

研究報告書

「電気磁気創発現象による電磁波制御デバイスの創生」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 平成 26 年 10 月～平成 30 年 3 月

研究者: 高橋 陽太郎

1. 研究のねらい

マイクロ波技術は、放送や無線 LAN、携帯端末での高速通信、レーダーなど多方面で社会を支える科学技術の重要な柱である。しかし、近年の通信の大容量・高速化を実現するためにはより高い周波数を用いた電磁波の制御技術の開発は急速に進められており、更に車載レーザーの高精度化なども見据えた 100 ギガヘルツを超える高周波電磁波利用のための技術の確立が期待されている。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)の中間に位置する周波数を持つ電磁波の帯域を指し、100 Gbps を超える超高速通信など将来の情報の大容量化を支える基盤技術となることが期待されている。しかしテラヘルツ帯は未踏の領域ともいわれており、電磁波の発生・検出、また様々な電磁波操作技術が未確立であるという大きな問題がある。

本研究では、テラヘルツ光制御の新しい技術を確立するための研究を行った。着目したのはマルチフェロイクスと呼ばれる新しい磁性材料である。マルチフェロイクスは、磁性に由来した強誘電性を持つことから新しい物質機能が発現する舞台として近年盛んに研究されている。マルチフェロイクスのもう一つの特徴は、テラヘルツ帯にエレクトロマグノンと呼ばれる光の振動電場に応答する磁気共鳴を持つ点である。更にこのエレクトロマグノンが非相反方向2色性と呼ばれるアイソレーター効果など様々な光学効果を示すことも近年の研究から明らかになっている。巨大なテラヘルツ光に対する応答や様々な光学効果は電磁波制御という観点で、将来のテラヘルツ技術の基盤技術となりうる。しかし、エレクトロマグノンは新しい現象であるため、現在その材料が非常に限られておりしかも極低温に限られているなど課題も多い。本研究ではこれらの課題を克服し、室温でのエレクトロマグノンの実現、光学効果によるテラヘルツ光の制御の効率化、新しいテラヘルツ帯での光学現象の実現など、エレクトロマグノンが持ちうる様々なテラヘルツ特性を開拓・解明することを目指す。エレクトロマグノンのテラヘルツ特性はテラヘルツ光の吸収材、偏光素子、アイソレーターや偏光制御素子や、高い効率を持つテラヘルツ検出素子などへの展開が期待される。

2. 研究成果

(1) 概要

テラヘルツ帯の新しい共鳴現象であるエレクトロマグノンを室温で実現するために、マルチフェロイクス材料のひとつである Y 型ヘキサフェライトに着目した。エレクトロマグノンが期待できる「らせん型」の磁性相が室温で存在している物質を選び 1 THz を中心とした共鳴が室温で現れることを明らかにした。また磁場を印加することで、磁性の制御を介したエレクトロマグノン共鳴の生成・消滅が可能であることを明らかにした。更により効果的なテラヘルツ帯の光吸収の制御のために Y 型ヘキサフェライトの組成を調整することで、オンオフ的な共鳴強度の制御、

通常の磁気共鳴の10倍以上の効率を持つ周波数の磁場制御を室温を含む広い温度域で実現した。一方で、エレクトロマグノンと磁性相の相関を明らかにすることで、共鳴の周波数特性を明らかにした。

光学効果としてアイソレーター等に用いられているファラデー効果、カイラルな物質に固有の自然旋光性、電気磁気光学効果である非相反方向2色性、磁気カイラル効果、旋光性複屈折というさまざまな応答をエレクトロマグノンにおいて実現した。Y型ヘキサフェライトではテラヘルツ光のファラデー回転がエレクトロマグノン共鳴によって効果的に増強されることを明らかにした。ここでは1.6ミリの試料の透過光で最大45度の回転角が得られた。また銅酸化物のらせん型磁性相で出現するエレクトロマグノンを用いて、自然旋光性による偏光回転が現れることを明らかにし、電圧による偏光回転の符号の制御を実現した。このとき、厚さ1ミリの試料において透過光の回転角は10度程度であり、磁場を印加する必要はなく、簡素な偏光制御が可能であることを実証した。非相反方向2色性は光の吸収が光の進行方向によって変化する現象であるが、上記の銅酸化物において最大25%の吸収係数の変化を示す方向2色性と磁気カイラル効果を実現した。また、電圧パルスの印加による方向2色性の符号の反転を実現した。電気磁気光学効果が巨大化する条件をマルチフェロイクスであるマンガン酸化物を用いて磁気構造の観点から探索し、物質の結晶と磁性の周期の整合が重要な役割を果たしていることを見出した。

