

博士論文

マグノン励起と結合した表面弾性波

Surface acoustic wave coupled to magnon excitation

佐々木遼

概要

スピン軌道相互作用に由来する電子系での新奇現象の発見は、近年の物性物理学における重要な発展の一つである。ラシュバ効果やトポロジカル絶縁体のような特異な電子状態が実現する系が発見され、それらを利用した種々の変換機構や機能性物質の研究が進み、新たな分野が開拓されている。しかし対称性の観点から考えると、電子系に限らず物質中の他のあらゆる素励起に関してもこれらと類似の現象の発現が期待できる。

本博士論文は物質中の素励起の中で弾性波、特に表面弾性波に注目し、実験的手法に基づき、電子系で見出されてきたスピン軌道物理の対応現象の研究について報告している。主に磁性体中の磁気励起（マグノン）との結合現象による非自明な表面弾性波特性の研究について報告する。

GHz 領域の高周波な表面弾性波を利用することによって強磁性薄膜中の強磁性マグノンと表面弾性波の結合を実現した。特に伝搬方向の正負によって表面弾性波の応答が異なる非相反現象を観測した。また機能性物質であるマルチフェロイック物質を用いた表面弾性波デバイスの開発も行った。マルチフェロイック物質のもつ圧電性を利用して表面弾性波を励起し、物質中の反強磁性マグノンとの結合現象を観測した。

目次

第 1 章	導入	4
1.1	背景	4
1.1.1	スピン軌道相互作用に関連した新奇物理現象	4
1.1.2	フォノン-マグノン結合	5
1.1.3	表面弾性波	6
1.2	目的と論文構成	8
第 2 章	Ni · LiNbO ₃ 二層デバイスにおける表面弾性波の非相反伝搬	10
2.1	背景と目的	10
2.1.1	素励起における対称性の破れと分散関係	10
2.1.2	非相反性	13
2.1.3	弾性波の非相反現象	15
2.1.4	目的	17
2.2	実験手法	17
2.2.1	表面弾性波デバイス	17
2.2.2	測定系	20
2.3	実験結果と考察	24
2.3.1	SAW 透過信号の磁場依存性	24
2.3.2	SAW の非相反伝搬	29
2.3.3	理論的考察	31
2.4	まとめ	36
第 3 章	マルチフェロイック物質中の磁気共鳴と結合した表面弾性波	38
3.1	背景と目的	38
3.1.1	マルチフェロイクスにおける電磁気現象	38
3.1.2	マルチフェロイクスにおける弾性波現象	40
3.1.3	目的	42
3.2	マルチフェロイック物質 CuB ₂ O ₄	42
3.3	CuB ₂ O ₄ SAW デバイスと SAW 励起	43

3.4	マグノン- SAW 結合	46
3.4.1	磁気共鳴と SAW の磁場依存性	46
3.4.2	磁気共鳴スペクトルの磁場方位依存性	48
3.4.3	SAW の相対的な励起強度 $-S_{11}^{\text{SAW}}/S_{11}^0(H)$ と透過強度 $S_{21}^{\text{SAW}}/S_{21}^0(H)$ の 定義	48
3.4.4	SAW の磁場方位依存性	50
3.5	理論的考察	51
3.6	まとめ	52
第 4 章	総括と展望	54
4.1	総括	54
4.2	展望	55
謝辞		57
出版論文リスト		58
参考文献		59
付録 A	等方性媒体中の表面弾性波	65
A.1	波動方程式	65
A.2	Rayleigh 波	68
A.3	SAW における対称ひずみと反対称ひずみ	72
A.4	SAW におけるバーネット磁場とフォノンの角運動量の考察	73
A.5	SH 波の反対称ひずみ	74
付録 B	電子の分散関係と SAW の非相反伝搬に関する対称性	75
B.1	電子の分散関係の対称性	75
B.2	磁場中の SAW に対する対称操作	76
付録 C	リソグラフィ条件の最適化	78
C.1	フォトリソグラフィ条件の最適化	78
C.2	電子ビームリソグラフィ条件の最適化	80
付録 D	パルス測定における位相速度変化の算出方法	82
付録 E	反対称ひずみによる磁気弾性結合エネルギーと有効磁場の導出	84
E.1	反対称ひずみと磁化の結合エネルギー	84
E.2	反対称ひずみに起因する有効磁場と強磁性共鳴	85

付録 F	Ni 以外の磁性体を用いた SAW の非相反性観測の試み	88
F.1	YIG 単結晶を用いた SAW デバイス	88
F.2	Py 薄膜を用いた SAW デバイス	89
F.3	Co 薄膜を用いた SAW デバイス	91
F.4	YIG 単結晶と, Py, Co 薄膜を用いた SAW デバイスについての再検討	92
付録 G	CuB ₂ O ₄ SAW デバイス研究の補足	94
G.1	CuB ₂ O ₄ の対称性に従う磁気弾性結合エネルギー	94
G.2	表面弾性波励起のもとでの反強磁性共鳴の有効運動方程式	95
G.3	低周波, 異なる結晶方位の CuB ₂ O ₄ SAW デバイス	97

第 1 章

導入

1.1 背景

1.1.1 スピン軌道相互作用に関連した新奇物理現象

近年の物性物理学において、電子系の物理が新しい様相を呈している。その要因となっているのは電子に働くスピン軌道相互作用である。スピン軌道相互作用とは、電子に働く相対論効果であり、電子スピンと電場もしくは電子の軌道運動との結合項である。スピン軌道相互作用を起源とする物性は自体は新しい概念ではない。スピン軌道相互作用は例えば 4f 電子系の電子準位の分裂に重要であることは従来からよく知られており、また電子スピンの結晶方位に対して異方性をもつ結晶磁気

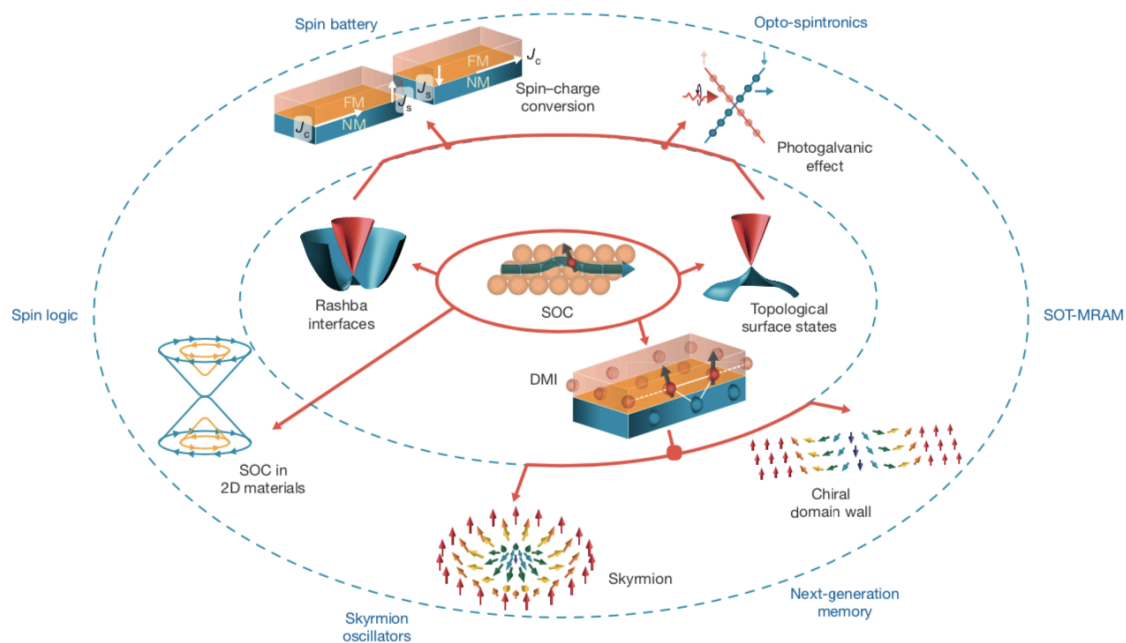


図1.1 表面や界面で現れるスピン軌道相互作用由来の種々の創発現象 [1]

異方性の起源にもなっている。しかし近年ではスピン軌道相互作用が電子のバンド構造や輸送・散乱現象へ与える効果が注目され、それにより発現する特異な電子物性が数多く報告されている [1]。図 1.1 に例示してあるのは特に表面や界面で現れるスピン軌道相互作用を起源とした種々の現象である。例としてラッシュバ分裂 [2] した系では、スピン分裂した電子バンドが形成され、スピン方向が運動量方向に依存した電子状態を持つ。ラッシュバ分裂した電子系ではエデルシュタイン効果 [3] や逆効果の逆エデルシュタイン効果といった特徴的なスピン流-電流変換現象が生じ、スピントロニクス分野の発展に貢献している。またスピン軌道相互作用が強い物質ではトポロジカル絶縁体という新たな物質相が現れ、その特異な電子状態や輸送特性、光学応答を含め近年非常に盛んに研究されている [4]。

このようなスピン軌道相互作用に基づく新奇物理現象は、電子系以外の物理系でも考えられるだろうか。上述の現象に刺激され、他の物理系でも類似の現象が研究がされている。

磁性体（スピン系）では、スピン軌道相互作用を起源として生じるスピン間相互作用のジャロンスキー・守谷（DM）相互作用が新奇現象の担い手となる（図 1.1）。DM 相互作用が交換相互作用と競合すると、スピン配列がらせんを巻くような非共線的な秩序が実現する。らせん型磁気構造と結晶構造とが相関する時、巨視的な電気分極を誘起する電気磁気効果が現れる [5, 6]。電気磁気効果の高周波における拡張である電気磁気光学効果も含め、マルチフェロイクスと言われる物質群を対象に盛んに研究されている [7]。DM 相互作用はらせん型磁気構造の他にも、スキルミオン格子という渦状のスピン配列を実現し、トポロジカルホール効果のような新しい電子輸送現象を生み出す [8]。磁気励起であるマグノンの輸送現象においてもマグノンホール効果といった現象が DM 相互作用を起源として生じる [9]。

またこれらの新奇物性に刺激されて、主にメタマテリアルの分野で、（直接スピン軌道相互作用を起源とする訳ではないが）基本方程式や系の幾何学的形状からくる偏向や境界条件を擬似的なスピン軌道相互作用とみなせるような現象の研究も現れてきた。人工構造体の周期構造をうまく制御することで、電子の量子ホール系と似たフォトン系が実現できることが理論的に提唱され [10]、カイラルエッジ状態や後方散乱の抑制などが実験的にも観測されている [11, 12]。

1.1.2 フォノン-マグノン結合

ここまで述べたように、様々な物理系において広い意味でスピン軌道相互作用の効果とみなせる物理現象が数多く研究され、豊かな物性や機能が現れることがわかってきた。これらを鑑みると、電子やマグノンではなく、固体中のフォノン、つまり弾性波においても類似の現象が現れるのではないかという発想が浮かぶ。しかしフォノンは通常電氣的に中性の準粒子で、スピンも持たない。電子や光のように物質との相互作用や外場による制御が困難で、先に見たような豊かな物性は現れないように思える。実際フォノンにおけるスピン軌道物理は他の系とくらべると近年目立った進展がない。

しかしフォノンとマグノンとの間の結合（フォノン-マグノン結合）は、マグノンの場合の DM 相互作用のように、フォノン系に対して実効的にスピン軌道相互作用の働きをすると捉えることが

表1.1 各物理系におけるスピン軌道相互作用の効果と創発現象

電子	磁性	フォノン
スピン軌道相互作用	DM 相互作用	フォノン-マグノン結合？
ラシュバ分裂 スピンホール効果 トポロジカル絶縁体	スキルミオン 電気磁気効果	新奇フォノン現象？ (本研究の主題)

できる。磁性体においてはスピン軌道相互作用を起源として結晶磁気異方性が生じる。フォノンとマグノンは結晶磁気異方性によって結合する。結晶磁気異方性によって結晶格子中でスピンの容易軸（もしくは容易面）を持つとき、格子変形が生じると容易軸（面）の方向が変わり、スピンの方向もそれにつられて変わる。フォノンによって格子が周期的に振動するとき、その変形に追従してスピンの方向も周期的に振動する。もしフォノンの周波数が磁化の振動モードであるマグノンの固有振動と一致する場合、フォノンとマグノンは共鳴的に振動し、フォノンとマグノンが結合することになる。

フォノン-マグノン結合はフォノンの新しい物理を考えるための一つの方向性を与えると考えられる（表 1.1）。フォノン-マグノン結合自体は古くから研究されており、例えば光のファラデー効果に類似して磁性体中で横波音波の偏向面が回転する「音響ファラデー効果」がフェリ磁性体 $Y_3Fe_5O_{12}$ [13] などで観測されている。注目すべきは実験的に発生できる音響フォノンのエネルギーは高々数 GHz で、光のように電子遷移のエネルギーに到達することはできないにもかかわらず、マグノンと結合することによってあたかも（スピン軌道相互作用が関連する電子遷移を起源とする）磁気光学効果 [14] と類似の現象が発現するという点である。このようにスピン軌道相互作用はフォノンに対してフォノン-マグノン結合というひとつの形で現れ、それによって光学現象と類似したフォノン現象が発現する。

1.1.3 表面弾性波

マグノンと結合するフォノン伝搬の実験のために、マグノン周波数と一致する高周波なフォノン励起手法が必要となる。超音波測定で従来用いられる手法 [15] は、水晶や $LiNbO_3$ といった圧電基板や、PZT のような圧電膜を電極で挟み交流電圧を加える方法である。この場合音波は圧電体の機械的な共振モードを利用することで効率的に励起される。共振周波数は基板や膜の厚みによって決定され、多くの場合 10 - 100 MHz オーダーの周波数となる。マグノンの典型的な周波数はマイクロ波領域の GHz オーダーであり、従来のフォノン励起手法ではマグノンと結合できるフォノンを利用することは難しい。

そこで、マグノンと結合可能な GHz 領域の高周波なフォノンを利用するための手法として、表面弾性波 (surface acoustic wave, SAW) の利用が考えられる。SAW は媒質の表面を伝搬する弾性波の固有モードである [17]。真空と接する半無限弾性体の表面に沿って伝搬するモードの一つに

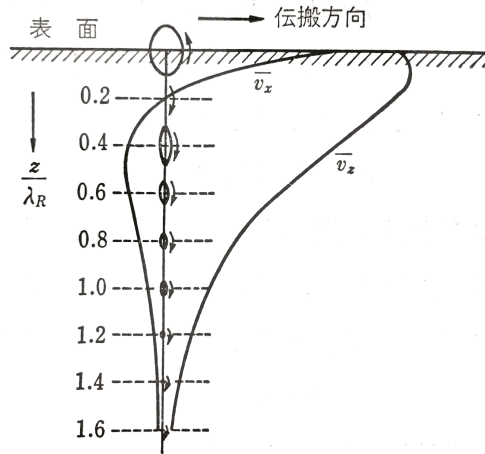


図1.2 Rayleigh 波の界面からの深さに対する速度分布. λ_R は Rayleigh 波の波長, \bar{v}_x, \bar{v}_z は式 (1.1) における振幅を A で規格化したものを表す. 図中の楕円と矢印は粒子の回転運動とその方向を表す [16].

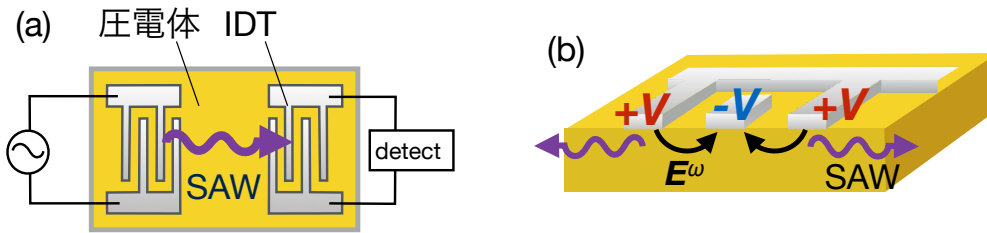


図1.3 (a)SAW デバイスの概要図. (b) くし形電極が作る交流電場

Rayleigh 波モードがある. 図 1.2に示すような界面を $z = 0$ の面として, $z > 0$ に存在する等方的な半無限弾性体の界面を x 方向に伝搬している Rayleigh 波の粒子速度分布*1は

$$v_x = kA \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{k^2 + s^2} e^{-sz} \right) e^{i(kx - \omega t)} \quad (1.1)$$

$$v_y = 0 \quad (1.2)$$

$$v_z = iqA \left(e^{-qz} - \frac{2k^2}{k^2 + s^2} e^{-sz} \right) e^{i(kx - \omega t)} \quad (1.3)$$

$$q \equiv \sqrt{k^2 - \frac{\omega^2 \rho}{\lambda + 2\mu}}, \quad s \equiv \sqrt{k^2 - \frac{\omega^2 \rho}{\mu}} \quad (1.4)$$

となる [16]. ここで, k, ω は x 軸方向に伝搬する Rayleigh 波の波数と角振動数, A は定数, ρ は弾性体の密度, λ, μ はラーメの定数である. 速度は界面から離れるに従って指数関数的に減少し, その結果界面のみにエネルギーが集中する低減衰な弾性波モードになっている.

SAW を実験的に利用するためのデバイスは高周波なフォノンを比較的容易に励起することがで

*1 変位場に関しては付録を参照

きる。デバイスの概要を図 1.3 に示す。この SAW デバイスは、圧電体とくし形電極 (interdigital transducer; IDT) からなる [16, 18, 19]. IDT は空間的に周期的な構造を持ち、基板表面に対し空間変調された交流電場を印加することができる (図 1.3 (b)). 圧電体は電場を印加するとひずみが生じ、また逆にひずみによって電場が生じる圧電効果があり、ひずみと電場の変換器として働く。基板の圧電効果により基板表面に電極周期と一致した周期のひずみが生じる。これが伝搬していくことで SAW となる。伝搬先に同様の電極構造を作製することで、励起とは逆過程を経て伝搬する SAW を電氣的に検出できる。デバイスで励起される SAW の波長は IDT の周期と一致する (およびその高調波が励起される) ため、電極周期をリソグラフィなどの微細加工技術によって小さくすることで、短波長つまり高周波な SAW を励起することができる。典型的な SAW の周波数は数十 MHz から、高いもので十数 GHz におよぶ。

このようにマイクロ波領域の高周波フォノンを励起する手法として SAW デバイスは有用であり、フォノン-マグノン結合を実験的に研究するための良い手法となる。実際にスピントロニクス分野では SAW デバイスを用いた研究が現れ始めており、強磁性薄膜に対して、SAW による異方性の制御 [20], 強磁性共鳴の励起 [21, 22], スピンポンピング [23], スピン配向制御 [24, 25] といった研究が行われている。

SAW は高周波フォノンとしての利用以外に対称性の観点からも興味深い。SAW は界面における境界条件から縦波と横波が混成したモードになり [17], 変位が回転しながら伝搬するような弾性波となる (図 1.2)。この回転方向は伝搬方向に依存している。このような特性は運動量方向とスピン方向が相関するバンド構造を持つラッシュバ電子系との類似点がある。図 1.1 のような系との類似性を考慮して新奇フォノン現象について研究するために、SAW の対称性は他の物理系との対応を考える上で興味深い弾性波モードである。

1.2 目的と論文構成

ここまで述べたように、近年スピン軌道相互作用を起源とする電子系の物理が急速に発展し、それに刺激されてスピン系やフォトン系においても類似の現象が研究されているが、物質中の弾性波 (フォノン) に関しては新たな研究が進んでいない。本博士論文の目的は、電子系や磁性体において近年発見された新奇現象との類似性から、弾性波物理における新たなスピン軌道現象を実験的手法により明らかにすることである。そのため本研究では、系の対称性や磁気物性に注目し、主に表面弾性波を用いたフォノン-マグノン結合現象を通して新奇現象を探求した。本論文は以下のような構成からなる。

第 2 章において、強磁性共鳴との結合による SAW の非相反伝搬の観測について報告する。強磁性 Ni 薄膜と LiNbO_3 圧電基板からなるハイブリッド SAW デバイスを作製し、その伝搬強度と位相速度が外部磁場に依存して変化することを示す。特に磁場の正負や伝搬方向の正負で応答が異なる非相反伝搬の観測結果を詳細に示す。この磁場応答と非相反応答を理論的に議論するため、現象論的な磁気弾性結合エネルギーを対称性の観点から導出する。磁気弾性結合を介して SAW の振動が磁性体上に強磁性マグノンを励起することを示す。SAW に特徴的なひずみの振動が楕円偏向了有

効磁場に現れることを示し、これが非相反性の起源であることを提示した上で、実験結果との比較を行う。

第3章においては、マルチフェロイック物質上の SAW-反強磁性マグノン結合の観測について報告する。マルチフェロイック物質である CuB_2O_4 単結晶を圧電基板として用いた SAW デバイスを作製し、SAW が励起できたことを示す。反強磁性転移点以下の低温において SAW の信号が磁場に依存して変化することを示し、マイクロ波回路を用いた磁気共鳴測定と比較することで、SAW の磁場変化は CuB_2O_4 の反強磁性マグノンとの結合が起源であることを示す。SAW の磁場方位依存性を説明するために、磁気弾性結合を考慮した反強磁性磁化の運動方程式を導出し、反強磁性マグノンの音響モードと SAW の結合強度について理論的に考察する。

