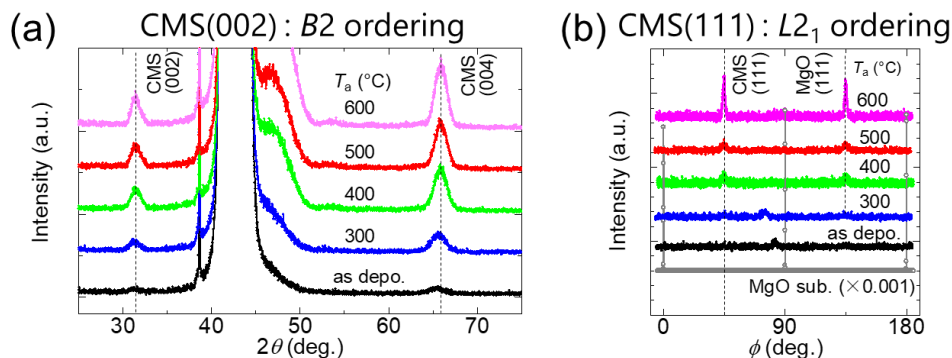


図 1 製膜したチャンバー内熱処理温度  $T_a$  の異なる  $\text{Co}_2\text{MnSi}$ (CMS)薄膜における X 線回折の (a)  $2\theta$  および (b)  $\phi$  スキャンの結果。

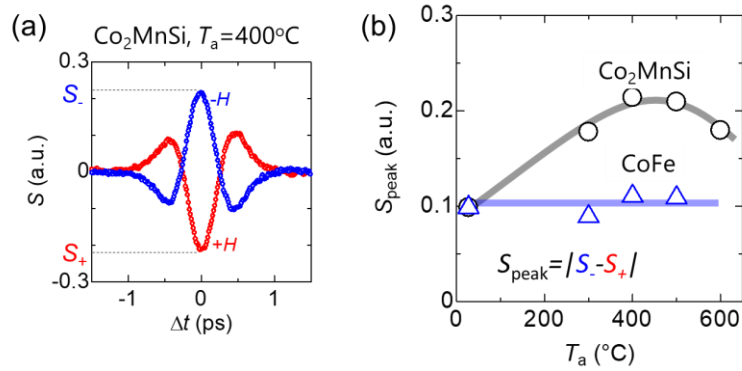


図 2 (a)チャンバー内熱処理温度  $T_a=400^\circ\text{C}$  試料における THz 波放射強度の時間波形。+H, -H はそれぞれ印加磁場方向の正負に対する放射波形を示している。また、破線は放射強度のピーク値を示している。(b)THz 波放射のピーク強度の  $T_a$  依存性。白抜き丸と三角はそれぞれ、 $\text{Co}_2\text{MnSi}$  および参照試料である CoFe 薄膜における実験結果を示している。太線はガイドを表す。

している。ここから、高効率な THz 波放射には  $B2$  および  $L2_1$  構造が必須となることが分かる。また、高効率な THz 波放射についてさらなる知見を得るため、 $\text{Co}_2\text{MnSi}$  層と Pt 層界面におけるスピンの変換効率に着目した。磁化歳差ダイナミクスにおけるダンピング定数  $\alpha$  の熱処理温度依存性を界面構造の異なる試料を用いて調べることで、変換効率求めた。図 3(a)にダンピング定数の熱処理温度依存性を示す。 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$  と  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Pt}$  を比較すると、スピンの電流変換が Pt 層で発生しているために  $\alpha$  の値が  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Pt}$  で大きくなっていることが分かる。 $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Pt}$  におけるスピン流変換効率は  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$  と比較した際の  $\alpha$  の値の差分に比例する。 $\alpha$  の値の差分からスピン流の変換効率を求めた結果を図 3(b)に示す。なお、 $T_a=300^\circ\text{C}$  の試料では積層構造を変化させた場合の飽和磁化の値が大きく異なっていたため、変換効率の解析は行っていない。このデータから  $T_a=500^\circ\text{C}$  でもっとも高効率なスピン流変換が期待できることが分かった[2]。図 2(b)から分かるように THz 波放射強度のピークは  $T_a=400, 500^\circ\text{C}$  であり、スピン流変換効率と THz 波放射強度は定性的に一致していることが分かる。今後、定量的な検討を行うことで材料パラメータとしてのスピン変換効率の寄与の大きさを調べていく必要がある。

