

## Cu<sub>2</sub>Sb 型(Mn-Cr)AlGe 超薄膜の sub-THz 磁化歳差ダイナミクス

佐々木 悠太<sup>1</sup>, 平松 諒也<sup>2</sup>, 小田 洋平<sup>3</sup>, 窪田 崇秀<sup>2</sup>, 園部 義明<sup>1</sup>,  
佐久間 昭正<sup>2</sup>, 高梨 弘毅<sup>2,4</sup>, 葛西 伸哉<sup>1</sup>, 高橋 有紀子<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup> 物材機構, <sup>2</sup> 東北大, <sup>3</sup> 福島高専, <sup>4</sup> 原研)

All-optical investigation of sub-THz magnetization dynamics in Cu<sub>2</sub>Sb-type (Mn-Cr)AlGe ultrathin film  
Y. Sasaki<sup>1</sup>, R. Hiramatsu<sup>2</sup>, Y. Kota<sup>3</sup>, T. Kubota<sup>2</sup>, Y. Sonobe<sup>1</sup>,  
A. Sakuma<sup>2</sup>, K. Takanashi<sup>2,4</sup>, S. Kasai<sup>1</sup>, and Y. K. Takahashi<sup>1</sup>  
(<sup>1</sup>NIMS, <sup>2</sup>Tohoku Univ., <sup>3</sup>NIT Fukushima College, <sup>4</sup>JAEA)

### はじめに

0.1~10 THz 程度の周波数帯域における電磁波はテラヘルツ波と呼ばれている。テラヘルツ波は光の直進性と電磁波の透過性を両立することから、非接触の薬品・危険物検査や 6G および Beyond 5G と呼ばれる次世代通信規格への応用が期待されている。また、スピンやマグノンの超高速なダイナミクスがテラヘルツ波帯を含むことからテラヘルツスピントロニクスという分野が近年注目を集めている。特に高い磁気異方性と小さなダンピング定数を両立する MnGa 薄膜においてはテラヘルツ波帯の磁化ダイナミクス・テラヘルツ波放射が報告されている[1,2]。一方で、テラヘルツ波放射や磁化歳差励起の高効率化のためには、金属層の厚みを数 nm 程度まで薄膜化する必要がある。本研究では、Si 基板上に高品位な配向多結晶超薄膜の成長が最近報告された Cu<sub>2</sub>Sb 型(Mn-Cr)AlGe[3]における磁化歳差ダイナミクスについて全光学的手法を用いて調べた。

### 実験方法

熱酸化 Si 基板上にマグネトロンスパッタ法を用いて MnAlGe および (Mn-Cr)AlGe 薄膜試料を作製した。薄膜構成は基板側から、Ta(3)/W(0.3)/CoFeBTa(1)/MgO(1.5)/Mg(1.4)/MnAlGe, (Mn<sub>0.77</sub>Cr<sub>0.23</sub>)AlGe(*d*)/Mg(3)/MgO(1.5)/Ta(3) (膜厚単位 nm) である。磁性層膜厚 *d* は 3.0~30 nm まで変化させた。試料は室温製膜後に 400°C で熱処理した。試料の磁気特性は VSM, 試料の断面構造は TEM を用いて評価した。磁化ダイナミクスの測定には時間分解磁気光学カー効果 (TRMOKE) を用いた。光源には中心波長 1030 nm, 繰り返し周波数 10 kHz, パルス幅 230 fs の Yb:KGW レーザーを用いた。

### 実験結果および考察

図 1(a) に膜厚 *d*=5 nm とした際の MnAlGe および (Mn-Cr)AlGe 薄膜の歳差周波数 *f* の磁場角度依存性を示す。磁化歳差シグナルは実線で示す Kittel の式で説明できることが分かった。図 1(b) には実効的なダンピング定数の膜厚依存性を示す。(Mn-Cr)AlGe 薄膜では、MnAlGe よりも小さなダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}=0.012$  を極薄膜領域で示すことが分かった。発表ではダンピング定数の詳細を議論する。[4]

本研究は JSPS 科研費(21K14218, 20K05296, 20K15017, 18H03787)および特別研究員奨励費(19J20596)の助成を受けて行われた。

### 参考文献

- [1] S. Mizukami, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **106**, 117201 (2011).
- [2] N. Awari, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **109**, 032403 (2016).
- [3] T. Kubota, *et al.*, Appl. Phys. Lett. **118**, 262404 (2021).
- [4] Y. Sasaki, *et al.*, Small **18**, 2200378 (2022).