第4章において本論文のまとめと本研究の発展の方向性を考察する。

第 2 章

Ni · LiNbO₃ 二層デバイスにおける表面弾性波の非相反伝搬

2.1 背景と目的

固体中のエネルギーや分散関係，輸送特性などは，その系の対称性に大きく影響を受ける．時間反転対称性がある場合，輸送特性に関してオンサーガーの相反定理 [26] が成り立ち，インプットとアウトプットに関して（線形の範囲で）相反性がある．たとえば電流に関して考えると，電流の流れる向きを正負を入れ替えても抵抗値は変化しない．このような対称性の効果は電流や光学応答のみならず，弾性波応答にも現れるはずである．ここではオンサーガーの定理について深く検討することとはせず，代わりに分散関係を通して物質中のあらゆる素励起にあてはまる対称性の効果を説明する．その後，近年盛んに研究されている非相反応答について説明したのち，本研究の目的を述べる．

2.1.1 素励起における対称性の破れと分散関係

物質中の対称性，特に空間反転対称性や時間反転対称性と素励起の分散関係との間には密接な関係がある．ここでは簡単のために電子系を例にして説明する．空間反転対称性と時間反転対称性がどちらも保たれている場合，電子の分散関係は波数 k に関して対称な形をとり，スピン (\uparrow または \downarrow) に関して完全に縮退している：

$$\epsilon(k, \uparrow) = \epsilon(k, \downarrow). \quad (2.1)$$

空間反転対称性が破れているが，時間反転対称性があるときスピン軌道相互作用が有限に働き，分散関係のスピン縮退が波数方向に解ける (図 2.1(a)):

$$\begin{aligned} \epsilon(k, \uparrow) &\neq \epsilon(-k, \uparrow), \\ \epsilon(k, \uparrow) &= \epsilon(-k, \downarrow). \end{aligned} \quad (2.2)$$

このような系としては，Rashba 効果 [2] や Dresselhaus 効果 [27] がよく知られている．一方で空間反転対称性があるが，時間反転対称性が破れている時， k に関しては対称だが周波数方向にスピ

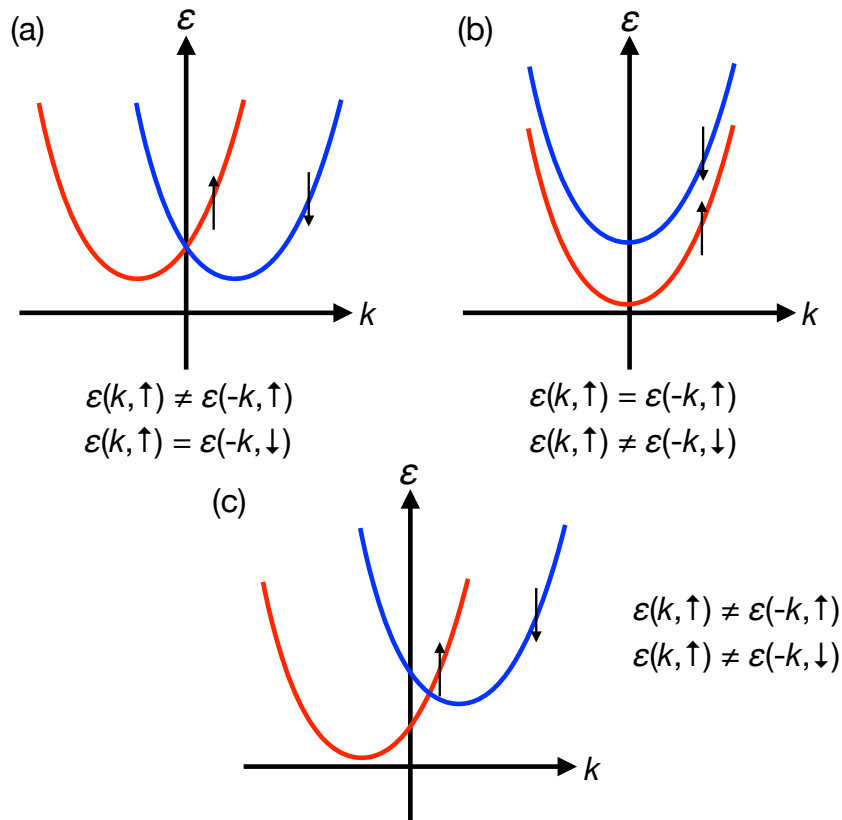


図2.1 簡略化した電子の分散関係. k は波数, ϵ はエネルギー, \uparrow, \downarrow はスピン自由度を表す.(a) 空間反転対称性のみが破れているときの電子の分散関係. それぞれのスピンで波数方向に関して分散関係が非対称な構造をとる.(b) 時間反転対称性のみが破れている時の電子の分散関係. 波数には対称な構造をとるが, スピンに応じてエネルギー方向に分裂する.(c) 空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れている時. 分散関係が波数の正負でスピンによらず縮退が解け, 波数の反転で異なる応答が期待される.

ン縮退が解ける (図 2.1(b)):

$$\begin{aligned} \epsilon(k, \uparrow) &= \epsilon(-k, \uparrow), \\ \epsilon(k, \uparrow) &\neq \epsilon(-k, \downarrow). \end{aligned} \tag{2.3}$$

磁場中におけるゼーマン分裂がこの例である. そして空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れている時, $+k$ と $-k$ でスピンによらず分散関係の縮退が完全に解ける (図 2.1(c)). この場合, 波数の正負で系が異なる応答を示すことが予想される*1.

ここで行った対称性と分散関係の関係は, 電子系に限らず分散関係を考えることができる粒子や準粒子であれば同様な議論が可能である. 特に光 (フォトン) に関しては対称性と伝搬現象の関係が古くからよく研究されている. 空間反転対称性の破れた異方的な媒質中を伝搬する光の特異な伝搬現象は, 自然光学活性と呼ばれ, 1800 年代初めから知られている [14]. 偏光板を通過した単色光

*1 詳細な議論は付録 C 参照

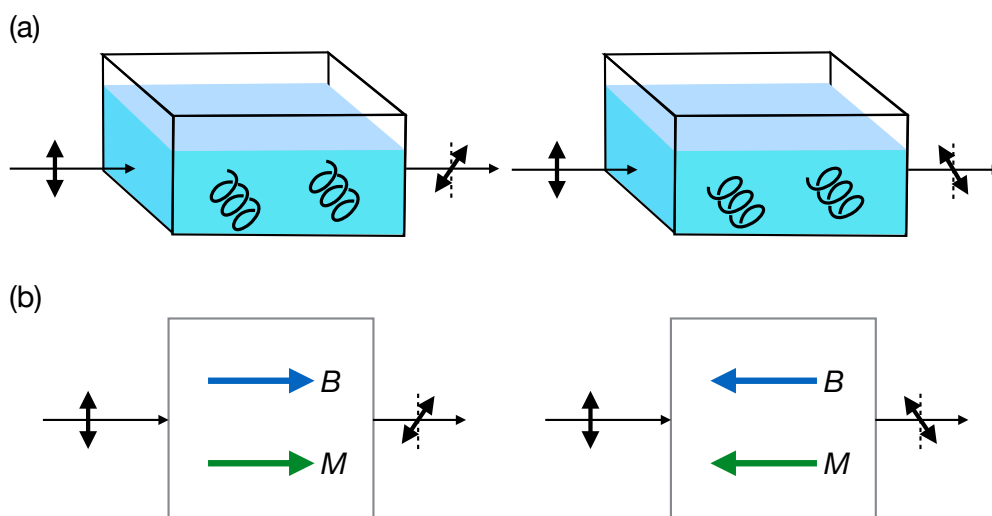


図2.2 (a) 自然光学活性による旋光性の概念図. らせん構造をもつ分子の溶液中を直線偏光が透過すると, 偏光面の回転が起こる. 媒質中に含まれるらせん構造の巻き方が逆になると偏光面の回転方向も逆になる. (b) 磁気光学活性 (Faraday 効果) による旋光性の概念図. 磁化や磁場の向きが逆になると偏光面の回転方向が逆になる.

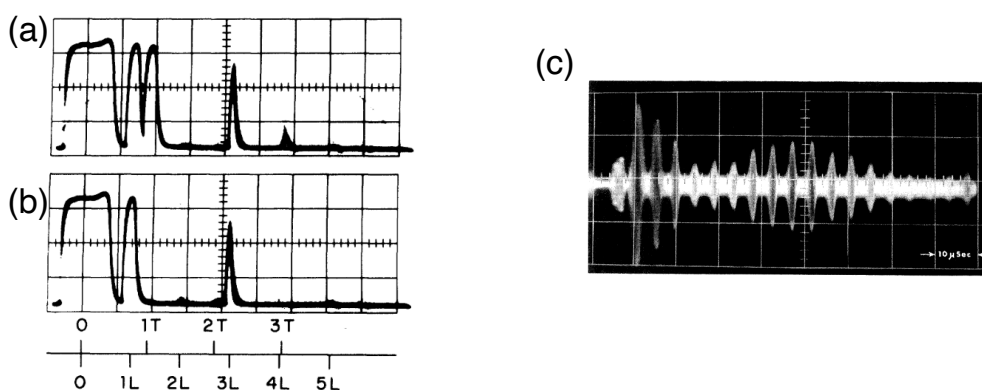


図2.3 (a)(b) α -水晶における自然音響活性. 弾性波励起用の圧電素子に対して -45° (a) と $+45^\circ$ (b) 回転させた圧電素子で測定した透過信号. 横波の最初のエコー到達時刻を表す“1T”の時間で (a) のみに横波の透過信号が観測させている [28]. (c) YIG における音響 Faraday 効果. パルス信号がサンプル内を多重反射して得られるエコーの振幅が, Faraday 回転により振動している [13].

がブドウ糖などの砂糖水を透過すると, 透過光の偏光が回転する旋光が生じる (図 2.2(a)). この現象は砂糖の構造が空間反転対称性の破れたらせん構造を持っていることに起因している. 旋光性は砂糖水のような溶液のみならず, 水晶のような結晶がらせん構造を持つ固体中でも観測される. これに対して物質の構造ではなく外部から印加された磁場や物質内部の磁化によって時間反転対称性が破れている場合も同様に直線偏光の偏光面の回転が起こる. これを磁気光学活性における旋光性として Faraday 効果という (図 2.2(b)).

弾性波現象における対称性の破れた系の非自明な応答は, 光学応答との類似性から研究が行われ

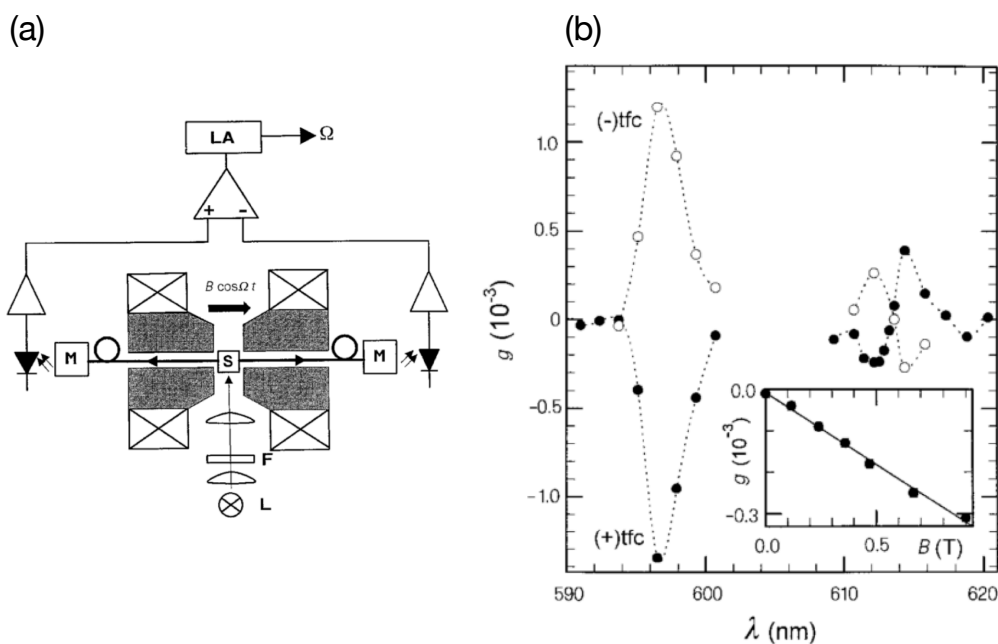


図2.4 (a) 外部磁場下でのらせん構造を持つ分子の発光強度の測定.(b) 磁場と平行な方向と反平行な方向に対する発光スペクトルの差. 磁場は 0.9 T. 白丸と黒丸は互いにらせんの巻き方逆な錯体における測定結果. 有限の非相反な応答が見られる. 分子のらせん構造が逆巻きなものに対して同様の測定を行うと, 磁場に対して逆の非相反性を示す. インセットは非相反性に対する磁場依存性である [30].

ている. 自然光学活性に対応する「自然音響活性」と呼べる横波音波の偏向面の回転は, らせん型の結晶構造を持つ水晶中で超音波測定により観測されている [28] (図 2.3(a)(b)). また, 磁性体中の Faraday 効果の弾性波版である音響 Faraday 効果に関してはフェリ磁性体 $Y_3Fe_5O_{12}$ (YIG) における超音波測定で観測されており, 強磁性マグノンとの結合によって説明されている [13] (図 2.3(c)). また, 反強磁性体 Cr_2O_3 [29] においても反強磁性マグノンとの結合を起源とする音響 Faraday 効果が観測されている.

2.1.2 非相反性

自然光学活性や磁気光学活性は空間反転対称性か時間反転対称性のどちらか一方のみが破れた場合に生じる光学現象である. 前節で行った対称性に関する同様の考察から, 空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れた系では, 伝搬方向で応答が異なることが期待される. このような効果を非相反性と呼び, 近年光学応答に限らず物質中の種々の素励起に対して研究が行われている.

非相反性の研究は Rikken らによる光学現象における実験 [30] が発端であった. この研究 [30] では磁場下においたらせん構造をもつユーロピウム錯体 $Eu((\pm)tfc)_3:tris(3-trifluoroacetyl-\pm-camphorato) europium(III)$ から発せられる, 磁場と平行または反平行な方向の発光スペクトルを測定した (図 2.4(a)). 結果, 磁場との相対的な向きによって発光強度に差があることと, 錯体のら

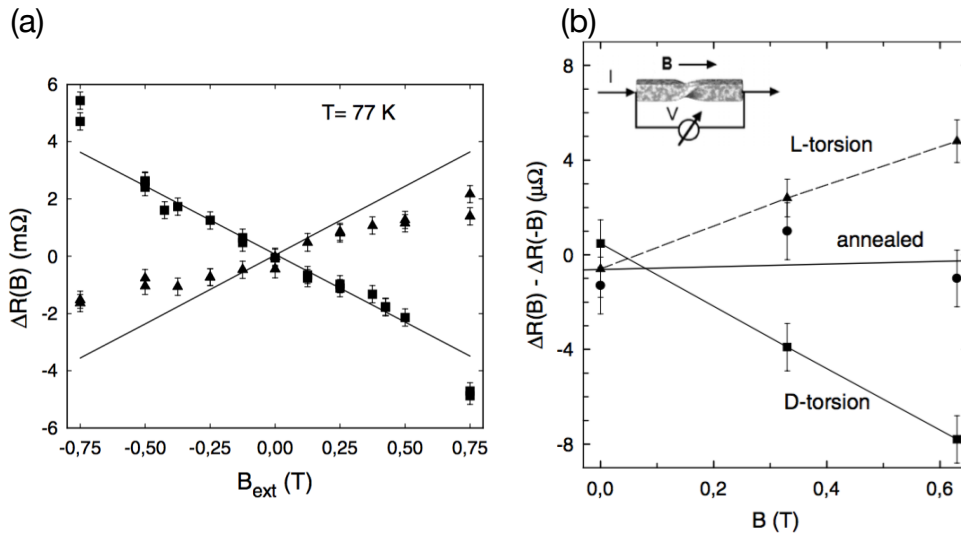


図2.5 (a) カイラルな構造に作製された Bi の 2 端子磁気抵抗の磁場依存性. 電流を正の向きと負の向きに流した時の磁気抵抗の差 $\Delta R(B)$ が磁場に対して線形に変化している. 三角と四角はらせんの巻き方が逆のサンプルにおける測定結果.(b) 磁場の正負における差 $\Delta R(B) - \Delta R(-B)$. 巻き方で磁場に対する応答が逆になる [33].

せん構造の巻き方が逆になるとその差も反転することを観測した (図 2.4(b)). この現象は無偏光で生じるため, 自然光学活性や磁気光学活性とは区別されて磁気カイラル効果と呼ばれる非相反現象である. この系ではらせん構造が空間反転対称性を破り, 外部磁場が時間反転対称性を破ることでこのような非相反な応答が出ている. また Rikken らは光の透過についても非相反性を報告している [31]. 磁気カイラル効果はらせん構造によって空間対称性が破れて生じる非相反性であるが, マルチフェロイクスと呼ばれる物質群においては電気分極を持つ極性構造により空間反転対称性が破れて生じる光の非相反性が観測された. 例えば極性のフェリ磁性体 GaFeO_3 において X 線の非相反伝搬が観測され [32], ほかに可視光領域や THz 帯, マイクロ波など幅広い領域でマルチフェロイクスにおける非相反電磁波応答が観測されている [7].

非相反現象は光学現象に限ったものではない. Rikken らは最初の光の非相反応答の報告 [30] の後に, 電子系においても同様の磁気カイラル効果を観測した [33]. 電子の流れる導体がらせん構造を持つことで空間反転対称性が破れると, 磁場中を流れる電流は相反性が保障されない. この報告では磁気抵抗の大きい Bi をらせん構造を持つように加工し, その磁気抵抗を測定した (図 2.5(b)). 電流の流れる方向を正負で反転させた時の磁気抵抗は有意な差が生じている (図 2.5(a)). また, らせんの巻き方を逆にするとその磁場依存性が反転することが確かめられた (図 2.5(b)).

ごく最近になって, マグノンの伝搬に関しても非相反伝搬現象が, 空間反転対称性の破れた強磁性体 LiFe_5O_8 において観測された [34]. この系では結晶構造が空間反転対称性を破っていることで, スピン軌道相互作用を起源とする DM 相互作用が磁気モーメント間に有限に働く. この相互作用によってマグノンの分散関係が波数 k 空間において非対称な構造を持ちうるため (図 2.6(a))[35], 有限の k を持つマグノンの伝搬が非相反な応答を示す (図 2.6(b)(c)).

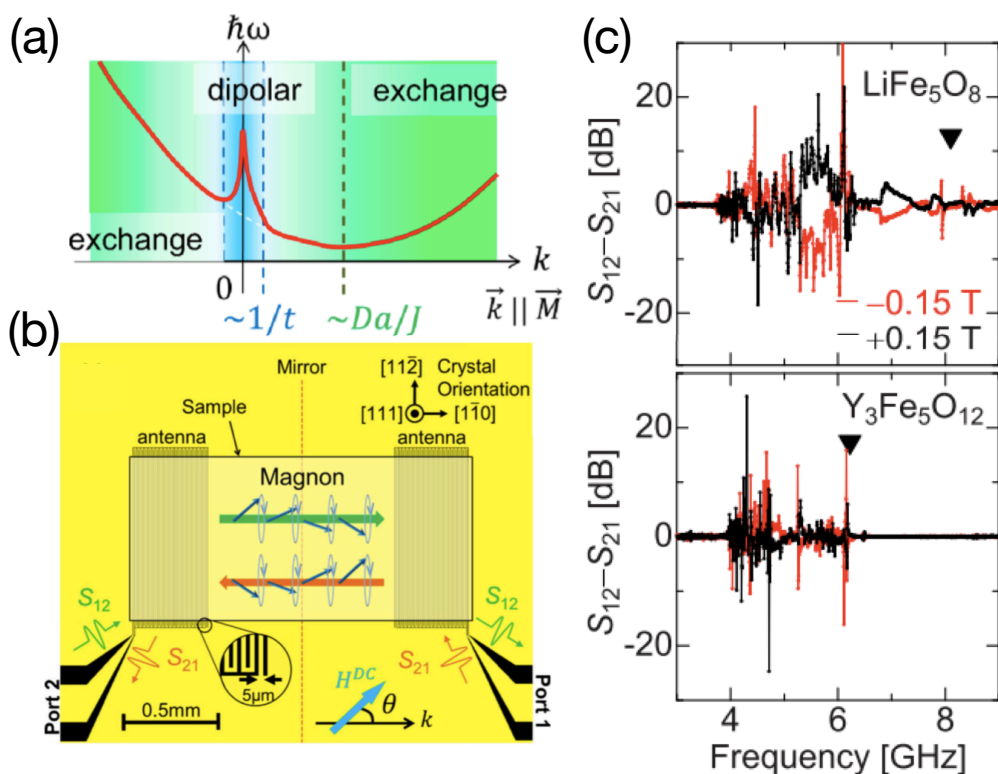


図2.6 (a)Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用があるときのマグノンの分散関係. 波数 k に線形な項が加わり k 空間で非対称な形状になる.(b) 非相反なマグノン伝搬を測定するための実験配置.meander 型のアンテナによる交流磁場で磁性体上に励起したマグノンの伝搬を測定する.(c) マグノンの透過強度の非相反成分 $S_{12} - S_{21}$. 空間反転対称性の破れた磁性体 LiFe_5O_8 における有限波数マグノンの透過に伝搬方向によって有限の差が有ることが示されている. またその非相反性は磁場の反転によって反転している. 対照実験として測定された空間反転対称な磁性体 $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ のマグノンの伝搬は非相反性を示さない [34].