(2) 詳細

研究テーマ「エレクトロマグノンの室温化」

これまで極低温に限られていたエレクトロマグノンをテラヘルツ帯の光(電磁波)応答として利用するために室温化を目指した研究を行った。ここで注目したのはマルチフェロイクスとして知られているヘキサフェライトである。本研究では、最初にエレクトロマグノン発現の条件となるらせん磁性(スピンのらせん型に配列した磁性)を有するヘキサフェライトを対象として、最も強いエレクトロマグノン共鳴を持つものを探索した。重要な点は、エレクトロマグノンがらせん磁性に加えて、結晶構造に大きく依存しているために、最適な結晶構造を明らかにすることである。M、Y、Z、U型の結晶構造を持つヘキサフェライトについて磁場下でのテラヘルツ帯の光学応答の測定を行い、Y型が最も顕著にエレクトロマグノン共鳴を示すことが明らかになった。

次にY型の中でも室温でらせん磁性を示す組成を選び、テラヘルツ帯の高精度のスペクトル測定を行い、特定の結晶軸に強く偏光したエレクトロマグノンの共鳴を室温においても観測した。室温でのエレクトロマグノン共鳴は1 THzにピークを持ち、0.5 mmの結晶では90%のテラヘルツ光を吸収する。このヘキサフェライトに磁場を印加すると、らせん磁性が消失しフェリ磁性相が現れる。このとき、エレクトロマグノンが消失していることを磁場中のテラヘルツ分光測定により明らかにした。これは磁場によるテラヘルツ共鳴が可能であることを示す結果である。これらの成果は、これまで極低温で行われてきたマルチフェロイクスの基礎物性研究の一環であったエレクトロマグノンが、テラヘルツ応答として室温で利用できることを示したものである。

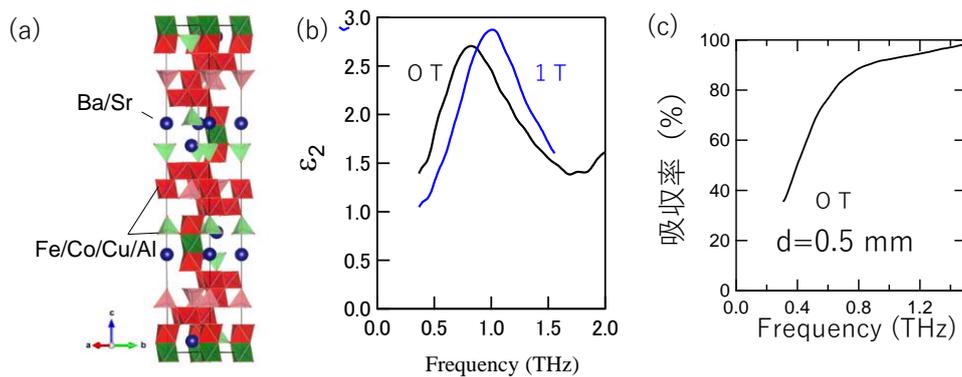


図1:(a)Y型ヘキサフェライトの結晶構造。(b)室温でのエレクトロマグノンの誘電率虚部のスペクトル。1 THz 付近に共鳴を持つ。(c)厚み 0.5 mm の試料を用いたときのテラヘルツ光の吸収率。

