## 科学研究費助成事業

研究成果報告書

令和 元年 6月 3 日現在

機関番号: 12601
研究種目:挑戦的研究(萌芽)
研究期間: 2017 ~ 2018
課題番号: 17K19050
研究課題名(和文)エレクトロマグノンによるテラヘルツスピントロニクス
研究課題名(央又)Ierahertz spintronics by electromagnon
研究代表者
高橋 陽太郎(Takahashi, Youtarou)
東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・准教授
研究者番号:30631676
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):本研究ではエレクトロマグノンと呼ばれる巨大磁気共鳴を介した新しいスピン流生成の手法を開拓する。テラヘルツ帯のエレクトロマグノンを共鳴をするための高強度テラヘルツ光源の構築を行い、繰り返しが1 kHzの光源で平均パワーで 1.8 mW、中心周波数が0.6 THzのテラヘルツ光を得た。一方、強いエレクトロマグノン共鳴を持ち、かつ室温でも使用可能な材料の探索を行い、マルチフェロイクス材料のひとつであるヘキサフェライトを用いたスピン流検出のためのデバイス作成を行った。テラヘルツ照射下でのスピン流生成を示す信号を、逆スピンホール効果により検出することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 スピン流は物質中の新しい流れとして応用も含めた広い観点から大きな注目を集めている。通常、マグノンスピ ンポンピングではマイクロ波によるスピン波励起が用いられるが、本研究では光の電場に応答するエレクトロマ グノン励起を利用してテラヘルツ帯の光を用いてスピン流生成を実現させることを目的とした。強力な光源を得 ることが難しいテラヘルツ帯で、巨大なエレクトロマグノン共鳴を持つ物質の見出すことに成功し、その材料を 用いてテラヘルツ光によって生成されたスピン流観測に成功した。本研究で実現したスピン流観測法の確立は、 有効な光学デバイスの少ないテラヘルツ帯での光機能開拓への展開が期待できる。

研究成果の概要(英文):We investigated the spin-current generation via the electromagnon resonance by terahertz excitation in multiferroics. In order to excite the electromagnon resonance, we constructed the high-field terahertz system, whose average power and center frequency are 1.8 mW and 1 THz, with the repetition rate of 1 kHz. The multiferroics with strong electromagnon resonance even in the room temperature was found in the Y-type hexaferrite. The device composed of this material was fabricated, so as to detect the spin current signal. We succeeded in the detection of spin-current generated by the terahertz radiation by using the inverse spin-Hall effect.

研究分野:光物性

キーワード: 光物性 マルチフェロイクス テラヘルツ分光

## 様 式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19(共通)

1.研究開始当初の背景

物理に現れる動的現象のひとつに"流れ"がある。例えば電流や熱流は古くから物理現象の主要なトピックのひとつである。そのような"流れ"のひとつとして、近年「スピン流」と呼ばれる現象が非常に大きな注目を集めている。物性物理においても、強磁性金属やトポロジカル絶縁体などの伝導電子スピン流から、熱や光、マイクロ波による磁気共鳴励起によるマグノンスピン流生成など、様々な手法によるスピン流が実現されている。スピン流は、白金等のスピン軌道相互作用の大きな金属を用いることで、電圧に変換されることから応用の面からも研究が進んでいる。本研究は新しい手法によるマグノンスピン流の生成を目指す。マグノンを生成するためには現在2つの手法が用いられている。一つは熱によりマグノンの分布に勾配をつけることでマグノンスピン流を生成する方法である。もう一つはマイクロ波の交流磁場により磁気共鳴を励起して直接マグノンを生成する方法である。