2.1.3 弾性波の非相反現象

ここまで、電子や光、マグノンに関する非相反現象を見てきた。非相反応答は、扱う対象が異なっているが、サンプルの対称性や磁場に対する応答に類似性がある。このことから非相反現象は、粒子や準粒子の種類によらない現象であることが期待されるが、弾性波現象に関してはあまり研究がなされていない。弾性波でも非相反現象の観測のためには、他の系と同様に空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れていることが必要であると考えられる。これまで見てきたように空間反転対称性を破るためには結晶構造がらせん構造か電気分極のある極性構造をもつ場合が多く、また時間反転対称性を破るために磁場や磁気秩序を伴う系で多く研究されている。

弾性波の非相反現象の数少ない先行研究として、Heil らによる Al 単結晶上の SAW 伝搬の研究がある [36]。Al 単結晶は空間反転対称性のある結晶構造だが、ここでは物質の「表面」が空間反転対称性を破る要素となっている。SAW は物質の表面に局在する弾性波モードであるので、空間反

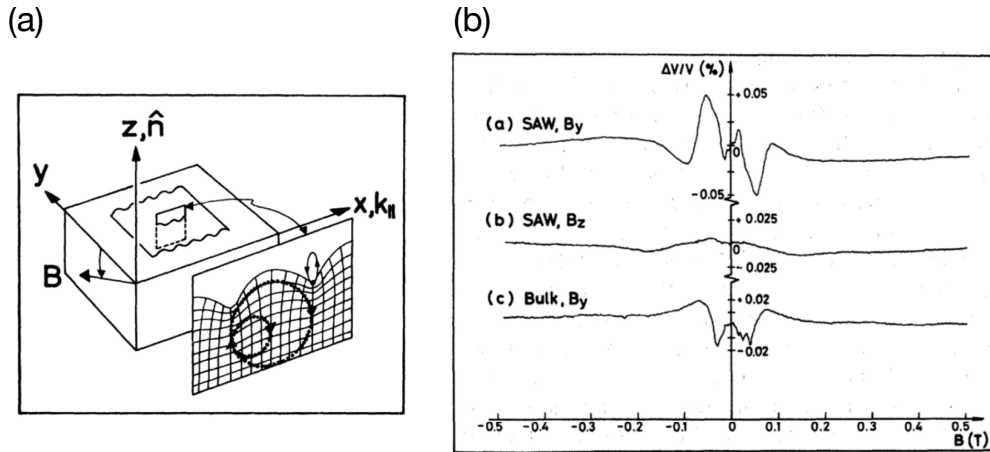


図2.7 (a)Al単結晶中を伝搬するSAW.(b)磁場が y 軸に平行な時SAWの速度が磁場に対して非対称な応答をしている.磁場が z 軸に平行な時,またはAl結晶中のバルク波に対する測定では非相反応答を示していない [36].

転対称性の破れた系での弾性波と捉えることができ, 非相反現象のための対称性の条件を満たす. Heil らの実験は 4.2 K において磁場中で行われ, SAW の伝搬方向に対して垂直な方向に磁場を印加した状態で SAW の速度を測定している (図 2.7(a)). 磁場が界面に平行に印加されている時 (図 2.7(a) で y 軸に平行), SAW は磁場に対して非対称な応答を示す, 非相反伝搬が観測されている (図 2.7(b) 内の (a)). 非相反性の大きさは位相速度変化 $\Delta v/v$ で 0.1 % 程度である. 磁場が界面に垂直な方向 (z 軸方向) の場合の SAW, または SAW ではなくバルク波の伝搬に関しては相反な伝搬を示しており, 対称性の議論と一致する (図 2.7(b) 内の (b)(c)). 非相反性の起源は, SAW における粒子の回転運動と磁場中の電子のサイクロトロン運動とが不純物散乱を介して結合することによって生じていると説明されている.

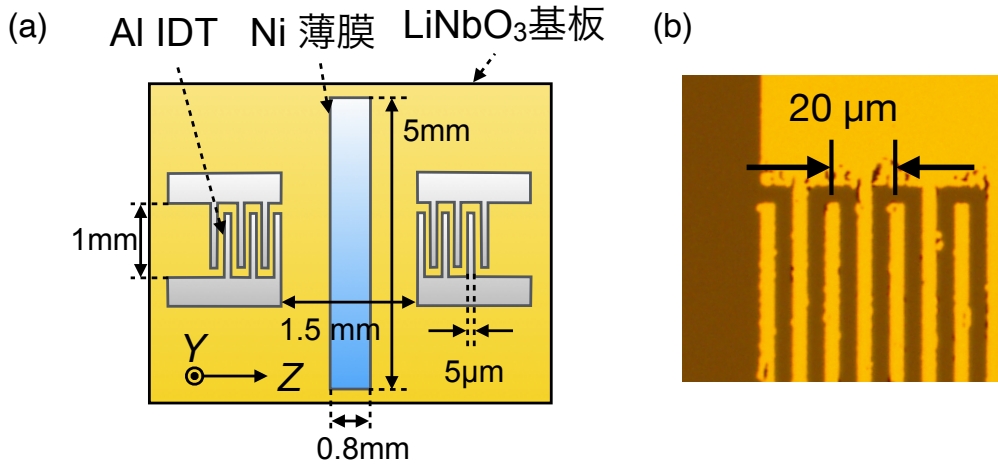


図2.8 (a) 本研究で作製した SAW デバイスの概要図と寸法. $5 \times 5 \text{ mm}$ の Y カット LiNbO_3 結晶の表面に IDT を作製した. 電極間の間隔は 1.5 mm であり, くしの一本一本の間は $5 \mu\text{m}$ である. (b) IDT の拡大写真. くしの周期は $20 \mu\text{m}$ である.

2.1.4 目的

ここまで概観してきたように, 系の空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れている場合, 光や電流, マグノンの伝搬に関して非相反伝搬が実現されてきた. しかし, 物質中の最も基本的な波動である弾性波 (フォノン) に関しては Heil らによる研究以外にはほぼ皆無である. Heil らの研究は極低温下で行われているため, デバイスとしての応用を考える上では室温での非相反性の実現が望ましい. また, 時間反転対称性を破るために外部磁場を利用しているが, 物質中の強磁性秩序による対称性の破れを利用した方が非相反性の巨大化が期待できる. 起源として考えられているサイクロトロン運動との結合も非共鳴領域での結合であり, 磁性体中の素励起であるマグノンと共鳴的に結合させることでも非相反性の巨大化が期待できる.

そこで本研究では, 先行研究と異なる機構による室温下での巨大な弾性波非相反伝搬の観測を目的とした. 空間反転対称性と時間反転対称性の同時に破れたフォノン系を実現するために, 磁性薄膜中の強磁性共鳴と結合した SAW 伝搬の研究を行った.

2.2 実験手法

2.2.1 表面弾性波デバイス

磁性体と結合する SAW を実験的に利用するために, 図 2.8(a) のような Ni 薄膜を持つ SAW デバイスを作製した. 圧電体基板としては印加電圧が効果的に弾性波のひずみに変換されるよう, 変換効率の指標を表す機械結合定数の大きい LiNbO_3 を利用した. 基板のサイズは $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$, 0.5 mmT のものを使用した. LiNbO_3 結晶の Y 軸が表面に出ている基板を用い, SAW の散逸が

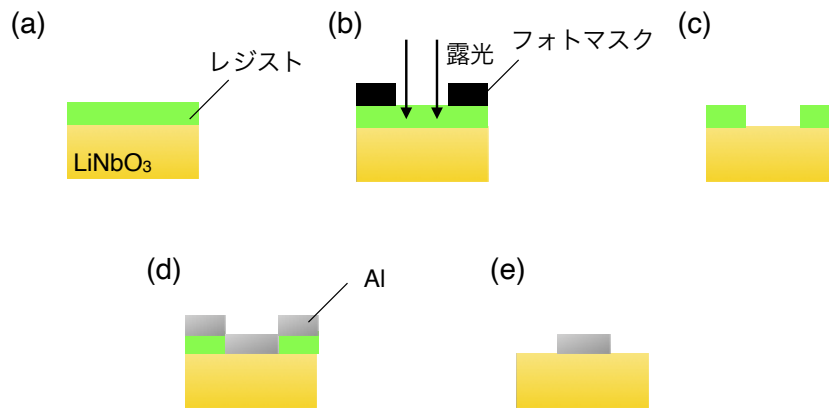


図2.9 フォトリソグラフィーの工程 (a)LiNbO₃ 基板にレジストをスピコート. (b) フォトマスクを密着させ露光 (c) 現像液で現像 (d)Al を蒸着 (e) リフトオフ

なくなるよう表面が鏡面研磨されているものを用いた. くし形電極 (interdigital transducer, IDT) はフォトリソグラフィーによって LiNbO₃ 基板表面に作製した. アセトン, IPA で 2 分ずつ基板を超音波洗浄した後, 基板表面にレジスト (MICROPOSITTM S1813G PHOTO RESIST) をスピコートした (図 2.9 (a)). スピコートの回転速度と回転時間は 750 rot/min, 5 sec のあと, 6000 rot/min, 30 sec である. その後, 85 °C のオーブンで 30 分プリバイクし, レジストを固化した. 露光は水銀灯で行い, 出力は 48 V, 4.8 A である. 露光時間は 2 - 3 sec (図 2.9 (b)). 現像液 MICROPOSITTM MF CD-26 DEVELOPER を用いて現像. 時間は 10 秒で行なった (図 2.9 (c)). IDT の材料には Al を用い, IDT の厚さは 70 nm で基板上に電子ビーム蒸着によって蒸着した (図 2.9 (d)). 蒸着後, アセトン中で超音波振動によってリフトオフを行い IDT を作製した (図 2.9 (f)). 電極一本とその間の幅はどちらも 5 μm であり, SAW が伝搬する IDT 間の間隔は 1.5 mm である. 電極は LiNbO₃ 結晶の Z 軸に SAW が伝搬する方向に作製した (図 2.8).

IDT 間に SAW が伝搬するため, その伝搬路中に磁性体を配置することで時間反転対称性の破れた系を伝搬する SAW を観測することができる. 磁性体中を通過した SAW はその影響を受けて強度や位相が変化したものとして検出される. 本研究では磁性体として Ni 薄膜を用いた. SAW デバイスの IDT 間の伝搬路中に Ni の薄膜を蒸着させることで Ni 薄膜中を SAW が伝搬する. Ni の薄膜は, SAW デバイス表面をアルミホイルでマスクし, スパッタ装置を用いて蒸着した. 薄膜の厚みはスパッタ装置内の水晶振動子のレートから計算して 30 nm である.

Ni 薄膜の他の磁性体のサンプルとしてはイットリウム鉄ガーネット (YIG) も用いて行ったが, SAW の伝搬路中にバルクの YIG サンプルを置くだけでは SAW の減衰が大きく, 透過信号を検出できなくなるため, 薄膜のような低減衰のサンプルに限られる. また強磁性薄膜として Co や Py (Ni-Fe 合金) の薄膜もサンプル候補として実験を行なったが, Co は強磁性共鳴周波数が高く, SAW と共鳴的に結合することが困難であった. また Py は磁気異方性の小さくなるように組成比が調整されており, その結果磁性と格子の間の結合が弱く, SAW の信号変化が小さかった. その結果この中では Ni が本研究において最適な磁性体であった. 以下では Ni 薄膜の実験結果のみ報

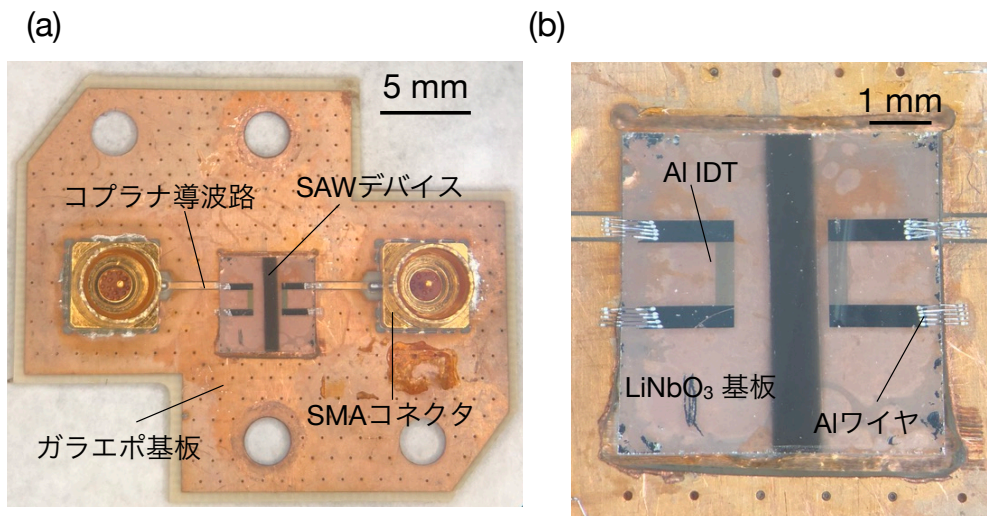


図2.10 (a) ガラエポ基板に組み込まれた SAW デバイスの写真.(b)SAW デバイス部分の拡大写真.Ni 薄膜が IDT と平行に蒸着できなかったが、本研究の目的とする磁場依存した非相反性の観測には影響がなかった.

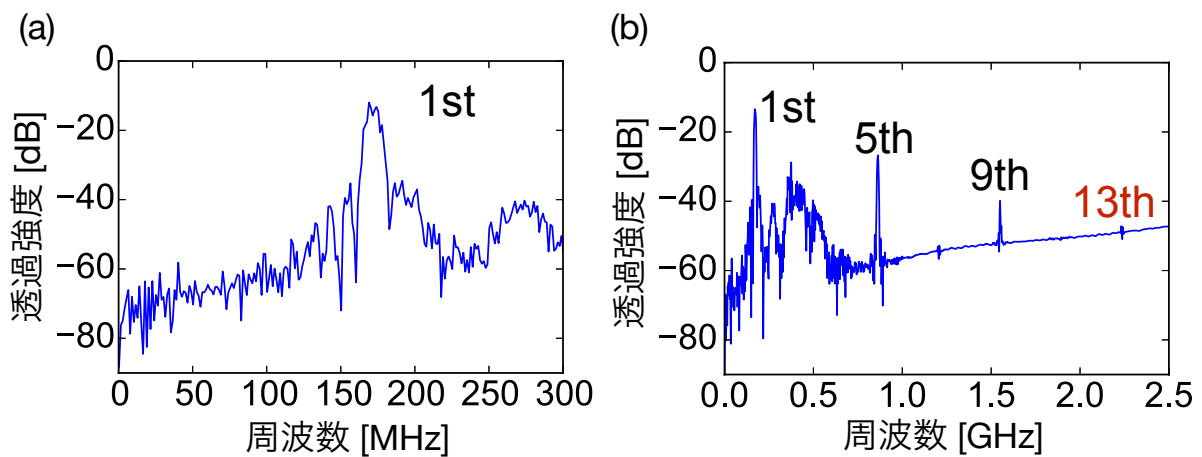


図2.11 (a)(b) ベクトルネットワークアナライザを用いて測定した SAW デバイスの透過スペクトル.(a) 基本波の 170 MHz 付近の透過スペクトル.(b)13 次高調波までの透過スペクトル.

告する. 他のサンプルの詳細に関しては付録で議論する.

上記の SAW デバイスを測定系と通信させるため、マイクロ波導波路であるコプラナ導波路を持つガラスエポキシ基板 (Au メッキ) 内に組み込み、コプラナ導波路と SAW デバイスの IDT とを Al ワイヤでボンディングした (図 2.10). 基板上に設置された二つの SMA コネクタを通して測定プローブの同軸ケーブルと接続し、測定系と通信できる.

図 2.11 に、SAW デバイスの透過特性の測定結果を示す. SAW の速度は一般に物質の種類と界面として利用するカット面、伝搬方向によって異なるが、本研究で用いた LiNbO_3 Y カット基板、Z 方向伝搬の SAW (Rayleigh 波) の速度は 3470 m/s である [16]. くしの空間変調の周期が 20 μm

であるから電極に交流電圧を印加したとき励起される SAW の周波数は基本波で 173.5 MHz と計算される。実験で用いた SAW デバイスの透過スペクトルをベクトルネットワークアナライザー (Agilent Technologies E5071C) を用いて測定すると、図 2.11(a) のように確かに 170 MHz 付近に強い透過が見られ、これが SAW の透過信号である。ピーク以外の透過信号はアンテナ間の空气中を伝搬する電磁波か、Rayleigh 波以外の意図しない SAW モード (270 MHz あたり) の透過信号と考えられる。より高周波の領域まで透過スペクトルを測定すると、SAW の 5 倍波、9 倍波、13 倍波も観測された (図 2.11(b))。本研究では強磁性共鳴と結合させるため、より高周波の SAW が望ましく、実験で得られたなかで最も周波数の高い 13 倍波の 2.2 GHz 程度の SAW を利用した。

2.2.2 測定系

プローブとマグネット

SAW の信号の磁場依存性を測定するため、超伝導マグネットによる直流磁場下での測定を行った。上記の SAW デバイスをマイクロ波測定用プローブの先端に取り付け測定した (図 2.12)。クライオスタッド内のサンプルスペース内にプローブを挿入しスプリット超伝導マグネット (Oxford instrument Spectromag) による直流磁場下の測定を行った。デバイスはプローブ内の 2 本のセミリジットケーブル (KEYCOM ULT-04) を通してプローブ上部の SMA コネクタとつながっており、外部の測定系と通信できる。クライオスタッドのサンプルスペース上部には回転機構が付いており、プローブを水平方向に自由に回転できる。超伝導マグネットによる直流磁場は水平方向に印加され、SAW デバイスの表面に並行な方向に磁場がかかる配置になっている。

SAW の信号は温度に非常に敏感で、安定した磁場依存性の測定のためには SAW デバイスの温度を高い精度で一定 (測定では 280.00 K に設定) に保つ必要がある。ガラエポ基板上にセルノックス温度計を固定し、基板の温度をモニターした。またプローブの先端のマンガン線ヒーターと、クライオスタッドのヒーターでデバイスの温度調節を行った。温度安定性を高めるため、プローブ先端をアルミホイルで 1, 2 周巻くことで空間体積を小さくし、サンプルスペース内を大気圧程度にヘリウムガスで満たした上で長時間放置し、温度安定を待ってから測定を行った。

測定回路

本研究における SAW の透過信号の測定方法を説明する。SAW デバイスの IDT は圧電基板に交流電場を印加する以外にもそれ自身がアンテナとして電磁波を放射・検出している。それによって SAW を介さない電磁波による直接の信号も SAW デバイスの透過信号として検出されるため、ネットワークアナライザーを用いた連続的な測定では SAW の信号と電磁波の信号との混信が避けられない。この電磁ノイズの影響を排除するため、本研究では電磁波と音波の群速度の差を利用したパルス変調信号による時間分解測定を行った。以下ではこの測定手法を測定系全体の説明と平行して説明する。

マグネット外部の測定系の回路の概要を図 2.12 に示した。測定回路の流れは、信号発生器から発生したマイクロ波がマグネット内の SAW デバイスを通過したのちにオシロスコープで測定される