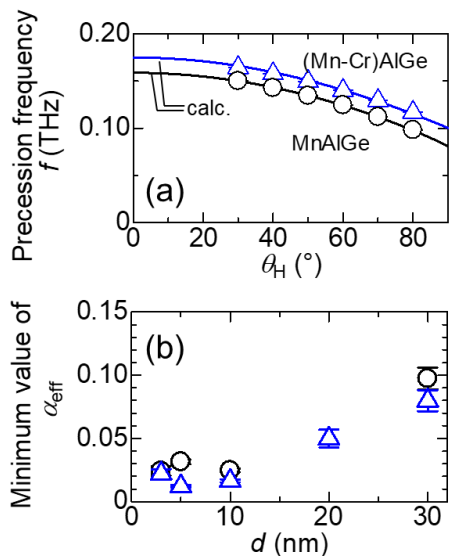


図 1. (a) MnAlGe および (Mn-Cr)AlGe 薄膜における磁化歳差周波数  $f$  の磁場角度  $\theta_H$  依存性. 実線は Kittel の式による解析結果を示す. (b) 実効的なダンピング定数  $\alpha_{\text{eff}}$  の膜厚  $d$  依存性.

# 垂直磁化人工反強磁性体における広帯域円偏波分解磁気共鳴測定

塩田陽一<sup>1,2</sup>、荒川智紀<sup>3</sup>、久富隆佑<sup>1,2</sup>、森山貴広<sup>1,2</sup>、小野輝男<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup>京大化研、<sup>2</sup>京大 CSRN、<sup>3</sup>産総研)

Broadband polarization-selective magnetic resonance spectroscopy using circularly-polarized microwave field in perpendicularly-magnetized synthetic antiferromagnets

Y. Shiota<sup>1,2</sup>, T. Arakawa<sup>3</sup>, R. Hisatomi<sup>1,2</sup>, T. Moriama<sup>1,2</sup>, and T. Ono<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup>ICR, Kyoto Univ., <sup>2</sup>CSRN, Kyoto Univ., <sup>3</sup>AIST)

## はじめに

磁気モーメントが反平行に結合した反強磁性体は、二つの異なる回転極性を有する磁気共鳴モードを有しており、その回転極性を利用することでマグノンに偏光自由度を追加することが可能である<sup>1,2)</sup>。一般に、磁気共鳴測定には振動面が一方向に限られた直線偏波のマイクロ波が用いられるため、これまで磁気共鳴の回転極性の議論はほとんどされてこなかった。また、反強磁性体は強い交換結合によって共鳴周波数が THz 領域にあるため、観測手法が限られてしまう。そこで本研究では、非磁性層を介して二つの強磁性層の磁化が反平行に結合した人工反強磁性体の磁気共鳴に着目し、交差型のマイクロストリップ導波路とハイブリッドカップラを用いることで広帯域円偏波分解磁気共鳴測定を行ったので報告する<sup>3)</sup>。

## 実験方法

試料は垂直磁化容易軸を持つ Co/Ni 多層膜ベースの人工反強磁性体を用いた。広帯域に円偏波マイクロ波を発生させるためにオーバーカップリングさせた交差型マイクロストリップ導波路とハイブリッドカップラを用いた<sup>4)</sup>。Fig. 1(a)に示すように、磁性薄膜に対して垂直に磁場を印加しベクトルネットワークアナライザ (VNA) で  $S_{21}$  と  $S_{12}$  をそれぞれ測定することで、左右円偏波マイクロ波による対する共鳴吸収を測定した。また、 $S_{21}$  スペクトルと  $S_{12}$  スペクトルの差分を取ることで、磁気共鳴の回転極性をピークの符号で可視化できるように信号処理を行った。

