

50. マルチフェロイクス中のスピン励起によるテラヘルツ光起電力効果

東京大学大学院工学系研究科附属量子相エレクトロニクス研究センター 助教 岡村 嘉大

概要

本研究では、磁性と強誘電性が強く結合したらせん磁性体マルチフェロイクス RMnO_3 において、テラヘルツ光で励起されるエレクトロマグノンが光電流を生成する現象を実験的に実証した。エレクトロマグノンはスピン揺らぎと分極揺らぎが混成した低エネルギー励起であり、テラヘルツ帯に現れる。高強度テラヘルツ光照射により明瞭な光電流を観測し、その符号反転や転移温度以上での消失から、光キャリアを介さない量子力学的電流であることを確認した。従来の光起電力効果やシフト電流が電子のバンド間遷移を前提としていたのに対し、本成果は集団励起を介した本質的に異なる機構を示すものである。さらに理論比較により、本光電流は量子幾何学（ベリー接続）に起因するシフト電流として理解され、「バンド間遷移が必須」という従来概念を覆す結果となった。さらに応答強度は過去の報告例の中でも最大級であり、低エネルギー光子の高効率光電変換の可能性を示した。本成果は新原理テラヘルツ光電変換の基礎を与え、次世代テラヘルツ技術への展開が期待される。

背景および目的

光起電力効果は、半導体界面の pn 接合を利用した太陽電池に代表されるように、現代の光エレクトロニクスを支える基盤技術の一つである。近年、反転対称性を欠く極性ペロブスカイト酸化物において巨大なバルク光起電力効果が観測され、複雑なデバイス構造を必要としない新原理光電変換として大きな注目を集めている¹⁾。その微視的起源の一つとして知られるのがシフト電流機構である。この機構では、光励起に伴い、バンドのトポロジを反映するベリー接続に特徴づけられる電子波動関数の実空間的変位（シフト）が生じ、散逸過程を介さず定常的な光電流が生成される^{2,3)}。

これまでのシフト光起電力効果の研究は主として可視・近赤外領域を対象とし、電子のバンド間遷移を前提として発展してきた。一方、これらより三桁低いエネルギー領域であるテラヘルツ帯では、通常バンド間遷移が存在しないため、同様の光電流機構の適用は困難と考えられてきた。実際、既存のテラヘルツ検出技術の多くは熱検知を原理としており、応答速度や熱雑音の観点から本質的な制約を受けるとともに、極低温冷却を必要とするなど応用上の課題を抱えている。

そこで本研究では、テラヘルツ帯における新しい光起電力機構として、バンド間遷移を伴わない集団励起を介したシフト電流生成に着目する。対象とするのは、磁性と強誘電性が強く結合したマルチフェロイクスに現れるエレクトロマグノンである(図 1(a,b))。エレクトロマグノンはスピン揺らぎと電気分極揺らぎが混成した特異な磁気励起モードであり、しばしばテラヘルツ帯に存在する。マルチフェロイクスではスピン構造と電気分極が強く結合しており、エレクトロマグノンの励起時には電気双極子が誘起されることから、分極電流とのアナロジーに基づくシフト光電流生成が期待される(図 1(c))。特にエレクトロマグノンの存在するテラヘルツ帯は、電子遷移のエネルギースケールよりもはるかに小さく電子励起が起こりえないため、光電流機構がシフト電流により支配され、量子力学的起源に基づく超高速かつ非散逸応答の直接的な証明が可能となる(図 1(d))。さらに、マルチフェロイクスにおけるエレクトロマグノンは多様な微視的機構により発現するため、本研究は光電流応答と集団

