



時間変調磁性メタマテリアルに向けた スピン流誘起透磁率変調の評価

Evaluation of spin-current-induced permeability variation toward time-varying magnetic metamaterials

児玉俊之 ^{a)†}・菊池伸明 ^{b)}・岡本聡 ^{b)c)}・大野誠吾 ^{d)}・富田知志 ^{a)d)}

^{a)} 東北大学高度教養教育・学生支援機構, 宮城県仙台市青葉区川内 41 (〒980-8576)

^{b)} 東北大学多元物質科学研究所, 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

^{c)} 東北大学高等研究機構先端スピントロニクス研究開発センター, 仙台市青葉区片平 2-1-1 (〒980-8577)

^{d)} 東北大学大学院理学研究科, 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3 (〒980-8578)

T. Kodama ^{a)†}, N. Kikuchi ^{b)}, S. Okamoto ^{b)c)}, S. Ohno ^{d)}, and S. Tomita ^{a)d)}

^{a)} Institute for Excellence in Higher Education, Tohoku Univ., 41 Kawauchi, Aoba-ku, Sendai, 980-8576, Japan

^{b)} Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan

^{c)} Center for Science and Innovation in Spintronics, Tohoku Univ., 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai, 980-8577, Japan

^{d)} Graduate School of Science, Tohoku Univ., 6-3 Aramaki Aza-Aoba, Aoba-ku, Sendai, 980-8578, Japan

The permeability (μ) variation of lithographically-prepared magnetic metamaterials consisting of Ta/Py/Pt trilayers is studied by means of spin-torque ferromagnetic resonance (ST-FMR) with a direct current up to ± 20 mA. The substrate dependence of ST-FMR signals demonstrate that the non-doped Si substrate is the most stable and capable of carrying large direct currents. The μ analytically calculated on the basis of the experimentally obtained resonance field and Gilbert damping parameter are plotted on a complex plane, which shows the permeability variation visually and quantitatively. The present study enables us to design a microwave converter using time-varying magnetic metamaterials for millimeter wave or terahertz light sources toward the post-5th generation mobile communication system.

Keywords: spin-Hall effect, spin-orbit torque, spin torque ferromagnetic resonance, permeability modulation, time-varying metamaterial

1. はじめに

メタマテリアルは波長よりも十分小さな人工構造(メタ原子)から構成される人工物質である。その人工構造を上手く設計し、作製することで、媒質の誘電率(ϵ)や透磁率(μ)を自在に制御できることから、20年ほど前から注目を集めてきた。典型的なメタマテリアルとしては、負の屈折率媒質¹⁾や透明マント²⁾があり、マイクロ波領域で実験的に実証されている。これらのメタマテリアルは屈折率を空間的に変化させている点から、空間変調メタマテリアルと呼ぶことができる。これに対して最近、時間領域で屈折率を変化させる時間変調メタマテリアルが生みだされた³⁾。空間領域での屈折率の界面(空間壁)では電磁波の波数が変化する。一方で、時間領域での屈折率の界面(時間壁)では、周波数が変化する。したがって時間変調メタマテリアルを用いることで、入力電磁波の周波数変換が実現される。特に屈折率が周期的に変調されている場合の周波数変換は、通信分野でのFM/AM変調や光通信分野で電気光学変調器に見られるサイドバンドの発生として知られている。また天然の物質の格子振動エネルギーに起因するラマン散乱とも似た描像である。これらの既存の周波数変換では、周波数の変換間隔や強度は物質固有の値で決定される。しかし時間変調メタマテリアルを用いることで、それらの値を比較的自由に設定することが可能となり、周波数変換の自由度が格段に上昇する。

時間領域での屈折率変調にはこれまで様々な手法が使われてきた。例えば、電気光学効果、可変容量キャパシタンス、イプシロンニアゼロ材料での光誘起キャリア⁴⁾⁵⁾、プラズマミラー⁶⁾、フォトリソニック結晶キャビティ⁷⁾、導波路の構造分散スイッチング⁸⁾、微小電気機械システムによる機械的な構造変形⁹⁾などが挙げられる。これらの手法は全て ϵ 変調に基づいている。ところで、時間 (t) に依存する屈折率は $n(t) = \sqrt{\epsilon(t)\mu(t)}$ で与えられるので、 μ を操作した時間変調メタマテリアルも当然考えられる。しかしながら μ の時間変調による周波数変換の実験報告はこれまでされていない。 μ の大きな強磁性体はGHz帯の電磁波によく応答することから、 μ の時間変調はGHz帯のマイクロ波の周波数変換へ利用することができる。また μ の時間変調を用いマイクロ波の周波数変換を繰り返すことで、ポスト第5世代移動通信システムに用いられるミリ波やテラヘルツ光を創り出すことができると期待されている。さらに、これまでの ϵ 時間変調に加えて、同時に μ の時間変調を行うことで、静止した媒質でのフレネルドラッグ効果の実現も予言されている¹⁰⁾。

電気回路で考えると、 ϵ の制御はキャパシタンスの制御に相当し、 μ の制御はインダクタンス、つまりコイルの断面積や長さの制御に相当する。したがって μ の制御は一見難しそうに感じる。しかしながら磁性体を用いることで μ の変調は可能となる。一般に強磁性体はGHz帯で強磁性共鳴を示し、その付近で μ は周波数分散を示し大きく変化することが知られている。したがって強磁性共鳴条件を制御することができれば、 μ を大きく変調させることが可能である。単純な方法として、外部から印加する磁場を時間的

Corresponding author: T. Kodama (e-mail: tkodama@tohoku.ac.jp).