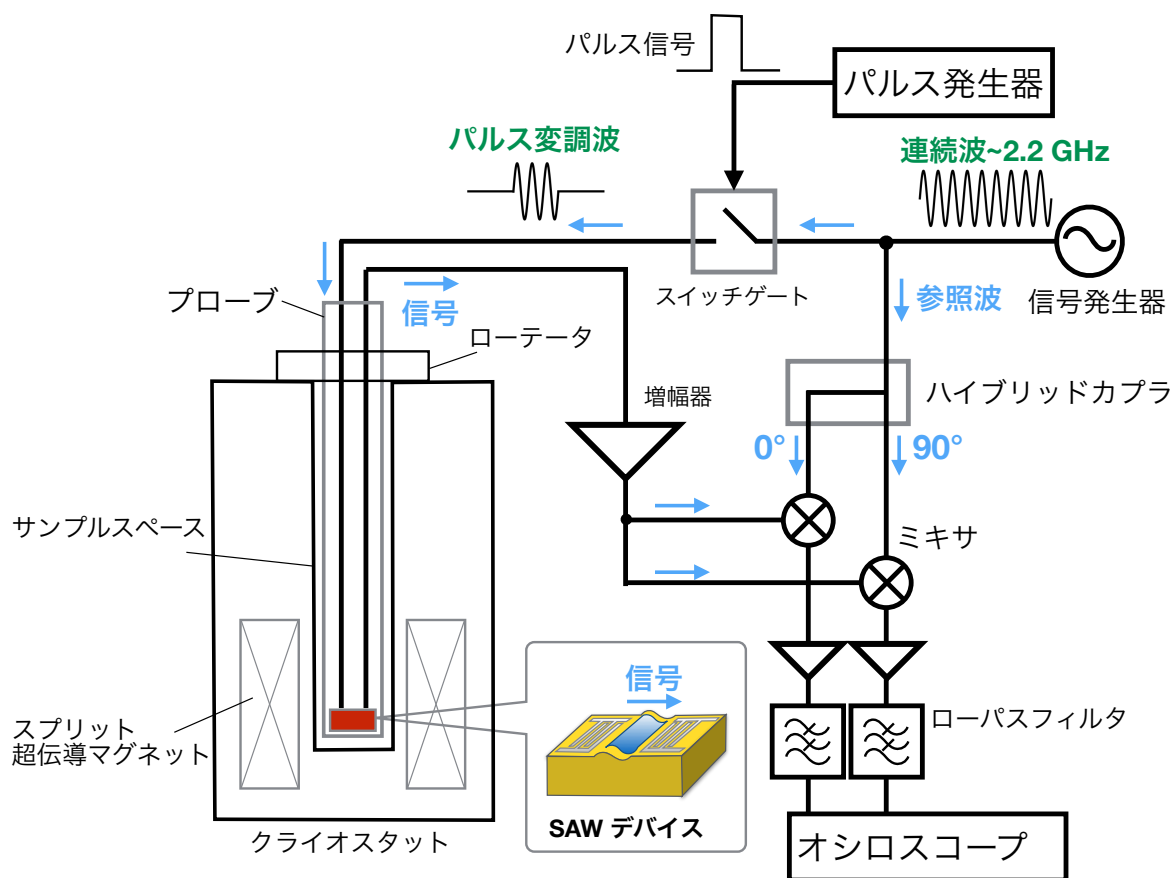


図2.12 測定系全体の回路図.SAW デバイスはマイクロ波測定用のプローブの先端にとりつけ、クライオスタッド内のサンプルスペースに挿入している。

というものである。信号発生器 (Agilent Technologies E8257D) からは周波数が 2.2335 GHz のマイクロ波が連続的に発生している。直後にディバイダー (図 2.12中黒丸で表記) で信号を二つに分割する。一方は SAW デバイスに向かう入力信号で、もう一方はホモダイン検波用の参照信号である。

デバイスに対するマイクロ波入力信号をパルス変調させることで、SAW と電磁波の透過信号を時間領域で分解して測定できる。SAW デバイスに向かう信号はまずスイッチゲートを通してパルス変調される。スイッチゲートは短い時間だけ信号を透過させる機器で、このスイッチゲートに対し外部のパルス発生器 (TEXIO FGX-295) から 400 ns だけパルス波信号を入れることで、連続的なマイクロ波のうち 400 ns だけパルス変調された 2.2335 GHz の信号がゲートを透過する。パルス変調された信号をローパス回路を通して変調成分だけを取り出した信号が図 2.13(a) である。入力信号の立ち上がりの時間を $0 \mu\text{s}$ としてプロットした。このパルス変調された入力信号を SAW デバイスに入れることで SAW が励起され、同時に電磁波も放射される。一方の IDT からもう一方の IDT まで電磁波は光速で伝搬し、対して SAW は音速 3470 m/s で伝搬する。IDT 間を伝搬するのに要する時間に差があるため、検出される信号は時間軸に対してまず電磁波が先に検出

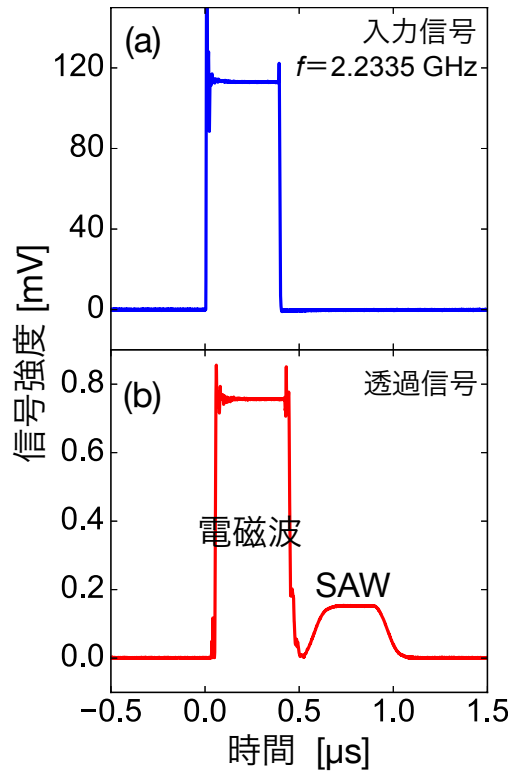


図2.13 (a) パルス変調された入力信号. ガンダイオードを用いて電圧の絶対値のみを検出し高周波成分をカットすることで, パルス変調成分のみを示している.(b)SAW デバイスにパルス変調された信号を入力した時の透過信号. 電磁波の信号と SAW の信号が時間軸で分解されて検出されている. この強度はすぐ後に述べる位相分解した測定結果から解析して算出したものである. 透過強度の大きさは測定系 (図 2.12) に示されている増幅器による増幅を補正し, アンプがない場合を想定して測定される強度を示している.

され, その後およそ $1.5 \text{ mm} / (3470 \text{ m/s}) = 430 \text{ ns}$ の時間遅れて SAW が検出される. その透過信号を示したのが図 2.13(b) である. 図 2.13(b) で大きく強度が出ているのが電磁波による透過信号であり, $0.5 \mu\text{s}$ のあたりから遅れて立ち上がっているのが SAW の信号である.SAW の信号の立ち上がりが階段状ではなくなめらかなのは, SAW デバイス上の IDT の交流電場によって圧電基板上に SAW が共振するまでに時間がかかるためである. このようにして電磁波の信号と SAW の信号を時間軸上で完全に分離することで純粋に SAW の信号のみを測定することができる.

プローブから出てきた信号はまずマイクロ波プリアンプによって増幅され, ディバイダーで二つの信号に分割される. この二つをそれぞれ参照信号とミキシングしてホモダイン検波を行った. 参照信号はあらかじめハイブリッドカップラによって分解した. これは片方のみの位相を 90° ずらして分解することができる. 位相を直交に分割した参照信号とのホモダイン検波により, SAW の透過信号のうち参照信号と同位相成分と直交位相成分とを同時に測定することができる [15]. ミキシング後の信号を BNC ケーブルでダイナミックアンプに接続し再度増幅してデジタルオシロスコープ (Tektronix DPO3012) によって測定した. この位相の直交を保つためにミキシング後の BNC ケー

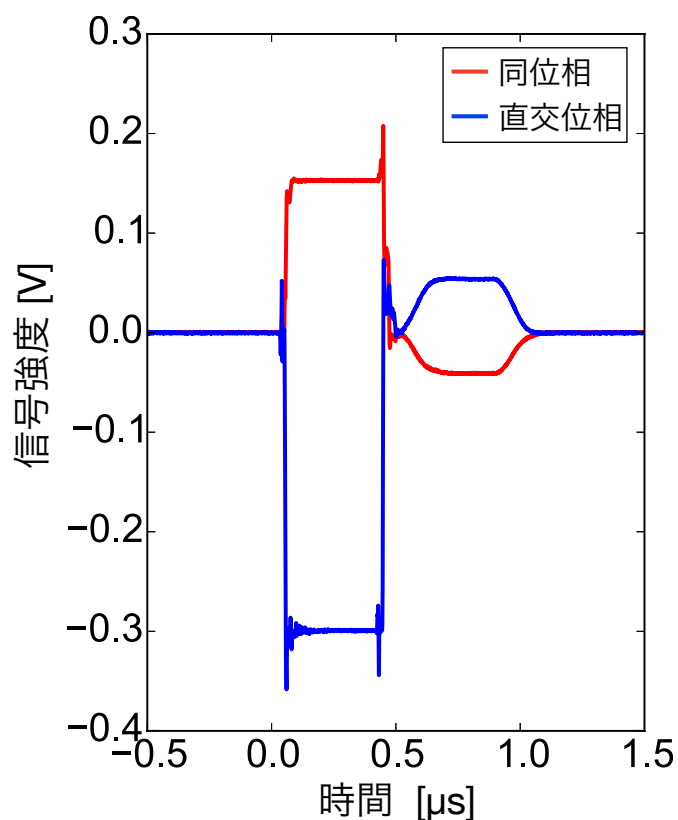


図2.14 オシロスコープによって測定されるデータ. 透過信号の直交位相成分が検出されている. 同位相とは, 参照信号と同位相であることを意味する.

ブルは同じ型で同じ長さのものを使った.

オシロスコープで得られた測定の生データを図 2.14に示す. このデータの同位相成分を V_1 , 直交位相成分 V_2 とすると透過信号の強度 V と位相 θ を

$$\begin{aligned} V &= \sqrt{V_1^2 + V_2^2} \\ \theta &= \arctan(V_2/V_1) \end{aligned} \quad (2.4)$$

によりそれぞれ求めることができる. 位相 θ は, SAW デバイスを透過する経路をたどる信号の参照信号と比べた位相差を意味する. 位相の原点には不定性があるが, のちの解析では位相の相対変化のみを議論する. この強度 V をアンプによる増幅を補正してプロットしたのが先の図 2.13(b) である.

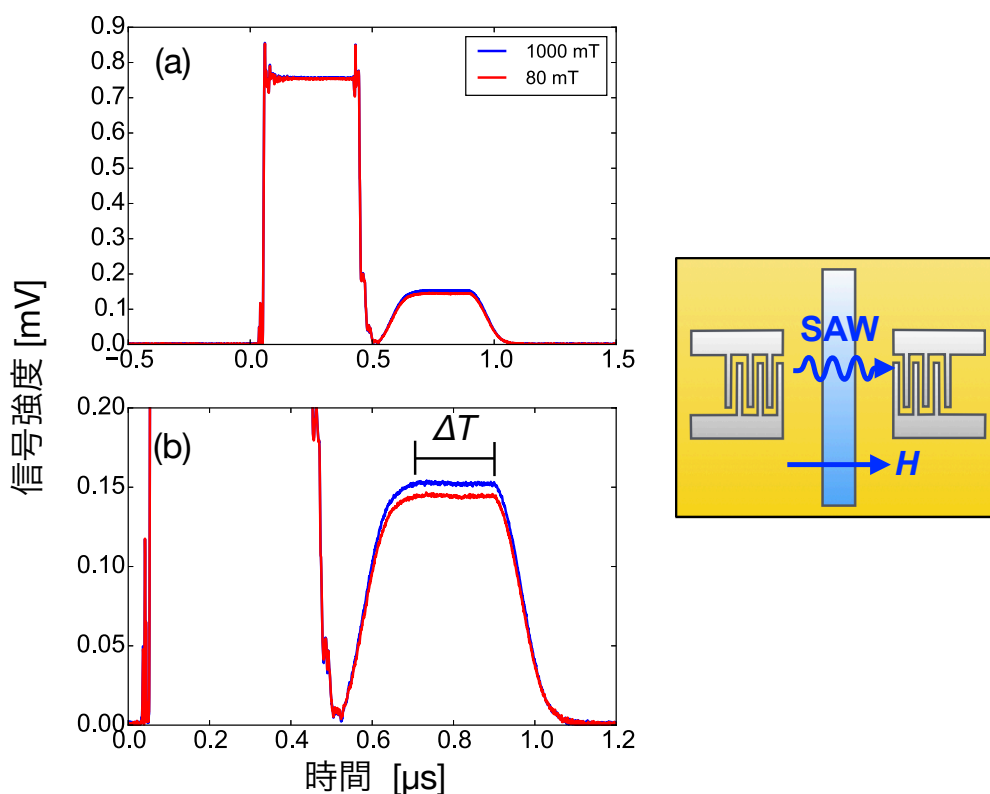


図2.15 (a) 磁場下での SAW デバイスの透過信号. 温度は $T = 280$ K である. 磁場は SAW の伝搬方向と平行に印加しており, 80 mT と 1000 mT の二つの値での透過信号を示す.(b)SAW の透過信号部分の拡大.1000 mT での透過よりも 80 mT の透過の方が強度が小さい. $\Delta T = 0.2$ μs で示された時間の測定値の平均を解析する.

2.3 実験結果と考察

2.3.1 SAW 透過信号の磁場依存性

SAW の磁場強度依存性

まず SAW の透過強度の外部磁場による変化を示す. 図 2.15 に外部磁場を SAW の伝搬方向に平行に印加した状態でのデバイスの透過強度を示す. 磁場の強度は 80 mT と 1000 mT の二つの場合を示している. 図 2.15(b) に示す拡大図より, 磁場が 1000 mT の場合の透過強度に比べて, 80 mT の時の透過強度のほうが小さいことが分かる. 言い換えれば, 80 mT のほうが SAW の吸収が増大している.

SAW の磁場変化を評価するために, 各磁場における吸収強度を定量化する. オシロスコープで検出する信号強度 (電圧) を時間 t , 外部磁場 H の関数として $V(t, H)$ とする. $V(t, H)$ のうち SAW の信号が飽和している時間 (図 2.15(b) で ΔT で示した区間) だけの信号強度の平均値を $\bar{V}(H)$ とする. これを用いて磁場に依存した吸収強度 $A(H)$ を, 高磁場からの透過強度の相対的な

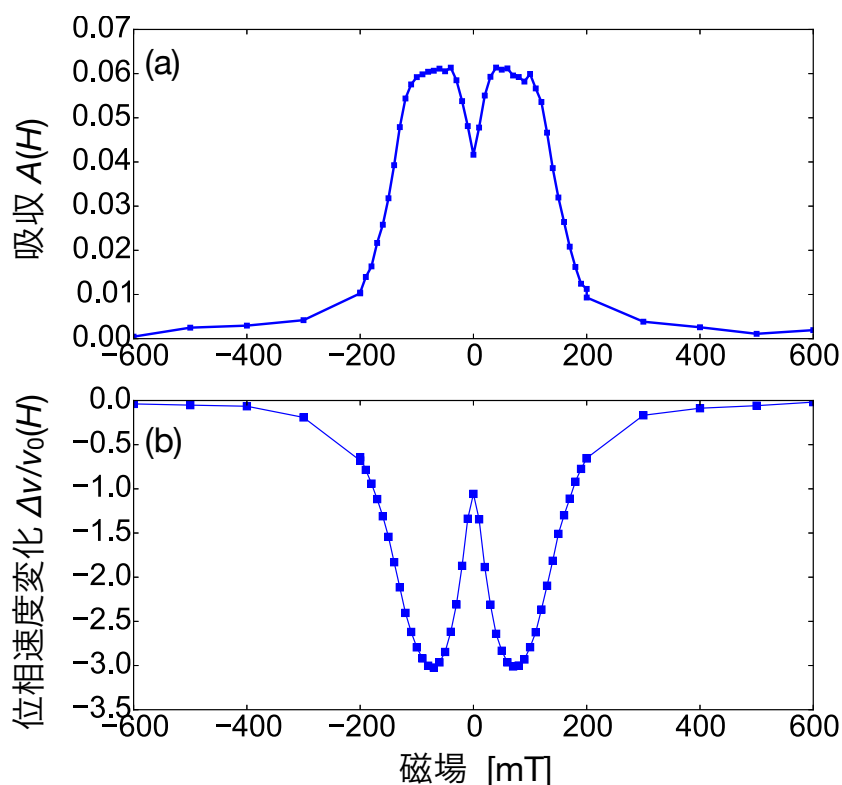


図2.16 (a)SAWの吸収の磁場依存性. 磁場はSAWの伝搬方向と平行に印加している.(b)SAWの位相速度変化の磁場依存性.

変化として

$$A(H) \equiv \frac{\bar{V}(H) - \bar{V}(H = 1 \text{ T}/\mu_0)}{\bar{V}(H = 1 \text{ T}/\mu_0)} \quad (2.5)$$

によって定義する. $\mu_0 H = 1 \text{ T}$ の磁場は, のちに議論するようにこの測定においてSAWの磁場変化が見られないほど十分な高磁場と言える. 磁場をスイープしながら測定し, 各磁場における $A(H)$ を算出してプロットしたものが図2.16(a)である. ヒステリシスの影響を排除するためにマイナス磁場からのスイープと, プラス磁場からのスイープでそれぞれ算出した二つの $A(H)$ の平均の値をプロットしている. 図2.16(a)では, おおよそ $-200 \text{ mT} \leq \mu_0 H \leq 200 \text{ mT}$ の低磁場の範囲で大きな吸収が見られ, $\mu_0 H = 0 \text{ mT}$ 付近で極小となる. 一方で高磁場領域では吸収の磁場依存性は小さくなり, $|\mu_0 H| \geq 400 \text{ mT}$ の領域ではほとんど見られない.

吸収と同様にSAWの位相速度変化の磁場依存性 $\Delta v/v_0(H)$ を算出しプロットしたものが図2.16(b)である. ここで $\Delta v/v_0(H)$ は磁場 H におけるSAWの位相速度を $v(H)$ とすると

$$\Delta v/v_0(H) \equiv \frac{v(H) - v(H = 1 \text{ T}/\mu_0)}{v(H = 1 \text{ T}/\mu_0)} \quad (2.6)$$

によって定義した. 測定データから $\Delta v/v_0(H)$ を算出する具体的な方法は付録Dに記述する. 位相速度変化も吸収と似た振る舞いを示している. つまり, $-200 \text{ mT} \leq \mu_0 H \leq 200 \text{ mT}$ の低磁場の範

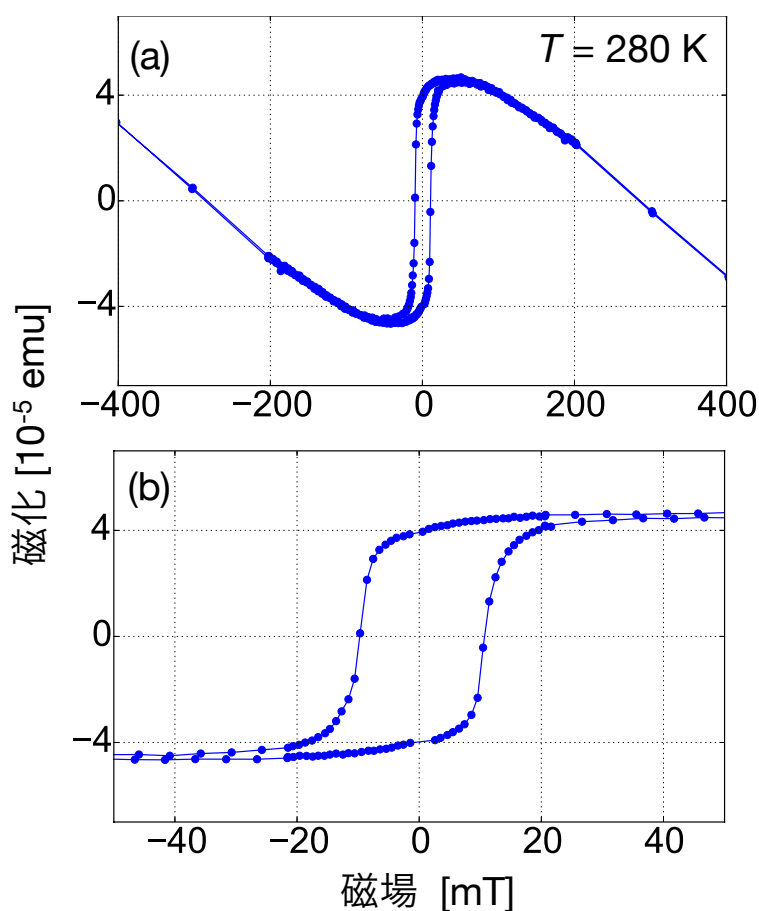


図2.17 (a)Ni 薄膜の磁化曲線.(b) 低磁場領域の拡大図. 膜厚は 40 nm で, LiNbO₃ 基板上に蒸着してある. ごく小さい磁場において磁化が飽和していることがわかる. 高磁場領域における磁化の減衰は, 基板からの反磁場の寄与に由来するもので, 本質的ではない.