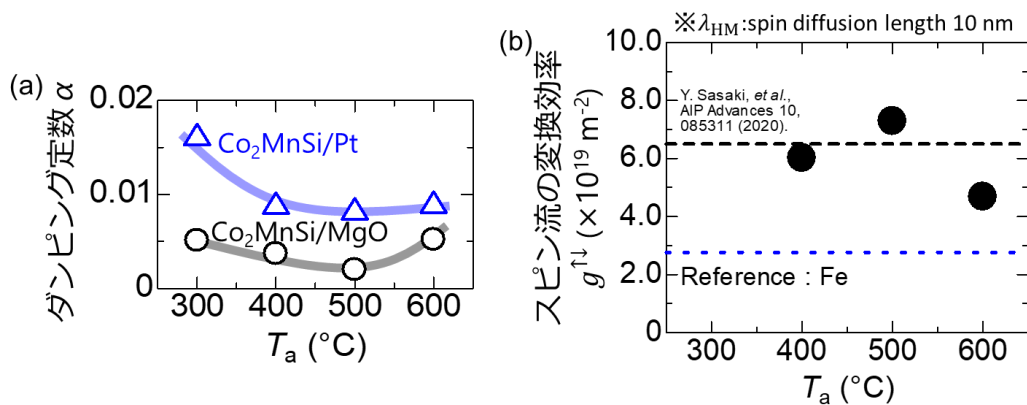


図 3. (a)ダンピング定数  $\alpha$  のチャンバー内熱処理温度  $T_a$  依存性。白抜き丸および三角は  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{MgO}$  および  $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Pt}$  に対する結果を示す。図中の太線はガイドラインを表す。(b)ダンピング定数から見積もられたスピン流の変換効率の  $T_a$  依存性。

## (2) $\text{MnCrAlGe}$ における高効率な THz 波帯磁化ダイナミクス励起

図 4(a)に  $\text{MnAlGe}$  における  $\text{Cu}_2\text{Sb}$  構造について模式的に示す。 $\text{Cu}_2\text{Sb}$  構造では、磁性を担う磁気モーメントを有する Mn 原子が二次元的に配列しており、各 Mn 原子層は Al, Ge 原子で校正さえる 2 原子層で隔てられている。ここに Cr が Mn サイトを置換することで  $\text{MnCrAlGe}$  が形成されることが理論的に予言されていた[3]。本研究において、図 4(b)に示した積層構造を有する

MnAlGe および MnCrAlGe 薄膜を Si 基板上に製膜し、さらに球面収差補正によって原子間距離を下回る分解能を有する透過型電子顕微鏡を用いて試料を観察することで、Cr 原子が Mn 原子層に分布していることを実験的に初めて明らかにした。また、MnCrAlGe では磁化の歳差ダイナミクスが 0.1 THz 以上のテラヘルツ波帯にあることが分かり、狭帯域のテラヘルツ波光源として有用であることが示唆された。ダンピング定数  $\alpha$  は図 4(d)における線幅を決定する唯一の材料パラメータであり、小さな  $\alpha$  を実現できればより狭帯域な磁化歳差励起が高效率に実現できる。MnAlGe および MnCrAlGe における実効的なダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  を表 1 にまとめた。テラヘルツ波帯の磁化歳差を励起するためには実効的な垂直磁気異方性磁場  $\mu_0 H_k^{\text{eff}}$  が 3.6 T 以上必要となるが、MnCrAlGe では小さな  $\alpha_{\text{eff}}$  および 3.6 T 以上の  $\mu_0 H_k^{\text{eff}}$  が実現できているためテラヘルツデバイス応用に理想的であることが示された。また、類似研究の報告値と比較しても MnCrAlGe が優れていることが分かった[4]。