に変化させることが考えられる。しかしながら電磁石で印加される磁場をGHzの周波数で切り替えることは容易ではない。そこで我々は、スピン注入による有効磁場を用いた μ 制御に取り組んできた。これまで、強磁性金属であるパーマロイ($\text{Fe}_{50}\text{Ni}_{50}$: Py)と重金属であるタンタル(Ta)と白金(Pt)の多層膜において、直流のバイアス電流の下でのスピントルク強磁性共鳴(ST-FMR)測定を行い、スピン注入による共鳴条件の制御について実験的に明らかにしてきた。さらに実験的に得られた共鳴磁場やダンピング定数の変化からスピン注入によって μ が変化すること解析計算で示した¹¹⁾。しかしながら、時間変調メタマテリアルデバイスを設計する上で必要な μ の実部と虚部の変化量に関して具体的な議論はされていない。そこで本論文では、スピン注入によって μ の実部と虚部がどのように変化するのか複素平面上で可視化し、所望の μ 変調を実現するための電流値を明らかにする。さらに大きな μ 変調に必要な大電流印加が可能な構造を探索するため熱伝導率の異なる基板で実験を行い、 μ 時間変調デバイスの設計の指針を得る。

2. スピントルク強磁性共鳴測定

試料作製と ST-FMR 測定について簡潔に紹介する。詳細については参考文献 11 を参考されたい。Fig. 1(a)に試料全体像を示す。重金属である Ta と Pt, さらに強磁性金属である Py を、ノンドーパシリコン(Si)基板, 酸化マグネシウム(MgO)基板および石英(SiO_2)基板の3種類の基板の上に室温でスパッタリング成膜した。まず Ta をバッファ層として 3 nm 堆積し, その上に厚さ 2 nm の Py と 5 nm の Pt を堆積した。Ta 層は基板との密着性と Py 膜の平坦性の向上に寄与している。成膜中のアルゴン(Ar)ガス圧は 6×10^{-1} Pa とした。その後, 電子線リソグラフィ(EBL)と Ar イオンエッチングにより, 3 層膜を幅 5 μm , 長さ 60 μm の短冊に加工した。短冊の両端に 5 nm 厚のクロム層と 200 nm 厚の金属で構成される電極を EBL とリフトオフ工程により作製した。電極間の長さは 24 μm であった[Fig. 1(b)]. この3層構造をここではメタマテリアルの最小構成要素であるメタ原子と呼ぶ。Fig. 1(c)に同じ条件で作製した Ta/Py/Pt 薄膜の振動試料型磁力計で測定した磁化曲線を示す。黒線が膜面に面直, 赤破線が膜面に並行に磁場を印加した結果である。面内磁化を有しており, 飽和磁束密度は約 800 mT であり, 面直方向の飽和磁場は約 560 mT である。ただしこの値には試料の体積や取付け角度の誤差を含むことに注意する。

周波数 f_{ac} が 2 GHz から 9 GHz の交流電流 I_{ac} を信号発生器で生成し, 電極から試料に印加した。信号発生器でのパワーは -1 dBm とした。外部磁場 H_{ext} は電磁石を用いて Fig. 1 の y 軸方向に対して 45°で印加した。 I_{ac} はアンペールの法則に則って交流磁場 H_{ac} を生成し, Py の磁化の強磁性共鳴励起を部分的に担う。さらに I_{ac} が Ta や Pt を流れる時, スピンホール効果によって電流と垂直方向にスピン流が生成される。

スピンホール効果により生成されるスピン流の方向は, $\mathbf{J}_{spin} \parallel \theta_{SH}(\hat{\sigma} \times \mathbf{J}_{charge})$ で表される。ここで \mathbf{J}_{spin} はスピン流密度, θ_{SH} はスピンホール角, $\hat{\sigma}$ はパウリのスピ行列, \mathbf{J}_{charge} は電流密度である。 \mathbf{J}_{spin} の方向は \mathbf{J}_{charge} の方向と θ_{SH} の符号に依存していることがわかる。ここで Pt と Ta の θ_{SH} の符号は反対なので, 電流を