囲で大きな位相速度の遅延があり, $\mu_0 H = 0$ mT 付近に極大が見られる. $|\mu_0 H| \geq 400$ mT の高磁場領域では位相速度変化はなくなっている.

SAW の吸収と位相速度は図 2.16に示されるように磁場に依存することから, Ni の磁性の影響を受けていることがわかる. 磁場に依存した Ni の振る舞いとしてまずは強磁性体の磁化過程の影響が考えられるが, その効果では図 2.16のような SAW の磁場依存性は説明できない. これを示すため, Ni 薄膜の室温における磁化曲線を測定した. 図 2.17は Ni 薄膜の室温 $T = 280$ K における磁化の磁場依存性である. Ni 薄膜は LiNbO₃ 基板上に蒸着し, 膜厚は 40 nm である. 測定は Quantum Design の MPMS を用いて行った. 図 2.17(b) からわかるように, ごく低磁場の $\mu_0 H = 30$ mT 程度において磁化の飽和が確認できる. 100 mT 以上の減衰は LiNbO₃ 基板の反磁場によるものであり, 本質的ではない. SAW の SAW の吸収 $A(H)$ と位相速度変化 $\Delta v/v_0(H)$ を低磁場領域の拡大図を磁化曲線と並べて示したのが図 2.18である. データは図 2.16と図 2.17のものと同じであるが, SAW の信号についてはマイナス磁場からのスイープ (up sweep) とプラス磁場からのスイープ (down sweep) とそれらの平均値を同時に示している. SAW の磁場依存性と磁化曲線を

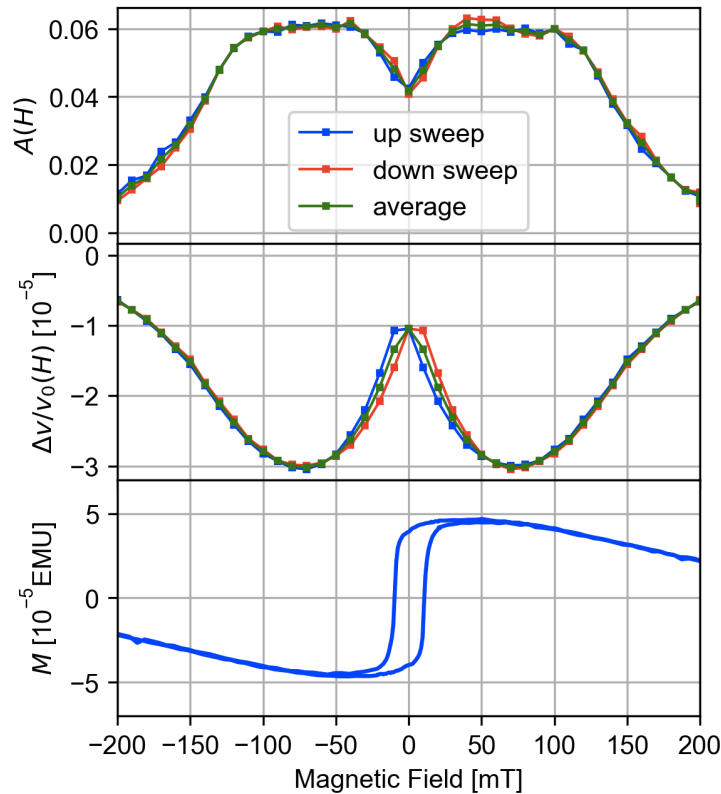


図2.18 SAWの吸収 $A(H)$, 位相速度変化 $\Delta v/v_0(H)$, Ni 薄膜の磁化曲線の低磁場領域の拡大図. SAWの信号はマイナス磁場からのスイープ (up sweep) と, プラス磁場からのスイープ (down sweep) と, 二つの平均値 (average) の値を示している. 低磁場においてヒステリシスの効果が現れている.

比較すると, $\mu_0 H = 0$ mT 付近の吸収の極小とそこからの増加が磁化の成長に対応していると考えられる. つまり, 磁場が $\mu_0 H = 0$ mT では磁化の大きさが小さいために SAW に与える影響が小さいが, 磁場を強くしていくとそれとともに Ni 薄膜中の磁化が成長し, それに応じて SAW の吸収も増大する. そして磁化が飽和するほどの磁場 ($\mu_0 H \simeq 30$ mT) が印加された時に SAW の吸収が最大になっていると考えられる. 位相速度の極大に関しても同様に Ni の磁化過程が原因である. 磁化曲線のヒステリシスが見られる磁場領域において SAW の信号にもわずかにヒステリシスが見られている. しかし, それ以上の高磁場における SAW の磁場依存性に関してはこの磁化過程では説明することができず他の機構が起源と言える.

この領域の SAW の磁場依存性は Ni の強磁性共鳴の磁場依存性で説明できる. 図 2.19(a) に Ni 薄膜によるマイクロ波吸収の磁場依存性を示した. 測定方法は文献 [34] と同様である. LiNbO₃ 基板に膜厚 40 nm の Ni 薄膜を蒸着し, コプラナ導波路上に設置する. この状態でマイクロ波の透過強度を測定することでサンプルによるマイクロ波吸収の磁場依存性を測定している. 磁場が $\mu_0 H \geq 200$ mT 以上の磁場領域でマイクロ波吸収が磁場に対して線形に増加していることが明瞭に確認できる. これは強磁性共鳴周波数の磁場依存性に一致しており, 強磁性共鳴による吸収と同

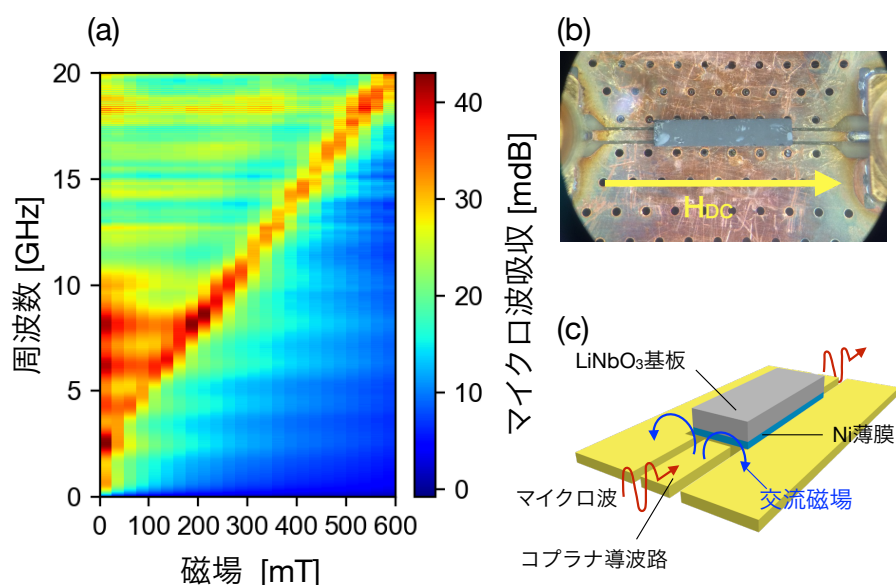


図2.19 (a)Ni 薄膜によるマイクロ波の吸収の磁場依存性. 磁場に対して線形に増加している.(b) マイクロ波吸収測定の写真. 外部直流磁場はコプラナ導波路と平行に印加している.(c) マイクロ波吸収の測定方法の概要図.Ni 薄膜が蒸着された面が導波路に接触するような向きに基板を設置している. コプラナ導波路を伝搬するマイクロ波が作る交流磁場は外部直流磁場に対して垂直である.

定できる [37]. またこの線形の共鳴周波数を $\mu_0 H = 0$ mT まで外挿するとおおよそ 2 GHz あたりになり, 実験中の SAW の周波数 ($f = 2.2335$ GHz) 付近になる. つまり低磁場領域では Ni の強磁性共鳴周波数と SAW の周波数が同程度であるが, 磁場が増加すると強磁性共鳴周波数は線形に増大する一方で SAW の周波数は磁場によらず一定であるため, 二つの周波数に差異が生じる. この強磁性共鳴周波数と SAW の周波数の磁場依存性の違いが SAW の透過信号の磁場依存性 (図 2.16) に反映されていると考えられる.

SAW の磁場方位依存性

図 2.16 に示した SAW の磁場依存性は, 磁場の方位を SAW の伝搬方向と平行な方向 (図 2.15 中に示された方向) に固定して測定したが, 同様の測定を磁場の方位を変えながら行った結果が図 2.20 である. 図のように SAW の伝搬方向を x 軸として座標を設定し, x 軸から測った磁場の印加角度を ϕ とする. 磁場の方位 ϕ を変えていくに従い, SAW の吸収 (図 2.20(a)) と位相速度変化 (図 2.20(b)) の磁場依存性が変化していることがわかる. $\phi = 0^\circ$ では, SAW の吸収と位相速度の遅延が最大化し, ϕ が増加していくと SAW の吸収が減少し, 位相速度の遅延も小さくなっている. そして $\phi = 90^\circ$ において吸収と位相速度変化が最小を示している.

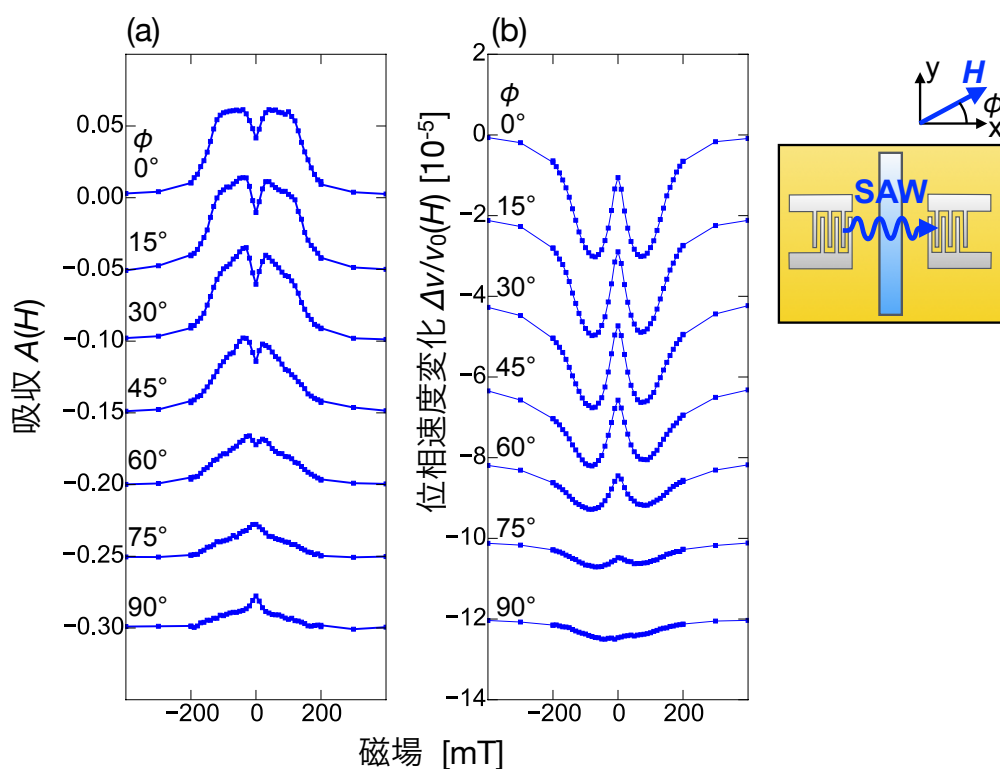


図2.20 (a) 各磁場方位における SAW の吸収の磁場依存性. $\phi = 0^\circ$ で吸収が最大化し, $\phi = 90^\circ$ で最小化している.(b) 各磁場方位における SAW の位相速度変化の磁場依存性. 吸収と同じような磁場依存性を示している.

2.3.2 SAW の非相反伝搬

非相反性

図 2.20(a) で特に注目すべきことは, $\phi = 0^\circ$ 以外の ϕ において, 吸収の大きさが磁場の正負で差があり非対称になっていることである. どの方位においても磁場が正のときに比べて負のときの方が吸収が大きい. 同様の非対称性は位相速度変化にも見られる. 図 2.20(b) に示されているように磁場が正のときに比べて負のときの方が位相速度の遅延が大きい. この非対称な磁場依存性は SAW の非相反伝搬の観測を意味する.

この非相反性を詳しく観測するために, $\phi = 45^\circ$ においてデバイスに対する SAW の伝搬方向を逆にして同様の測定を行った. 図 2.21は磁場を $\phi = 45^\circ$ の方位に印加した状態での SAW の吸収と位相速度変化のグラフである. $+k, -k$ は SAW の伝搬方向がそれぞれ図 2.21(e) に示す x 軸の正, 負の方向であることを表す. 図 2.21(a)(c) の $+k$ に伝搬する SAW と比較すると, 図 2.21(b)(d) の $-k$ では吸収と位相速度変化の非対称性がともに反転していることが分かる.

各磁場における非相反性を見るために, 吸収の非対称成分として正の磁場での吸収 $A(H)$ と負の磁場での吸収 $A(-H)$ との差 $A(H) - A(-H)$ をプロットすると図 2.22(a) のようになる. この値

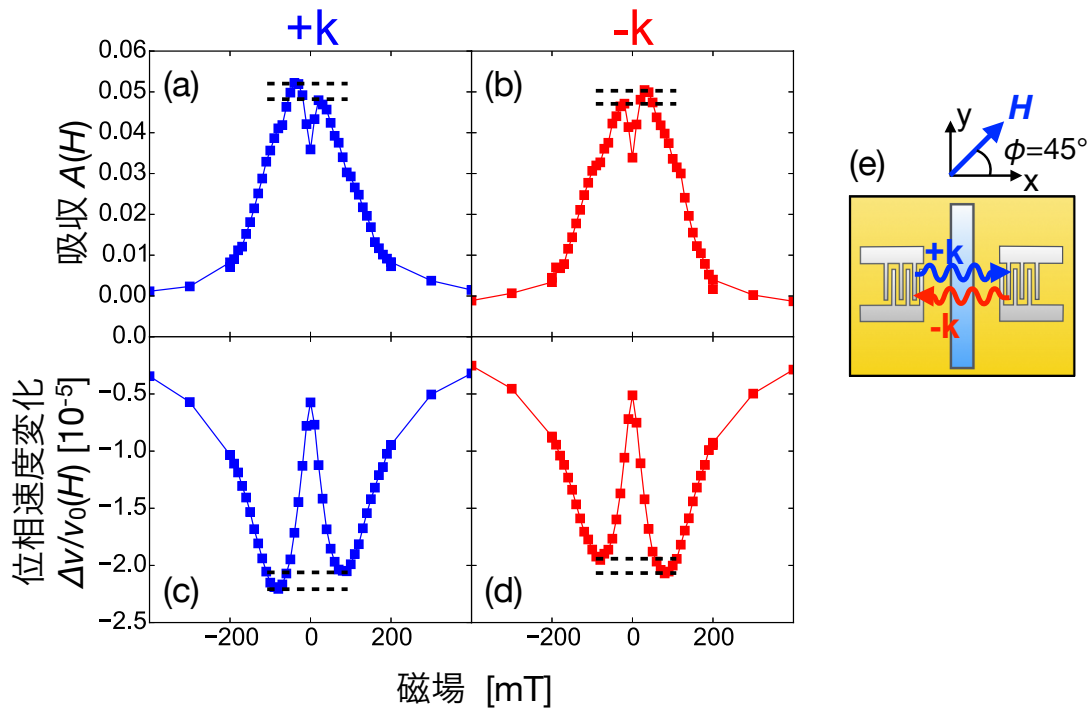


図2.21 $\phi = 45^\circ$ における SAW の (a)(b) 吸収と (c)(d) 位相速度変化. 磁場の正負で非対称な磁場依存性を示し, 非相反伝搬を示している. グラフ中の点線は非対称性を強調するために引いた.(a)(c) はデバイスに固定した座標で x 軸の正の方向 ($+k$), (b)(d) は負の方向 ($-k$) に伝搬する SAW に関する測定結果である. $+k$ と $-k$ で伝搬方向が反転すると磁場依存性の非対称性も反転している.(e) SAW デバイスと印加磁場の方向, 伝搬方向 ($+k, -k$) を示す [38].

が有限のとき SAW の伝搬が非相反であることを意味する. 磁場が $|\mu_0 H| \leq 200$ mT のときに明らかかな非相反性を観測している. また伝搬方向の反転でその非相反性の符号も反転することが明瞭に現れている. 位相速度変化についても同様に非相反成分 $\Delta v/v_0(H) - \Delta v/v_0(-H)$ をプロットしたのが図 2.22(b) である. 吸収同様に非相反性が現れており, さらに伝搬方向の反転で非相反性も反転している.

SAW の吸収と非相反性の磁場方位依存性

各磁場印加方位 ϕ に対して吸収の大きさをプロットしたのが図 2.23(a) である. 磁化が十分に飽和している $\mu_0 H = 100$ mT での吸収 $A(H)$ をプロットした. 磁場が伝搬方向に対し並行または反並行の時 ($\phi = 0^\circ, 180^\circ$) に吸収が最大化し, 直交する時 ($\phi = 90^\circ$) に最小化している. また同様に吸収の非相反成分をプロットしたのが図 2.23(b) である. ここで, 正の磁場での吸収と負の磁場での吸収の差 $A(-H) - A(H)$ の $40 \text{ mT} \leq |\mu_0 H| \leq 150 \text{ mT}$ の領域における平均値 $\overline{A(-H) - A(H)}$ を非相反成分とした. 図からわかるように方位がおおよそ $\phi = 30^\circ, 150^\circ$ の時に非相反性が最大化している.

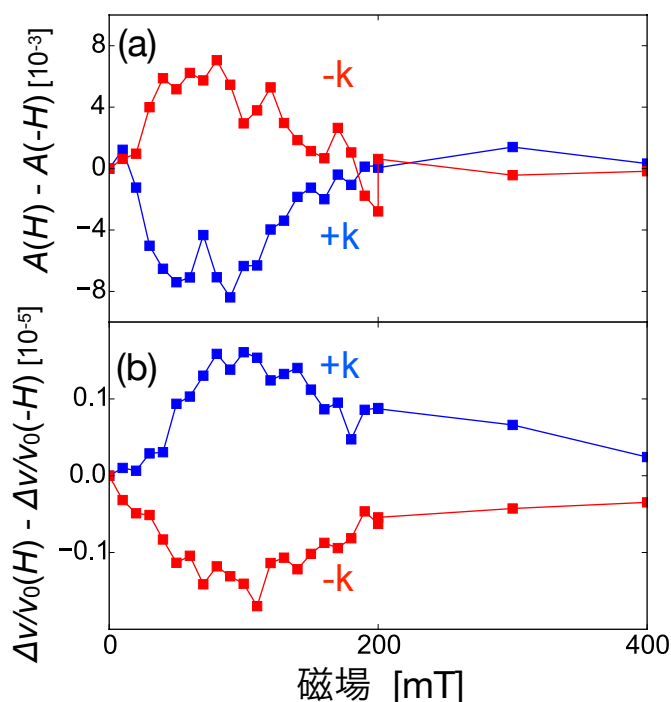


図2.22 SAWの吸収と位相速度変化の非相反成分の磁場依存性.(a) 正の磁場における吸収と負の磁場における吸収の差 $A(H) - A(-H)$ の磁場依存性.(b) 正の磁場における位相速度変化と負の磁場における位相速度変化の差 $\Delta v/v_0(H) - \Delta v/v_0(-H)$ の磁場依存性.

2.3.3 理論的考察

SAWのひずみが引き起こす強磁性共鳴

SAWの磁場依存性を理解するためにSAWのひずみとNiの磁化の間の磁気弾性結合によるSAWのエネルギー吸収とその方位依存性を理論的に導出する.

磁気弾性結合は磁気モーメント間に働く交換相互作用を起源とするものと結晶磁気異方性を起源とするものに分けられる. 本研究における弾性波の波数スケールでは交換相互作用の効果は無視できるため, 磁化とひずみの間の結合は結晶磁気異方性起源のものに限られる. この磁気弾性結合結合の微視的な取り扱いは困難であるため, 通常は現象論的に扱われる [39]. 一般に磁気弾性結合の自由エネルギー密度 F_{coupling} は磁化の最小次の項*2まで考慮して, 次のように表される [40].

$$F_{\text{coupling}} = \sum_{i,j,k,l=x,y,z} B_{i,j,k,l} m_i m_j \epsilon_{kl} \quad (2.7)$$

ここで, m_i, m_j はNiの磁化の成分, ϵ_{kl} はひずみテンソルの成分 [16], $B_{i,j,k,l}$ は磁気弾性結合定数のテンソル成分を表す. ひずみテンソルの定義から来る対称性とNi薄膜の形状の対称性を考慮

*2 F_{coupling} の時間反転対称性から磁化の1次の項は消えて, 2次の項が最小次になる.