## 実験結果

Fig. 1(b)に垂直磁化人工反強磁性体 [Co(0.2)/Ni(0.6)]<sub>8.5</sub>/Ru(0.5)/[Co(0.2)/Ni(0.6)]<sub>8.5</sub> (単位: nm) の試料において測定した結果を示す。この結果から、磁化反平行の磁場領域 (-100 ~ 100 mT) において回転極性の異なる二つの磁気共鳴モードの直接観測に成功した。また図中の実線と破線は理論的な解析から求めた共鳴周波数の磁場依存性であり、共鳴周波数および回転極性も実験結果と一致する結果が得られた。

講演では数値シミュレーションによって行ったマイクロ波の極性に依存した磁化ダイナミクスの詳細についても議論する。

## 参考文献

- 1) R. Cheng *et al.*, *Sci. Rep.* **6**, 24223 (2016).
- 2) J. Lan *et al.*, *Nat. Commun.* **8**, 178 (2017).
- 3) Y. Shiota *et al.*, *Phys. Rev. Appl.* **18**, 014032 (2022).
- 4) T. Arakawa *et al.*, *Rev. Sci. Instrum.* **93**, 013901 (2022)

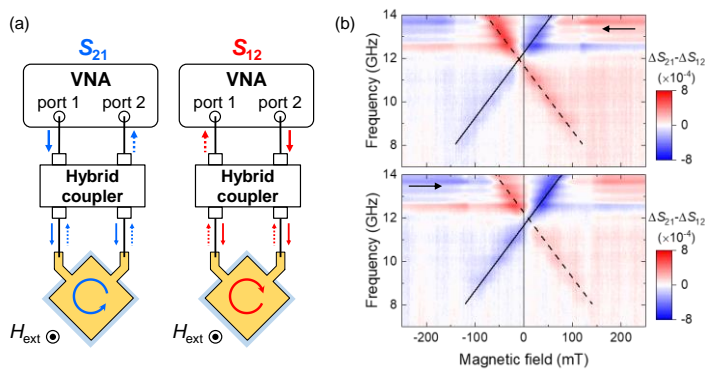


Fig. 1 (a) Schematic illustration of measurement setup for broadband polarization-selective magnetic resonance spectroscopy using circularly-polarized microwave field. (b) Color plots of  $\Delta S_{21} - \Delta S_{12}$  on perpendicularly magnetized synthetic antiferromagnets.

## Electrical detection of antiferromagnetic dynamics in thin films by using gyrotron

Shinsaku Funada<sup>1</sup>, Yuya Ishikawa<sup>2</sup>, Motoi Kimata<sup>3</sup>, Yuusuke Yamaguchi<sup>2</sup>, Kanata Hayashi<sup>2</sup>,  
Tomonori Sano<sup>2</sup>, Koki Sugi<sup>1</sup>, Yutaka Fuji<sup>2</sup>, Seitaro Mitsudo<sup>2</sup>, Yoichi Shiota<sup>1,4</sup>, Teruo Ono<sup>1,4</sup>,  
○Takahiro Moriyama<sup>5,6</sup>

<sup>1</sup>Institute for Chemical Research, Kyoto University, Uji 611-0011, Japan

<sup>2</sup>Center for Development of Far-Infrared Region, University of Fukui, Fukui 910-8507, Japan

<sup>3</sup>Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577, Japan

<sup>4</sup>Center for Spintronics Research Network, Kyoto University, Uji 611-0011, Japan

<sup>5</sup>PRESTO, Japan Science and Technology Agency, Kawaguchi 322-0012, Japan

<sup>6</sup>Department of Materials Physics, Nagoya University, Nagoya 464-8603, Japan

THz magnetization dynamics is a key property of antiferromagnets that could harness the THz forefront and spintronics. Recently, advancements in THz techniques have realized some of the key experiments on antiferromagnetic resonance. However, the measurement principles used in those studies rely on the volume of the materials and thus the same principle can hardly be applied for characterizing thin films which is a central interest when considering any antiferromagnetic integration devices.

One of the solutions could be the DC voltage detection of the magnetic resonance resulting from a nonlinear coupling of the induction current and the magnetoresistance change associating with the magnetization dynamics, both of which are irrespective to the volume of the material. The only concern for this method is that it generally requires a sizable irradiation power of > mWatt, which is to be resolved by the gyrotron irradiation that is introduced in this study.