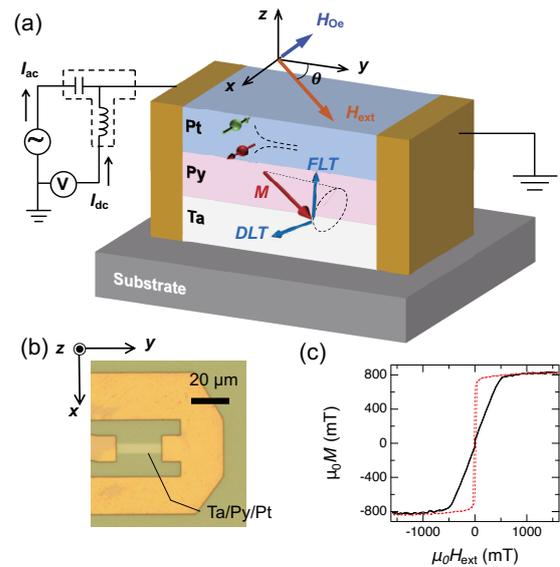


Fig. 1 (a) Schematic illustration of magnetic meta-atom of Ta/Py/Pt trilayer with spin-torque ferromagnetic resonance measurement setup (b) Photograph of lithographically-prepared magnetic meta-atom, which is re-drawn from Ref. 11. (c) Magnetization curves with parallel (red dotted line) and perpendicular (black solid line) magnetic fields to the film plane.

流したときに上層の Pt と下層の Ta から Py に注入されるスピンの向きは同じになる。ただし, Pt と Ta では Ta の電気抵抗が一般に大きく, さらに基板に接している Ta は基板の汚染によって酸化し, 抵抗が上昇していると考えられるので, 実際には電気抵抗の小さな Pt に大部分の電流が流れると予想される。したがって Pt からのスピン注入が支配的であると考える。Py に注入されたスピン角運動量は Py の磁化に受け渡され, 磁化に Field-like torque(FLT)と Damping-like torque(DLT)を与える。交流のエルステッド磁場 H_{ac} に加えて FLT は磁化の歳差運動を誘起する。一方 DLT は磁化の歳差運動の緩和を抑制, あるいは増長させる。以上のように, I_{ac} は交流磁場 H_{ac} と FLT, DLT の2種類のトルクを生み出し, それらが Py の ST-FMR を誘起することになる¹²⁾。

ST-FMR が誘起されると, I_{ac} の周波数 f_{ac} で磁化の歳差運動が生じ, 異方性磁気抵抗効果による電気抵抗の振動が生じる。 I_{ac} と振動する電気抵抗のホモダイナ検出によって直流電圧 V_{FMR} が発生する。本研究では外部磁場 $\mu_0 H_{ext}$ を掃引し, バイアスティー素子を用いて V_{FMR} を測定した。さらに, I_{ac} に加えて直流電流 I_{dc} を印加し直流スピン流を Py に注入した。直流スピン流の注入により磁化に働く FLT と DLT を内部磁場として考え, それを \mathbf{H}_{spin} と表すと¹³⁻¹⁵⁾, 磁化に働く有効磁場は $\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H}_{ext} + \mathbf{H}_{demag} + \mathbf{H}_{Oe} + \mathbf{H}_{spin}$ となる。 \mathbf{H}_{demag} は反磁場, \mathbf{H}_{Oe} は I_{dc} によるエルステッド磁場である。したがって, I_{dc} によって $\mathbf{H}_{Oe} + \mathbf{H}_{spin}$ を変化させることができれば共鳴磁場 $\mu_0 H_{FMR}$ を制御することができる。また I_{dc} による DLT を用いて実効的な α を増大もしくは減少させ, 共鳴線幅を変化させることができる。本研究では f_{ac} が 2 GHz から 9 GHz の交流電流 I_{ac} に対し $\mu_0 H_{ext}$ を -200 mT から +200 mT ま

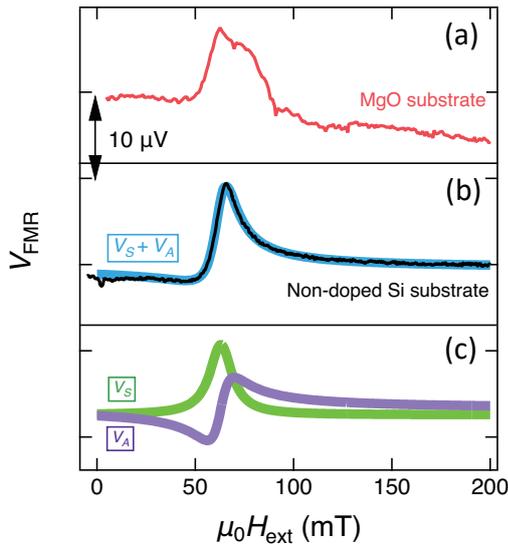


Fig. 2 Measured V_{FMR} as function of external magnetic field, $\mu_0 H_{\text{ext}}$, at 6 GHz with direct electric current of 14 mA. (a) Red and (b) black solid lines correspond to signals obtained from measurements using samples with MgO and non-doped Si substrate, respectively. (b) Thick blue and (c) green and purple lines show fitting results using Eq. (1).

