

令和 6 年 5 月 26 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01796

研究課題名（和文）磁気励起を介したテラヘルツ光による非散逸電流生成

研究課題名（英文）Dissipationless current generation from terahertz photon via magnetic excitations

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） 13,600,000円

研究成果の概要（和文）：シフト電流メカニズムはバルク光起電力効果を記述するメカニズムのひとつであるが、近年バンド間遷移に限らず、テラヘルツ帯の素励起の光生成により光起電力効果が生じることが理論的に提唱されていた。その候補となるマルチフェロイクス中のエレクトロマグノン励起による光起電力効果の検証を行った。ペロブスカイト型マンガン酸化物を用いて交換歪機構に由来したエレクトロマグノンをテラヘルツ光で励起した結果、自発的に空間反転対称性が破れるサイクロイド型磁性相で直流電流が生成されることを明らかにした。また、偏光依存性から磁気励起のモード依存性、温度依存性から非線形電導度の臨界現象の存在を見出すことに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

光子を電流に変換する光起電力効果は現代の科学技術を支える重要な基盤である。一般的には半導体のバンド間遷移を用いることで光を電流に変換するが、この原理を直接テラヘルツ帯へ適用することは困難であり、テラヘルツ技術が発展途上である理由のひとつになっている。ここでは、マルチフェロイクス中のスピン励起の共鳴を利用することで、テラヘルツ光を電流に変換することに成功した。絶縁体中で伝導に寄与するキャリアが無くとも、光起電力が生成可能であることを実証し、量子幾何学的な効果に由来するシフト電流機構の有効性を実証できた。また、将来的にはテラヘルツ光の電流変換機能としての活用が期待できる。

研究成果の概要（英文）：We investigate the terahertz shift current generation through the creation of the magnetic excitations in the multiferroics, which break the space-inversion symmetry by the spin-orderings. The electromagnon resonance, which is an elementary excitation of multiferroics of spin-origin, is predicted to exhibit the conversion from terahertz photon to the dc current through the shift current mechanism. We demonstrated this terahertz photocurrent generation on the perovskite rare-earth manganite with cycloidal spin-spiral phase. The photo-creation of the electromagnon driven by the exchange-striction mechanism was found to generate the photocurrent, while keeping the highly insulating state without charge carriers. The observed electromagnon photocurrent is reasonably explained by the extended shift current mechanism, which incorporates the coupling between the electronic bands and spin excitations.

研究分野：光物性

キーワード：テラヘルツ マルチフェロイクス 光起電力

1. 研究開始当初の背景

バルク光起電力効果は反転対称性が破れた物質で生じる現象であり、古くから強誘電体や極性を持つ物質のバンド間遷移において観測されてきた。このメカニズムが明らかになったのは比較的最近であり、その代表例がシフト電流機構である。シフト電流機構とは、バンド間遷移に伴う電子分極の変化、つまりシフトベクトルによって生じる電流であり、ペリー接続によって記述できる純粋な量子幾何学的な効果である。このため、非散逸性や欠陥耐性が高いといった特性が明らかになっている。また開放端電圧がバンドギャップに依存しないという特徴も有している。このような特徴から、現在シフト電流は世界的に広く研究されている現象である。一方、素励起の光生成においても光起電力効果が実現可能であるという理論が提唱された。シフト電流機構は、バンド間遷移によって生じるシフトベクトルによって記述されるため、一般の太陽電池のように電子正孔対生成が必ずしも必要ではない。つまり、素励起生成と電子系の結合が存在すれば、バンドギャップよりはるかに小さな光子エネルギーによって、シフト電流が生じることになる。この現象は理論的にはマルチフェロイクスのエレクトロマグノン励起にたいして提案された。