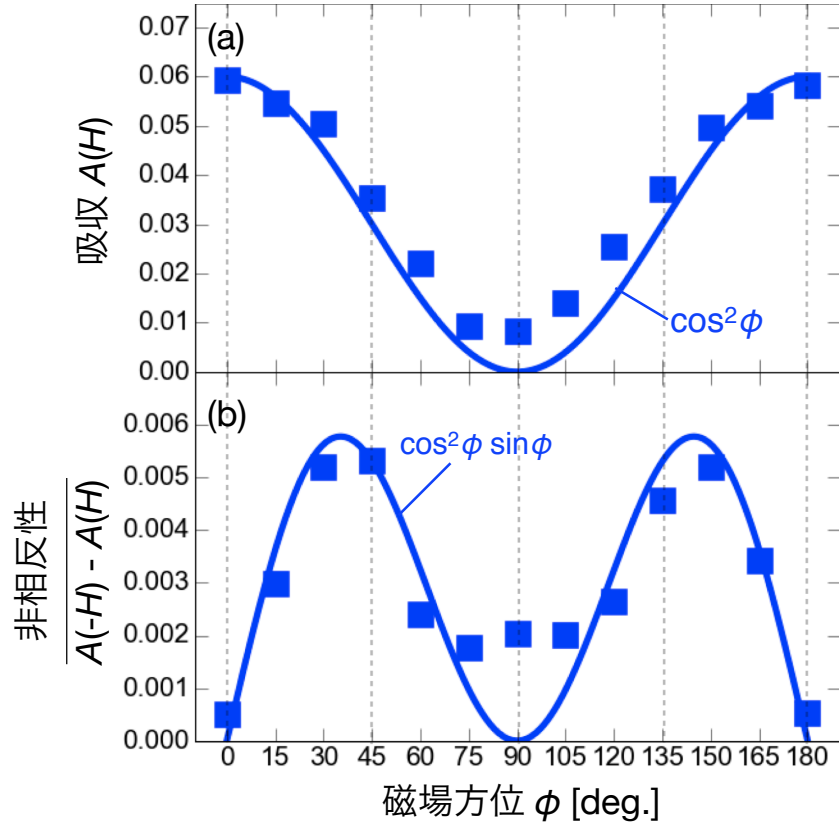


図2.23 (a)SAWの吸収の磁場方位依存性. 実線は $\cos^2 \phi$ の理論曲線である.(b)SAWの吸収の非相反成分の磁場方位依存性. 実線は $\cos^2 \phi \sin \phi$ の理論曲線である [38].

すると式 (2.7) が簡略化されて,

$$\begin{aligned}
F_{\text{coupling}} = & m_x^2 (b_1 \epsilon_{xx} + b_2 \epsilon_{yy} + b_3 \epsilon_{zz}) \\
& + m_y^2 (b_2 \epsilon_{xx} + b_1 \epsilon_{yy} + b_3 \epsilon_{zz}) \\
& + m_z^2 (b_4 (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) + b_5 \epsilon_{zz}) \\
& + 2m_x m_y (b_1 - b_2) \epsilon_{xy} + 4m_y m_z b_6 \epsilon_{yz} \\
& + 4m_z m_x b_6 \epsilon_{zx}
\end{aligned} \tag{2.8}$$

となる [41]. $b_1 = B_{x,x,x,x}$, $b_2 = B_{x,x,y,y}$, $b_3 = B_{x,x,z,z}$, $b_4 = B_{z,z,x,x}$, $b_5 = B_{z,z,z,z}$, $b_6 = B_{x,z,x,z}$ と置き直した. ここで, z 軸は薄膜の面に対して垂直とした.

SAWとして Rayleigh 波を考えると, SAWが x 軸の正の方向に伝搬するとき, SAWの伝搬によって生じるひずみテンソル成分は ϵ_{xx} , ϵ_{zz} , ϵ_{zx} のみが有限となり, 表面付近において

$$\begin{aligned}
\epsilon_{xx} &= \epsilon_{xx0} \exp[i(kx - \omega t)], \\
\epsilon_{zz} &= \epsilon_{zz0} \exp[i(kx - \omega t)], \\
\epsilon_{zx} &= i\epsilon_{zx0} \exp[i(kx - \omega t)]
\end{aligned} \tag{2.9}$$

のように書くことができる [42]*3. ω は SAW の振動の角周波数で, 振幅 $\epsilon_{xx0}, \epsilon_{zz0}, \epsilon_{zx0}$ は実数とする. 式 (2.9) において SAW の伸長ひずみ $\epsilon_{xx}, \epsilon_{zz}$ とずれひずみ ϵ_{zx} の振動は位相が $\pi/2$ ずれているため, その結合として表されるひずみの振動は円偏向 (厳密には楕円偏向) の振動である. SAW の伝搬方向が反転して x 軸の負の方向に伝搬するときには, 振動の円偏向方向が反転する. この場合は ϵ_{zx0} を $-\epsilon_{zx0}$ に, k を $-k$ 置き換えることで以下の議論を並行して進めることができる*4.

Ni 薄膜内の平衡状態における磁化は形状異方性による効果で薄膜の面内方向に向いているとすると, x 軸から測った面内の方位角を ϕ として

$$\begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_0 \cos \phi \\ m_0 \sin \phi \\ 0 \end{pmatrix} \quad (2.10)$$

と表せる.

SAW の振動するひずみ (2.9) があると, 磁気弾性結合 (2.8) を介して磁化に有効交流磁場が働く. 有効磁場は自由エネルギーの磁化の微分で与えられる:

$$\mu_0 \mathbf{h}_{\text{eff}} = \mu_0 \begin{pmatrix} h_x \\ h_y \\ h_z \end{pmatrix} = -\nabla_{\mathbf{m}} F_{\text{coupling}}. \quad (2.11)$$

磁気弾性結合 (2.8) と SAW の振動成分 (2.9), 磁化成分 (2.10) をそれぞれ代入すると, SAW の振動による有効交流磁場は

$$\begin{aligned} \mu_0 \begin{pmatrix} h_x \\ h_y \\ h_z \end{pmatrix} &= - \begin{pmatrix} 2b_1 m_x \epsilon_{xx} + 2b_3 m_x \epsilon_{zz} \\ 2b_2 m_y \epsilon_{xx} + 2b_3 m_y \epsilon_{zz} \\ 4b_6 m_x \epsilon_{zx} \end{pmatrix} \\ &= - \begin{pmatrix} (2b_1 m_0 \epsilon_{xx0} \cos \phi + 2b_3 m_0 \epsilon_{zz0} \cos \phi) \exp[i(kx - \omega t)] \\ (2b_2 m_0 \epsilon_{xx0} \sin \phi + 2b_3 m_0 \epsilon_{zz0} \sin \phi) \exp[i(kx - \omega t)] \\ 4ib_6 m_0 \epsilon_{zx0} \cos \phi \exp[i(kx - \omega t)] \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2.12)$$

となる.

SAW の振動によって誘導される有効交流磁場は Ni 薄膜内の磁化に作用して強磁性共鳴を引き起こす [21, 22]. この時, SAW のエネルギーが強磁性マグノンの励起に使われるため, 結果として SAW のエネルギーの吸収が生じる. 有効交流磁場 (2.12) のうち, 磁化の平衡方向に対して直交する成分のみが強磁性共鳴に寄与する. 直交成分のうち, 面内成分を $h_{\perp}^{\text{in}} = h_x \sin \phi - h_y \cos \phi$, 面直成分を $h_{\perp}^{\text{out}} = -h_z$ とすると,

$$\begin{aligned} \mu_0 h_{\perp}^{\text{in}} &= -2m_0 \epsilon_{xx0} (b_1 - b_2) \cos \phi \sin \phi \exp[i(kx - \omega t)] \\ \mu_0 h_{\perp}^{\text{out}} &= 4ib_6 m_0 \epsilon_{zx0} \cos \phi \exp[i(kx - \omega t)] \end{aligned} \quad (2.13)$$

*3 または付録を参照. ずれひずみ ϵ_{zx} は等方性媒質の時は表面 $z = 0$ において厳密に 0 になるため, 表面から磁性体内部に少し入った場所のひずみの分布と考えるべきかもしれない. 圧電 (異方性) 媒質においては, 表面での ϵ_{zx} は解析的に求めることができない.

*4 同じく付録を参照.

となる. h_{\perp}^{in} と h_{\perp}^{out} の結合として有効交流磁場の右円偏向成分 $h_{\perp}^{+} = h_{\perp}^{\text{in}} + ih_{\perp}^{\text{out}}$ と左円偏向成分 $h_{\perp}^{-} = h_{\perp}^{\text{in}} - ih_{\perp}^{\text{out}}$ を作るとそれぞれ

$$\begin{aligned}\mu_0 h_{\perp}^{+} &= (-2m_0 \epsilon_{xx0} (b_1 - b_2) \cos \phi \sin \phi - 4b_6 m_0 \epsilon_{zx0} \cos \phi) \exp[i(kx - \omega t)] \\ \mu_0 h_{\perp}^{-} &= (-2m_0 \epsilon_{xx0} (b_1 - b_2) \cos \phi \sin \phi + 4b_6 m_0 \epsilon_{zx0} \cos \phi) \exp[i(kx - \omega t)]\end{aligned}\quad (2.14)$$

となる*⁵. 右円偏向と左円偏向の交流磁場に対する帯磁率の虚部をそれぞれ χ''_{+}, χ''_{-} とすると, 一般に $\chi''_{+} \gg \chi''_{-}$ が成り立つ [37]. このため, この円偏向磁場によって生じる強磁性共鳴の強度, およびそれによって生じる SAW のエネルギー吸収 P は, 右円偏向磁場の寄与が支配的だと考えてよい. このとき SAW のエネルギー吸収 P は

$$\begin{aligned}P \propto \chi''_{+} |h_{\perp}^{+}|^2 &\propto |(b_1 - b_2) \epsilon_{xx0} \cos \phi \sin \phi + 2b_6 \epsilon_{zx0} \cos \phi|^2 \\ &= (b_1 - b_2)^2 \epsilon_{xx0}^2 \cos^2 \phi \sin^2 \phi + 4b_6^2 \epsilon_{zx0}^2 \cos^2 \phi \\ &\quad + 4(b_1 - b_2) b_6 \epsilon_{xx0} \epsilon_{zx0} \cos^2 \phi \sin \phi\end{aligned}\quad (2.15)$$

となる. 式 (2.15) には 3 項の異なる方位依存性をもつ吸収への寄与がある. 第 1 項は $\cos^2 \phi \sin^2 \phi$, 第 2 項は $\cos^2 \phi$, 第 3 項は $\cos^2 \phi \sin \phi$ の ϕ 依存性を持つ.

実験結果と理論との比較

実験から得られた SAW の吸収の磁場方位依存性 (図 2.23(a)) と吸収の式 (2.15) を比較すると, 吸収の測定結果は $\cos^2 \phi$ のような ϕ 依存性が見られる. これから, 式 (2.15) のうちいずれひずみ ϵ_{zx0} を含む項の寄与が伸長ひずみ ϵ_{xx0} を含む項よりも支配的になっている, つまり,

$$4b_6 \epsilon_{zx0} > (b_1 - b_2) \epsilon_{xx0}\quad (2.16)$$

の関係にあると考えられる. ここでは磁化が外部磁場に対して並行と仮定する. 図 2.23(a) 中に $\cos^2 \phi$ の曲線を重ねた. 大きさは実験結果に合うようにスケールしてある*⁶.

SAW の伝搬方向が反転する場合, 強磁性共鳴による SAW の吸収は, 式 (2.15) の ϵ_{zx0} を $-\epsilon_{zx0}$ と置き換えると

$$P \propto (b_1 - b_2)^2 \epsilon_{xx0}^2 \cos^2 \phi \sin^2 \phi + 4b_6^2 \epsilon_{zx0}^2 \cos^2 \phi + 4(b_1 - b_2) b_6 \epsilon_{xx0} \epsilon_{zx0} \cos^2 \phi \sin \phi\quad (2.17)$$

のようになり伸長ひずみとずれひずみの干渉項 (第 3 項) の符号のみが変わる. これらから, SAW の吸収の非相反成分 ΔP は式 (2.15) と式 (2.17) の差として,

$$\Delta P \propto (b_1 - b_2) b_6 \epsilon_{xx0} \epsilon_{zx0} \cos^2 \phi \sin \phi\quad (2.18)$$

*⁵ 右, 左円偏向の向きは文献 [37] に従った

*⁶ 本研究と同様な配置における SAW の吸収に関する先行研究があり [21, 22, 43], それらの吸収は $\cos^2 \phi \sin^2 \phi$ のような ϕ 依存性を示しているように見える. この場合, 式 (2.16) の大小関係が逆転していると考えられる. このような大小関係の起源は現段階では定かではない. SAW が固有モードとして伝搬している以上, ひずみテンソルの大きさが変化するとは考えにくく, 磁気弾性結合定数は Ni の単結晶の場合, $B_1 = 61.965 \times 10^5 \text{ N/m}^2$, $B_2 = 86.02 \times 10^5 \text{ N/m}^2$ である [39]. しかし薄膜の場合薄膜の厚みや静的なひずみ [44] によってその値が変化し得るため, そのことが影響しているかもしれない. また, 薄膜の異方的な形状が影響することも考えられるが, この起源に関して明示的な言及をするためには, さらなる系統的な実験が必要がある.

のような方位依存性を示すことが導かれる。

図 2.23に $\cos^2 \phi \sin \phi$ の曲線を重ねると実際の測定結果と良い一致が見られ、この理論で提案している機構が実験によって観測された非相反性の起源であることを指示している。

このことから SAW の非相反性の起源は次のように帰結できる。SAW の伸縮ひずみと横ずれひずみは位相差をもって回転するように振動している。それを反映し、磁気弾性結合を介して生じる有効磁場は楕円偏向した交流磁場となる。SAW の伝搬方向が反転するとひずみの回転方向が反転することを反映して交流磁場の偏向方向も反転する。交流帯磁率、つまり強磁性共鳴の励起強度は右円偏向の方が左円偏向よりも大きいいため、右円偏光の交流磁場を生み出す SAW の伝搬方向で吸収が大きくなる。

最後に $\phi = 90^\circ$ 付近における測定結果は理論曲線からのずれが大きくなっている点に言及しておく。式 (2.15) からは、そもそもこの方位においては SAW の吸収は生じないが、図 2.20(a) では、わずかながら吸収が生じている。この結果は、本節で考慮したもの以外の SAW とマグノンの間の結合を示唆している。現段階ではその起源を明言することはできないが、いくつか考えられる候補をあげておく。一つには磁性体の表面を伝搬するマグノンモードである Damon-Eshbach(DE) モードとの結合である [45]。DE モードは磁場に対して垂直な方向に波数を持つため、 $\phi = 90^\circ$ における SAW の伝搬方向と一致している。他には、バーネット効果やアインシュタイン・ドハース効果などで知られる剛体回転と磁化の結合の効果によってフォノンの吸収 [46] や、スピン流の生成 [47] が生じているということも考えられる（この点に関しては付録 A,Eで検討している）。SAW は角運動量をもつフォノンであると考えられるため（この点についても付録 A参照）、フォノンの角運動量がスピン流の生成などでスピン系に緩和し吸収が生じている可能性も考えられる。もしくは単純に薄膜で面内方向に異方性磁場が生じている結果、 $\phi \neq 90^\circ$ の方向に実効的な直流磁場が向いているのかもしれない。いずれにしても、どのような機構が生じているかは現段階では明らかではなく、今後の課題である。

以上の考察をまとめる。

- 本研究で観測された SAW の磁場依存する吸収と位相速度変化の起源は、磁気弾性結合を介して SAW の振動ひずみが誘起する有効交流磁場によって励起される FMR である (図 2.24(a)).
- 本研究で観測された SAW の非相反伝搬は、1) SAW が回転の偏向をもつフォノンの伝搬であることに由来して交流磁場が楕円偏向を持つこと、2) 強磁性交流帯磁率が磁場の円偏向方向によって異なることの、二つが起源である。これらはそれぞれ空間反転対称性と時間反転対称性の破れの帰結と捉えることができる。
- SAW の回転方向が反転すると、有効交流磁場の楕円偏向方向も反転する。磁化の方向が変わらない時、交流帯磁率の差によって FMR の強度に差が生じる。FMR の強度差が SAW の吸収の差となり、伝搬が非相反になる (図 2.24(b)).

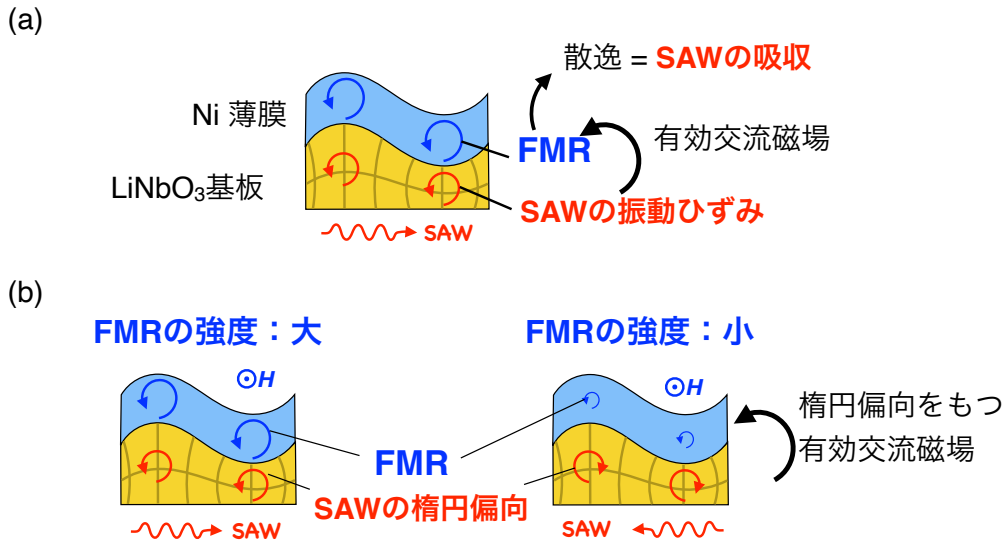


図2.24 (a) SAWの振動によって誘起されるFMRの概念図. (b) SAWの非相反伝搬の機構の概念図

2.4 まとめ

本研究では、室温下、磁性に基づく新たな機構でのフォノンの非相反伝搬の観測を目的とした。そのために強磁性 Ni 薄膜をもつ表面弾性波デバイスを作成し、表面弾性波の磁場応答を測定した。そこで表面弾性波の吸収と位相速度が磁場強度と磁場方位に依存して変化することを観測した。さらに伝搬方向または磁場方位の反転によって吸収と移送速度が異なる表面弾性波の非相反伝搬が観測された。

磁場依存性の起源は磁気弾性結合を介した表面弾性波と強磁性マグノンとの結合であることを明らかにした。外部磁場によって強磁性共鳴周波数が変化することでフォノン系との結合強度が変化し、表面弾性波の吸収と位相速度が変化した。

また非相反性は表面弾性波のひずみの円偏向成分と磁化の交流帯磁率の円偏向依存性が起源であることを明らかにした。表面弾性波の縦波と横波の振動が位相がずれて振動することで、磁気弾性結合に由来して生じる有効交流磁場が楕円偏向性を持ち、表面弾性波の伝搬方向が反転するとこの偏向方向が反転する。磁化の交流帯磁率が交流磁場の円偏向方向で差があるために、結果として表面弾性波の伝搬方向に依存して、励起される強磁性共鳴の強度に差が生じる。このようにして表面弾性波の非相反伝搬が生じている。

フォノンの非相反伝搬は人工的な構造体を作製するメタマテリアルの分野では近年盛んに研究されているが [48, 49]、本研究における結果はそのような人工構造由来ではなく磁気物性由来の非相反デバイスを提供するものであり、新たなマイクロ波デバイスへの道を開くものとなるのであると考える。また、本研究において用いた Ni · LiNbO₃ 二層デバイスは、空間反転対称性と時間反転対称性を同時に破った系を人工的に作製したものであるが、例えばマルチフェロイクスのような物質が

内因的にもつ対称性の破れでも同様に非相反伝搬が生じるはずであり，その他のフォノンの非自明な現象も含めて，今後の発展が期待される．

第 3 章

マルチフェロイック物質中の磁気共鳴 と結合した表面弾性波

3.1 背景と目的

前節の強磁性 Ni 薄膜/強誘電体 LiNbO_3 のハイブリッド系は人工的に磁性と強誘電性を複合させた物質における弾性波現象の研究と見ることができる。近年単一物質としてこれらが共存するマルチフェロイクスと呼ばれる物質群における研究が進んでおり、多くの非自明な電磁気現象が観測されている。そのためマルチフェロイクスにおける弾性波応答でも同様に非自明な現象の観測が期待できる。ここではまずマルチフェロイクスにおいて近年研究が進んでいる非自明な電磁気現象についていくつか述べたのち、マルチフェロイクスの弾性波現象について考察する。

