

令和 3 年 6 月 15 日現在

機関番号：12608

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K21854

研究課題名（和文）円偏光を用いたラマン散乱分光の再検証

研究課題名（英文）Revalidation of Raman scattering spectroscopy using circularly polarized light

研究代表者

佐藤 琢哉（Sato, Takuya）

東京工業大学・理学院・教授

研究者番号：40451885

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：フェリ磁性体YIGにおける光学マグノン（Kaplan-Kittel交換共鳴モード）を円偏光ラマン散乱を用いて観測し、その周波数の温度依存性を精密測定した。その結果から、交換相互作用定数を正確に決定した。さらにマルチフェロイック物質BiFeO<sub>3</sub>における円偏光ラマン散乱測定を行い、これまで未確定であった、フォノンのモード同定を行った。また、各フォノン周波数の温度依存性を測定し、スピン・フォノン結合の可能性について考察した。以上の結果から、円偏光ラマン散乱によって、直線偏光ラマン散乱だけでは得られなかったモードや、モード同定を達成できたといえる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

円偏光を用いたラマン光学活性(ROA)は以前から知られていたが、その効果は小さく、また適用できる対象物質はキラル物質等に限定されていた。円偏光ラマン散乱をモードの同定として用いるという本研究手法は原理が単純明快であり、幅広く様々な結晶に対して適用可能であるため、フォノンやマグノン振動モードの解析、マグノン探索において極めて強力な手法となるであろう。

研究成果の概要（英文）：The optical magnon (Kaplan-Kittel exchange resonance mode) in the ferrimagnetic material YIG was observed using circularly polarized Raman scattering, and the temperature dependence of the frequency was precisely measured. From the results, the exchange interaction constant was accurately determined.

Furthermore, circularly polarized Raman scattering measurements were performed on the multiferroic material BiFeO<sub>3</sub> to identify the mode of phonons, which had not been precisely determined. We also measured the temperature dependence of each phonon frequency and considered the possibility of spin-phonon coupling.

From the above results, one can conclude that circularly polarized Raman scattering has achieved mode detection and mode identification that could not be obtained by linearly polarized Raman scattering alone.

研究分野：磁気光学

キーワード：ラマン散乱 円偏光 フォノン マグノン

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

振動数 $\omega_0$ の光が試料に入射すると、 $\omega_0$ の光(レイリー散乱光)のほかに試料中の素励起の振動数 $\Omega$ だけシフトした $\omega_0 \pm \Omega$ の光が散乱される現象をラマン散乱とよぶ。ラマン散乱分光法は1928年の発見以来、結晶の構造、結晶を構成する原子間やイオン間の相互作用について知見を得る上で不可欠な手法であり、赤外分光法と相補的な関係にある。

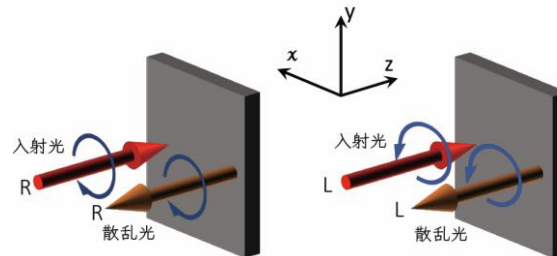
ラマン散乱を用いてマグノンやフォノンの振動モードを知るには、従来は直線偏光した単色光を入射し、散乱光の直線偏光方向を調べるといった手法が用いられてきた。しかし、A、E などさまざまな振動モードが、スペクトル的に重複して存在している場合、それらを直線偏光解析によって分離することは困難である場合が多い。

強磁性体中では入射した直線偏光の偏光面が結晶中を進むに従ってファラデー効果により回転する。従って結晶中のどの点からラマン散乱したかによって散乱光の偏光状態が変化してしまうことになり、強磁性体の振動モードの解析は容易ではなかった。

### 2. 研究の目的

そこで本研究では、直線偏光だけでなく円偏光も用いることで、異なる振動モードを明確に分離し、モード同定することを目的とした。また、円偏光はファラデー効果における固有偏光であるため、強磁性体中を光が通過しても偏光状態が変わらないという利点がある。加えて、マグノンのラマンテンソルは反対称テンソルとなるが、円偏光を入射・散乱光とすることで、対称テンソルであるフォノンと分離することを目的とした。

