

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 30 日現在

機関番号：34428

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390057

研究課題名(和文) マグノニクスのための超短磁場パルス発生によるスピン波励起

研究課題名(英文) Spin wave excitation by ultrafast magnetic field pulse for magnonics

研究代表者

長島 健 (Nagashima, Takeshi)

摂南大学・理工学部・准教授

研究者番号：60332748

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：近接磁場パルスによる新規スピン波励起手法について提案・検証をした。まず光パルス励起スピン波励起機構を調べるためにテラヘルツ放射分光システム及び光ポンプ-磁気光学効果測定システムを構築した。次にTGGの近接磁場パルスを使いYIGのスピン波励起を試みた。以上の過程で発見したTGGの特異なテラヘルツ波放射特性及びテラヘルツ波透過特性について調べた。

研究成果の概要(英文)：An novel scheme for spin wave excitations using near magnetic field pulses induced by optical pulse illumination was proposed and investigated. Terahertz radiation spectroscopy and optical pump - terahertz magneto-optical effect probe system were developed to study the mechanism of the optically excited spin waves. The excitation of the spin waves in YIG by the magnetic field pulses generated by optically excited TGG was examined. During the course of this research, characteristic terahertz pulse radiation from TGG excited by the optical pulses was found. To clarify the origin of the radiation from TGG, the transmission of terahertz waves through TGG was investigated.

研究分野：テラヘルツ波工学

キーワード：テラヘルツ分光 スピン波 光パルス 反強磁性体

様式 C-19、F-19、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

スピン波を情報処理の媒体に用いるマグノニクスデバイスではスピン波発生が重要である。従来法による励起スピン波周波数は 100 GHz 以下のサブテラヘルツ領域にとどまっており、将来必要と考えられるテラヘルツ領域スピン波の発振は困難である。この周波数領域のスピン波の励起には円偏光パルス照射が用いられている[1, 2].

この現象はフェムト秒円偏光パルス照射により照射部分に逆ファラデー効果により「磁化(あるいは磁場)パルス」が発生し、これがトリガとなってスピン波が励起される、と解釈されている。この逆ファラデー効果モデルによれば、高効率スピン波発生のためには磁場パルスを大きくできれば良く、励起波長におけるファラデー効果(ベルデ定数)が大きな材料を選択すれば良いことになる。

ところが報告者のこれまでの研究から励起スピン波強度とベルデ定数の間には予想されるような相関がなく、磁場パルス発生機構は未解明である。また光パルス照射法では所望の周波数や伝播定数を得るために材料を選択する必要があるが、報告者のこれまでの研究で材料によっては光パルス法によりスピン波を励起できない場合があることがわかっている(例:周波数 4.3 THz の CoO)。このため任意磁性体におけるスピン波励起法の開発が必要になっている。

2. 研究の目的

スピン波を情報処理の媒体に用いるマグノニクスデバイスで重要と考えられる任意磁性体での高周波数スピン波励起手法を提案・検証する。フェムト秒光パルス照射によるスピン波励起法を用いる。励起スピン波から放射された電磁波をテラヘルツ時間領域分光 (THz-TDS) で検出する。

まず大きな磁場パルスを発生すると考えられる材料の探索とその物性について調査する。具体的にはベルデ定数の大きな TGG からの光パルス励起テラヘルツ波放射特性及びテラヘルツ波透過特性を調べる。

次に異種磁性体の界面で発生する近接磁場パルスを利用して、通常の光パルス励起法ではスピン波励起が困難だったスピン波の励起を試みる。

3. 研究の方法

新規スピン波励起法を Fig. 1 に示す。大きな磁場パルスを発生する基板材料上に任意の磁性体薄膜を作製する。基板側の近接磁場パルスを利用して薄膜側にスピン波を励起する。以上では磁場パルス発生