研究テーマ「エレクトロマグノンの共鳴条件の制御法の開拓」

エレクトロマグノンの舞台となるマルチフェロイクスは電場や磁場に対する応答をもち、それは光学特性にも表れる。このため、新しい機能が得られる可能性がある。特にエレクトロマグノンではマルチフェロイクスの持つ電気磁気結を反映した、巨大応答が期待できることから、テラヘルツ共鳴の制御法の確立を研究の目的とした。

エレクトロマグノン生成の微視的機構が十分に理解されていないこともあり、共鳴の制御に必要なパラメーターは不明であった。この点を明らかにするために、Y型ヘキサフェライトのモデル物質である組成を用いて、磁気構造とエレクトロマグノンの相関を明らかにする研究を行った。この結果、らせん磁性の周期にエレクトロマグノンの共鳴エネルギーが大きく依存していることを明らかにした。これは、通常の磁気共鳴のエネルギーとは大きく異なる性質を持つことを意味しており、外場に敏感なテラヘルツ応答が実現可能であることを示している。

エレクトロマグノンはらせん磁性体に特有な共鳴であるため、磁場を印加することによって消失させることが可能であるが、共鳴を完全に消失させるためには1テスラ以上の磁場変化が必要であり、磁場制御の特性としては効率が悪かった。この点を克服するため、より磁性が大きく変化する組成のY型ヘキサフェライトを用いて、巨大な磁気クロミズムの実現を目指した。その結果、急峻な磁性の変化によるエレクトロマグノン共鳴のオンオフ的な磁場制御が可能となった。このとき0.1テスラ程度の磁場変化でエレクトロマグノン共鳴が出現(消失)させることができた。また、ゼロ磁場下では共鳴が消失しているにも関わらず、磁場の印加によってエレクトロマグノンが出現するという点も、これまでになかった特性のひとつである。また、この特徴は、室温でも実現することができた。

一方で、同じ組成のY型ヘキサフェライトに別方向の磁場を印加すると、通常のマグノンの10倍以上の共鳴エネルギーシフトが起こることを見出した。例えば200 Kでは、エレクトロマグノンの共鳴を磁場によって0.5 THzから1.5 THzまで連続的に変化させることに成功した。このときに必要な磁場の変化は3テスラであるが、この値は通常の磁気共鳴に対する磁場によるエネルギーシフトと比べると10倍以上の効率である。この特性は室温でも観測された。

以上のように、エレクトロマグノンはこれまでの光学応答にない柔軟な外場応答を持ち、テラ

ヘルツ帯の光学応答を磁場、組成により大きく制御できることが明らかになった。

研究テーマ「エレクトロマグノンを用いたテラヘルツ帯の光機能性の探索」

エレクトロマグノンの持つ新しい特徴として、多彩な光学応答を示しうるという点があれば、テラヘルツ光の吸収、偏光、進行方向の制御など様々な光機能性となりうる。このような電気磁気結合に基づくテラヘルツ光の制御の基本原理の開拓を研究の目的とした。

非相反方向2色性に代表される電気磁気光学効果は近年のマルチフェロイクスの出現以前は、極めて小さな光学効果としてのみ観測されていた。近年エレクトロマグノンが極めて巨大な方向2色性を示すことが明らかになったが、その条件と物理的なメカニズムを明らかにすることは最初の課題である。様々な磁気相を持つマンガン酸化物をモデル物質として、エレクトロマグノンの方向2色性の研究を行い、磁性の周期と格子の周期が整合した時にのみ、大きな方向2色性が発現することが明らかになった。これは、交換歪機構に由来したエレクトロマグノンに一般的に成り立つ性質であり、方向2色性に限らず様々な光学効果に適用可能である。

