

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月1日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03846

研究課題名(和文) スピン流を介した光・テラヘルツ波変換の研究

研究課題名(英文) Study on light-THz wave conversion via spin current

研究代表者

水上 成美 (Mizukami, Shigemi)

東北大学・材料科学高等研究所・教授

研究者番号：00339269

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,400,000円

研究成果の概要(和文)：超高周波スピン流を介した光・テラヘルツ波変換現象の研究を行った。具体的には、主に、面内磁化を有するTa/CoFeB/MgOや垂直磁化を有するCoGa/MnGa/MgO等の、非磁性元素/磁性金属/酸化物ナノヘテロ接合構造を調べた。これら試料におけるテラヘルツ波放射は、磁性体や非磁性体の物性によって大きく変化し、光パルス誘起スピン流とその逆スピホール効果によるスピン流・電流変換による機構で説明できることが分かった。また、そのパルススピン流は磁性体の電子状態、特にスピン分極率が一つの支配要因であることを明らかにした。また、マグノンやスピンポンピング効果の影響についての知見を得ることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

スピントロニクスはスピンの関わる物性の基礎研究とその応用研究を両輪とし、最近ではスピンや光・熱が交差する相関物性の研究が世界的に進展している。その一例が本課題のスピン流を介した光・テラヘルツ波変換現象である。その変換効率従来極性半導体結晶より大きく、テラヘルツ波光源への応用も提案されている。しかしながら、研究は端緒にすぎたばかりであり、光パルス誘起スピン流やそのテラヘルツ波への変換機構の理解はまだ十分ではなかった。本研究で得られた成果は、変換機構の解明に大きく寄与するものである。この成果をベースとした工学的研究を行い、実用に資するテラヘルツ波光源の開発ができると考えられる。

研究成果の概要(英文)：We studied a light-terahertz (THz) wave conversion via spin current. Materials studied here were nano-hetero junctions of normal metal / magnetic metal / dielectric insulator, in particular in-plane magnetized Ta/CoFeB/MgO and perpendicularly magnetized CoGa/MnGa/MgO films. Laser-induced THz emission for those samples exhibited significant material dependences, which were explained by the pulse spin current induced by the laser pulse and the conversion of the spin current into the charge current via the inverse spin Hall effect. The analysis on the data suggested that the pulse spin current, namely the THz emission intensity, is governed by the spin polarization of magnetic metals. Furthermore, we discussed an effect of magnon and spin pumping on the observed THz emission.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：スピントロニクス スピン流 テラヘルツ波 パルスレーザー スピンポンピング マグノン

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

スピントロニクスは、スピンの関わる物性の基礎研究とその応用研究を両輪として発展を続けている。例えば巨大な磁気抵抗効果を示す素子は不揮発性磁気メモリといった革新的デバイスへと実用化され、一方「スピン流」(電荷を伴わないスピンの流れ)に由来する新機能性の探索が学術研究の一大潮流を形成している。特に電荷のみならず、熱や光などが磁性体の中でスピンと結合し新奇な効果が発現する、いわゆるスピン交差相関物性の研究が世界的に進展している。最近の代表的なものが、スピン流を介した光・テラヘルツ波変換現象である(図1)[1]。興味深いことに、その光・テラヘルツ波変換の効率は、従来の極性半導体結晶におけるそれより大きく、テラヘルツ波光源への応用まで提案されている[2]。しかし、このスピン流を介した光・テラヘルツ波変換現象の研究はまだ端緒にすぎたばかりであり、詳細な研究が求められる。特に、ギガヘルツ帯域の交流スピン流や逆スピンホール効果などの現象は国内外の多くの先行研究により明らかになりつつあるが、エネルギースケールの大きなテラヘルツ波帯域の超高周波スピン流の性質や関連の現象については全く明らかでない。また、報告の現象は金属磁性体における「超拡散スピン流」によるものとされるが、その起源には多くの議論があり、熱流も伴うから現象を複雑にしている。これらの課題を一つずつ明らかにすることが学術的に重要であるが、そもそも金属磁性体薄膜を用いたテラヘルツ波現象の研究は国内ではほとんど行われておらず、大きく出遅れている。