で掃引して V_{FMR} 信号を観測した。更に -20 から $+20$ mA までの I_{dc} の印加による V_{FMR} 信号の変化を調べた。

3. 実験結果

3.1 スピントルク強磁性共鳴信号の基板依存性

まず大電流印加が可能な試料条件を調べるため、熱伝導率の異なる 3 種類の基板でのメタ原子に対して測定を行った。熱伝導率が 1.4 W/mK^{16} 、電気抵抗が $10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ 程度¹⁷⁾である SiO_2 基板を用いた試料では、 $I_{\text{dc}} = 1 \text{ mA}$ 以上で試料が変色し、信号が得られなくなった。これは SiO_2 基板の熱伝導率が低く、ジュール熱による昇温で試料が損傷を受けたためだと考えられる。そこで次に、 SiO_2 より熱伝導率が高い MgO 基板(熱伝導率: 59 W/mK^{18})、電気抵抗: $10^{11} \Omega \cdot \text{cm}$ 程度¹⁹⁾)とノンドープ Si 基板(熱伝導率: 150 W/mK , 電気抵抗: $10^4 \Omega \cdot \text{cm}$ 程度²⁰⁾)の試料で測定を行った。Fig. 2(a)と(b)に $f_{\text{ac}} = 6 \text{ GHz}$, $I_{\text{dc}} = 14 \text{ mA}$ における ST-FMR 信号を示す。Fig. 2(a)の赤線が MgO 基板を用いた試料、(b)の黒線がノンドープ Si 基板を用いた試料の測定結果を表す。MgO 基板を用いた試料では SN 比が小さく、信号のドリフトも見られる。一方ノンドープ Si 基板を用いた試料では、SN 比が大きく信号のドリフトも見られず、安定した測定が行えていることがわかる。これらの基板による ST-FMR 信号の傾向は、このメタ原子に限らず他の試料においても同様に確認された。ノンドープ Si 基板は MgO よりは絶縁性は低いものの、熱伝導率が高いことが良い結果をもたらしていると考えられる。またノンドープ Si 基板表面に形成される自然酸化膜は、膜厚が 1 nm 程度と薄いので熱伝導率へ与える影響は小さいと考えられる。以降のデータはすべてノンドープ Si 基板の試料で得たものである。

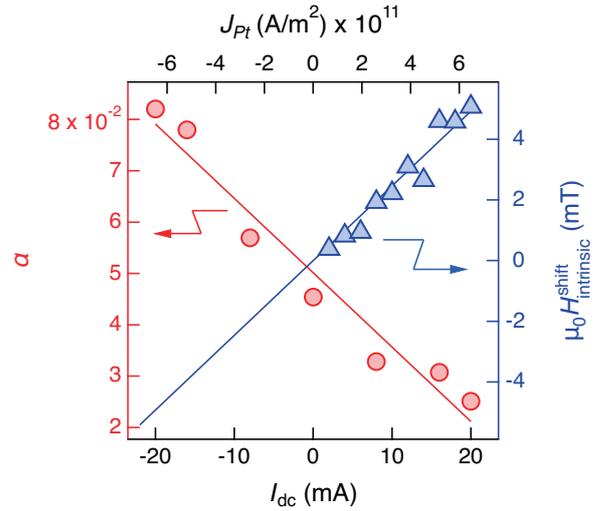


Fig. 3 Damping α (circles, left axis) and $\mu_0 H_{\text{intrinsic}}^{\text{shift}}$ (triangles, right axis) are plotted as function of I_{dc} . This graph was created by compiling data from Ref. 11.

3.2 スピン注入による共鳴磁場とダンピング定数の変化

ST-FMR 信号は次に示すようなローレンツ関数 V_S と V_A の和で表される。

$$V_{\text{FMR}} = V_S + V_A, \quad (1a)$$

ここで、

$$V_S = S \frac{(\mu_0 \Delta_{\text{FMR}})^2}{(\mu_0 H_{\text{ext}} - \mu_0 H_{\text{FMR}})^2 + (\mu_0 \Delta_{\text{FMR}})^2}, \quad (1b)$$

$$V_A = A \frac{\mu_0 \Delta_{\text{FMR}} (\mu_0 H_{\text{ext}} - \mu_0 H_{\text{FMR}})}{(\mu_0 H_{\text{ext}} - \mu_0 H_{\text{FMR}})^2 + (\mu_0 \Delta_{\text{FMR}})^2}, \quad (1c)$$

である¹²⁾。 $\mu_0 \Delta_{\text{FMR}}$ は信号線の半値半幅、 S は DLT に比例する対称なローレンツ係数、 A は FLT や H_{Oe} に比例する反対称なローレンツ係数である。式(1b)と(1c)を用いて Fig. 2(b)の黒線をフィッティングすると、 V_S , V_A はそれぞれ Fig. 2(c)の緑線と紫線のようになる。これを合わせた $V_S + V_A$ は Fig. 2(b)の青線であり、実験結果の黒線をよく再現している。このときフィッティングパラメタとして、共鳴磁場 $\mu_0 H_{\text{FMR}} = 63.0 \text{ mT}$ と線幅 $\mu_0 \Delta_{\text{FMR}} = 6.8 \text{ mT}$ が得られる。

強磁性金属薄膜の共鳴磁場と共鳴角周波数 ω_{FMR} は Kittel の式から

$$\omega_{\text{FMR}} = 2\pi f_{\text{ac}} = \gamma \sqrt{\mu_0 H_{\text{FMR}} (\mu_0 H_{\text{FMR}} + \mu_0 M_{\text{eff}})}, \quad (2)$$