これに対して私はエレクトロマグノンと呼ばれる巨大磁気共鳴を介した新しいスピン流生成 の手法を開拓する。エレクトロマグノンはマグノンの一種であるが、通常の磁気共鳴とは異な り、電磁波の交流電場に応答する。このため、吸収強度にすると通常の磁気共鳴に比べて2桁 以上大きな強度を示す。これは、非常に高い効率でマグノン生成が可能であることを意味して いる。一方、マグノンの波数の選択則という点からみると、ブリルアンゾーンの端のマグノン が選択的に励起される。このため非常に高い共鳴周波数を持ち、通常の磁気共鳴(~GHz)と 比べると3桁高いテラヘルツ帯に共鳴を持つ。

ここで、テラヘルツ帯の電磁波を用いた新現象の開拓としての意義も強調したい。テラヘルツ 帯は可視(~ペタヘルツ)とマイクロ波(~ギガヘルツ)のちょうど中間に位置しており、長年遠赤 外光の一部とみなされてきた。しかし、光源、検出原理などに有効なものがなく現在でも一般 的な応用は無く未踏の領域とも呼ばれている。しかし近年、超高速通信や様々なセンシングへ の応用が期待され研究が進められている帯域である。本研究ではスピン流の物理とこのテラへ ルツテクノロジーをエレクトロマグノンを介して結びつけるという意義がある。

2.研究の目的

本研究では、エレクトロマグノンによるスピン流生成の実現を目指し、(i)スピン流生成のための、高強度・高安定テラヘルツ光源の構築、(ii)スピン流検出のためのデバイス作成に取り 組む。これらの組み合わせることで、(iii)テラヘルツ光によって生成されたスピン流の観測を 実現する。

3.研究の方法

(i) スピン流生成のための、高強度・高安定テラヘルツ光源の構築

従来の強磁性共鳴を用いたスピン流生成では、ミリワットから最大でワットクラスのマイクロ 波が用いられる。しかし、高い出力を得ることが困難なテラヘルツ帯では高強度パルスを用い ても平均出力は1ミリワット程度である。このため、スピン流検出にはテラヘルツ帯での高強 度光源が必須となる。高帯域のスペクトルが得られ発生帯域に柔軟性があること、ピコ秒領域 の時間分解が可能であること(緩和プロセスが観測可能)などの理由からフェムト秒パルス光 源を用いたテラヘルツ発生を行う。

(ii) スピン流検出のためのデバイス作成のその最適化

テラヘルツ・スピン流生成を検出するために、マグノンスピン流を逆スピンホール効果を用いた電圧により検出する。フリースタンディングの試料上のスポットにテラヘルツ光を集光する必要がある。試料の表面付近でエレクトロマグノン共鳴によりマグノンが生成され、平衡状態へ緩和する過程でマグノンが試料奥方向に流れる。これを電圧として検出する。スピン流の電圧変換へは大きなスピン軌道相互作用を持つ常磁性金属を用いた逆スピンホール効果が用いられる。本研究でも白金を用いたマルチフェロイクス材料のデバイスを作成する。

(iii) テラヘルツ光により生成されたスピン流の観測

テラヘルツ光によって生成されたマルチフェロイクス材料内のスピン流を、逆スピンホール 効果を用いて観測する。このために、磁場下での高強度テラヘルツ光照射に加えて、逆スピン ホール電圧の検出法を確立する。光源は1 kHz の繰り返しを持つ短パルスであり、よく用いら れるナノボルトメーターでは時間分解能の観点から効率の良い測定は難しい。パルス光源の特 性に合ったスピン流観測手法を確立し、その物理的特性に迫る。