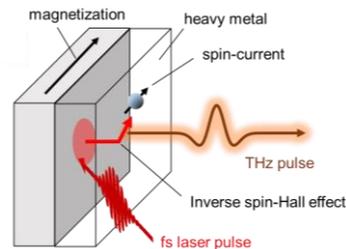
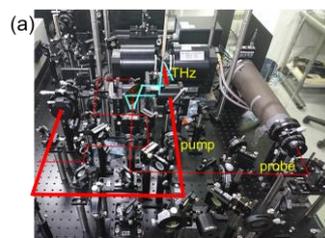


図1 スピン流を介した光パルス誘起テラヘルツ波放射の模式図。

2. 研究の目的

本課題では、超高周波スピン流を介した光・テラヘルツ波変換現象の研究を行う。具体的には、フェムト秒パルス光照射によって金属磁性体/非磁性金属から発生するテラヘルツ波放射を調べ、パルス光照射によって誘起される超高周波スピン流やテラヘルツ波帯のマグノンスピン流およびスピンポンピング効果についての知見を得る。さらに、そのスピン流などの大きさを決定付ける磁性体や非磁性体の物性について明らかにする。



3. 研究の方法

光パルス誘起超高周波スピン流の発生、ならびにそのスピン流・テラヘルツ波変換を調べるため、光パルス誘起テラヘルツ波放射の測定系を構築し評価を進めた。また、光誘起マグノンをも同時に時間分解検出せしめるような装置の構築を行い、目的の達成を狙った。評価の対象とする試料として、比較的作製が容易であり、様々な非磁性合金と積層可能である CoFeB 合金材料を用いた多層膜試料、ならびに一様なマグノンモードの周波数が 0.1-0.5 THz にある Mn-Ga 合金系試料を用いた。これらの試料は超高真空マグネトロンスパッタ法で作製した。

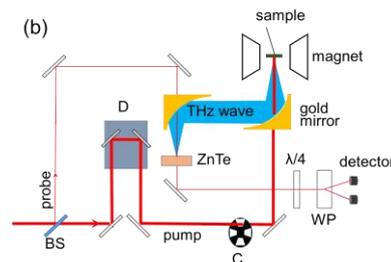


図2 (a)本研究で構築した光パルス誘起テラヘルツ波の測定系の写真。(b)測定系の概念図。BS, WP, D, Cは、各々、ビームスプリッター、ウオラストプリズム、遅延ステージ、チョッパである。

4. 研究成果

①測定系の構築： 光パルス誘起テラヘルツ波放射を検出するための測定系を独自に構築した(図2)。光源には約 100 fs パルス幅のフェムト秒レーザーと再生増幅器を用いた。ポンプパルス光を試料表面に照射し、試料表面から発生するテラヘルツ波を検出する配置とした。発生したテラヘルツ波は、ゴールドミラーによって極性半導体結晶に集光し、同時にプローブパルス光も集光する。電気光学効果を用いた、いわゆるテラヘルツ波時間分解分光(THz-TDS)によってテラヘルツ波の電場強度を時間分解検出する。この手法により、周波数帯域が 0.1-3 THz のテラヘルツ波を高感度に検出できる。垂直磁気異方性の大きな磁性体薄膜の測定ができるように、最大 2 T の磁場を面内に印加できる電磁石を設置した。また、プローブパルス光を表面に集光することで、時間分解磁気光学カー効果も検出できる方式としている。

②CoFeB 磁性体における実験： これまでに報告されているテラヘルツ波発生の物理モデルでは、光パルス誘起スピン流と磁性体の関係が全く明らかではない[1, 2]。そこでまず本研究では、よく知られた磁性体である CoFeB 合金から発生するテラヘルツ波を調べた。試料の構成は Ta(5)/CoFeB/MgO(2)/Ta(2) (膜厚: nm) とし、CoFeB の膜厚を様々に変えた試料を熱酸化膜付きの Si 基板上に製膜した。また、製膜後に真空中で熱処理を行った。図3(a)に 2 nm の厚みの CoFeB 試料のテラヘルツ波の検出例を示す。テラヘルツ波の発生源である膜面の電流 \mathbf{j} と CoFeB の磁化の方向 \mathbf{m} には、膜の法線ベクトルを \mathbf{n} とすると、 $\mathbf{j} \propto \alpha_{\text{SH}} \mathbf{m} \times \mathbf{n}$ の関係があると考えら