光の偏光制御に用いられる効果としてファラデー効果がある。これは磁場の符号によって偏光回転の角度が反転し、アイソレーター等に用いられている。一方、電圧を印加することで偏光制御が可能となれば、より簡易な偏光制御の原理となりうる。ここでは自然旋光性と呼ばれるカイラルな物質に特徴的な光学応答に着目した。通常物質のカイラリティは結晶構造に由来しているため、その符号を制御することは不可能である。しかし、らせん型のスピン構造のように磁性に由来しているものであれば、外場による制御が可能となる。銅酸化物の一種に着目し、電圧による自然旋光性の制御をテラヘルツ帯のエレクトロマグノンを用いることで実証した。電圧の符号の反転によって、テラヘルツ光の偏光回転の符号が反転することを明らかにした。更にパルス電圧の印加により温度変化や磁場が無くとも、カイラリティとそれに伴う自然旋光性の反転が可能であることを実証した。

光の進行方向を制御するためには、通常ファラデー効果を利用したアイソレーターが用いられる。一方で、非相反方向2色性を利用すると、物質自体が光の進行方向に応じた光学応答を示すために、より簡易な構造をもつ非相反素子となりうる。この応答を上記の銅酸化物のエレクトロマグノン共鳴において観測した。磁場中で750 GHzに中心周波数を持つエレクトロマグノンの共鳴が最大25%の吸収係数の変化を示す方向2色性を実現した。また、電圧パルスを印加することで方向2色性の符号を反転することに成功した。これまで、方向2色性の制御には加熱や磁場反転などが必要であったが、ここでは電圧のみで符号反転しており、光の進行方向の制御が電圧パルスで可能なことを実証した。

一方で、電気磁気光学効果の一つとして旋光性複屈折という光学効果が存在する。これは物質の光学軸の非相反回転を示す現象であり、これまでの報告例は極めて少ない。この効果を複数のマルチフェロイクス中のエレクトロマグノンにおいて実現した。

これらの成果は、エレクトロマグノンの共鳴による多彩な光学効果の存在を実証したものであり、テラヘルツ光の制御において新しい手法を提案するものである。当初の研究目的は方向2色性を中心としたものであったが、予想を超えた多彩な光学効果の存在と、その制御法の開拓に成功した。

3. 今後の展開

本研究では、マルチフェロイクス材料のテラヘルツ帯での光機能の探索・実証を目指して進められた。大きなテラヘルツ応答を持つエレクトロマグノンの室温化の成功と、様々な光学応答の実現とその制御を実証した。今後は、これらを組み合わせることで、多彩な光学現象を室温で実現することを目指す。一方で、磁性に由来したカイラリティや極性を用いた、様々な光学応答をテラヘルツ帯で実現した。これらを、他の波長領域、例えば可視項や近赤外領域へ広げる。磁性を用いる利点として柔軟な外場応答を示すことがあげられ、様々な帯域での光制御の新しい手法となることが期待できる。

4. 評価

(1) 自己評価

(研究者)

テラヘルツ帯の基盤技術としてマルチフェロイクス材料の可能性の開拓を目的として研究計画を立案したが、おおむね当初も目標を達成することができた。特に、テラヘルツ帯の共鳴を制御する手法の確立や、新しい光学効果の探索においては当初の見込みを超える成果を挙げることができた。特に予想外の偏光制御機能を開拓できたことは、一部未達となっている項目の性能を十分に補完できると考えている。これらの研究では研究費により新しいテラヘルツ測定器の構築を進められたことが、研究の促進につながった。テラヘルツの社会実装へ向けには今後も取り組むべき課題が多いが、本研究ではマルチフェロイクス材料が応用への有力な候補であることを実証できたと考えている。今後はより具体的なアプリケーションを想定し、素子ごとの特性や機能性の最適化が望まれる。

(2) 研究総括評価(本研究課題について、研究期間中に実施された、年2回の領域会議での評価フィードバックを踏まえつつ、以下の通り、事後評価を行った)。

(研究総括)

ギガヘルツからテラヘルツ帯域の電磁波(光)において、振動磁場と振動電場の両者に応答するエレクトロマグノンという励起状態を実現できる新機能材料の開発と、その電気磁気光学効果と呼ばれる全く新しい原理に基づく室温動作の電磁波制御デバイス創成を目指した。