2. 研究の目的

本研究では、マルチフェロイクス固有の素励起であるエレクトロマグノンを介したテラヘルツ光電流生成の実現を目指す。一般的にマルチフェロイクスはスピン由来の強誘電性を持つ Type-II マルチフェロイクスと、磁気秩序と強誘電性が異なる起源を持つ Type-I マルチフェロイクスに分類される。ペロブスカイト型マンガン酸化物は空間反転対称性を破るサイクロイド型磁気秩序の発現に伴い強誘電性が現れる Type-II マルチフェロイクスのモデル物質であり、テラヘルツ帯に強い赤外吸収を持つエレクトロマグノンの共鳴が現れる。このモデル物質を用いて、テラヘルツ光の直流電流変換を実証し、その特性を明らかにするのが本研究の目的である。

3. 研究の方法

対象とするのは ab 面にサイクロイド型磁気秩序を持ち、a 軸方向に自発分極を持つ $\text{Eu}_{0.55}\text{Y}_{0.45}\text{MnO}_3$ と bc 面にサイクロイド磁気秩序を持ち、c 軸方向に自発分極を持つ TbMnO_3 である。これらの物質はスピン電流機構によるスピン由来の強誘電性を示し、スピン面の違いによって自発分極の向きが異なっている。これに対し磁気励起では、ともに a 軸に偏光した、磁気交換歪機構に由来したエレクトロマグノンの共鳴を示す。このエレクトロマグノンをテラヘルツ光で共鳴励起し、自発分極に平行に流れる電流を、試料の両端に取り付けた電極によって検出する。テラヘルツ光は、チタンサファイアレーザーのシード光を再生増幅器で増強し、 LiNbO_3 結晶を用いたパルス面傾斜法により発生させる。テラヘルツパルスのエネルギーは $1 \mu\text{J}$ 程度であり、繰り返し周波数は 1 kHz である。テラヘルツ光に同期した信号をオシロスコープで観測する。テラヘルツ光の中心周波数は $0.5 - 1.3 \text{ THz}$ 程度のブロードなスペクトルであり、 $0.2 - 2 \text{ THz}$ に広がるエレクトロマグノンの共鳴を励起することが可能である。ペロブスカイト型マンガン酸化物の強誘電相への転移温度は 25 K 程度であり、試料はヘリウムフロー型のクライオスタットを用いて冷却する。クライオスタットの窓にはテラヘルツ用の窓材を取り付けることで、テラヘルツ光起電力効果の観測を行う。また、比較実験としてバンド間遷移による光電流の測定も行うため、 800 nm 励起による測定も行った。

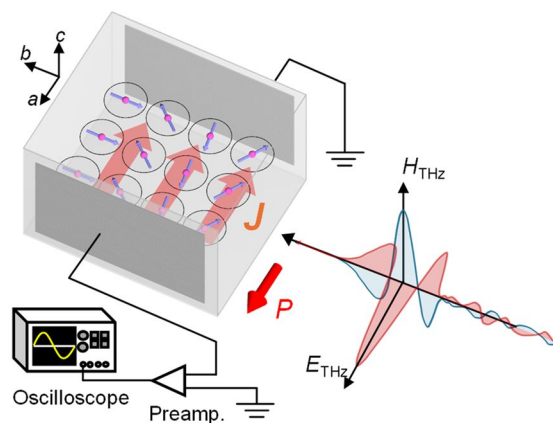


図 1 : エレクトロマグノンシフトカレント観測の実験図

4. 研究成果

(1) テラヘルツ光による光起電力効果の存在を明らかにするために、まず $\text{Eu}_{0.55}\text{Y}_{0.45}\text{MnO}_3$ において常誘電相、強誘電分極のドメインを正負それぞれにそろえた状態での測定を行った。テラヘルツ光は a 軸に偏光しており、エレクトロマグノンを生成することができる。まず、常誘電相で