で与えられる。ここで γ はジャイロ磁気定数、 $\mu_0 M_{\text{eff}}$ は反磁場に相当する。 $I_{\text{dc}} = 0 \text{ mA}$ の場合において、実験で得られた共鳴周波数 f_{ac} と $\mu_0 H_{\text{FMR}}$ を式(2)で解析することで、 $\mu_0 M_{\text{eff}} = 658 \text{ mT}$ と求まる¹¹⁾。Fig. 1(c)の磁化測定で得られた面直方向の飽和磁場 560 mT と同等の値が得られており、Kittel モードの強磁性共鳴が観測できていると考えられる。

I_{dc} を -20 mA から $+20 \text{ mA}$ まで、 I_{ac} の周波数 f_{ac} を 2 GHz から 9 GHz まで変化させた時の各 ST-FMR 信号に対して、 $\mu_0 H_{\text{FMR}}$ と $\mu_0 \Delta_{\text{FMR}}$ を求めた。また $\mu_0 \Delta_{\text{FMR}}$ の f_{ac} 依存性からダンピング定数 α

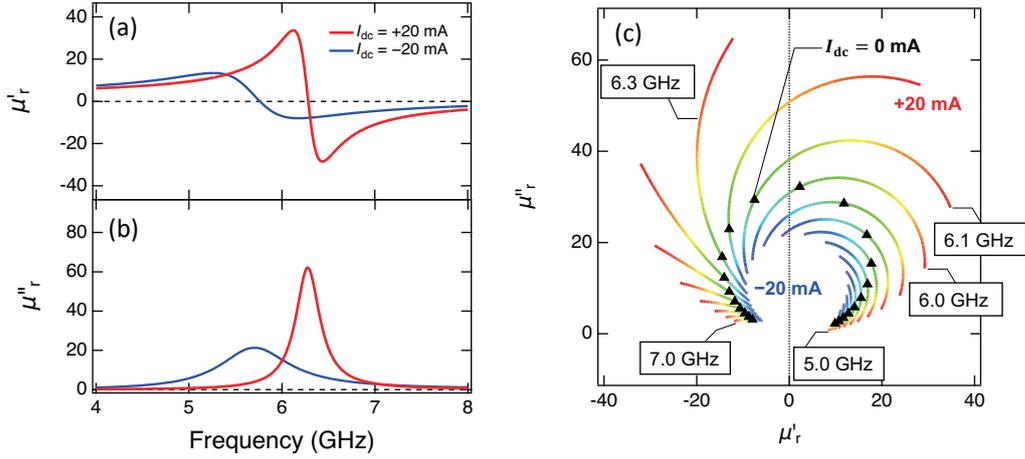


Fig. 4 (a)(b) Calculated dispersion curves of μ'_r and μ''_r with $I_{dc} = \pm 20$ mA are plotted as function of frequency. Data are re-drawn from Ref. 11. (c) Variation of μ'_r and μ''_r for I_{dc} from -20 mA to $+20$ mA. Each arc corresponds to frequency at which μ_r is evaluated.

を算出した。Fig. 3 に赤丸印で示すように、 $I_{dc} = -20$ mA のとき α は 8.2×10^{-2} である。 I_{dc} が -20 mA から $+20$ mA に変化すると共に α は単調に減少し、 I_{dc} が $+20$ mA で最小の 2.5×10^{-2} となる。線形でフィッティングすると、

$$\alpha = -1.4 \times 10^{-3} \times I_{dc} + 5.0 \times 10^{-2}, \quad (3)$$

の関係が得られた。

α の電流密度依存性を用いるとスピン軌道トルクの生成効率として DLT 効率 ξ_{DL} は、

$$|\xi_{DL}| = \frac{2|e|}{\hbar} \frac{(H_{FMR} + \frac{M_{eff}}{2}) \mu_0 M_S t_F}{\sin \frac{\pi}{4}} \left| \frac{\Delta \alpha_{eff}}{\Delta J_{Pt}} \right|, \quad (4)$$

と表される¹⁵⁾。ここで e は素電荷、 \hbar はプランク定数、 H_{FMR} は共鳴磁場、 M_{eff} は有効磁化、 μ_0 は真空の透磁率、 t_F は Py の膜厚、 $\Delta \alpha_{eff}$ は実効的な減衰定数の変化量、 ΔJ_{Pt} は Pt を流れる電流密度を表す。実験から $\mu_0 M_{eff} = 658$ mT、 $\mu_0 M_S = 805$ mT、 $\mu_0 H_{FMR} = 63$ mT、 $t_F = 2$ nm、 $I_{dc} = \pm 20$ mA の範囲で $\Delta \alpha_{eff} = 0.06$ 、 $\Delta J_{Pt} = 1.3 \times 10^{12}$ A/m² なので、 $\xi_{DL} = 0.10$ となる。これは Py/Pt 二層膜での Pt のスピンホール角と同程度であり、ここからも Ta からのスピン注入の寄与は小さいことが分かる。