4.研究成果

本研究ではテラヘルツ光によるスピン流生成を目指している。そのための光源の構築を行った。非線形光学結晶である LiNbO3を用いて、パルス面傾斜法によるテラヘルツ・パルス光生成を行った。電場波形のフーリエ変換から得られたスペクトルが図1(a)である。およそ 0.5 - 0.7 THz に中心周波数を持ち、パルス当たりのエネルギーは 1.8 µJ、繰り返し周波数が 1 KHz であるので平均パワーは 1.8 mW である。 これまで、強いエレクトロマグノン共鳴 を持つ物質の探索を行い、様々な特性を持 つマルチフェロイック物質が選択可能で ある。その中でも、本研究では我々が見出 したらせん磁性体 Y型ヘキサフェライト BaSrCo<sub>2</sub>Fe<sub>11</sub>AIO<sub>22</sub>を用いた。同物質はフェリ 磁性体であり、スピン流生成に必要なマク 口な磁化を有する。また、図1(b)に示す ように室温を含む温度域で巨大なエレク トロマグノン共鳴がテラヘルツ帯に現れ る。このエレクトロマグノンのスペクトル 強度は、同物質のフェリ磁性共鳴に比べて 100 倍以上の大きさを持っている。

同物質中でのスピン流生成を逆スピン ホール効果を利用した検出を行うため、白 金を用いたデバイス作成を行った。テラヘ ルツ光は試料表面に約1mm径で集光され る。図1(c)のように試料表面にテラヘル ツ光が照射され、そこで生成されたスピン 流は、試料裏側方向へ流れる。これを裏側 に作成した白金中の逆スピンホール電圧 により検出する。試料はc軸に垂直方向に 磁化を持つが、この符号を電磁石により制 御する。電磁石は最大13000eの磁場を印 加することが可能であるが、本物質では磁 化反転に十分な大きさである。

試料に磁場を印加し、テラヘルツパルスを試料に照射 したときの逆スピンホール電圧の時間波形を図2に示す。 これは、低インピーダンス V-V アンプで増幅した信号を オシロスコープで計測したもので、わずかにテールが見 られるものの、ピーク幅の時間分解能は増幅器の回路に よって制限されている。これを見ると、磁場反転に対し て電圧が変化していることがわかる。対称性の観点から、 これはマグノンスピンポンピングによる起電力であるこ とが示唆される。

磁化曲線と逆スピンホール電圧の磁場依存性を図3 に示す。同物質では、室温付近の低磁場において Alternating conical(ALC)と呼ばれる反強磁性相が出

現するため、ヒステリシスループが現れる(300 K)。一方、250 K では ALC 相の出現によるヒ ステリシスは著しく抑制されている。なお、この測定ではボックスカー積分器を用いることで、 各磁場における電圧値を取得し、反対称化を行っている。逆スピンホール電圧の磁場依存性で は 300 K、250 K ともに明瞭な強磁性的ヒステリシスが観測された。この結果は、テラヘルツ光 の照射によりフェリ磁性体であるヘキサフェライト中にマグノンスピン流が生成されているこ

とを示唆している。磁化曲線と比較すると、 その形状には相違が観測されている。これ は、白金と磁性体の界面での磁性がバルク のそれとは異なるために生じていると考 えられる。実際に他の磁性体においても、 バルクの磁化と異なる逆スピンホール電 圧が得られている場合がある。

飽和磁化は250 K ではやや大きくなるが、 逆スピンホール電圧においても、同様の傾 向が観測されており、磁化の大きさにスケ ールしていることを示唆している。

次にテラヘルツ光の強度依存性を図4 に示す。250 K、300 Kの両温度において、 テラヘルツ光の強度にほぼ比例した逆ス ピンホール電圧が生じている。

テラヘルツ光の偏光依存性を図4(b)に 示す。これを見ると、スピンホール電圧は テラヘルツ光の偏光にほとんど依存して いないことがわかる。一方で、エレクトロ マグノンはc軸に偏光しており、例えば90



図1:(a)テラヘルツ光の強度スペクトル。(b) 本研究で用いたY型ヘキサフェライトの誘電率 スペクトル。c軸方向に偏光したエレクトロマ グノン共鳴が現れる。(c)測定配置。試料表面に テラヘルツ光を集光する。c軸に垂直方向に磁 場を印加する。試料裏面に作成した白金を用い て、逆スピンホール効果による電圧は c 軸方向 に生じる。