は光電流は観測されず、電極などによる光電流生成の効果が無視できることを示した。その後、正負それぞれに強誘電分極を揃えた状態で測定を行ったところ、分極の符号に逆向きの光電流が生成されていることが明らかになった。一般的にバルク光起電力効果は 2 次の非線形光学電導度テンソルによって記述でき、これは自発分極の符号反転で符号が反転する。このため、観測した光電流はバルクによるものと整合するが明らかになった。また、テラヘルツ光の電場強度依存性を測定したところ、電場の 2 乗に比例した光電流が生じていることが明らかになった。この結果も、2 次の非線形光学効果であるバルク光起電力効果と整合する。一方で、テラヘルツ光吸収による光熱効果による焦電効果の寄与を見積もるために、数パルス分の光電流の測定を行い生成された電荷量の観測を行った。もし光熱効果であれば、パルス毎に正負の電流が流れ総量としての DC 電流は生じない。測定の結果、テラヘルツ光照射によって生成された積分電荷はパルスごとにステップ関数的に増大し、正味の直流電流が生成されていることが明確に示された。同物質のバンドギャップは 1.5 eV 程度であり、この実験では 1-8 meV 程度の光を照射するため電子正孔対は一切生成されず、高い絶縁性を保ったままである。つまり、エレクトロマグノンの光生成によって、フリーキャリアを介さずに光電流が生じることが明らかになった。

(2) ペロブスカイト型マンガン酸化物のサイクロイド型らせん磁性相では、交換歪機構によるエレクトロマグノンに加えて、テラヘルツ磁場に活性は反強磁性共鳴が現れる。両者は入射偏光を回すことで選択的に励起することが可能である。反強磁性共鳴のみを励起したところ、光起電力が観測された。一般的には光起電力効果をあらわす 2 次の非線形光学電導度は光電場に対する応答を記述するが、これは光の磁場に対して適用することも可能である。また、対称性の観点からも、この磁場活性な光起電力が許容されることを確認した。この結果はマルチフェロイクスの磁気励起が広く光起電力効果を示しうることを明らかにしている。

(3) エレクトロマグノンの光起電力効果の温度依存性を測定したところ、最低温と転移温度付近で顕著な増強を示すことが明らかになった。エレクトロマグノンのスペクトル強度や、強誘電分極の大きさは、光起電力効果の増強につながる特異性を示さないことから、非線形光学電導度自身が何らかの特異性を持つことが示唆される。一般的には転移点近傍の感受率は臨界的な挙動を示し、増強効果が現れる場合がある。今回観測された応答は、2 次の非線形感受率自身が転移点近傍の臨界性を強く反映していることを示している。一方で最低温付近での増強効果は、熱励起によって生じるマグノンやフォノンが光起電力効果のプロセスに影響を与えていることを示唆している。なお絶縁体であるマンガン酸化物では、最低温 (~5 K) 付近では、他の自由度は凍結している。

(4) $\text{Eu}_{0.55}\text{Y}_{0.45}\text{MnO}_3$ に加えて、bc 面にサイクロイド型のスピン秩序を示す TbMnO_3 においても測定を行った。強度はやや小さいものの、同様にテラヘルツ光起電力効果が観測された。このように、光電流の生成効率はいずれの面やモードに依存するが、一般的に磁気励起が光起電力を生じることが明らかになった。

(5) 磁気励起を生成するテラヘルツ光に加えて、近赤外領域の光を照射することでバンド間遷移に由来した光電流生成の実験を行い、その効率の比較を行った。その結果、テラヘルツ帯の磁気励起の方が、バンド間遷移よりも大きな光電流を生成することが明らかになった。これは、マルチフェロイクス中の磁気励起が電子状態と強く結合しており、高い効率で光起電力を生成することが可能であることを示している。

(6) バルク光起電力効果の効率はガラス係数を用いて表すことができる。様々な物質のガラス係数との比較を行った結果、バンド間遷移でないのにも関わらず、テラヘルツ帯のガラス係数が極めて大きなものであることが明らかになった。これは、テラヘルツシフト電流がテラヘルツ光の電流変換の原理として有望であることを示唆している。

<参考文献>

“ Terahertz photon to dc current conversion via magnetic excitations of multiferroics ”, M. Ogino, Y. Okamura, K. Fujiwara, T. Morimoto, N. Nagaosa, Y. Kaneko, Y. Tokura, Y. Takahashi, Nature Communications (2024) accepted.

