

整理番号	2021-J-087	報告者氏名	中嶋 誠
------	------------	-------	------

研究課題名	光励起スピン流による高効率広帯域テラヘルツ波放射光源の開発		
<代表研究者>	機関名： 大阪大学	職名：准教授	氏名：中嶋誠
<共同研究者>	機関名： 大阪大学	職名：特任教授	氏名：西谷幹彦
	機関名： 大阪大学	職名：特任助教	氏名：Valynn Mag-usara
	機関名：	職名：	氏名：
	機関名：	職名：	氏名：
<研究内容・成果等の要約>	<p>近年のビッグデータ・IoT 社会において、データ量は飛躍的に増大しており、次世代通信帯として”Beyond 5G”・”6G”といわれるテラヘルツ領域の光源やデバイス開発が必須の状態となっている。一方で、スピンの自由度を利用するスピントロニクスや磁気デバイスは最も期待されているデバイスである。金属磁性体に光励起することにより生じるスピン流をヘテロ界面にて実電流に変換することで、高強度なテラヘルツを発生させることが可能であることがわかり、この新しい概念のテラヘルツ光源が、高効率で広帯域であることから、強い注目を集めている。本研究では磁性体テラヘルツ放射素子に着目して、従来のテラヘルツ光源(非線形光学結晶の ZnTe)よりも高強度なテラヘルツ放射光源の開発を行う。磁性体超薄膜の特徴を生かして、大口径の試料の作成も実施する。</p> <p>ガラス基板上に、Fe/Pt をそれぞれ数 nm ずつマグネトロンスパッタリングで積層させることによって磁性体テラヘルツ放射素子の作成を実施した。ガラス基板にすることでコストを抑えられるだけでなく、大口径のテラヘルツ放射素子の作成が可能となった。4 インチのガラス基板に作成したテラヘルツ放射素子を作製および評価した。テラヘルツ波放射強度の増強では、後方に放射されるテラヘルツ波を ITO 膜で前方に反射させ、それを半波長ずれた位置で、コヒーレント結合増強させることに成功した。ピーク・トゥ・ピークの放射波形の電場振幅で 1.4 倍の増強が得られた。フーリエ変換スペクトルを得て、放射強度で比較したところ、ピーク周波数で、2.4 倍の強度の増強を得ることに成功した。</p>		

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

口頭発表 国内学会発表

1. “ITO 構造を利用した磁性体超薄膜テラヘルツ光源の高強度化”,第 69 回日本応用物理学会春季学術講演会,(口頭発表、3/25, 25p-D315-7) (Hybrid, 青山学院大学, 2022.3.22-26), 松永 大陽, 江尻 宏平, 劉 爽, 鐵川 憧英, V. K. Mag-usara, V. C. Agulto, 西谷 彰二郎, 西谷 幹彦, 吉村 政志, 中嶋誠.
2. **(若手優秀論文賞)** “超薄膜磁性体ヘテロ構造におけるコヒーレント結合によるテラヘルツ放射強度の増強”, 2022 年度レーザー学会 中国・四国支部, 関西支部連合, 若手学術交流研究会プログラム(口頭発表, A-15, 12/13), (広島大学 学士会館レセプションホール, 2022.12.12-13), 松永大陽, 中嶋誠.

ポスター発表 国際学会発表

1. “**High Intensity Spintronic Terahertz Emitter with ITO and Microsheet Glass Structure**”, T. Matsunaga, V. K. Mag-usara, K. Ejiri, S. Tetsukawa, S. Liu¹, V. C. Agulto, S. Nishitani, M. Nishitani, M. Yoshimura, M. Nakajima, 47th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz 2022) Aug. 28- Sep.2 2022, (Th-P-36, 9/1, poster),(Delft, Netherlands).

投稿論文は、投稿準備中です。

<研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）>

近年のビッグデータ・IoT 社会において、データ量は飛躍的に増大しており、次世代通信帯として”Beyond 5G”・”6G”といわれるテラヘルツ領域の光源やデバイス開発が必須の状態となっている。一方で、スピンの自由度を利用するスピントロニクスや磁気デバイスは最も期待されているデバイスである。金属磁性体に光励起することにより生じるスピン流をヘテロ界面にて実電流に変換することで、高強度なテラヘルツを発生させることが可能であることがわかり、この新しい概念のテラヘルツ光源が、高効率で広帯域であることから、強い注目を集めている。本研究の新規性として、スピン流を利用したテラヘルツ波発生に着目している点である。これまでテラヘルツ光源は、半導体光伝導アンテナや半導体表面、非線形光学結晶が多く利用されており、磁性体の利用は稀である。本研究では、磁性体に着目し、スピン流・スピンホール効果という新しい概念による効果を有効に扱うことで、既存の壁を打ち破って、新規のテラヘルツデバイスを開拓したいと考えている。薄さ数nm という金属薄膜を利用することで、吸収等のロスを経済的に抑えることが可能であり、さらに既存の光源よりも広帯域化することが期待される。大口径で安価な素子を供給可能であるだけでなく、光学的な簡便さや工業的大量生産への容易さ、フレキシブル材料との組み合わせ等、低コストで大面積化が可能と、産業的なインパクトも十分に大きいと期待される。