I_{dc} を -20 mA から $+20$ mA に変化させると、 $\mu_0 H_{FMR}$ は非線形に増大した¹¹⁾。この非線形応答は一般にジュール熱の寄与として考えられている^{13), 21)}。我々の目指す GHz 帯での変調に対してジュール熱の寄与は応答しないと考えられるので、ジュール熱の寄与である偶関数成分を除去するため $\mu_0 H_{intrinsic}^{shift}(I_{dc}) = 1/2[\mu_0 H_{FMR}^{shift}(I_{dc}) - \mu_0 H_{FMR}^{shift}(-I_{dc})]$ を求めた。Fig. 3 の青三角印に示すように、 I_{dc} の増加に伴い、 $\mu_0 H_{intrinsic}^{shift}$ は単調に増大していることがわかる。これを線形でフィッティングすると

$$\mu_0 H_{intrinsic}^{shift} = 2.5 \times 10^{-1} \times I_{dc} \quad (5)$$

の関係が得られた。この傾き 2.5×10^{-1} は、 $I_{dc} = \pm 2$ mA の範囲で調べられた過去の報告¹⁵⁾と同程度である。しかしながら、本研

究ではノンドープ Si 基板を用いることで ± 20 mA までの大電流印加が可能となり、5.0 mT といった大きな $\mu_0 H_{intrinsic}^{shift}$ を得ることに成功した。

4. スピン流による透磁率変化の評価

4.1 スピン注入下における複素透磁率の算出

交流複素磁化率 $\chi(\omega)$ の周波数分散は、 $\chi'(\omega)$ を実部、 $\chi''(\omega)$ を虚部として²²⁾

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) - j\chi''(\omega), \quad (6)$$

と表される。ここで

$$\chi'(\omega) = \gamma M_{eff} \frac{\omega_{FMR}(\omega_{FMR}^2 - \omega^2) + \omega_{FMR}\omega^2\alpha^2}{[\omega_{FMR}^2 - \omega^2(1 + \alpha^2)]^2 + 4\omega_{FMR}^2\omega^2\alpha^2}, \quad (7a)$$

$$\chi''(\omega) = \gamma M_{eff} \frac{\alpha\omega[\omega_{FMR}^2 + \omega^2(1 + \alpha^2)]}{[\omega_{FMR}^2 - \omega^2(1 + \alpha^2)]^2 + 4\omega_{FMR}^2\omega^2\alpha^2}, \quad (7b)$$

である。磁場 H と磁束密度 B をつなぐ係数である複素透磁率 $\mu_r(\omega)$ は、

$$B = \mu_0[1 + \chi(\omega)]H = \mu_0\mu_r(\omega)H, \quad (8)$$

の関係にあり、実部を $\mu'_r(\omega)$ 、虚部を $\mu''_r(\omega)$ とすると、

$$\mu_r(\omega) = 1 + \chi'(\omega) - j\chi''(\omega) = \mu'_r(\omega) - j\mu''_r(\omega). \quad (9)$$

と表される。

各 I_{dc} における $\mu'_r(\omega)$ と $\mu''_r(\omega)$ を求めるためには、式(7a)と(7b)のうち I_{dc} を変数とする ω_{FMR} と α を求めれば良い。 $\alpha(I_{dc})$ は式(3)で得られた。一方、 $\omega_{FMR}(I_{dc})$ を得るために式(5)を用いる。式(5)では I_{dc} による共鳴磁場のシフト量が得られるので、まず $I_{dc} = 0$ mA のときの共鳴磁場を決める。本実験では、 $f_{ac} = 6.0$ GHz の条件では、共鳴磁場 $\mu_0 H_{FMR} = 58.4$ mT であった。したがって、スピン注入によるシフトを考慮した共鳴磁場の値は、

$$\mu_0 H_{FMR}(I_{dc}) = 58.4 + 2.5 \times 10^{-1} \times I_{dc} \quad (10)$$

となる。単位は mT である。これを式(2)に代入することで $\omega_{\text{FMR}}(I_{\text{dc}})$ が求まる。ここで有効磁化 H_{dc} に依存せず $\mu_0 M_{\text{eff}} = 658$ mT であるとする。以上から得られた $\omega_{\text{FMR}}(I_{\text{dc}})$ と $\alpha(I_{\text{dc}})$ を式(7a) と(7b)に代入し、式 (9) の関係から各 I_{dc} における $\mu_r'(\omega)$ と $\mu_r''(\omega)$ が求まる。

4.2 複素透磁率の評価

外部磁場を 58.4 mT 印加している状態で、 $I_{\text{dc}} = \pm 20$ mA における $\mu_r'(\omega)$ と $\mu_r''(\omega)$ の計算結果を Fig. 4(a) と (b) に示す。赤実線が $I_{\text{dc}} = +20$ mA、青実線が $I_{\text{dc}} = -20$ mA での複素透磁率を表す。それぞれの場合で強磁性共鳴による複素透磁率の周波数分散が確認できる。 $I_{\text{dc}} = -20$ mA の場合、共鳴周波数は 5.8 GHz である。一方、 $I_{\text{dc}} = +20$ mA の場合には、共鳴周波数は 6.3 GHz となっている。また $I_{\text{dc}} = -20$ mA のスペクトルと比べて、 $I_{\text{dc}} = +20$ mA スペクトルでは線幅が狭くなっていることがわかる。これらの変化は、式(3)と(5)で示した α の変化と $\mu_0 H_{\text{intrinsic}}^{\text{shift}}$ に対応している。