3.1.1 マルチフェロイクスにおける電磁気現象

マルチフェロイクスは、磁性と強誘電性が共存する物質群である。そこでは、磁性と強誘電性の相互作用により、新しい電磁気現象が多く観測されている [7]。特徴的な現象としてたとえば電気磁気効果がある [5, 6]。通常物質中の磁化と電気分極はそれぞれ磁場と電場によって制御可能な物理量であるが、電気磁気効果が有限になると磁場によって制御可能な電気分極が生じたり、逆に電場で磁化を制御することが可能になる (図 3.1(b))。

これらは時間的に静的 ($\omega = 0$) な現象であるが、電気分極と磁性の相互作用は動的な領域 ($\omega \neq 0$) においても現れ、非自明な光学現象を引き起こす (図 3.1(c)(d))。高周波領域における電気磁気相関は電気磁気光学効果と呼ばれ、X 線や光, THz, マイクロ波といった様々な周波数領域における非相反な方向二色性として現れる [32, 50, 51, 52]。たとえば極性のフェリ磁性体 GaFeO_3 において X 線の非相反伝搬が観測された。図 3.2(c) に示されているように、磁化の方向の反転によって吸収スペクトルに有限の差が生じる、つまり X 線の非相反応答が観測されている。この非相反性の起源としては Fe の電子遷移とスピン軌道相互作用による準位の混成によって説明されている。

マルチフェロイクスにおける非自明な動的電磁気現象として、非相反方向二色性の他に電磁波

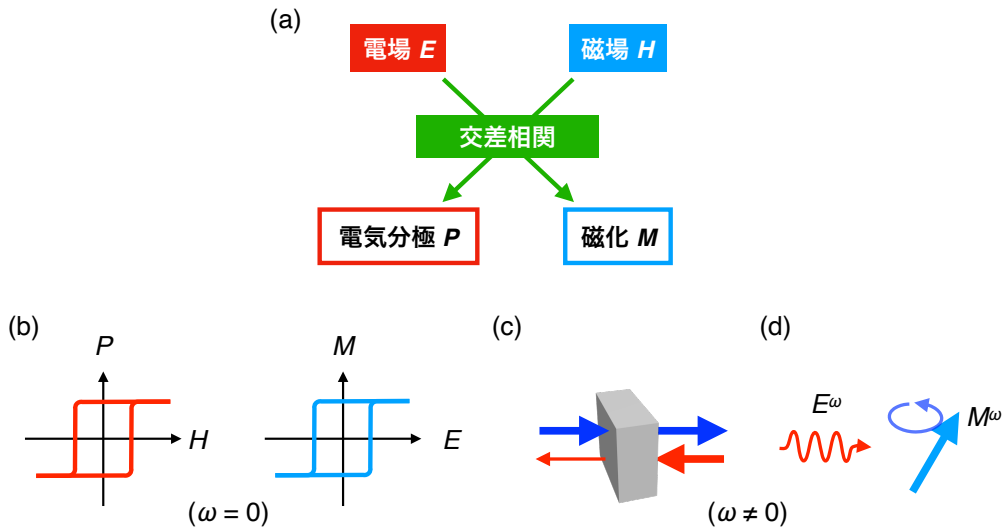


図3.1 (a) 電気と磁気の交差相関. (b) 電気磁気効果. (c) 非相反な電気磁気光学効果. (d) エレクトロマグノン

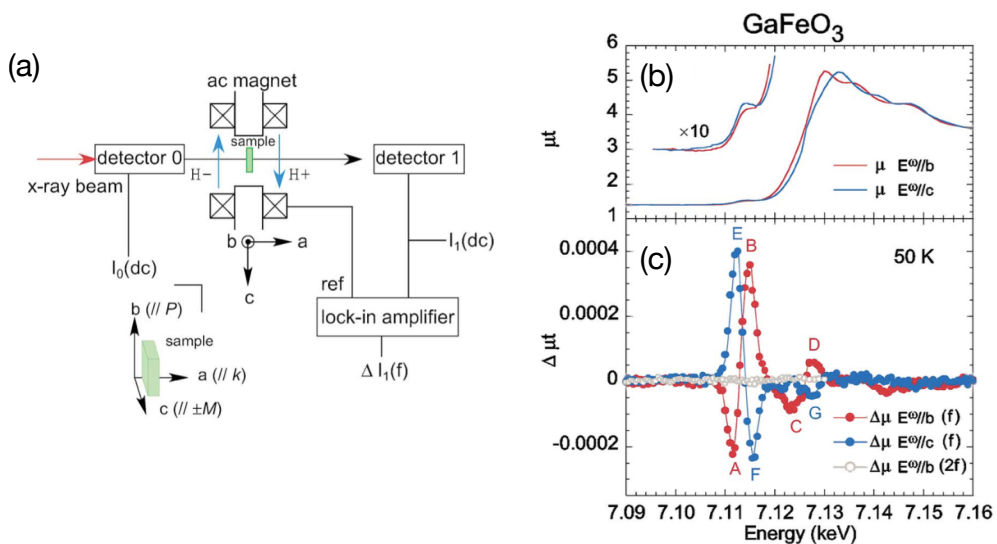


図3.2 (a) 測定系の実験配置 (b) 50 K における GaFeO_3 の X 線領域の吸収スペクトル. (c) X 線の非相反伝搬を示す吸収スペクトルの差. 磁化が $+c$ 方向に向いている場合と $-c$ 方向に向いている場合の吸収の差をプロットしている [32].

の中の磁場成分ではなく電場成分によって誘起可能なマグノンであるエレクトロマグノンがある [54]. 電気磁気効果によって磁気構造を起源として電気分極が生じている場合、この電気分極を電場で振動させることで間接的に磁気構造を振動させ、マグノンを励起することができる。図 3.3(c)-(e) では $\text{Eu}_{0.55}\text{Y}_{0.45}\text{MnO}_3$ における THz 波の吸収スペクトル (屈折率の虚部) を各電場、磁場偏向について示しており、図 3.3(b) に示すような種々の電場誘起のマグノンモードによる寄与が観測されている。

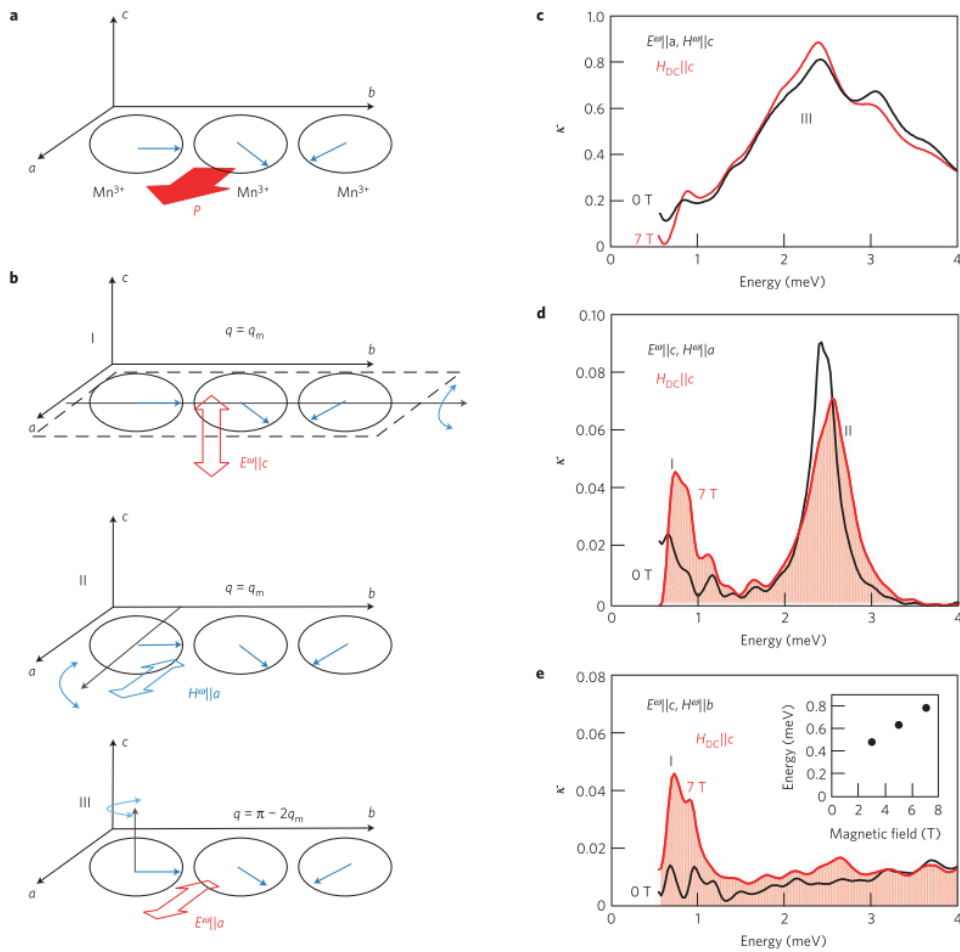


図3.3 (a) 磁気構造とそれによって生じる電気分極 (b) マグノンの様子 (Mode-I cross-coupling electromagnon: スピン回転面の振動, Mode-II magnon: a 軸周りのスピンの回転, Mode-III magnetostriction-induced electromagnon: c 軸周りの磁化の回転), (c)-(e) 4K における c 軸に平行な外部磁場下の屈折率の虚部 (c) $E^\omega || a, H^\omega || c$, (d) $E^\omega || c, H^\omega || a$, (e) $E^\omega || c, H^\omega || b$ [53]

3.1.2 マルチフェロイクスにおける弾性波現象

このようにマルチフェロイクスにおいては電気磁気効果に注目した電磁気応答現象についての研究が多く行われてきた。動的な電磁気現象の起源としては電子準位やマグノンと光子との間の結合現象である。しかしマルチフェロイクスにおける特異な電気磁気相関が弾性波現象に与える効果についてはいまだ明らかになっていない。電気分極や磁化は一般に圧電効果や磁気弾性結合を介して結晶系と結合するはずであり、マルチフェロイクスの非自明な電磁気現象を反映した新奇弾性波現象の創発が期待できる。

一方で視点を変えると、単一物質中で電気磁気相関が存在する本来のマルチフェロイクスとは別

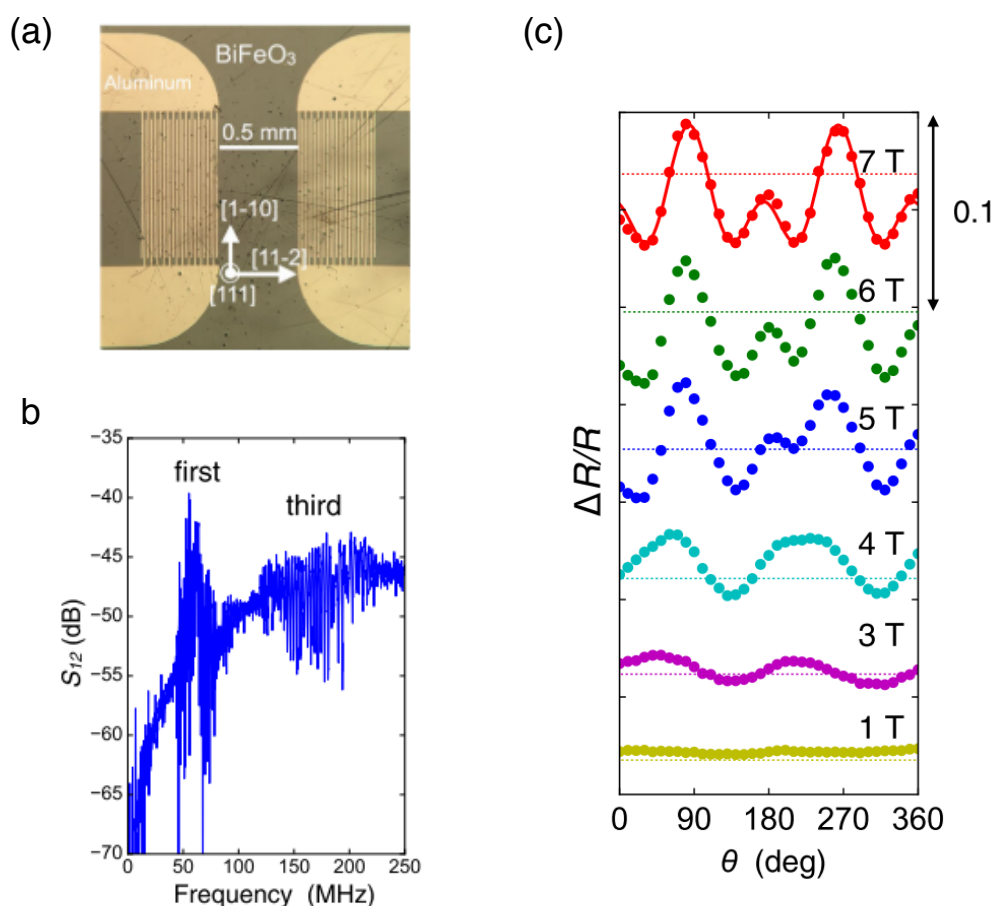


図3.4 (a)BiFeO₃ を圧電基板として用いた SAW デバイス (b) デバイスの透過スペクトル．基本波と3次の高調波が見えている．(c) 各磁場における SAW の強度変化の磁場方位依存性．[58]

に「人工的な電気磁気効果」、つまり強誘電物質と磁性物質のハイブリッド系を作ることによって電氣的に磁性を制御するという研究が行われている [55, 56]．このような観点で考えると、圧電基板と磁性薄膜を合わせた系での表面弾性波 (SAW) 研究 (弾性波誘起強磁性共鳴 [21, 22, 43], 音響スピン流生成 [23, 57], 非相反伝搬 [38]) は、広い意味で人工的な電気磁気効果 (または人工的なマルチフェロイクス) を用いた弾性波現象と見做すことができる．

SAW と磁気物性を合わせるために、磁性薄膜を IDT 間に蒸着するよりも直接的な方法として、圧電基板をマルチフェロイック物質に置き換えることが考えられる．我々は共同研究者とともにマルチフェロイック物質である BiFeO₃ をもちいた SAW デバイスの開発に成功している [58]．BiFeO₃ は室温において強誘電性とサイクロイド型反強磁性が共存するマルチフェロイック物質である．空間反転対称性が破れた極性の結晶構造により圧電性を持つため、SAW デバイスの基板として利用できる．図 3.4(a) は BiFeO₃ 単結晶を基板として持ちいた SAW デバイスの写真であり、図 3.4(b) に示すデバイスの透過スペクトルには SAW デバイスの典型的な透過ピークが見られ、SAW が励起できていることを示している．BiFeO₃ は磁性体であるため、SAW のシグナルが

磁場に応答することが期待される．図 3.4(c) には，各磁場強度における SAW の強度変化 $\Delta R/R$ の磁場方位依存性を示している．磁場方位を変えることで SAW の強度が振動しながら変化し，強度変化は磁場が強いほど大きくなることを観測した．外部磁場の方向を変えると，それに応じてサイクロイド型反強磁性の磁気秩序の波数方向が磁場に垂直となるように磁気構造が変化する．この静的な磁気構造の変化が磁気弾性結合を介して SAW の応答に現れていることを明らかにした．

BiFeO₃ を用いた表面弾性波研究では静的な磁気構造の磁場制御を介した弾性波変調を観測した．より大きな磁場変化や非自明な弾性波現象の観測ために，磁気励起との結合現象の研究が考えられる．しかし BiFeO₃ のマグノンモードの周波数は THz 領域であり [59, 60]，実験的に利用できる SAW の周波数はたかだか十数 GHz であるため，BiFeO₃ のマグノンモードとの結合現象の観測は困難である．そのため，マルチフェロイック物質中でのマグノン-フォノン結合現象の研究のためにはマイクロ波領域に磁気励起を持つ物質を対象とした研究が必要となる．

3.1.3 目的

ここまで述べたようにマルチフェロイクスにおける非自明な動的現象の多くがフォトンと電子準位やマグノンとの結合現象であり，弾性波現象に関してはマルチフェロイクスの特性を反映させた現象はあまり明らかになっていない．

SAW とマルチフェロイック物質中の磁気励起との結合現象を明らかにするために，低周波領域にマグノンモードを持つマルチフェロイック物質を対象とする必要がある．そこで我々は数 GHz のマイクロ波領域にマグノンモードを持ち，SAW 実験に適したマルチフェロイック物質である CuB₂O₄ に注目し，マグノンモードと SAW との結合現象の研究を行なった．

3.2 マルチフェロイック物質 CuB₂O₄

CuB₂O₄ は空間群 $I\bar{4}2d$ に属し反転対称性を持たないが極性がない結晶構造を持つ．結晶点群は $\bar{4}2m$ で，対称性に基づく解析から CuB₂O₄ の圧電テンソルは

$$\begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & d_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & d_1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & d_2 \end{pmatrix}, \quad (3.1)$$

と表される．ここで d_1 と d_2 は非ゼロの定数である．後に議論するように SAW はこの結晶の特定の方角を表面と伝搬方向として選ぶことで励起できる．

CuB₂O₄ は低温の $T_N = 21$ K と $T^* = 9$ K において磁気転移が起きる． T_N 以下において容易面の Néel 型の反強磁性秩序を示し [61]，反強磁性モーメントの方向に依存性した強誘電分極が発現する．また磁場誘起の第二高調波発生 [62] や磁気光学二色性 [50] などの非自明な光学応答が観測されている． T^* における転移は非整合なヘリカル秩序となる．これらの磁気状態において，Cu²⁺ イオンの $S = 1/2$ モーメントの小さい磁気異方性に起因すると考えられる，数 GHz 領域の低周波な磁気共鳴な観測されている [63, 64, 52]．この周波数領域の SAW 励起は典型的な電子ビームリソ

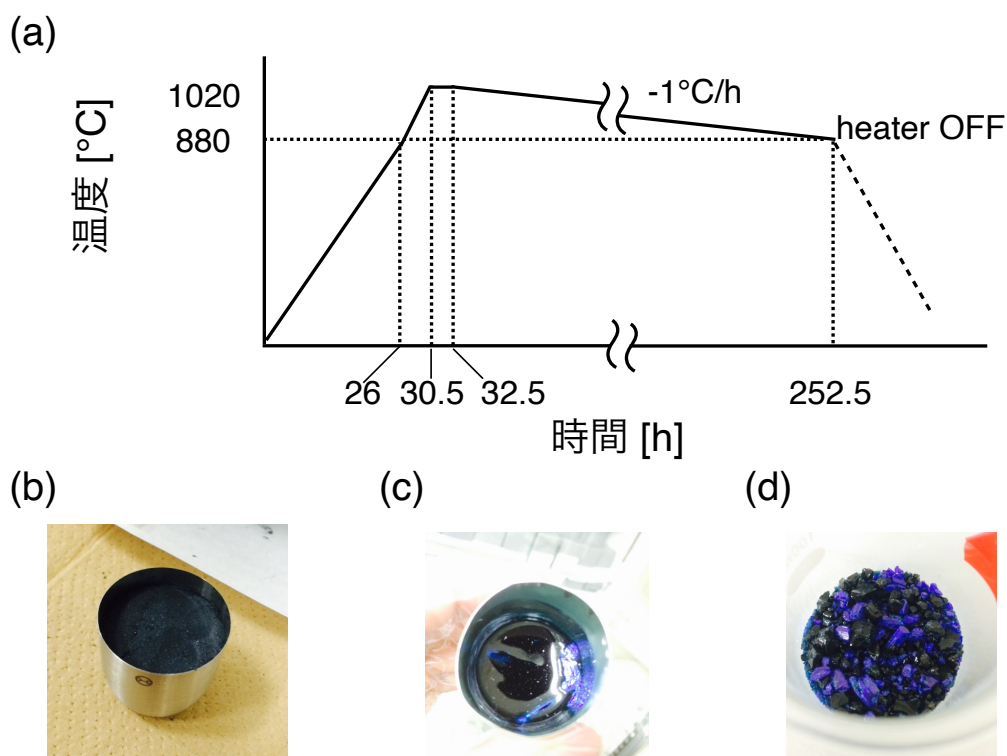


図3.5 (a) CuB_2O_4 単結晶合成のためのフラックス法の加熱プログラム. (b) 加熱前の粉末試料が入った Pt りつぼの写真. (c) 加熱後, 炉から取り出した Pt りつぼの写真. (d) りつぼから砕いて取り出した単結晶の写真. 青いものが CuB_2O_4 単結晶で, 黒いものがフラックス.

グラフィーを用いて作製した SAW デバイスによって到達可能である. したがってこの物質は磁気励起と結合した SAW の研究に適している.

3.3 CuB_2O_4 SAW デバイスと SAW 励起

CuB_2O_4 単結晶はフラックス法で合成した [65]. 粉末試料の CuO 7.95 g, B_2O_3 16.70 g, Li_2CO_3 4.43 g を混ぜ, Pt りつぼに入れて (図 3.5(b)) 高温炉で加熱した. 加熱過程は図 3.5(a) に示している. 室温から 880 °C まで 26 時間かけて昇温し, その後 4.5 時間かけて 1020 °C まで昇温. 2 時間 1020 °C で保ったのち, 毎時-1°C で 880 °C まで下げる. その後炉のヒーターを切り, 室温に下がってから炉から取り出した (図 3.5(c)). Pt りつぼから結晶を砕いて取り出し (図 3.5(d)), 単結晶方位をラウエ写真とディフラクトメータにより定めた.