れている。ここで、 α_{SH} はスピホール角である。したがって、磁化の方向を反転することで電流の方向が反転し、テラヘルツ波の位相も反転する。遅延時間がゼロの時のテラヘルツ波の最大値を磁場に対してプロットすると、面内の磁化曲線に対応したデータが得られ(図3(b))、上に述べた関係式と一致することが分かった。

図4にテラヘルツ波の振幅の最大値をCoFeB膜厚に対して整理したデータを示す。テラヘルツ波は膜厚の減少とともに増大し、約2nmの時に最大を示した後に急激に減少する。この結果は報告されている膜厚依存性に一致する[1,2]。他方、図4に示したように、試料を熱処理することでテラヘルツ波の強度が大きく変化することが本研究から明らかとなった[3]。上述のように、テラヘルツ波を発生する物理的な波源は電流であり、放射されるテラヘルツ波の振幅電場 E_{THz} は放射体となる金属膜内に流れる電流の空間平均値 J_{int} と、 $E_{THz}/J_{int} \propto Z_0[n_s + n_0 + Z_0(\sigma_N t_N + \sigma_F t_F)]^{-1}$ 、という関係がある。ここで、 t_N 、 t_F は非磁性体および磁性体の膜厚、 σ_N 、 σ_F は非磁性体および磁性体のテラヘルツ波帯域における電気伝導度、 n_s 、 n_0 は基板および真空のテラヘルツ波帯域における屈折率、 Z_0 は真空のインピーダンスである。この式は放射体内外のインピーダンス(あるいは屈折率)マッチングを記述する。つまり放射効率が試料の伝導率や膜厚に依存し、薄膜の膜厚が薄くなるとテラヘルツ波放射が増大することを示している。図4に示した膜厚依存性のうち、厚いところの傾向は上に述べたインピーダンスの式で大まかには説明できる。膜厚が薄いところでテラヘルツ波が急激に減少する傾向は、光吸収量の減少に伴い J_{int} が小さくなることによるものと考えられる。CoFeB 薄膜は熱処理前にはアモルファス状態であり、伝導率は著しく低い。熱処理によって結晶化し伝導率が増大するため、熱処理によって放射の効率はかえって悪くなるはずである。したがって、インピーダンスマッチングの効果では熱処理によるテラヘルツ波放射の増大を説明できず、磁性体の物性の変化に起因するものと考えられる。規格化したテラヘルツ波強度の熱処理依存性を整理すると、熱処理によって as-depo の時の数倍までテラヘルツ波振幅が増大するが、ある熱処理温度でテラヘルツ波振幅は減少する傾向を示すことが分かった。この熱処理温度に対する傾向は飽和磁化の熱処理温度依存性の傾向とよく対応している。このことは、磁性体の飽和磁化と J_{int} の相関を示唆するものである。

本試料において、CoFeB の Co と Fe の組成比を広範囲に変化させ、同様にテラヘルツ波の検出を行った。熱処理前には発生するテラヘルツ波の大きさと組成の間に強い依存性は見られないものの、熱処理後に顕著な依存性を示すことが明らかとなった(図5)[4]。その依存性は、定性的には飽和磁化の組成依存性と類似している。いくつかの解析によって、実験結果は光パルス誘起スピン流がCoFeBの組成によって大きく変化していることを示唆することが明らかとなった。この組成依存性は、いわゆるスピン依存ゼーベック効果というよりは、CoFe合金のスピン分極率、特に[001]結晶方位のスピン分極率を反映していると考えられる。また飽和磁化の組成依存性と傾向が似ていることから、励起された熱マグノンによるスピンポンピング効果の影響も考えられる[4]。

③Mn-Ga 磁性体における実験： テラヘルツ波放射に対するコヒレントマグノンの影響に関する知見を得るために、垂直磁化 MnGa から発生するテラヘルツ波を調べた。磁性層や下地層などの膜厚や伝導度が大きいと真空のインピーダンスとのマッチングが悪くなり、テラヘルツ波放射強度は減少しその検出が困難である。MnGa 薄膜は30-100nm程度の厚いエピタキシャル薄膜の報告は多数あるが、本研究で必要とされる2-3nmの極薄膜領域では一般に結晶成長が困難であるため報告がない。そこで本研究では、本研究グループで開発されたCsCl型の常磁性CoGa規則合金下地を用いたMnGa極薄膜のエピタキシャル成長について検討した。試料の構成は(001) MgO基板/CoGa(5)/Mn_{1-x}Ga_x(2)/NM(膜厚nm)とし、NMにはPt、MgOを用いた。MnGa極薄膜はCoGa(001)面の上に低温で擬モルフィック的にキューブオンキューブ成長し、ミスマ