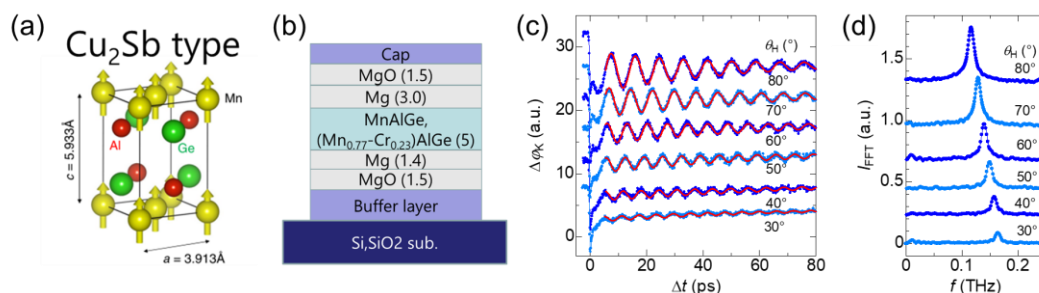


図 4. (a)Cu<sub>2</sub>Sb 構造を有する MnAlGe の模式図。(b)作製した試料の薄膜構造の模式的な図。(c)MnCrAlGe における磁化歳差ダイナミクスの測定結果。磁場を 2.0 T 印加し、磁場角度  $\theta_H$  を様々に変化させている。図中の実線は磁化歳差の解析結果を示す。(d)磁化歳差信号の FFT スペクトル。

	$\mu_0 H_k^{\text{eff}}$ (T)	$\alpha_{\text{eff}}$
MnAlGe	3.5	0.024
<b>(Mn-Cr)AlGe</b>	<b>4.0</b>	<b>0.012</b>
L1 <sub>0</sub> -MnGa(epi.)*	3.5	0.017

\*S. Mizukami, *et al.*, Appl. Phys. Exp. **12**, 043003 (2019).

表 1. 厚み数 nm 程度の磁性薄膜における実効的な垂直磁気異方性磁場  $\mu_0 H_k^{\text{eff}}$  および実効的なダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の比較。

Cr 原子による Mn サイトの置換がダンピング定数の低減に寄与した原因を明らかにするために、第一原理計算を用いて電子状態密度(DOS)を求めた結果を図 5(a)に示す。Cr 置換によって電子状態密度が僅かに変化していることが分かる。特にダンピング定数  $\alpha$  に重要なフェルミ面上の DOS と  $\alpha$  の値について、単位格子当たりの電子数( $N_v$ )に対してプロットした結果を図 5(b), 5(c)に示した。Cr 置換により DOS がフェルミ面上で大きく減少して、そのためダンピング定数の値が小さくなっていることが分かった。この傾向は先行研究における現象論的なモデル提案[5]と定性的に一致している。以上のことから狭帯域磁化歳差励起に求められる小さなダンピング定数の実現には、元素置換電子状態密度の制御が重要であることが示唆された。

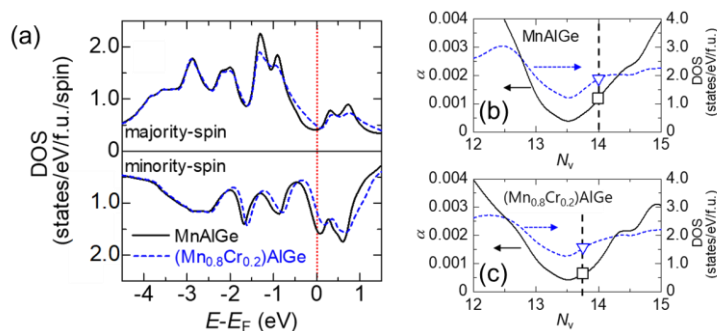


図 5. (a)第一原理計算によって計算された電子状態密度 DOS と(a)MnAlGe、(b)MnCrAlGe におけるダンピング定数およびフェルミ面上の DOS の電子数依存性。