を基板側、それによって薄膜側でスピン波が誘起されるとしたが、これらは入れ替わってもよい。

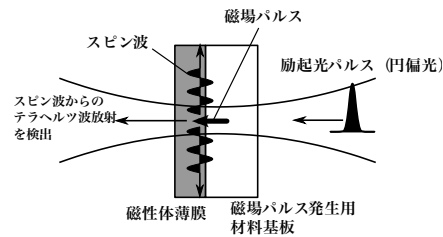


Fig. 1 試料構造の概念図。

スピン波励起機構は不明な点が多いが、報告者がこれまでに調べてきた光パルス励起 NiO 及び MnO からのテラヘルツ波パルス放射特性は逆ファラデー効果モデルにより定性的に説明できる。光パルス照射により光パルス進行方向に光パルス幅程度の時間スケールで磁化の変動が生じる。この磁化変化を生じさせる有効磁場を磁場パルスと呼ぶ。ベルデ定数が大きいほど逆ファラデー効果、すなわち磁場パルスが大きくなると考えられる。

そこで、本研究では基板材料としてベルデ定数が 87 rad/(T m) (波長 800 nm にて) と非常に大きい常磁性体 Tb₃Ga₅O₁₂ (TGG) に着目した[3]。まず TGG の光パルス励起磁場パルスの大きさ及びテラヘルツ波応答を測定した。

この他にも反強磁性体 MnO が比較的大きな磁場パルスを発生することがこれまでの報告者の研究でわかっている。スピン波励起機構の探索を目的として、光ポンプテラヘルツ帯磁気光学効果検出システムを構築し、光パルス照射による材料応答の詳細を調べた。

最後に TGG 及び Gd₃Ga₅O₁₂ (GGG) 基板上に磁性体膜 (YIG) を作製し、上記の近接磁場励起スピン波の有無を調べた。測定には新たに構築した長時間遅延を有するテラヘルツ波放射分光システムを用いた。

4. 研究成果

(1) 光パルス励起 TGG からのテラヘルツ放射

より大きな光パルス励起磁場パルスを得るためにベルデ定数の大きな TGG について各種物性を調査した。

逆ファラデー効果が生じるならば、円偏光励起光パルス照射によって磁場パルスが生じ、磁気双極子放射を通じて広帯域なテラヘルツ波パルスを放射すると期待される。中心波長 800 nm 及びパルス幅 40 fs の光パルス照射によって発生するテラヘルツ波パルスを観測した結果を Fig. 2 に示す。

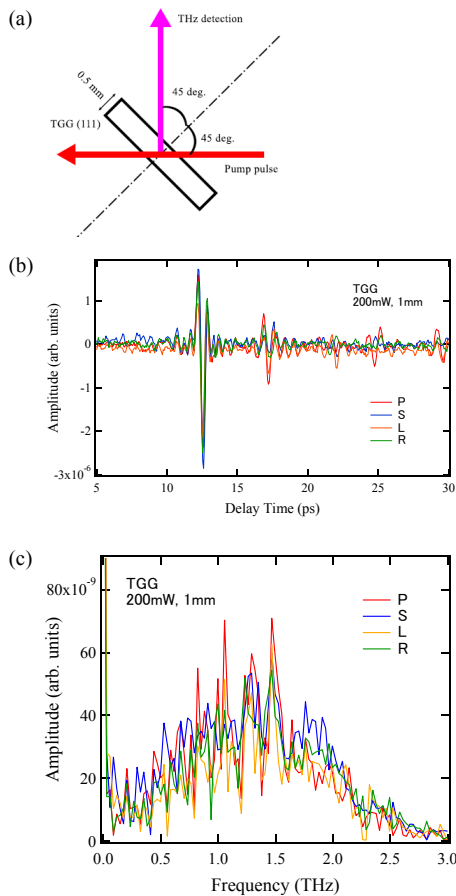


Fig. 2 (a) 実験配置. (b) 各種偏光状態の光パルスで励起された TGG からのテラヘルツ波放射波形. 記号 P, S, L 及び R はそれぞれ p 直線偏光, s 直線偏光, 左回り円偏光及び右回り円偏光. (c) (b) の波形をフーリエ変換して得られた振幅スペクトル.

Fig. 2 (a) に示すように各種偏光状態の光パルスを入射角 45 度で照射し, その反射方向に放射されるテラヘルツ波パルスを測定した. これは磁化変動は光パルス進行方向に生じるため, 磁気双極子放射のローブの極大が検出方向になるようにするためである. なお試料表面でのビームスポット直径 5 mm であった.