### 3. 研究の方法



・フェリ磁性体  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG) における光学マグノンのラマン散乱  
YIG (111)単結晶は市販品を用いる。上図のような円偏光ラマン散乱測定配置により、複数の光学マグノンおよび光学フォノンを観測し、その振動モードの同定と、振動数・半値幅の温度依存性を測定した。

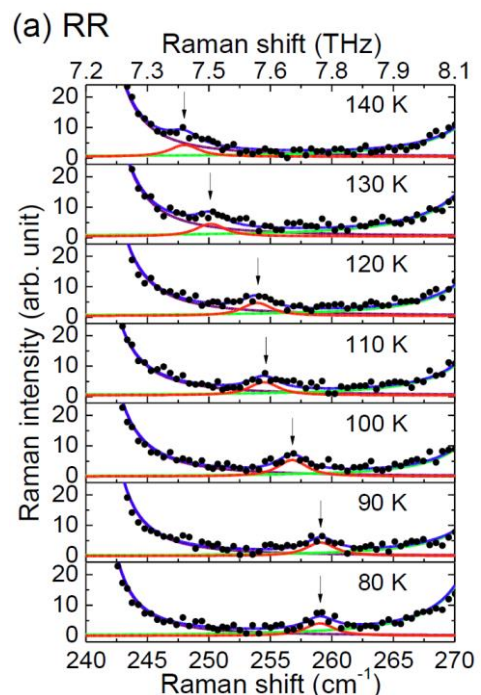
・マルチフェロイック物質  $BiFeO_3$  におけるマグノン・フォノンのラマン散乱  
 $BiFeO_3$ 単結晶は産総研の伊藤利充博士より提供していただいた。直線偏光および円偏光ラマン散乱測定により、フォノンモードを観測し、その振動モードの対称性を決定した。

### 4. 研究成果

#### ・フェリ磁性体 YIG

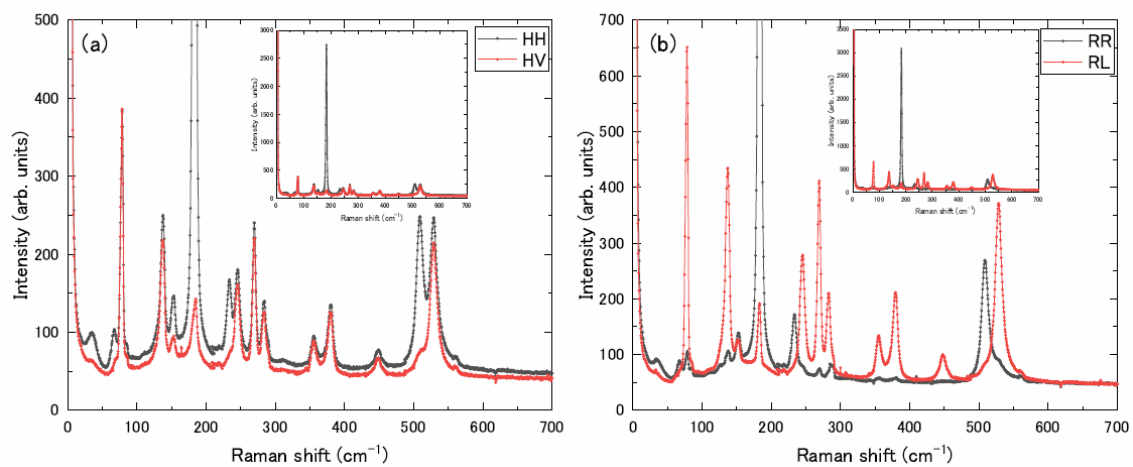
右下図の円偏光ラマンスペクトルにおいて、温度80Kでは $260\text{cm}^{-1}$ 付近にピークが観測された。温度上昇とともに低周波数側にシフトし、140 K以上では隣のフォノンモードにうもれて消失した。このような温度依存性から、光学マグノン(Kaplan-Kittel 交換共鳴モード)であると同定した。また、得られた周波数から交換相互作用定数を正確に決定した。