本研究では、それぞれ厚み 5nm 程度の金属磁性体・非磁性金属のヘテロ構造に、フェムト秒光パルス照射によって、生じるテラヘルツ波の高強度化を目的とする。光照射によって、金属磁性体に生じるスピン流が、金属ヘテロ構造界面において、逆スピンホール効果によって実電流が生じることを介して、発生するテラヘルツ波放射光源の高度化することを目的とする。このスピン流を介した新光源は、広帯域に発生することが可能であるだけでなく、光照射耐性も高く、将来の標準光源になりうる可能性を秘めている。しかしながら現在の光源強度は、代表的に用いられる非線形光学結晶の数10%程度の強度であり、さらなる高強度化の研究が必須である。この光源ができれば、イメージングなどに好都合な大面積試料の作製も容易になり、作製コストも大きく低減できる利点がある。

金属磁性体および金属非磁性体のヘテロ接合試料に、フェムト秒パルスレーザーを照射することによって、金属層(5nm)に、スピン流が生じ、それが界面に到達すると、逆スピンホール効果(ISHE)によって、界面の面内方向に、過渡的な実電流が生じる(図1参照)。この電流成分の時間微分として、外部にテラヘルツ帯の電磁波は放出される。光励起によるスピン流が超高速に生成され緩和するために、放出される電磁波はテラヘルツ帯域になる。

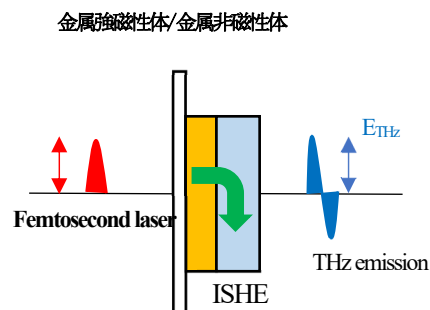


図1 磁性体ヘテロ構造テラヘルツ放射 (ISHE : Inverse Spin Hall Effect)

金属磁性体ヘテロ構造をマグネトロンスパッタリングによって作製し、テラヘルツ放射強度の測定評価を行う。試料の厚みはサブ nm の精度で制御し、最適な厚みや品質のテラヘルツ放射素子を作製する。研究期間中にも、この構造のテラヘルツ放射素子を、毎週 1～3 回のペースで作成を続けた。また、1 回の作成で、4 枚程を同時に作製することも可能であり、テスト項目の数によって、1 回での作成枚数の調整は行った。Fe/Pt 構造の試料に絞り、膜厚の最適化を行うことにより放射強度の最適化を実施した。この過程で当初より 5 倍ほどの高強度化が得られている。

基板材料をガラスにすることで、コストの低減を図った。ガラス材料を利用しても、試料作製条件の最適化を図ることにより、従来の単結晶基板を用いた時と、遜色のない放射強度を得ることが可能となった。実際、大口径の基板を用いて、直径 4 インチのガラス基板において、均一なテラヘルツ放射素子の試料の作成に成功している。このような大口径の放射素子を準備することは非線形光学結晶で用意することは非常に困難であるか、そのためのコストは非常に高い状態となってしまう。図 2 は作成したガラス基板上の Fe/Pt テラヘルツ放射素子である。厚みが合わせて 5nm 程と非常に薄いので、可視光においては、半透明な状態になっていることがわかる。

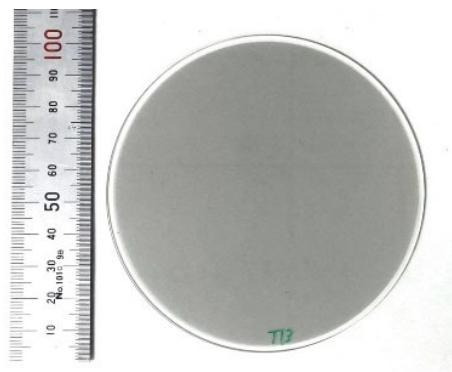


図 2 後方に放射された時間波形とのコヒーレント結合による増強

さらに今回の主要な目的である、放射強度を増強を実施した。そのために、これまで後方に放射されているテラヘルツ波は利用されることなかったものであるが、これを前方に放射する機構をあらたに加えて、さらには、前方に放射される成分とコヒーレントに重ね合わせるにより大きな増強を得ることに成功した。コヒーレント増強法であるが、複数の新しいアイデアをもとに実現できた成果である。この成果について、下記で説明する。