得られた放射波形を Fig. 2 (b) に示す. 記号 P, S, L 及び R は励起光パルスの偏光状態を表しており, それぞれ p 直線偏光, s 直線偏光, 左回り円偏光及び右回り円偏光に対応している. 広帯域テラヘルツ波パルスが観測されたが, その波形及び周波数スペクトル(Fig. 2(c))は励起光パルスの偏光状態によらないことがわかる. 逆ファラデー効果モデルでは円偏光の場合に最も磁場パルスが大きくなると予想されることから, 別の放射機構が重畳している可能性がある. Fig. 2 (b) では 1~1.5 THz の間に放射成分の極大があるように見える. この周波数に何らかの特徴的な励起が存在する可能性がある.

そこで TGG のテラヘルツ波透過率スペクトルの温度依存性を測定した. 結果を Fig. 3 に示す.

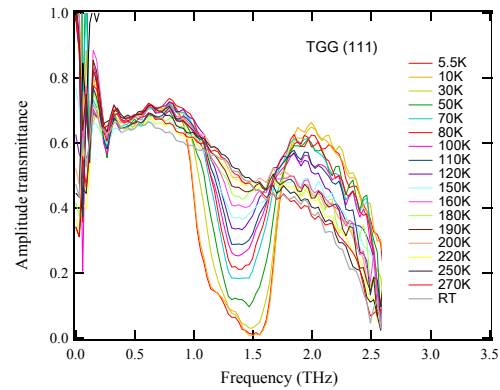


Fig. 3 TGG のテラヘルツ波透過率スペクトルの温度変化.

室温では明らかでないが, 温度の低下とともに 1.0~1.7 THz の間の透過率が減少する. 透過率の減少は温度低下にほぼ比例しており, 何らかの転移点は存在しないように見える. TGG は基本的に常磁性体であり, 磁気的相転移が観測されないはずである. 以上より 1.0~1.7 THz はフォノンによる吸収の可能性が高い.

Fig. 2 (b) あるいは (c) では磁気パルスによるテラヘルツ波放射成分の存在は否定できないものの, 光パルス励起フォノンからのテラヘルツ波放射成分が重畳しているものと考えられる.

(2) 光パルスポンプ-テラヘルツ帯磁気光学効果プローブ測定

光パルス励起テラヘルツ波放射において, スピン波からの放射だけではなく, 光キャリアが関与した放射成分が重畳して観測されることがある. 光パルスポンプ-テラヘルツ波プローブ法により光キャリアの有無を判定できる. 左記手法により MnO については光パルス励起スピン波とともに, 光キャリアが生成されることがわかっている. スピン波励起機構を考察するにあたり, 光キャリアの生成過程は重要な参考になる. 光パルスポンプ-テラヘルツ波プローブ法では光キャリアの有無及びその寿命を知ることができるものの, 光キャリア生成機構の詳細については十分な知見が得られない. そこで光キャリア生成機構考察に供するために光キャリアの種類 (電子あるいはホール) を判定する手法を提案・構築した.

試料に 0.8 T 程度の磁場を印加しながら光パルスポンプ-テラヘルツ波プローブ測定をする. 光学系の概略図を Fig. 4 に示す. 光パルスの繰り返し周波数, 中心波長及び

パルス幅はそれぞれ 1 kHz, 800 nm 及び 40 fs であった。

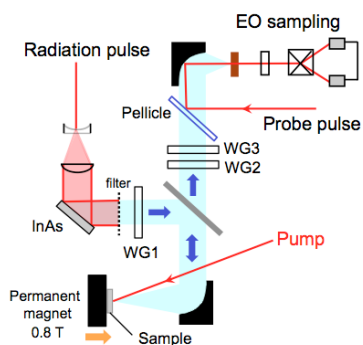


Fig. 4 光パルスポンプ-テラヘルツ波磁気光学効果プローブシステムの概略図。

プローブ光として直線偏光テラヘルツ波パルスを入射させるが、この反射パルスの偏光解析をする。磁場中光キャリアによって反射テラヘルツ波は一般に楕円偏光になる。光キャリアの種類（電子あるいはホール）により楕円偏光のヘリシティが切り替わる。反射テラヘルツ波パルスの偏光状態を計測することで、キャリアの種類を判定できる。