I_{dc} を変化させた際の $\mu_r'(\omega)$ と $\mu_r''(\omega)$ 変化について考える。 $\mu_r'(\omega)$ と $\mu_r''(\omega)$ はクラマース・クローニツヒの関係で結びついているので、それぞれが独立に変化することはない。まず Fig. 4(a) と (b) において周波数 6.0 GHz に着目する。つまり周波数 6.0 GHz の電磁波に対する透磁率を考える。この周波数における $\mu_r'(\omega)$ と $\mu_r''(\omega)$ を I_{dc} が -20 mA から $+20$ mA まで 0.1 mA 間隔で計算した。得られた計算値を横軸に $\mu_r'(\omega)$ 、縦軸に $\mu_r''(\omega)$ としてプロットすると、Fig. 4(c) の周波数 6.0 GHz と示した円弧が得られる。 I_{dc} を -20 mA から $+20$ mA に変化させると、 μ_r は青から赤に向かって円弧に沿って変化していく。円弧上の黒三角 (\blacktriangle) は $I_{\text{dc}} = 0$ mA の場合の $\mu_r'(\omega)$ と $\mu_r''(\omega)$ を表しており、これは強磁性共鳴周波数での複素透磁率の値に相当する。同様に 5.0 GHz から 7.0 GHz までの周波数に対して 0.1 GHz 刻みで計算を行った。Fig. 4(c) の最も内側の円弧が 5 GHz に相当し、周波数が大きくなるに連れて直径が大きくなり外側の円弧へと順に変化していく。周波数が 6.3 GHz より大きくなると $\mu_r'(\omega)$ は正の値を持たず、負の値のみを示すことが分かる。また $\mu_r'(\omega)$ の変化量に着目すると、共鳴周波数である 6 GHz 付近で最も大きくなることが分かる。これは共鳴周波数付近での透磁率の急激な変化に起因している。

透磁率時間変調を用いた透過型の周波数変換を考えるために正の領域での $\mu_r'(\omega)$ の変化に着目する。Fig. 4(c) より周波数 6.1 GHz のとき、 I_{dc} を 6.5 mA から 20 mA に変化させることで $\mu_r'(\omega)$ が正の領域で 0 から 40 程度まで変化させることができる。これは屈折率では 6.3 程度の变化に相当する。誘電率変調による近赤外光に対する屈折率の変化量が 3 程度²⁾であることを考慮すると、今回の計算で得られた透磁率の変化量は十分大きいといえる。

最後に透磁率変調型の時間変調メタマテリアルを用いた電磁波の周波数変換について考える。これまで同様、外部磁場の大きさは 58.4 mT とする。ここに 6.1 GHz のマイクロ波を搬送波として流す。6.5 mA と 20 mA を正弦変化する交流電流を I_{dc} の代わりに印加する。共鳴周波数より小さければ磁化ダイナミクスは応答すると考えられるので、交流電流の周波数は 6.0 GHz より低ければよく、例えば 1.0 GHz とする。すると μ_r' は Fig. 4(c) の周波数 6.1 GHz の円弧に沿って、0 から 40 の値を 1.0 GHz の周期で変調される。ここを流れる 6.1 GHz の搬送波は、透磁率の時間変調を受

けて位相変調による周波数変換が起こり、1 次変換波として (6.1 \pm 1.0) GHz のサイドバンドが生じると考えられる。さらに Fig. 4(c) の縦軸を見ると 27 から 42 の範囲で μ_r'' の変調も同時に起こるため、位相変調に加えて強度変調も生じると予想される。デバイスをカスケード接続してこの周波数変換を 100 回繰り返すことでミリ波に相当する 106 GHz の変換波が得られると期待される。ただしキャリア波が高周波になるにつれて、磁性メタ原子の強磁性共鳴周波数も高周波化する必要がある。例えばミリ波やテラヘルツ光といった高周波帯での周波数変換には、内部磁場が大きくミリ波やテラヘルツ光で共鳴を示す反強磁性体の NiO や、人工反強磁性体の Co/Ru 多層膜の利用が考えられる。

5. まとめ

本研究では、基板上に成膜した Ta/Py/Pt 三層膜を微細加工して形成されたメタ原子に対して、直流のバイアス電流を加えたスピントルク強磁性共鳴(ST-FMR)測定を行った。SiO₂ と MgO とノンドープ Si 基板を用いて ST-FMR 測定を行ったところ、SiO₂ 基板では熱伝導率が小さいため、ジュール熱による昇温が大きくなり、試料が損傷を受けた。MgO 基板やノンドープ Si 基板試料では、ST-FMR 信号が得られたものの、大電流を印加すると MgO 基板試料では信号が安定せず SN 比が低くなった。MgO 基板と比べてノンドープ Si 基板では熱伝導率が高く、そのことが大電流印加を可能にしたと考えられる。