### (3) $L1_0$ -FePt における超高速な磁化ダイナミクス励起とダンピング定数の温度依存性

$L1_0$ -FePt は磁気異方性が大きく、THz 波帯の磁化ダイナミクス励起が期待できるものの、既に報告されている実効的なダンピング定数が  $\alpha_{\text{eff}}=0.05$ [6] と大きいため励起効率が悪く、線幅も広いという課題があった。一方で、製膜時に利用される単結晶基板やバッファ層材料は MgO が一般的に用いられており、FePt と MgO の格子ミスマッチが大きいことから、先行研究で報告されてきた FePt 薄膜の物性値は格子歪が極端に大きな薄膜試料に限定されると考えられる。そこで、ダンピング定数  $\alpha$  の試料温度依存性を調べることで、熱膨張による格子定数変化を通して格子歪によるダンピング定数の変調の大きさを明らかにした[7]。

MgO 基板上に製膜した  $L1_0$ -FePt 薄膜の実効的な垂直磁気異方性磁場  $\mu_0 H_k^{\text{eff}}$  およびダンピング定数  $\alpha$  の温度依存性を図 6(a), 6(b) にそれぞれ示す。 $\mu_0 H_k^{\text{eff}}$  は温度が増大するとともに単調に減少する一方で、 $\alpha$  は温度に対して 530 K で最小値  $\alpha=0.032$  をとることが分かった。先行研究では MgO 基板上に製膜した FePt の格子歪が非線形に変化しており、550 K で最小値をとることが報告されている[8]。このことから、今回得られた非線形なダンピング定数の温度依存性は格子歪による電子状態密度の変調が寄与している可能性が考えられる。また、530 K では実効的な垂直磁気異方性磁場が  $\mu_0 H_k^{\text{eff}}=3.7$  T であり、THz 波帯の周波数発振が十分に期待できる大きさであることが分かった。以上のことから、 $L1_0$ -FePt において高効率かつ狭帯域な THz 波帯の磁化ダイナミクス励起を実現させるためには温度変調が効果的であることが明らかとなった。

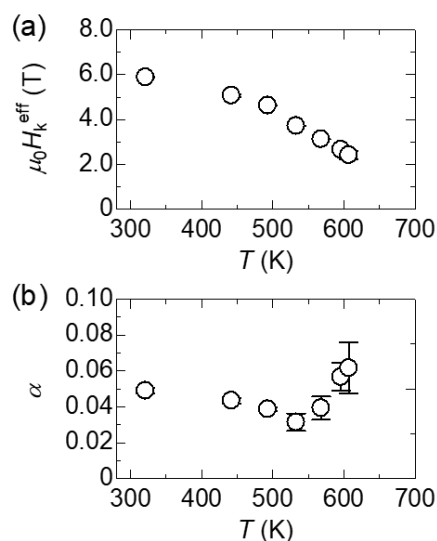


図 6. MgO 基板上に製膜した厚み 30 nm の  $L1_0$ -FePt 薄膜における(a)実効的な垂直磁気異方性磁場  $\mu_0 H_k^{\text{eff}}$  および(b)ダンピング定数  $\alpha$  の温度依存性。