さらに偏光依存性を詳細に解析することにより、光学マグノンのラマンテンソルは反対称であることがわかった。これは通常のフォノンが対称テンソルであることと異なっており、円偏光ラマン散乱法によって初めてマグノンが検出できたことを意味する。



・マルチフェロイック物質  $\text{BiFeO}_3$

直線偏光および円偏光ラマン散乱測定を行い、下図のようなスペクトルを得た。直線偏光のスペクトル(a)と比べて円偏光のスペクトル(b)では、より明確にピークを区別することができ、これまで未確定であった、フォノンのモード同定を行った。また、 $70\text{cm}^{-1}$ のフォノン周波数の温度依存性を測定し、スピン・フォノン結合の可能性について考察した。



以上の結果から、円偏光ラマン散乱によって、直線偏光ラマン散乱だけでは得られなかったモードや、モード同定を達成できたといえる。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 8件）

1. 著者名 Tzschaschel Christian, Satoh Takuya, Fiebig Manfred	4. 巻 10
2. 論文標題 Tracking the ultrafast motion of an antiferromagnetic order parameter	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 3995-1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-019-11961-9	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 該当する
1. 著者名 Khan Pritam, Kanamaru Masataka, Hsu Wei-Hung, Kichise Minoru, Fujii Yasuhiro, Koreeda Akitoshi, Satoh Takuya	4. 巻 31
2. 論文標題 Excitation of coherent optical phonons in iron garnet by femtosecond laser pulses	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 275402-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-648X/ab1665	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 該当する
1. 著者名 Khan Pritam, Kanamaru Masataka, Matsumoto Keita, Ito Toshimitsu, Satoh Takuya	4. 巻 101
2. 論文標題 Ultrafast light-driven simultaneous excitation of coherent terahertz magnons and phonons in multiferroic BiFeO <sub>3</sub>	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134413-1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.134413	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 該当する
1. 著者名 Matsumoto Keita, Yoshimine Isao, Himeno Kosei, Shimura Tsutomu, Satoh Takuya	4. 巻 101
2. 論文標題 Observation of evanescent spin waves in the magnetic dipole regime	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184407-1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.101.184407	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 Matsumoto Keita, Satoh Takuya	4. 巻 102
2. 論文標題 Selective imaging of the terahertz electric field of the phonon-polariton in LiNbO3	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 094313-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.094313	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 Hsu Wei-Hung, Shen Ka, Fujii Yasuhiro, Koreeda Akitoshi, Satoh Takuya	4. 巻 102
2. 論文標題 Observation of terahertz magnon of Kaplan-Kittel exchange resonance in yttrium-iron garnet by Raman spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174432-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.174432	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 該当する

1. 著者名 Tzschaschel Christian, Satoh Takuya, Fiebig Manfred	4. 巻 11
2. 論文標題 Efficient spin excitation via ultrafast damping-like torques in antiferromagnets	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 6142-1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-020-19749-y	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 該当する

1. 著者名 Kainuma Ryo, Matsumoto Keita, Satoh Takuya	4. 巻 14
2. 論文標題 Fast acquisition of spin-wave dispersion by compressed sensing	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 033004-1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/abe085	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29件(うち招待講演 13件/うち国際学会 14件)