原理実証のために半絶縁性 GaAs ウェハについて測定した結果を Fig. 5 に示す。Fig. 5 は光励起キャリアが生成している試料での反射テラヘルツ波パルスの電場ベクトルの先端の軌跡を示している。反射テラヘルツ波パルスは楕円偏光であり、かつ左回りであることから、予想されるように自由電子が支配的な応答を示していることがわかる。

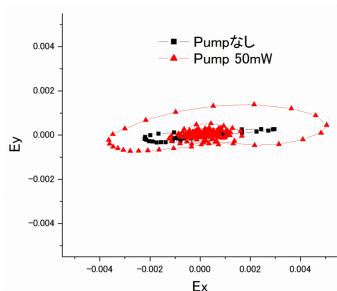


Fig. 5 光パルス励起 GaAs からのテラヘルツ波反射パルスの偏光状態。

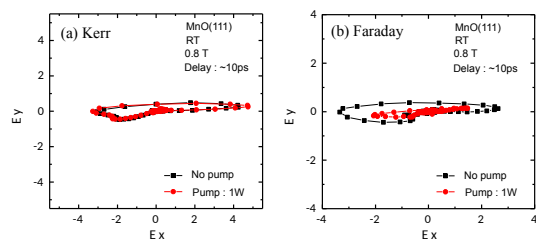


Fig. 6 (a)及び(b)はそれぞれ光パルス励起 MnO 最表面及び裏面からのテラヘルツ波反射パルスの偏光状態。

これを MnO(111)単結晶に適用した結果を Fig. 6 に示す。(a)及び(b)は試料最表面で反射したテラヘルツ波パルス及び試料裏面で反射したテラヘルツ波パルスの偏光状態を示している。(a)及び(b)は、主として、それぞれ磁気カー効果及びファラデー効果を反映している。いずれの場合にも、光ポンプの有無によって反射テラヘルツ波パルスの偏光状態に有意な変化が認められなかった。MnO での光キャリアは有効質量の大きな 3d バンドに生成されると予想される。有効質量が大きいためテラヘルツ波パルスの偏光状態変化が小さく、本システムでは検出できなかったと考えられる。今後、直交偏光子法を用いて感度向上を図ることで、磁性体中光キャリアについてより多くの知見が得られると期待される。

(3) 近接磁場パルス励起スピン波の検出

TGG における光励起磁場パルスを利用して強磁性体であるイットリウム鉄ガーネット膜のスピン波励起を試みた。

塗布法により TGG(111)及び GGG(111)基板の YIG 膜を作製した。基板上に滴下し、YIG 前駆体を溶解した溶液をスピコーターにより基板上に塗布した。その後、電気炉で 700°C (空气中)で 2 時間焼成した。塗布と焼成を 10 回繰り返し、厚さ 0.5 μm 程度の膜を得た。

一方、時間遅延ラインを 1.6 m まで拡大したテラヘルツ波放射分光システムを構築した。これにより最大で 5.3 ns の時間遅延が得られる。理論上は 189 MHz 以上の振動を検出できる。

ポンプ光パルス照射後に、プローブ光パルスの磁化誘起偏光変化の時間変化を検出する手法では、周波数が 5~7 GHz 程度の、波数がほぼゼロのスピン波が観測されることが知られている。本研究でもポンプ光パルス照射によってスピン波が励起され、それらからテラヘルツ波放射が得られると期待される。

上記システムを用い、作製した試料に光パルス (パルス幅 130 fs 程度) を入射角 45 度で照射しテラヘルツ波放射の検出を試みたが、測定ノイズ以上の信号は観測されなかった。測定は室温で実施した。光パルスを膜側及び基板側のそれぞれに照射した場合について調べたが、光パルスエネルギー 200 μJ 程度までではテラヘルツ波放射は検出されなかった。

検出ができなかった原因として、スピン波から磁気双極子放射によって放射される電磁波の電場強度はその周波数に比例するが、目的とする周波数がテラヘルツ帯よりも桁違いに低いため、電磁波強度が著しく小さくなっている可能性が考えられる。さらに、開発したシステムでは、放射された

電磁波は放物面鏡により電気光学結晶に集光し、電磁波の電場成分により誘起された複屈折をプローブ光パルスにより検出する。周波数が 5 GHz では電磁波の波長は 60 mm と非常に長いため、測定系の光学素子の大きさ (50 mm) では回折により集光されず、信号が検出できなかったことも要因と考えられる。