励起の結合に関する基礎物理の理解にも寄与する。これにより、磁性強誘電体における高効率テラヘルツ光電流生成の実現を目指す。

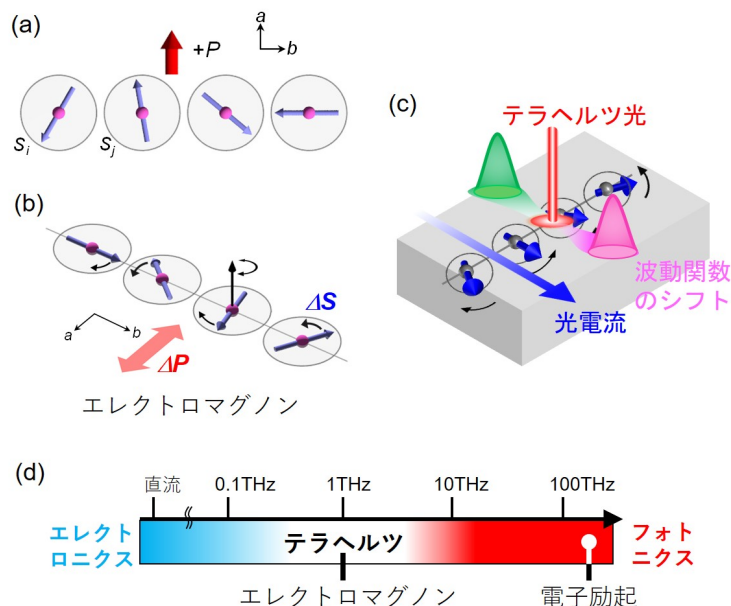


図 1. 図 1 : (a,b)らせん磁性マルチフェロイクス(a)とエレクトロマグノンの概念図(b)。 (c)テラヘルツシフト電流の概念図。光励起によって波動関数の重心がシフトすることで電流が流れる。(d)エレクトロマグノンと電子励起のエネルギースケール。

方法

実験配置は図 2 に示す通りであり、テラヘルツ光照射によってエレクトロマグノンを直接励起し、発生する光電流をオシロスコープにより測定する構成とした。組成および温度を制御することで、強誘電分極方向、スピン構造、ならびにエレクトロマグノンの励起モードを系統的に変化させ、シフト電流応答の詳細な評価を行った。

ここで本実験の実現には、(i) 高強度テラヘルツ光源、および (ii) 高感度光電流検出系、の双方が本質的に重要であることを強調しておく。特にテラヘルツ領域では、可視・近赤外帯と比較して高い光強度を安定に生成することが技術的に困難であることが広く知られている。この点に関して、当研究室では高強度テラヘルツ光源の独自開発を進めており、 LiNbO_3 結晶を用いたパルス面傾斜法により、最大電場強度 800 kV/cm、パルスエネルギー 3 μJ に達するテラヘルツ光の安定照射が可能である。この高電場特性は、非線形光応答の観測および集団励起の効率的駆動において決定的な役割を果たす。また、テラヘルツ帯域フィルタおよび偏光子を組み合わせることで、周波数依存性および偏光依存性の精密測定を可能にした。

光電流検出には、申請者がこれまで確立してきた時間分解光電流測定系を用いた。試料両端に電極を形成し、光パルス照射と同期して発生する過渡光電流を I/V アンプにより増幅した後、オシロスコープを用いて実時間検出を行った。この測定手法により、テラヘルツ励起に伴う超高速電流応答を直接評価することが可能となる。

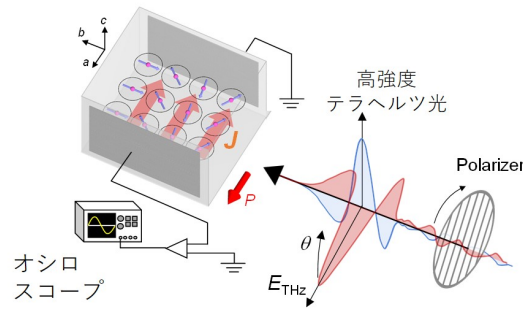


図 2. 実験の概念図。

結果および考察

以上のような背景のもと、本研究では、典型的ならせん磁性体マルチフェロイクス RMnO_3 を対象とした。この物質のスピン励起特性はすでに確立されており、テラヘルツ光照射によってエレクトロマグノンが励起できることが実証されている⁴⁾。実際に、テラヘルツ光を用いることでエレクトロマグノンの直接励起を行った結果、明瞭な光電流信号が観測された。今回励起光源としてパルス光源を使っているため光電流としてもパルスのであり、分極の反転による符号反転や磁気転移温度以上で信号が消失するなど、対称性の要請を全て満たす振る舞いが観測された。ここで、エレクトロマグノンは電子励起に比べて三桁以上低いエネルギースケールに位置するため、観測された光電流は電子のバンド間遷移や光キャリア生成に依存しない。したがってこの結果は、従来の電子励起による光起電力効果とは対照的に、光キャリアを介さない量子力学的起源の光電流応答を実証している。実際に共同研究として本系の有効モデルを構築し、理論解析を行うことで、今回観測された光電流が電子の量子幾何学的性質、すなわちベリー接続に由来するシフト電流機構として理解できることが明らかとなった。