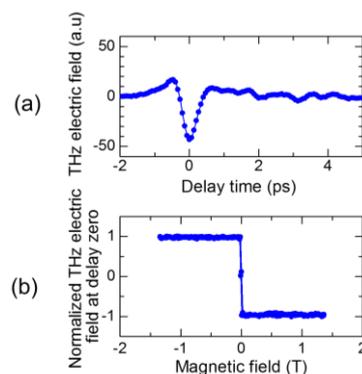


図3 (a) Ta/CoFeB/MgO 薄膜のテラヘルツ波放射の測定データ。(b) テラヘルツ波電場のピーク値の外部磁場依存性。

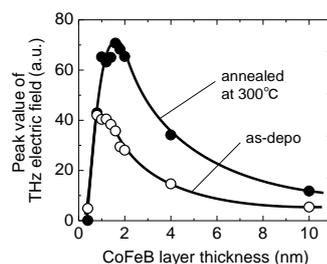


図4 Ta/CoFeB/MgO 薄膜におけるテラヘルツ波電場強度の膜厚依存性。熱処理の前後のデータをプロットしている。

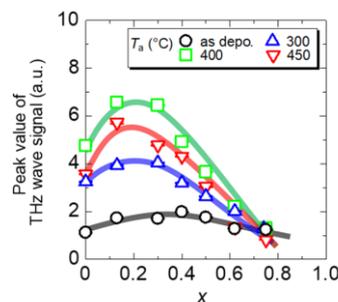


図5 Ta/CoFeB/MgO 薄膜におけるテラヘルツ波電場強度のFeに対するCoの組成比依存性。様々な熱処理温度のデータをプロットしている。

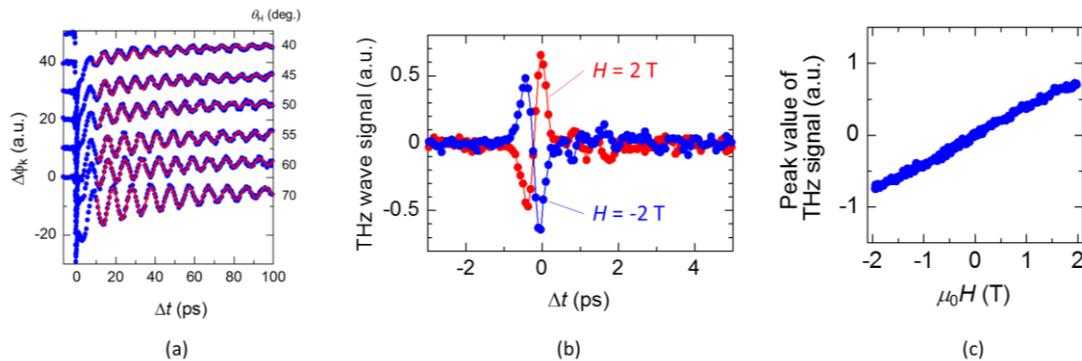


図6 (a) CoGa/Mn_{1.5}Ga/MgO 薄膜の光パルス誘起コヒーレントマグノン。(b)同試料のテラヘルツ波放射。(c) テラヘルツ波放射のピーク強度の面内磁場依存性。