Test samples, ferrimagnetic Gd<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub> (20 nm)/ Ta (3 nm), were shaped into a 1.5 mm x 5 mm piece with electric leads connected on the longitudinal ends for measuring DC voltage. The sample is then placed at the end of a hollow waveguide carrying 154 GHz continuous electromagnetic wave fed from the gyrotron apparatus. DC voltage measurements were carried out with sweeping external magnetic field. Figure 1 shows DC voltage measurements for Gd<sub>0.17</sub>Co<sub>0.83</sub>/Ta film at various temperature. We observed a clear DC voltage peak (marked by the star) at a certain magnetic field and the peak shifts with varying the temperature, which are consistent with the resonant properties of GdCo.

As the gyrotron frequency is scalable up to THz, our demonstration can be an important milestone toward the THz measurements for antiferromagnetic thin films.

[1] S. Funada *et al.*, *Phys. Rev. Applied* **19**, L031003 (2023)

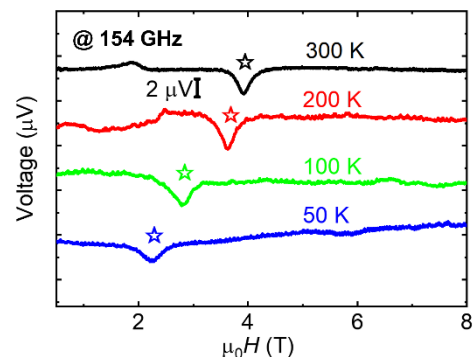


Fig. 1 DC voltage spectra at different temperatures [1].

## 人工反強磁性体における混成マグノン分散関係の観察

林大寿<sup>1</sup>、塩田陽一<sup>1,2</sup>、石橋未央<sup>1</sup>、久富隆佑<sup>1,2</sup>、森山貴広<sup>1,2</sup>、小野輝男<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup>京大化研、<sup>2</sup>京大 CSRN)

Observation of dispersion relation for hybridized magnons in synthetic antiferromagnets

D. Hayashi<sup>1</sup>, Y. Shiota<sup>1,2</sup>, M. Ishibashi<sup>1</sup>, R. Hisatomi<sup>1,2</sup>, T. Moriyama<sup>1,2</sup>, and T. Ono<sup>1,2</sup>  
(<sup>1</sup>ICR, Kyoto Univ., <sup>2</sup>CSRN, Kyoto Univ.)

### はじめに

2つのマグノンモードのコヒーレント結合により新しいマグノン状態を作り出すことは、将来のマグノンデバイス開発に大きく貢献すると期待されている[1]。人工反強磁性体(SAF)上に励起されるマグノンには、二つの磁化の同位相歳差運動、逆位相歳差運動に対応する音響マグノンと光学マグノンの2種類が存在することが知られている。最近の研究で、動的な双極子相互作用によりマグノンマグノンカップリングと呼ばれるそれらの2つのマグノンモードの混成が実現できることが明らかになった[2]。この結果は、コプレーナ導波路を用いたマイクロ波反射測定による電氣的スピン波分光法によって得られた。しかしこの測定法では励起されたマグノンの伝搬特性については評価できなかった。本研究ではヘテロダイン磁気光学カー効果(MOKE)[3]を用いて SAF 中の混成マグノンの実空間での伝搬を測定し、マグノンの性質を理解する上で重要なマグノン分散関係を得た。

### 実験方法

SAF の構成は Ta(3)/Ru(3)/Fe<sub>60</sub>Co<sub>20</sub>B<sub>20</sub>(15)/Ru(0.6)/Fe<sub>60</sub>Co<sub>20</sub>B<sub>20</sub>(15)/Ru(3) (nm) であり、熱酸化 Si 基板上に DC マグネトロンスパッタリング法を用いて作製した。さらにそれを文献[2]にあるようにスピン波デバイスに微細加工した。ベクトルネットワークアナライザ (VNA) のポート 1 からアンテナにマイクロ波電流を流してマグノンを励起し、極カー配置で磁化の歳差運動を集光レーザービームで光ヘテロダイン信号に変換して VNA のポート 2 に送った。光学マグノンは磁化振動の面直成分を持たない為、このセットアップでは音響マグノンのみが検出される。集光レーザービームの照射位置を移動させながら測定することにより、実空間を伝搬する音響マグノンについて測定した。