1. 発表者名 S. Pal, C. Tzschaschel, A. Bortis, T. Satoh, and M. Fiebig
2. 発表標題 Two-dimensional THz spectroscopy of exchange interactions in rare-earth doped garnets
3. 学会等名 CLEO: QELS-Fundamental Science, May 5-10, 2019 (San Jose, California, United States) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Satoh
2. 発表標題 Optomagnonics in multiferroic BiFeO <sub>3</sub>
3. 学会等名 Tokyo Institute of Technology and Stony Brook University Joint Science and Technology Meeting, May 22-23, 2019 (Tokyo, Japan) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 W.-H. Hsu, M. Kichise, Y. Fujii, A. Koreeda, and T. Satoh
2. 発表標題 Magnon and phonon Raman scattering in Y <sub>3</sub> Fe <sub>5</sub> O <sub>12</sub>
3. 学会等名 JSPS-EPSC-DFG Core-to-Core Programme York-Tohoku-Kaiserslautern Research Symposium on "New-Concept Spintronics Devices", Jun. 12-14, 2019 (York, UK) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Kichise, Y. Fujii, A. Koreeda, T. Ito, and T. Satoh
2. 発表標題 Angle-resolved polarized Raman spectroscopy of magnons in BiFeO <sub>3</sub>
3. 学会等名 JSPS-EPSC-DFG Core-to-Core Programme York-Tohoku-Kaiserslautern Research Symposium on "New-Concept Spintronics Devices", Jun. 12-14, 2019 (York, UK) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Matsumoto, P. Khan, M. Kanamaru, T. Ito, and T. Satoh
2 . 発表標題 Coherent magnon and phonon-polariton excited by ultrashort pulse laser
3 . 学会等名 JSPS-EPSC-DFG Core-to-Core Programme York-Tohoku-Kaiserslautern Research Symposium on “New-Concept Spintronics Devices”, Jun. 12-14, 2019 (York, UK) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 T. Satoh
2 . 発表標題 Magnon and phonon-polariton excitations in multiferroic BiFeO <sub>3</sub>
3 . 学会等名 JSPS-EPSC-DFG Core-to-Core Programme York-Tohoku-Kaiserslautern Research Symposium on “New-Concept Spintronics Devices”, Jun. 12-14, 2019 (York, UK) (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 K. Matsumoto, P. Khan, M. Kanamaru, T. Ito, and T. Satoh
2 . 発表標題 Ultrafast Excitation of Coherent Magnon and Phonon in Multiferroic Bismuth Ferrite
3 . 学会等名 Magnetics and Optics Research International Symposium (MORIS) 2019, Jun. 23-26, 2019 (Prague, Czech Republic) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 M. Kichise, Y. Fujii, A. Koreeda, T. Ito, and T. Satoh
2 . 発表標題 Magnon Raman Scattering in BiFeO <sub>3</sub>
3 . 学会等名 Magnetics and Optics Research International Symposium (MORIS) 2019, Jun. 23-26, 2019 (Prague, Czech Republic) (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1. 発表者名 W.-H. Hsu, M. Kichise, Y. Fujii, A. Koreeda, and T. Satoh
2. 発表標題 Magnon Raman Scattering in Y3Fe5O12
3. 学会等名 Magnetics and Optics Research International Symposium (MORIS) 2019, Jun. 23-26, 2019 (Prague, Czech Republic) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Satoh
2. 発表標題 Antiferromagnetic Optomagnonics
3. 学会等名 The 4th International Conference on Advanced Materials and Nanotechnology (ICAMN2019), Oct. 13-16, 2019 (Hanoi, Vietnam) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Satoh
2. 発表標題 Optical excitation and detection of ultrafast antiferromagnetic state
3. 学会等名 Materials Research Meeting (MRM), Dec. 10-14, 2019 (Yokohama, Japan) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Optical excitations in multiferroic bismuth ferrite
2. 発表標題 K. Matsumoto, P. Khan, M. Kanamaru, T. Ito, and T. Satoh
3. 学会等名 New Perspective in Spin Conversion Science (NPSCS2020), Feb. 3-4, 2020 (Kashiwa, Japan) (国際学会)
4. 発表年 2020年