さらに特筆すべき点は、得られた光電流の性能指数が従来の電子励起による光起電力効果に匹敵する規模に達した点である。図 3(d)には性能指数の 1 つであるグラス係数を横軸励起エネルギーとして様々な物質についてまとめたものを示しており、今回の観測値が全光学領域を通して最大級であることがわかる。これは、低エネルギー光子を用いながら高効率な光電変換が可能であることを示し、非散逸かつ超高速応答という量子機構固有の利点を活かした新原理光電変換への道を開くものである。本研究成果は、「シフト電流生成にはバンド間遷移が必須である」という従来の常識を覆し、集団励起を介した量子光電流生成という新しい学理的枠組みを提示する点で学術的にも極めて意義深い。

応用面においても、本研究の意義は大きい。本研究が対象とするテラヘルツ帯は、Beyond 5G・6G 通信、非破壊センシング、高速イメージング、車載レーダーなど、多岐にわたる次世代技術の基盤周波数帯として期待されている。一方で、既存のテラヘルツ検出技術の多くは熱検知型であり、応答速度や冷却要件の点で本質的制約を有する。本研究で示した光電流機構は、冷却を必要としない動作原理を有し、原理的にはピコ秒領域に到達し得る極めて高速な応答が可能である。この特性は、テラヘルツ光検出および光機能デバイスに対して新しい設計指針を与えるものであり、将来的な技術波及効果が強く期待される。

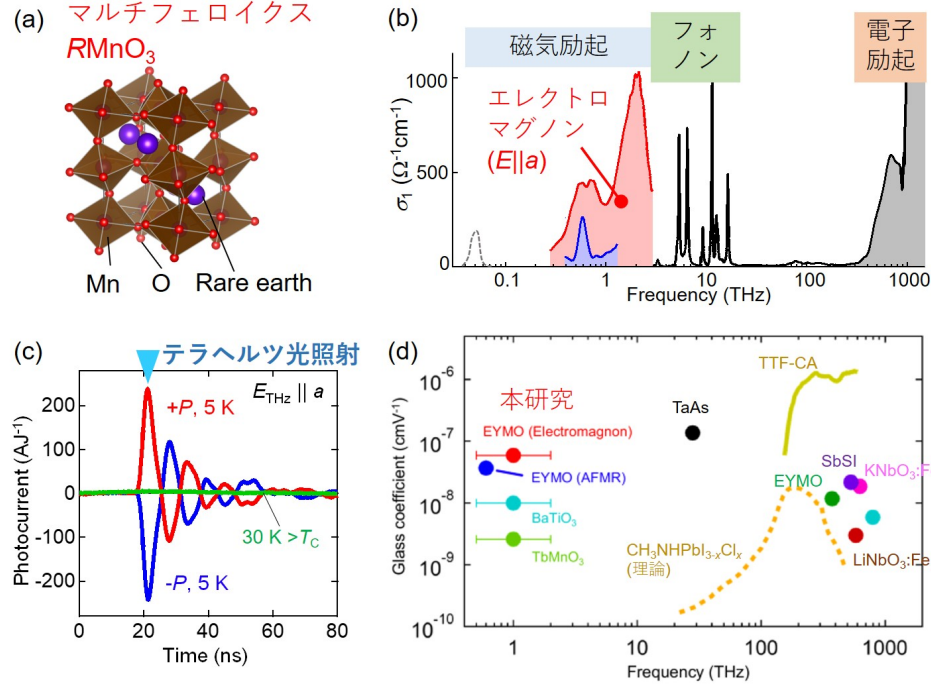


図 3. (a) RMnO_3 の結晶構造。(b) $\text{R} = \text{Eu}_{0.55}\text{Y}_{0.45}$ の光学伝導度。1 THz 付近に存在するエレクトロマグノンの励起を行う。(c) 光電流の時間波形。逆三角で示した時間においてテラヘルツパルスが照射されている。メインピークの後の振動は回路のリンギングによるもの。対称性の要請通り電気分極(P)の符号に依存して光電流の符号も反転し、転移温度(T_c)以上で消失することが確認された。(d) 性能指数の 1 つであるグラス係数を横軸励起エネルギーとして様々な物質についてまとめたもの。今回の観測値が最大級であることがわかる。

(完)

発表論文

- 1) M. Ogino*, Y. Okamura*, K. Fujiwara, T. Morimoto, N. Nagaosa, Y. Kaneko, Y. Tokura, and Y. Takahashi, "Terahertz photon to dc current conversion via magnetic excitations of multiferroics" Nature Communications 15, 4699 (2024) (*equal contribution).

引用文献

- 1) I. Grinberg et al., Nature (2013).
- 2) S. M. Young, & A. M. Rappe, Phys. Rev. Lett. 109, 116601 (2012).
- 3) T. Morimoto, & N. Nagaosa, Sci. Adv. 2, e1501524 (2016).
- 4) Y. Takahashi et al., Nat. Phys. 8, 121 (2012).