図 2 : テラヘルツ照射により生じ た逆スピンホール電圧



図 3:250 K と 300 K における磁化曲線と逆 スピンホール電圧の磁場依存性

度偏光ではエレクトロマグノンは励起されない。この 結果は、ここで観測された信号がエレクトロマグノン 励起以外の寄与が大きいことを示している。これは、 白金薄膜のテラヘルツ光による加熱の効果の可能性が ある。金属中では低エネルギー側の応答はドルーデ応 答で記述される伝導電子が支配しており、その強度は さわめて大きい。テラヘルツ光によって共鳴的に励起 された伝導電子は緩和とともに、白金薄膜近傍へ熱を 拡散させる。これによって、熱流によるマグノンスピ ンポンピングが起こると考えられる。一方、エレクト ロマグノン生成によるマグノンはバルク中で生じてい るが、マグノンの拡散長が同物質中で極めて短い可能 性がある。このため、バルクで生じたマグノンは白金 との界面まで拡散せず、有意の逆スピンホール電圧と して観測されなかったと考えられる。

以上の点から、金属との界面を用いる場合は、テラ ヘルツ光による伝導電子の励起の効果が非常に大きい ため、光によるマグノン励起の効果との区別が困難に なることが明らかになった。本研究で用いたエレクト ロマグノンはゾーン端のマグノンの励起であるため、 緩和プロセスが重要になることが予想される。このた め、テラヘルツ励起・磁気光学プロープによる磁化ダ イナミクスの直接観測し、イメージング等により空間



図4:(a) 250 K と 300 K における 逆スピンホール電圧のテラヘルツ 強度依存性と(b)テラヘルツの偏光 依存性

的な拡散を観測することが、より効率的なスピン流の観測につながると期待される。

5.主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1件)

H. Shishikura, Y. Tokunaga, <u>Y. Takahashi</u>, R. Masuda, Y. Taguchi, Y. Kaneko, and Y. Tokura, "Electromagnon resonance at room temperature with gigantic magnetochromism", Phys. Rev. Applied 9, 044033(2018). DOI: 10.1103/PhysRevApplied.9.044033

〔学会発表〕(計 5件)

Y. Takahashi, "Optical magnetoelectric effect with electromagnon resonance on multiferroics", LEES 2018, June 24, 2018(Ancone, Italy)(招待講演)(国際学会),2018 井口照悟,金子良夫,増田亮二,肉倉洋恵,十倉好紀,高橋陽太郎、「マルチフェロイクスのエレクトロマグノン共鳴におけるコヒーレント分極変調」、日本物理学会 2018 年秋季大会、同志社大学、2018 年

<u>Y. Takahashi</u>, "Terahertz magnetoelectric optics with electromagnons on helical magnets", Workshop Optomagnonics 2017 (招待講演)(国際学会), 2017 年

肉倉洋恵,石渡晋太郎,田口康二郎,増田亮二,十倉好紀,高橋陽太郎、「Y型ヘキサフェライト Ba<sub>2</sub>Mg<sub>2</sub>Fe<sub>12</sub>O<sub>22</sub>のエレクトロマグノンにおける巨大ファラデー効果」、日本物理学会 2017 年秋季大会、2017

Hiroe Shishikura, Shintaro Ishiwata, Yasujro Taguchi, Ryoji Masuda, Yoshinori Tokura, <u>Youtarou Takahashi</u>, "Terahertz Faraday effect on electromagnon resonance in Y-type hexaferrite Ba<sub>2</sub>Mg<sub>2</sub>Fe<sub>12</sub>O<sub>22</sub>", The 9th APCTP Workshop on Multiferroics, 2017

〔図書〕(計 0 件)

〔 産業財産権 〕出願状況 (計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等

http://www.qpec.t.u-tokyo.ac.jp/takahashi\_lab/index.html

6 . 研究組織

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。