### 結果と考察

Fig. 1 はマグノンマグノンカップリングが顕著に観察される 38.1 mT の面内磁場をマグノンの伝搬方向から 45° の方向に印加し、得られた伝搬マグノンの強度と位相の実空間信号を複素高速フーリエ変換して得られたマグノン分散関係である。この磁場角度では音響マグノンと光学マグノンが同時に励起され、さらに動的な双極子相互作用によって2つのマグノンの対称性が破れてそれぞれのマグノン同士の結合強度が最大となる。負の波数領域で顕著なモード分裂が観測されたが、これは音響マグノンが光学マグノンとカップリングしたことによるものと考えられる。

本発表では、磁場強度や角度に対する依存性など、さらなる検討について議論する。

### 参考文献

- 1) G. Kurizaki et al., Proceedings of the National Academy of Sciences **112**, 3866-3873(2015).
- 2) Y. Shiota et al., Phys. Rev. Lett. **125**, 017203(2020).
- 3) Y. Shiota et al., Appl. Phys. Lett. **116**, 192411(2020)

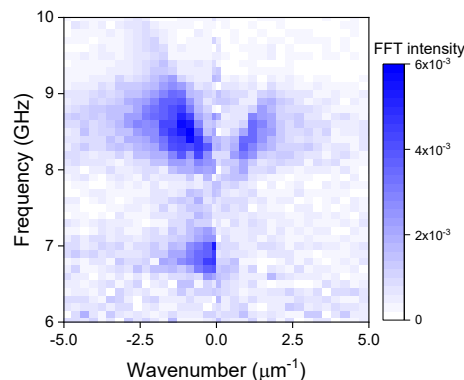


Fig. 1 Dispersion relation of acoustic magnons on SAF.

# 負のスピンの分極を有する Fe<sub>4</sub>N/Pt のテラヘルツ波放射特性

○磯上慎二, 佐々木悠太, 高橋有紀子  
(物質・材料研究機構)

Laser-induced terahertz emission in Fe<sub>4</sub>N/Pt bilayers with negative spin polarization

○S. Isogami, Y. Sasaki, and Y. K. Takahashi  
(NIMS)

**1. はじめに** 超短パルスレーザーで誘起されるスピン流は, 超高速磁化反転に貢献するなど実用的な観点から注目を集めている<sup>1)</sup>. また, 逆スピンホール効果によってスピン流が電場に変換された結果, テラヘルツ波として放射される現象が重金属/強磁性ヘテロ接合膜で得られている. 近年, 例えば CoFeB に接合する種々の重元素についてテラヘルツ波強度の対比実験が行われ, スピンホール伝導率の大小関係と定性的に一致すると報告されている<sup>2)</sup>. さらにホイスラー合金層を含む Co<sub>2</sub>MnSi/Pt ヘテロ接合では, CoFe/Pt に対する放射強度として最大 2 倍程度の増大が観測され, L<sub>21</sub> よりも B<sub>2</sub> 規則相からの寄与が支配的と議論されている<sup>3)</sup>. 以上に対し本研究では, 磁性層側の電子状態からの寄与を実験的に理解するため, フェルミ準位におけるスピン偏極率符号とテラヘルツ波極性ととの相関解明を目的とした. 金属強磁性窒化鉄 (Fe<sub>4</sub>N) は, フェルミ準位において負のスピン偏極率をもつことが, 理論計算<sup>4)</sup>, バンド構造の直接観察<sup>5)</sup>両面から示されている上に, 負のスピン偏極とスピンプンピングで検出された逆スピンホール起電力との相関が解明されている<sup>6)</sup>. また近年, 軽元素を含む遷移金属合金 (窒化物/炭化物/ホウ化物) 薄膜が次世代スピントロニクス材料として進展しつつあることも踏まえ<sup>8)</sup>, 本研究では Fe<sub>4</sub>N/Pt ヘテロ接合におけるテラヘルツ放射の検証実験を行った.