1. 発表者名 佐藤琢哉, 松本慧大, 金丸将孝, Khan Pritam, 伊藤利充
2. 発表標題 マルチフェロイックBiFeO3におけるマグノン・フォノンの超高速制御
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第40回年次大会, Jan. 20-22, 2020 (仙台国際センター) (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松本慧大, 佐藤琢哉
2. 発表標題 LiNbO3フォノン-ポラリトン伝播の位相・時空間分解測定
3. 学会等名 日本物理学会 「第75回年次大会」現地開催中止, Mar. 16-19, 2020 (名古屋大学)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 倉本卓実, 芦田康平, 藤井康裕, 是枝聡肇, 佐藤琢哉
2. 発表標題 ブリルアン散乱を用いた磁性ガーネットにおけるスピン波ダンピングの測定
3. 学会等名 日本物理学会 「第75回年次大会」現地開催中止, Mar. 16-19, 2020 (名古屋大学)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 吉瀬みのり, 大石栄一, 藤井康裕, 是枝聡肇, 伊藤利充, 佐藤琢哉
2. 発表標題 BiFeO3におけるマグノンの偏光方位角度分解ラマン分光
3. 学会等名 日本物理学会 「第75回年次大会」現地開催中止, Mar. 16-19, 2020 (名古屋大学)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大石栄一, 藤井康裕, 是枝聡肇, 吉瀬みのり, 佐藤琢哉, 伊藤利充
2. 発表標題 マルチフェロイック物質BiFeO3におけるマグノンの円偏光ラマン分光
3. 学会等名 日本物理学会 「第75回年次大会」現地開催中止, Mar. 16-19, 2020 (名古屋大学)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 R. Kainuma, K. Matsumoto, and T. Satoh
2. 発表標題 Compressed Sensing for Time- and Space-Resolved Spin-Wave Propagation
3. 学会等名 65th Annual Conference on Magnetism & Magnetic Materials (MMM2020), Nov. 2-6, 2020 (Online) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松本慧大, 佐藤琢哉
2. 発表標題 LiNbO3におけるフォノン-ポラリトンの時空間分解測定と電場解析
3. 学会等名 第37回 強誘電体会議, May 27-30, 2020 (コープイン京都, 現地開催中止)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤琢哉
2. 発表標題 スピン系材料の超高速分光
3. 学会等名 超高速光エレクトロニクス(UFO)研究会 第3回研究会「新材料・集積構造による物性開拓・光技術応用の潮流2020」, Sep. 3, 2020 (オンライン) (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 貝沼凌, 松本慧大, 佐藤琢哉
2. 発表標題 圧縮センシングを用いたスピン波分散関係の解析
3. 学会等名 日本物理学会 「2020年秋季大会」, Sep. 8-11, 2020 (オンライン)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤琢哉
2. 発表標題 反強磁性体の超高速分光
3. 学会等名 日本磁気学会 第227回研究会 第67回化合物新磁性材料専門研究会, 「X線とレーザーの融合による磁性ダイナミクス」, Sep. 28, 2020 (オンライン) (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤琢哉
2. 発表標題 光マグノンクス - 磁性体の超高速制御
3. 学会等名 応用物理学会 量子エレクトロニクス研究会「拡がりを見せる量子エレクトロニクス」, Nov. 7, 2020 (オンライン) (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤琢哉
2. 発表標題 光マグノンクスの開拓
3. 学会等名 第31回 光物性研究会, Dec. 11-12, 2020 (オンライン) (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 佐藤琢哉
2. 発表標題 光マグノニクス
3. 学会等名 第19回 スピントロニクス入門セミナー, Jan. 7-8, 2021 (オンライン) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤琢哉
2. 発表標題 光パルスを用いた磁化制御
3. 学会等名 レーザー学会学術講演会第41回年次大会, Jan. 18-20, 2021 (オンライン) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 佐藤琢哉
2. 発表標題 超高速ダンピングトルクを利用した反強磁性スピン励起
3. 学会等名 電気学会「光・熱・電気との相互作用を活用した高機能磁気デバイス技術調査専門委員会」, 日本磁気学会「光機能磁性デバイス・材料専門研究会」共催研究会「光技術の最前線」, Jan. 29, 2021 (オンライン) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石戸享佑, Huiling Mao, Tiantian Zhang, 村上修一, 岸根順一郎, 佐藤琢哉
2. 発表標題 円偏光ラマン分光によるらせん結晶 -HgSのカイラルフォノン
3. 学会等名 日本物理学会「第76回年次大会」, Mar. 12-15, 2021 (オンライン)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 A. L. Chekhov, A. I. Stognij, T. Satoh, T. V. Murzina, I. Razzdolski, and A. Stupakiewicz
2. 発表標題 Nanoscale Localization of sub-Terahertz Spin Dynamics in Au/Garnet Magnetoplasmonic Crystals
3. 学会等名 The 10th International Conference on Metamaterials, Photonic Crystals and Plasmonics (META 2019), Jul. 23-26, 2019 (Lisbon, Portugal) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京工業大学 理学院 物理学系 佐藤研究室 <a href="https://satoh.phys.titech.ac.jp/">https://satoh.phys.titech.ac.jp/</a>
--

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
研究協力者	伊藤 利充  (Ito Toshimitsu)		

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		
スイス	ETH Zurich		