一般にコヒーレント増強法において、同じ波形同士を重ねるためには、再度ビームスプリッタを使うなどが必要であり、大きなロスが生じることになる。一般の光源において、後方に放射された波形を前方に跳ね返して重ねても位相がずれているために、その効率は高くない。また、磁性体テラヘルツ素子から生じるテラヘルツ波はモノサイクルの時間波形であり、位相が遅れたものとコヒーレント結合を引き起こすことは難しい。今回我々が用いている磁性体素子は、厚みが数 nm と非常にうすく放射素子自体では大きな位相ズレは生じない。ここで我々が取った方法は、半波長分遅らせた状態で、コヒーレント結合を起こす方法である。まず、後方に放射された時間波形の位相を反転させ、その波形は半波長、前方に放射される時間波形に遅らせる形で結合させるように試みた (図 3 参照)。モノサイクルの時間波形の負のセカンドピークと、後方に反射してきた時間波形の位相反転させたファーストピークを重ねることで、コヒーレント増強を図った。そのために、後方に反射したテラヘルツ波は固定端反射で位相を反転させ、適切な位相遅れをもたせるために、マイクロシートガラスを間に挟んで、上記の条件を達成するように試みた。

図 3 に示すようにガラス基板上にマグネトロンスパッタリングにより Pt(3 nm)/Fe(5 nm)のテラヘルツ波放射素子を作製した。一方で、図 3 に示すように、Pt(3 nm)/Fe(5 nm)の光励起側に ITO (Indium tin oxide) 膜 (シート抵抗は $6 \Omega/\text{sq}$) 及びマイクロシートガラス(厚み $30 \mu\text{m}$)を加えたテラヘルツ放射素子を用意した。ITO 膜は、フェムト秒レーザー光を透過し、THz 波を反射する性質を持つ。厚みを $30 \mu\text{m}$ にしたのは、放射テラヘルツ波の中心波長に対して半波長分ずらすためである。テラヘルツ波の発生・検出には Ti:sapphire Regen. Amp. (800 nm, 100 fs, 1 kHz)を用いて、EO サンプリング (ZnTe)検出により放射波形の測定を行った。

観測された THz 波放射波形を図 4 に示す。ITO 構造を含むテラヘルツ波放射素子は、含まないものと比べてピークツーピーク振幅で 1.4 倍の増強に成功した。また、これらの時間波形をフーリエ変換することによりテラヘルツ帯のスペクトル情報を得た。その結果、ピークにおけるスペクトル強度で 2.4 倍の増加が確認できた。このように、強度にして、2 倍以上の増強が得られたことは、コヒーレント結合により、電場振幅の重ね合わせによって、増強されたことによるものであることを示している。広い周波数帯域で増強させることができることも、本方法の特徴の一つである。

以上の結果より、ITO 構造を用いることで磁性体テラヘルツ放射素子の放射強度を 2.4 倍にも増強させることに成功した。この THz 波放射強度は、従来までよく使われている非線形光学素子の ZnTe からの放射強度よりも高強度である。さらに本方法は、これまで磁性体テラヘルツ放射素子で提案されている他の増強方法とも合わせて利用することが可能である。例えば負のスピンホール角を有するタングステン W 等の金属と Pt/Fe/W の構造にすることでさらなる増強が可能である。今後は磁性体テラヘルツ素子を利用して、テラヘルツ分光やイメージング測定を実施していくことを計画している。

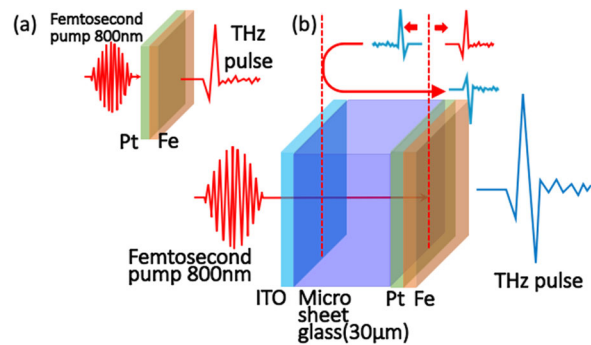


図 3 後方に放射された時間波形とのコヒーレント結合による増強

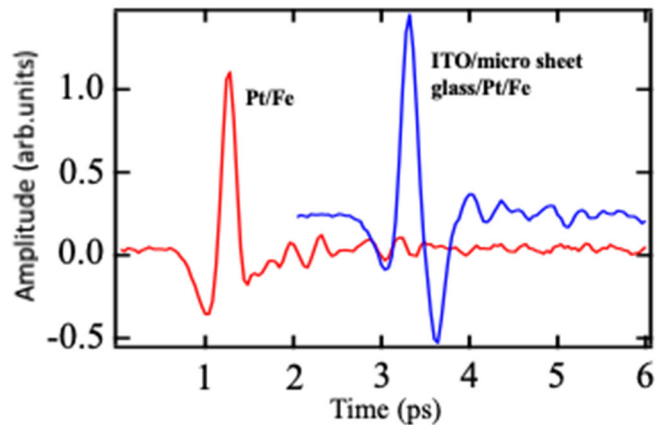


図 4 Pt/Fe と ITO 構造を含む Pt/Fe テラヘルツ放射素子が発生されたテラヘルツ電磁波波形