**2. 実験方法** 試料の膜構成は, MgO(100)単結晶基板/ Fe<sub>4</sub>N ( $d_{\text{Fe4N}}$ ) / Pt ( $d_{\text{Pt}}$ ) (膜厚単位: nm) とした. Fe<sub>4</sub>N 膜の成長には窒素反応性 DC マグネトロンスパッタリング法を用いた. 結晶構造解析, 磁化過程評価にはそれぞれ, X 線回折装置と振動試料型磁力計を用いた. Fe<sub>4</sub>N 薄膜は逆ペロブスカイト構造に規則化し, Pt 薄膜もその上にエピタキシャル成長することを確認した. 異方性磁気抵抗効果の測定において, 負のスピン偏極を示唆する負の抵抗変化率を確認した. 波長 1028 nm, 周波数 10 kHz, パルス幅 230 fs の Yb ドープ KGW レーザーを光源とし, 電気光学サンプリングによってテラヘルツ波放射を測定した. Fe<sub>4</sub>N 層の磁化を面内に飽和させるため約 0.5 kOe の磁場を印加した. ポンプ光を 570 Hz で強度変調させ, CdTe(110)結晶を透過したプローブ光の偏光変調をロックインアンプで検出した. 以上の実験は室温, 窒素置換雰囲気下で行った.

**3. 実験結果** Figure 1(a)は膜厚を  $d_{\text{Pt}} = 2$  nm に固定し,  $d_{\text{Fe4N}} = 10$  nm (赤) と 5 nm (青) でテラヘルツ波を対比した結果を示す. まず極性 (波形の極大値が示す符号と定義) に関して, Co<sub>2</sub>MnSi ホイスラー合金, CoFe 合金の場合と定性的に一致したことから, テラヘルツ波の極性は強磁性層のフェルミ準位におけるスピン偏極率の符号には依存しないことが判った. 次に  $d_{\text{Fe4N}} = 10$  nm より 5 nm の方で振幅の増大が見取れるが, この傾向は先行研究の結果と類似することが判った. 現時点で観測された最大 0.25 程度の振幅強度は, Co<sub>2</sub>MnSi, CoFe それぞれ 5 nm における値と同等であることが判った. しかしながら,  $d_{\text{Fe4N}} < 5$  nm 領域で更なる増大の可能性があるため, 膜厚依存性を系統的に調べる必要がある. 講演会ではテラヘルツ放射効率の見積り, 電子状態に照らした放射特性の解釈, 種々の材料系における Fe<sub>4</sub>N ヘテロ接合の位置づけを議論する予定である.

## 参考文献

1) Xu *et al.*, Adv. Mater. 29, 1703474 (2017). 2) Seifert *et al.*, Nature Photonics 10, 483 (2016). 3) Sasaki *et al.*, APEX. 13, 093003 (2020). 4) Kokado *et al.*, JPSJ. 81, 024705 (2012). 5) Nakanishi *et al.*, AP02, Intermag2023. 6) Isogami *et al.*, APEX. 6, 063004 (2013). 7) Isogami *et al.*, JJAP. 55, 043001 (2016). 8) Isogami *et al.*, Adv. Electron. Mater. 9, 2200515 (2023).

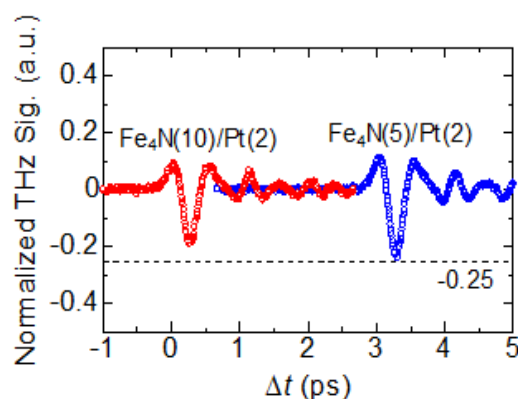


Fig.1 Normalized amplitude of THz wave forms for the samples, MgOsub/Fe<sub>4</sub>N (10 and 5)/Pt(2) (in nm). The wave for 5 nm is shown with horizontal shift.