実験で得られた共鳴磁場とダンピング定数の変化量を用いて解析計算を行い、スピン注入に対する複素透磁率の変化を求めた。複素透磁率の実部と虚部の複素平面プロットによる解析によって、これまで明確ではなかったスピン注入量に対する透磁率の実部と虚部の変化量が明らかになった。また外部磁場が 58.4 mT のもとで大電流を印加することで、周波数 6.1 GHz の電磁波に対してメタ原子の比透磁率の実部が 0 から 40 まで、虚部が 27 から 42 まで変化することを示した。本研究ではノンドープ Si 基板を用いることで大電流印加が実現されたが、これによって通常では見えない非線形スピン分極が観測されている可能性がある²³⁾。非線形スピン分極が存在すると、さらに大きな透磁率変化や、複数の周波数での透磁率変調が期待でき、時間変調メタマテリアルを用いたミリ波やテラヘルツ光源の開発に繋がる。スピン注入による透磁率制御は、メタマテリアルを通じたスピントロニクスとフォトンクスの融合であり、本研究を足がかりにスピントロニック時間変調メタマテリアルの更なる発展が期待される。

謝辞 試料作製に協力頂いた畑山正寿氏に感謝する。金森義明教授との有益な議論に感謝する。本研究は JST-CREST (JPMJCR2102) によって支援されている。

References

- 1) R. A. Shelby, D. R. Smith, and S. Schultz: *Science*, **292**, 77 (2001).
- 2) D. Schurig, J. J. Mock, B. J. Justice, S. A. Cummer, J. B. Pendry, A. F. Starr, and D. R. Smith: *Science*, **314**, 977 (2006).

- 3) E. Galiffi, R. Tirele, S. Yin, H. Li, S. Vezzoli, P. A. Huidobro, M. G. Silveirinha, R. Sapienza, A. Alú, and J. B. Pendry: *Adv. Photonics*, **4**, 014002 (2022).
- 4) Y. Zhou, M. Z. Alam, M. Karimi, J. Upham, O. Reshef, C. Liu, A. E. Willner, and R. W. Boyd: *Nat. Commun.*, **11**, 1 (2020).
- 5) M. Z. Alam, S. A. Schulz, J. Upham, I. De Leon, and R. W. Boyd: *Nat. Photon.*, **12**, 79 (2018).
- 6) R. L. Savage, C. Joshi, and W. B. Mori: *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 946 (1992).
- 7) T. Tanabe, M. Notomi, H. Taniyama, and E. Kuramochi: *Phys. Rev. Lett.*, **102**, 043907 (2009).
- 8) F. Miyamaru, C. Mizuo, T. Nakanishi, Y. Nakata, K. Hasebe, S. Nagase, Y. Matsubara, Y. Goto, J. Pérez-Urquiza, J. Madéo, and K. M. Dani: *Phys. Rev. Lett.*, **127**, 053902 (2021).
- 9) Y. Huang, K. Nakamura, Y. Takida, H. Minamide, K. Hane, and Y. Kanamori: *Sci. Rep.*, **10**, 20807 (2020).
- 10) P. A. Huidobro, E. Galiffi, S. Guenneau, R. V. Craster, and J. B. Pendry: *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*, **116**, 24943 (2019).
- 11) T. Kodama, N. Kikuchi, S. Okamoto, S. Ohno, S. Tomita: *Phys. Rev. Applied*, **19**, 044080 (2023)
- 12) L. Liu, T. Moriyama, D. C. Ralph, and R. A. Buhrman: *Phys. Rev. Lett.*, **106**, 036601 (2011).
- 13) M. Kawaguchi, T. Moriyama, T. Koyama, D. Chiba, and T. Ono: *J. Appl. Phys.* **117**, 17C730 (2015).
- 14) R. W. Greening, D. A. Smith, Y. Lim, Z. Jiang, J. Barber, S. Dail, J. J. Heremans, and S. Emori: *Appl. Phys. Lett.*, **116**, 052402 (2020).
- 15) T. Nan, S. Emori, C. T. Boone, X. Wang, T. M. Oxholm, J. G. Jones, B. M. Howe, G. J. Brown, and N. X. Sun: *Phys. Rev. B*, **91**, 214416 (2015).
- 16) W. Zhu, G. Zheng, S. Cao, and H. He: *Sci. Rep.*, **8**, 10537 (2018).
- 17) J. K. Srivastava, M. Prasad, and J. B. Wagner: *J. Electrochem. Soc.*, **132**, 955 (1985).
- 18) P. Shukla, T. Watanabe, J. C. Nino, J. S. Tulenko, and S. R. Phillpot: *J. Nucl. Mater.*, **380**, 1 (2008).
- 19) R. Soto, S. Mergui, and P. E. Schmidt: *Thin Solid Films*, **308**, 611 (1997).
- 20) G. A. Slack: *J. Appl. Phys.*, **35**, 3460 (1964).
- 21) V. E. Demidov, S. Urazhdin, E. R. J. Edwards, M. D. Stiles, R. D. McMichael, and S. O. Demokritov: *Phys. Rev. Lett.*, **107**, 107204 (2011).
- 22) D. Pozar: *Microwave Engineering* (Wiley, New York, 2011).
- 23) T. Kodama, N. Kikuchi, T. Chiba, S. Okamoto, S. Ohno, S. Tomita: *arXiv*, **2308**, 11156 (2023).

2023年10月29日受理, 2024年1月30日採録