【参考文献】

- [1] J. Nishitani, T. Nagashima, and M. Hangyo, *Phys. Rev. B* **85**, 174439 (2012).
[2] J. Nishitani, K. Kozuki, T. Nagashima, and M. Hangyo, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 221906 (2010).
[3] M. Bakunov, R. Mikhaylovskiy, and S. Bodrov, *Phys. Rev. B* **86**, 134405 (2012).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕 (計 7 件)

- [1] J. Nishitani, T. Nagashima, M. Lippmaa, and T. Suemoto, “Optical pump-terahertz probe analysis of long-lived d-electrons and relaxation to self-trapped exciton states in MnO,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 108, no. 16, 162101, 2016.
- [2] J. Nishitani, T. Nagashima, and T. Suemoto, “Magnetic-excitation-assisted photoluminescence from self-trapped exciton states in MnO,” *J. Phys. Condens. Matter*, vol. 28, no. 1, 016004, 2016.
- [3] J. Nishitani, T. Kurihara, A. Asahara, T. Nagashima, M. Lippmaa, and T. Suemoto, “Photoexcited d-electron dynamics in transition metal oxide MnO studied by optical pump-THz probe measurements,” *Phys. status solidi*, vol. 13, Issue 2-3, p. 113–116, 2016.
- [4] S. Tokita, S. Sakabe, T. Nagashima, M. Hashida, and S. Inoue, “Strong sub-terahertz surface waves generated on a metal wire by high-intensity laser pulses,” *Sci. Rep.*, vol. 5, 8268, Jan. 2015.
- [5] 長島 健, 萩行正憲, “テラヘルツ分光測定装置,” *検査技術*, vol. 19, no. 7, pp. 6–11, Jul. 2014.
- [6] J. Nishitani, T. Nagashima, and M. Hangyo, “Terahertz radiation from antiferromagnetic MnO excited by optical laser pulses,” *Appl. Phys. Lett.*, vol. 103, no. 8, 081907, 2013.

- [7] T. Nagashima, M. Tani, and M. Hangyo, “Polarization-sensitive THz-TDS and its Application to Anisotropy Sensing,” *J. Infrared, Millimeter, Terahertz Waves*, vol. 34, no. 11, pp. 740–775, Aug. 2013.

〔学会発表〕 (計 5 件)

- [1] (招待講演) Takeshi Nagashima “Terahertz Response of Electron Charge and Spin Studied by Time-domain Spectroscopy” The 11th Conference on Lasers and Electro-Optics Pacific Rim (CLEO Pacific Rim 2015) (No. 28B2-2, August 28, 2015, Busan, Korea)
- [2] J. Nishitani, T. Kurihara, A. Asahara, T. Nagashima, M. Lippmaa and T. Suemoto “Photoexcited d-electron dynamics in transition metal oxide MnO studied by optical pump-THz probe measurements” 11th International Conference on Excitonic and Photonic Processes in Condensed Matter and Nano Materials (EXCON 2015) (Inorg01-Tu03, May 19, 2015, Montreal, Canada)
- [3] 西谷純一, 栗原貴之, 浅原彰文, 長島 健, ミック・リップマー, 末元 徹 「遷移金属酸化物 MnO における光励起 d 電子ダイナミクス」 日本物理学会第 70 回年次大会 (No. 23pCP-7, 2015 年 3 月 23 日, 早稲田大学)
- [4] (招待講演) Takeshi Nagashima, Toshiyuki Iwamoto, and Yukinori Satoh “Terahertz ellipsometry for evaluation of wide-gap semiconductors” The 5th International Workshop on Far-Infrared Technologies 2014 (IW-FIRT2014) (No. 6a-5, March 6, 2014, Univ. of Fukui, Fukui, Japan)
- [5] (招待講演) 長島 健 「テラヘルツ・エリプソメトリー」 (独)日本学術振興会 第 182 委員会 第 19 回研究会 (2014 年 1 月 30 日, 大阪大学中之島センター)
- 〔図書〕 (計 0 件)
- 〔産業財産権〕
○出願状況 (計 0 件)
○取得状況 (計 0 件)

6. 研究組織

研究代表者

長島 健 (Takeshi Nagashima)

摂南大学・理工学部基礎理工学機構・准教授

研究者番号：60332748