#### <引用文献>

- [1] T. Seifert, *et al.*, Nat. Photon. **10**, 483 (2016).
- [2] Y. Sasaki, *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. **62**, SB1003 (2023).
- [3] R. Umetsu, *et al.*, IEEE Trans. Magn. **50**, 1 (2014), T. Kanomata, *et al.*, J. Appl. Phys. **55**, 2039 (1984).
- [4] Y. Sasaki, *et al.*, Small **18**, 2200378 (2022).
- [5] V. Kamberský, Can. J. Phys. **48**, 2906 (1970).
- [6] X. Ma, *et al.*, Phys. Rev. B **91**, 014438 (2015).
- [7] Y. Sasaki, *et al.*, ACS Appl. Nano Mater. **6**, 5901-5908 (2023).
- [8] A. V. Roppert, *et al.*, Sci. Adv. **6**, eaba1142 (2020).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Sasaki Yuta, Hiramatsu Ryoya, Kota Yohei, Kubota Takahide, Sonobe Yoshiaki, Sakuma Akimasa, Takanashi Koki, Kasai Shinya, Takahashi Yukiko K.	4. 巻 -
2. 論文標題 Magnetization Precession at Sub Terahertz Frequencies in Polycrystalline Cu <sub>2</sub> Sb Type (Mn-Cr)AlGe Ultrathin Films	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 2200378 ~ 2200378
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.202200378	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 -

1. 著者名 Sasaki Yuta, Kasai Shinya, Takahashi Yukiko K.	4. 巻 62
2. 論文標題 Large enhancement of magnetic damping in half-metallic Co <sub>2</sub> MnSi Heusler alloy thin films with heavy metal Pt layer observed by the all-optical method	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SB1003 ~ SB1003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac8d6e	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 -

1. 著者名 Sasaki Yuta, Suzuki Ippei, Mandal Ruma, Kasai Shinya, Takahashi Yukiko K.	4. 巻 6
2. 論文標題 Thermal Modulation of Magnetization Dynamics in Nanometer-Thick L1 <sub>0</sub> -FePt Nanogranular and Continuous Films for High-Density Magnetic Recording Media	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 5901 ~ 5908
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.3c00283	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9件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Yuta Sasaki
2. 発表標題 Magnetization dynamics in FePt nano-granular with thermal heating observed by all-optical pump-probe method
3. 学会等名 Intermag 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 佐々木悠太
2. 発表標題 熱アシスト磁気記録に向けたL10-FePtにおける 高温加熱時の磁化ダイナミクス
3. 学会等名 日本電子材料技術協会 2022年度第59回秋季講演大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐々木悠太
2. 発表標題 L10-FePt薄膜における磁化ダイナミクスの温度依存性
3. 学会等名 第46回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuta Sasaki
2. 発表標題 Magnetic damping in Cu2Sb-type MnCrAlGe thin film investigated by all-optical pump-probe method
3. 学会等名 2022年第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yuta Sasaki
2. 発表標題 ALL OPTICAL INVESTIGATION OF SPIN MIXING CONDUCTANCE IN CO2MNSI/PT EPITAXIAL HEUSLER-ALLOY THIN FILM
3. 学会等名 Magnetic and Optics Research International Symposium 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 佐々木悠太
2. 発表標題 全光学的手法を用いたサブテラヘルツ帯域の強磁性共鳴と Co <sub>2</sub> MnSi/Ptのスピนมキシングコンダクタンス
3. 学会等名 日本電子材料技術協会 2021年度第58回秋季講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐々木悠太
2. 発表標題 Co <sub>2</sub> MnSi/Ptにおけるスピนมキシングコンダクタンス
3. 学会等名 日本金属学会 2021年秋期 第169回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐々木悠太
2. 発表標題 Co <sub>2</sub> MnSi/Ptにおけるレーザー励起磁化歳差ダイナミクスと スピนมキシングコンダクタンス
3. 学会等名 第45回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐々木悠太
2. 発表標題 強磁性金属/非磁性重金属ヘテロ構造における テラヘルツ波放射と光励起スピนม流
3. 学会等名 応用物理学会 2021年度 第3回光機能研究会（招待講演）
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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------