ッチを解消するために c 軸の格子定数がバルクよりもわずかに小さくなる。そのため垂直磁気異方性がバルクよりも低下することが分かった[5]。その表面は原子レベルで平坦であるが、3-5 nm 程度の厚みになるとミスフィット転位が入る。そのため本研究では 2 nm 程度の試料について計測を行った。NM = MgO の場合の試料における光パルス誘起コヒーレントマグノンの時間分解計測の結果を図 6(a) に示す。約 0.1 THz 程度でかつライフタイムの比較的長いマグノンのシグナルが明瞭に観測されている[6]。興味深いことに、NM=Pt のみならず、NM=MgO の試料においても明瞭なテラヘルツ波放射を観測することに成功した(図 6(b))。Pt と異なり CoGa は重元素を含んでいないためこの結果は自明ではないものの、スピン軌道トルク磁化反転を用いたスピンホール効果の実験結果とよく対応する[7, 8]。CoGa の逆スピンホール効果は、Ga の 4p 軌道に由来する比較的強いスピン軌道相互作用に加えて、この規則合金の電子散乱が非常に強いことに起因すると考えられるが、その詳細な理解は今後の課題である。また、図 6(c) に示すように、テラヘルツ波放射は大きな磁場依存性を示している。ゼロ磁場では MnGa の磁化が膜面に垂直を向いており、面内磁場の印加とともに磁化の面内成分が増大することによるものと考えられ、上述の逆スピンホール効果で説明できる。図 6(b) のテラヘルツ波放射は、パルス状に発生したスピン流によるものであり、CoFeB の試料で観測されているものと起源は同一と考えられる。他方、図 6(a) で示したような振動がテラヘルツ波の波形には見られないため、コヒーレントマグノンによるスピンポンピングの効果は小さいものと推測される。マンガン組成を増大させコヒーレントマグノンの周波数を増大できるため、組成の異なる試料も同様に調べたところ、テラヘルツ波の波形に違いがみられた。マグノンの効果の可能性が示唆されるが、試料の飽和磁場が 10 T 程度と非常に大きい。今後強磁場での測定を行うことでより詳細な物理が明らかになると考えられる。

<引用文献>

- [1] T. Kampfrath et al., Nat. Nanotechnol. **8**, 256 (2013).
- [2] T. Seifert et al., Nat. Photonics. **10**, 483 (2016).
- [3] Y. Sasaki et al., Appl. Phys. Lett. **111**, 102401 (2017).
- [4] Y. Sasaki et al., submitted (2019).
- [5] K. Kunitatsu et al., J. Cryst. Growth. **514**, 8 (2019).
- [6] S. Mizukami et al., Appl. Phys. Express. **12**, 043003 (2019).
- [7] R. Ranjbar et al. Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 120302 (2016).
- [8] M. Takikawa et al., Appl. Phys. Express **10**, 073004 (2017).

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 9 件)

1. Y. Sasaki, S. Iihama, K. Z. Suzuki, S. Mizukami, Magnetic element effect on the THz emission in Ta/CoFeB/MgO films, submitted, 2019. 査読有
2. S. Mizukami, K. Z. Suzuki, Y. Miura, All-optical probe of sub-THz spin precession in a L1₀ MnGa nanolayer. Appl. Phys. Express. **12**, 043003/1-4 (2019). DOI: 10.7567/1882-0786/ab0c48 査読有
3. K. Kunitatsu, K. Z. Suzuki, S. Mizukami, Pseudomorphic deposition of L1₀ MnGa nanolayers at room temperature. J. Cryst. Growth. **514**, 8-12 (2019). DOI: 10.1016/j.jcrysgro.2019.02.052 査読有
4. Y. Sasaki, K. Z. Suzuki, S. Mizukami, Annealing effect on laser pulse-induced THz wave emission in Ta/CoFeB/MgO films. Appl. Phys. Lett. **111**, 102401 (2017). DOI: 10.1063/1.5001696 査読有
5. M. Takikawa, K. Z. Suzuki, R. Ranjbar, S. Mizukami, In-plane current-induced

magnetization switching in CoGa/MnGa/MgO films. Appl. Phys. Express. **10**, 073004 (2017). DOI: 10.7567/APEX.10.073004 査読有

6. R. Ranjbar, K. Z. Suzuki, Y. Sasaki, L. Bainsla, S. Mizukami, Current-induced spin-orbit torque magnetization switching in a MnGa/Pt film with a perpendicular magnetic anisotropy. Jpn. J. Appl. Phys. **55**, 120302 (2016). DOI: 10.7567/JJAP.55.120302 査読有

[学会発表] (計 41 件)