その結果、Y-type ヘキサフェライトを開発しエレクトロマグノンの室温化に成功、室温下でTHz帯吸収材料、偏光素子として利用できることを示した。さらに、スピン構造とエレクトロマグノンの特性の関係など基礎的事項を解明、エレクトロマグノンによる THz帯の様々な光学効果を測定、自然旋光の電場パルスによる制御などを実現した。また、アイソレータ特性、方向2色性の電場制御にも成功しているが、室温化は未達であり、研究継続中である。

エレクトロマグノンの THz帯への応用はユニークでインパクトがある研究である。数値目標を達成するのではなく、発見的要素の強い研究であるため、想定していなかった成果が出せた側面もある。研究報告だけを見ると、磁性材料の物性評価に留まっているように見える。このような研究は行き止まりになる場合が多いが、プロジェクト期間中に応用を見つけるために、浜松フォトンクスなどの企業への訪問も行い、社会実装に対する本人の意識が高められたように感じられる。

論文として多くの成果が出ており、文部科学大臣表彰若手科学者賞も受賞しており、本人のキャリアアップにもつながったと言える。最初のプレゼンテーションからも、研究者として大変優秀な方であることが伺え、飛躍と言うよりも着実に成長していると言うべきかもしれない。本研究者がさきがけを通じて若手研究者で分野を超えたネットワークができたことは将来に活きると思う。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. T. Nakajima, Y. Takahashi, S. Kibayashi, M. Matsuda, K. Kakurai, S. Ishiwata, Y. Taguchi, Y. Tokura, and T. Arima, Electromagnon excitation in the field-induced noncollinear ferrimagnetic phase of $Ba_2Mg_2Fe_{12}O_{22}$ studied by polarized inelastic neutron scattering and terahertz time-domain optical spectroscopy, *Physical Review B* 93, 035119(2016).
2. Y. Takahashi, S. Kibayashi, Y. Kaneko, and Y. Tokura, Versatile optical magnetoelectric effects by electromagnons in $MnWO_4$ with canted spin-spiral plane, *Physical Review B* 93, 180404 (Rapid Communications) (2016).
3. T. Kurumaji, Y. Takahashi, J. Fujioka, R. Masuda, H. Shishikura, S. Ishiwata and Y. Tokura, Electromagnon resonance in a collinear spin state of the polar antiferromagnet $Fe_2Mo_3O_8$, *Physical Review B* 95, 020405(R) (2017).
4. R. Masuda, Y. Kaneko, Y. Yamasaki, Y. Tokura, and Y. Takahashi, Role of commensurability of spin order for optical magnetoelectric effect with electromagnons in multiferroic YMn_2O_5 , *Physical Review B* 96, 041117(Rapid Communications) (2017) (selected as Editor's suggestion).
5. T. Kurumaji, Y. Takahashi, J. Fujioka, R. Masuda, H. Shishikura, S. Ishiwata and Y. Tokura, Optical magnetoelectric resonance in a polar magnet $(Fe,Zn)_2Mo_3O_8$ with axion-type coupling, *Physical Review Letters* 119, 077206 (2017).

(2) 特許出願

研究期間累積件数:なし

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

学会発表

[1] Y. Takahashi, Magnetoelectric resonance with electromagnons in helimagnets, The 6th APCTP Workshop on Multiferroics, POSTECH, Korea, 2014/11/25 (invited).

[2] 高橋陽太郎, マルチフェロイックにおけるエレクトロマグノンの電気磁気共鳴, 第62回 応用物理学会学術講演会「スピン-軌道相互作用が生み出す酸化物の新しい機能性」, 2015/3/12 (招待講演).

[3] Y. Takahashi, Terahertz Electromagnon Resonance on Multiferroic Helimagnets, Gordon Research Conference, 2016/8/10 (invited).

[4] Y. Takahashi, Terahertz magnetoelectric optics with electromagnons on helical magnets, Workshop Optomagnonics 2017, 2017/6/26 (invited).

受賞

平成 29 年度文部科学大臣表彰若手科学者賞