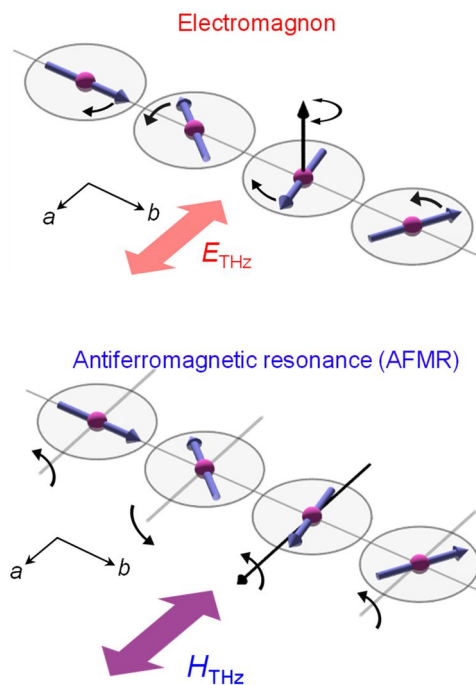


図 2 : 電場活性なエレクトロマグノン (上段) と磁場活性な反強磁性共鳴

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Okamura Yoshihiro, Morimoto Takahiro, Ogawa Naoki, Kaneko Yoshio, Guo Guang-Yu, Nakamura Masao, Kawasaki Masashi, Nagaosa Naoto, Tokura Yoshinori, Takahashi Youtarou	4. 巻 119
2. 論文標題 Photovoltaic effect by soft phonon excitation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 2122313119
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1073/pnas.2122313119	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ogino M., Kaneko Y., Tokura Y., Takahashi Y.	4. 巻 108
2. 論文標題 Optical magnetoelectric effects resonantly enhanced via electromagnons in cycloidal helimagnets Eu1-xYxMnO3	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 024418-1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.108.024418	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shoriki Kentaro, Moriishi Keigo, Okamura Yoshihiro, Yokoi Kohei, Usui Hidetomo, Murakawa Hiroshi, Sakai Hideaki, Hanasaki Noriaki, Tokura Yoshinori, Takahashi Youtarou	4. 巻 121
2. 論文標題 Large nonlinear optical magnetoelectric response in a noncentrosymmetric magnetic Weyl semimetal	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 2316910121 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1073/pnas.2316910121	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Makiko Ogino, Yoshihiro Okamura, Kosuke Fujiwara, Takahiro Morimoto, Naoto Nagaosa, Yoshio Kaneko, Yoshinori Tokura & Youtarou Takahashi	4. 巻 -
2. 論文標題 Terahertz photon to dc current conversion via magnetic excitations of multiferroics	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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11件（うち招待講演 10件 / うち国際学会 10件）

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Terahertz and far infrared magneto optics in emergent magnets
3. 学会等名 IEEE intermag2024 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Terahertz optical effects enhanced by electromagnon resonances in helimagnets
3. 学会等名 The 14th APCTP Workshop on Multiferroics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Linear and nonlinear terahertz optical effects in magnetoelectric multiferroics and ferroelectrics
3. 学会等名 LEES2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Terahertz optical effects in multiferroics
3. 学会等名 The 15th International Meeting on Ferroelectricity (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Magneto-optical study on topological magnets
3. 学会等名 Workshop on Topology in Magnetic Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Electric field control of natural optical activity via chirality stemming from spin structure
3. 学会等名 The 6th Molecular Chirality Asia 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Terahertz optical effects in ferroelectrics and multiferroics
3. 学会等名 Ferroelectre (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Optical magnetoelectric effect in multiferroics
3. 学会等名 CIMTEC2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 荻野禎子, 岡村嘉大, 金子良夫, 十倉好紀, 高橋陽太郎
2. 発表標題 サイクロイド型磁性体におけるエレクトロマグノンシフト電流
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Optical magnetoelectric responses in multiferroics
3. 学会等名 PACRIM & GOMD 2021 Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Takahashi
2. 発表標題 Nonreciprocal optical responses of multiferroics
3. 学会等名 APS March Meeting 2022 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

高橋研究室ホームページ
https://www.qpec.t.u-tokyo.ac.jp/takahashi_lab/index.html
 高橋研究室ホームページ
https://www.qpec.t.u-tokyo.ac.jp/takahashi_lab/index.html

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