1. Y. Sasaki, S. Iihama, K. Suzuki, S. Mizukami, Laser-induced THz emission in Ta/CoFeB/MgO films with different compositions, 2019 Joint MMM-Intermag Conference, 2019 年
2. 水上成美, マンガン界面の磁性, ならびに磁性ナノヘテロ接合からのテラヘルツ波放射, ナノスピン光科学研究会主催「放射光を用いたナノスピン材料科学の新展開」(招待講演), 2018 年
3. 水上成美, テラヘルツ波領域における金属磁性薄膜の磁性 ならびにテラヘルツ波放射, 電気学会マグネティクス・リニアドライブ合同研究会 (招待講演), 2018 年
4. Satoshi Iihama, Tomoki Tsuchiya, Yuta Sasaki, Shigemi Mizukami, Pulse-laser-induced terahertz emission from CoFeB films with various capping layer, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会, 2018 年
5. Y. Sasaki, K. Suzuki, S. Mizukami, Pulse laser-induced terahertz emission for Ta/CoFeB/MgO structure, 21st International Conference of Magnetism, 2018 年
6. S. Mizukami, Ultrathin manganese alloys with perpendicular magnetic anisotropy for spintronic devices, The 5th International Conference of Asian Union of Magnetism Societies (ICAUMS2018) (招待講演), 2018 年
7. S. Mizukami, Tetragonal manganese alloy & quaternary equiatomic Heusler alloys for advanced spintronics applications, 7th Workshop Core-to-Core Project Tohoku-York-Kaiserslautern, New concept spintronic devices (招待講演), 2018 年
8. Y. Sasaki, K. Z. Kazuya, and S. Mizukami, Composition dependence of laser-induced THz emission in Ta/(Co_xFe_{1-x})₈₀B₂₀/MgO films, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018 年
9. Yuma Ogasawara, Yuta Sasaki, Akira Kamimaki, Kazuya Suzuki, Shigemi Mizukami, Pulse-laser induced THz wave emission from synthetic ferrimagnets, 第 65 回応用物理学会春季学術講演会, 2018 年
10. 水上成美, 高垂直磁気異方性と低ダンピング定数を示すマンガン合金ナノ薄膜, 科学研究費・基盤研究 (S) 成果報告会; 規則合金スピントロニクス材料の新展開 (招待講演), 2018 年
11. Shigemi Mizukami, Laser-induced spin dynamics and THz emission in metallic magnets, New excitation in spintronics, reimei/gp-spin/ICC-imr international workshop (招待講演), 2018 年
12. Shigemi Mizukami and Kazuya Suzuki, Recent research progress on MnGa alloy nano-layer for spintronics, 15th RIEC International Workshop on Spintronics (招待講演), 2018 年
13. 水上成美, 金属磁性体のレーザー励起スピン波ダイナミクスとテラヘルツ放射, 豊田理研ワークショップ「スピン秩序の動的制御」(招待講演), 2017 年
14. 水上成美, 磁気抵抗メモリ用高磁気異方性材料と磁化ダイナミクス評価技術, 平成 29 年度磁性材料研究会 (招待講演), 2017 年
15. Shigemi Mizukami, Manganese-based Spintronics (plenary), International Conference of Frontiers in Materials Science (FMS2017) (招待講演), 2017 年
16. 佐々木悠太, 鈴木和也, 水上成美, Pulse laser-induced coherent terahertz-wave emission from Ta/CoFeB/MgO films, 第 64 回応用物理学会春季学術講演会, 2017 年
17. S. Mizukami, Sub-THz magnetization precession and damping for manganese alloy ultrathin films, 4th JSPS Core-to-Core Workshop on “New Concept Spintronics Devices” (招待講演), 2016 年
18. 水上成美, 鈴木和也, Mn 系垂直磁化薄膜—スピントロニクスデバイスへの応用と課題, 第 208 回研究会/第 56 回化合物新磁性材料専門研究会「スピントロニクスにおける次世代材料開発」(招待講演), 2016 年

[その他]

ホームページ: https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/mizukami_lab/

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：鈴木 和也

ローマ字氏名：(SUZUKI, Kazuya)

所属研究機関名：東北大学

部局名：材料科学高等研究所

職名：助教

研究者番号 (8桁)：20734297

研究分担者氏名：飯浜 賢志

ローマ字氏名：(IIHAMA, Satoshi)

所属研究機関名：東北大学

部局名：材料科学高等研究所

職名：助教

研究者番号 (8桁)：70826073

(2)研究協力者

研究協力者氏名：佐々木 悠太

ローマ字氏名：(SASAKI, Yuta)

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。