単結晶の磁化測定結果を図 3.6 に示す. 図 3.6(a) の 21 K 付近と 9 K 付近に磁気転移点がみられ, 先行研究から傾角反強磁性相, ヘリカル相への転移点と帰属できる. 図 3.6(b) には, 各磁気相における磁化の磁場依存性を示した. 特に 10 K では, 20 mT 程度で磁化が飽和し, 弱強磁性ドメインが揃っていることがわかる.

CuB_2O_4 単結晶を圧電基板とする SAW デバイスを作製した. 単結晶をダイヤモンドカッターと

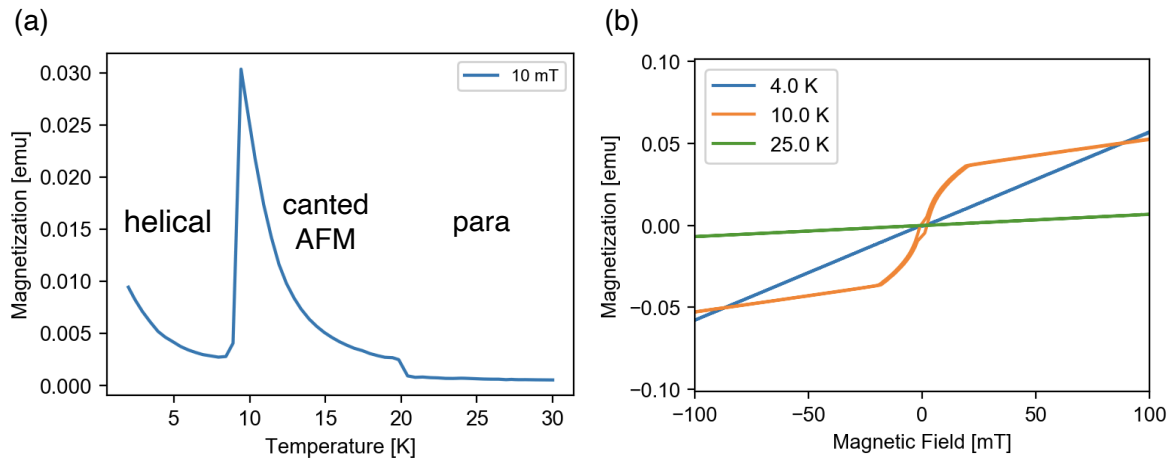


図3.6 (a)CuB₂O₄ の磁化の温度依存性. 磁場は結晶の [110] 方向に印加. (b)4 K, 10 K,25 K における磁化の磁場依存性.

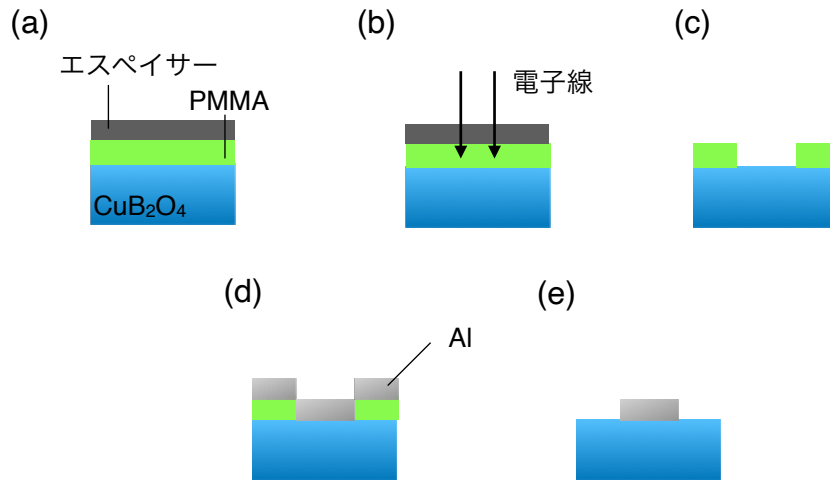


図3.7 電子ビームリソグラフィーの工程 (a)CuB₂O₄ 基板に PMMA とエスペイサーをスピコート. (b) 描画 (c) 現像 (d)Al を蒸着 (e) リフトオフ

やすりにより基板状に加工し、基板表面をラッピングフィルム (3 μm) で研磨した. IDT を基板上に作製するため電子ビームリソグラフィー (EBL) を行った. 加工した CuB₂O₄ 基板上にレジストの PMMA をスピコートした. 回転速度は 700 rot/min 5sec の後 4000 rot/min 60 sec である. PMMA を固化するため 170° で 30min ソフトベイクした後、チャージアップを防ぐためのエスペイサーをスピコートした. 回転速度は PMMA と同じである (図 3.7(a)). 電流量 0.3 nA の電子線で描画した後 (図 3.7(b)), まずエスペイサーを取るため純水に 1 min 浸し, MIBK と IPA の混合液で現像 (30 sec), その後 IPA で現像液を洗った (30sec を 2 回) (図 3.7(c)). EBL 後のサンプルに電子ビーム蒸着機で Al を 50 nm 蒸着し (図 3.7(d)), アセトンでリフトオフすることで IDT を作成した (図 3.7(e)).

できたデバイスの表面が図 3.8(a) に示してある. くし的一本とくし間の間隙の長さは 400 nm

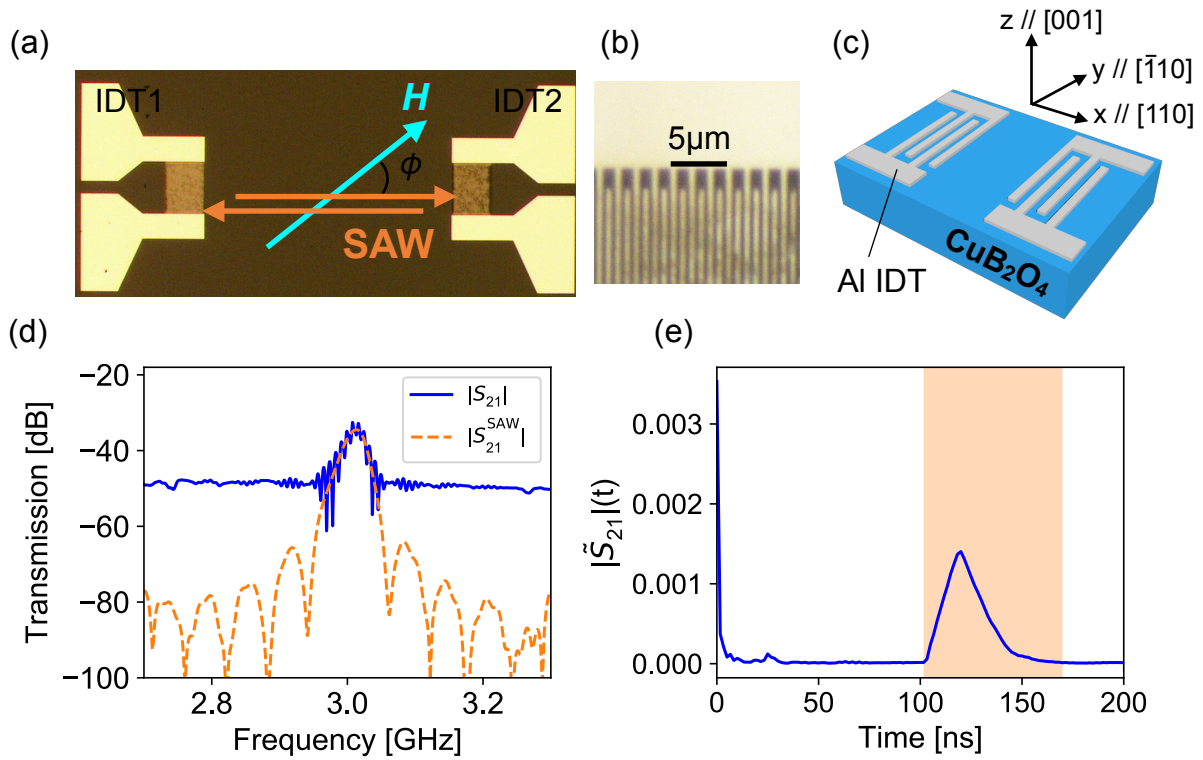


図3.8 (a) 本研究で用いた CuB_2O_4 デバイスを上から見た光学顕微鏡写真. 磁場はデバイスの表面に平行に印加している. (b) アルミ IDT の拡大図. (c) デバイスの概要図. デバイス表面は CuB_2O_4 結晶の (001) 面に平行であり, SAW の伝搬方向は [110] 軸に平行である. (d) IDT 間の透過信号. 実線は測定の実データであり, 破線はフーリエ変換解析によって得た SAW 由来の透過信号である (本文参照). (e) 逆フーリエ変換によって得た時間軸での透過信号. 色塗りされている領域のデータを周波数領域の SAW 透過信号 S_{21}^{SAW} へのフーリエ変換のために用いた.

になるように設計し (図 3.8(b)), これにより励起される SAW の中心波長はくしの周期から $1.6 \mu\text{m}$ となる. くしのペアの数は 50 で, 二つのくし形電極の中心間距離は $580 \mu\text{m}$ である. 基板とした CuB_2O_4 の方位は, デバイス表面が結晶の [001] 軸に垂直で, SAW の伝搬方向が [110] 軸に平行である (図 3.8(c)). x, y, z 座標軸をそれぞれ $x \parallel [110], y \parallel [\bar{1}10], z \parallel [001]$ となるように定義すると, IDT によって励起される交流電場は x 成分と z 成分を持つ. SAW のモードのひとつであるレイリー波は $\epsilon_{xx}, \epsilon_{zz}, \epsilon_{zx}$ のひずみテンソル ϵ_{ij} を持つ [18]. この座標系では圧電テンソルは先の [100], [010], [001] を主軸とした表記から変換されて

$$\frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 2d_1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -2d_1 & 0 & 0 \\ d_2 & -d_2 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (3.2)$$

のような成分となる. この圧電テンソルの成分からひずみ $\epsilon_{xx}, \epsilon_{zx}$ が IDT が生じる交流電場と結合することがわかるため, SAW がこの配置によって励起できる.

全ての測定は温度 $T = 10 \text{ K}$ で行なった. 図 3.8(a) に示す通り磁場はデバイスの表面に平行に印加し, 磁場の方位角 ϕ は SAW の伝搬方向から計って定義した.

図 3.8(d) に IDT1 から IDT2 への複素透過信号の絶対値 ($|S_{21}|(f)$) を示す. 測定はベクトルネットワークアナライザ (Agilent E5071C) を用いた. 3 GHz あたりに細かい振動成分を伴うピークが見られる. この透過信号が SAW 起源であることを確かめるために, 時間領域解析を行なった. 図 3.8(e) は逆フーリエ変換によって得られた時間領域の複素透過信号 $\tilde{S}_{21}(t)$ の絶対値である [66]. 逆フーリエ変換は以下のように定義される:

$$\tilde{S}_{21}(t) = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N |S_{21}|(f_k) \exp(\angle S_{21}(f_k)) e^{2\pi i f_k t}. \quad (3.3)$$

ここで N , t , f_k , $\angle S_{21}(f)$ は測定データ数, 時間, k 番目の測定周波数 ($k = 1, \dots, N$), 周波数領域での位相遅れである. 図中では 0 ns あたりと 120 ns あたりに大きなピークが見られる. 0 ns あたりに見られる強いパルス信号は電極間の空气中を伝搬する直接のマイクロ波透過由来のものである. 加えて 120 ns あたりに遅れた信号を観測した. 電極間距離から計算して, この信号の速度は 4.8×10^3 m/s と見積もられた. これはくし形電極の周期と透過周波数から計算される SAW 信号の位相速度とほぼ一致する. この位相速度は他の圧電基板上の SAW の速度と同等 (例えば, YZ-cut LiNbO₃ では 3488 m/s [18]) であるため, この信号は SAW の透過信号に起因すると結論できる. 時間領域の透過信号 $\tilde{S}_{21}(t)$ における SAW の透過信号部分 (図 3.8(e) の色付き部分) のみをフーリエ変換することで, SAW の透過スペクトル $|S_{21}^{\text{SAW}}|(f)$ の絶対値を得ることができる (図 3.8(d) 破線). この解析によって得られたスペクトルでは, 解析前の測定スペクトルと比べて小さい振動成分が除かれ, バックグラウンドが減少した. これ以降我々は SAW の透過信号の解析は $|S_{21}^{\text{SAW}}|(f)$ を用いて行なった (反射信号 S_{11} に関してはここで述べたフーリエ変換による解析手法が使えないため, 後に議論するように異なる解析をした).

3.4 マグノンー SAW 結合

3.4.1 磁気共鳴と SAW の磁場依存性

次に SAW と CuB₂O₄ の磁性との結合について調べるために, 磁気転移点以下の温度において CuB₂O₄ の磁気励起について測定した結果を示す. 図 3.9(a) において $T = 10$ K でのマイクロ波吸収の磁場依存性を示す. このデータは図 3.8(a) に示した SAW デバイスではなく, 別のコプレーナ導波路を用いた典型的なマイクロ波スペクトロスコーピー測定によって得た. 同様の測定方法は CuB₂O₄ のマイクロ波応答に関する我々の先行研究においても用いられている [52]. 静磁場は [110] 軸に平行に, 交流磁場は (110) 面に平行に印加されている. この周波数領域において図 3.9(a) に示すように磁気励起に由来するマイクロ波吸収スペクトルを観測した. 周波数は磁場に対しほぼ線形に増加した. 3.4.2 節で示すようにこの磁気励起は反強磁性共鳴の音響モードに帰属することができる. 図 3.9(b) では, 3.013 GHz におけるマイクロ波吸収の磁場依存性を示している. 3.013 GHz は図 3.8(d) における SAW の透過ピークの周波数である. 磁場が 46 mT 付近のとき, 磁気共鳴と SAW の周波数が一致している.

このように SAW の周波数と CuB₂O₄ の反強磁性共鳴の周波数が交差するため, SAW の信号に

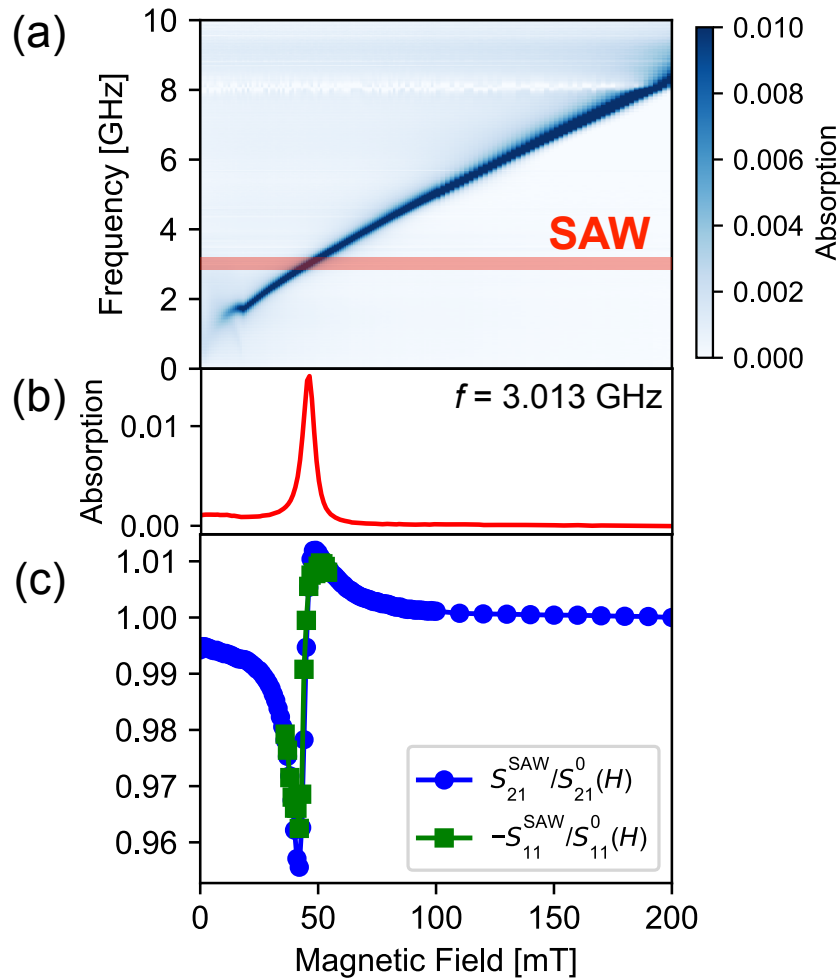


図3.9 (a) CuB_2O_4 の磁気共鳴に由来するマイクロ波吸収の磁場依存性. 外部磁場は $[110]$ 軸に平行に印加した. 太線は本研究で用いた SAW の周波数を表す. (b) 3.013 GHz におけるマイクロ波吸収の磁場依存性. (c) 規格化した SAW の透過信号 $S_{21}^{\text{SAW}}/S_{21}^0(H)$ と励起強度 $-S_{11}^{\text{SAW}}/S_{11}^0(H)$ の磁場依存性.

も反強磁性共鳴の効果が現れる. 図 3.9(c) では, 規格化した SAW の透過信号 $S_{21}^{\text{SAW}}/S_{21}^0(H)$ の磁場依存性を示している. 規格化は, 磁気共鳴周波数が SAW の周波数より十分高くなる 200mT の透過信号を用いて行なった (詳細な定義は次節で示す). SAW の透過信号は磁場が 0 mT から増加するに連れて徐々に減少し, SAW と磁気共鳴の周波数が一致する点で急激な上昇に転じた後, 高磁場に向かって減少していく*1. この時, 磁場による SAW の周波数変化は観測されず, またエネルギーの反交差の兆候も観測されなかった. しかし, このような特徴的な磁場依存性は SAW と磁気共鳴との相互作用によって起きていると思われる. 図 3.9(c) に, IDT1 における規格化した SAW の励起強度 $-S_{11}^{\text{SAW}}/S_{11}^0(H)$ の磁場依存性も同時に示した. 規格化は 200 mT での値で行った. 詳細な定義は次節で議論するが, この値は SAW の励起によるマイクロ波反射信号の減少を反映したものにな

*1 横軸が周波数である場合, 似たような曲線がファノ共鳴において見られることがある.

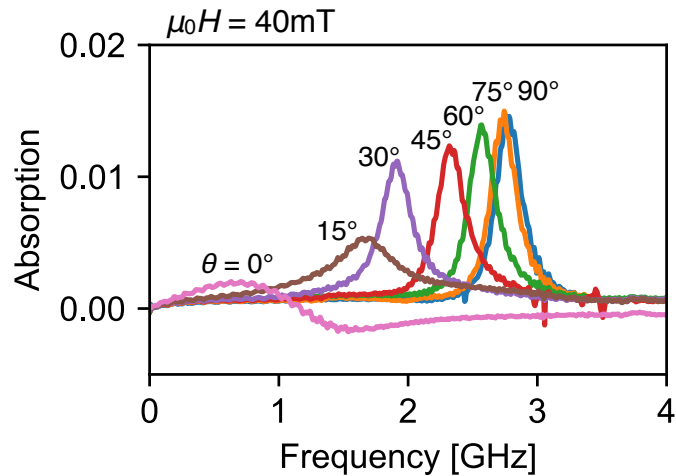


図3.10 各磁場方位におけるマイクロ波吸収スペクトル. 磁場は $(1\bar{1}0)$ 面内で回転させ, 磁場は $\mu_0 H = 40 \text{ mT}$ に固定してある. θ は $[001]$ 軸から測った磁場の角度である.

っている. 透過信号と励起強度が同様の磁場依存性を示すことから, SAW の磁場依存性は励起過程で生じていると思われる.

3.4.2 磁気共鳴スペクトルの磁場方位依存性

図 3.9(a),(b) に示した磁気共鳴の起源を特定するために, 結晶方位に対して磁場方位を回転させながら CuB_2O_4 のマイクロ波吸収の詳細な測定を行なった. CuB_2O_4 のマイクロ波吸収を調べた先行研究 [52] においては磁場は (001) 面内で回転させたが, 本測定では $(1\bar{1}0)$ 面内で回転させている. そのほかの測定の配置は先行研究と同様である. 図 3.10は磁場の大きさを 40 mT に固定して方位を変化させた時のマイクロ波吸収を示す. 吸収はマイクロ波透過信号の 300 mT での値からの差分として求めている. θ は $[001]$ 軸と磁場との間の角度である. 角度 θ が減少するにつれて, 磁気共鳴スペクトルは低周波にシフトし, その強度は減少する. これは容易面型の反強磁性の描像で説明できる. 先行研究においては, この温度領域の吸収ピークが T_N 以上の磁気共鳴ピークと滑らかに繋がることから, 我々はこの磁気共鳴の起源を Cu(B) サイトの常磁性共鳴だと帰属していたが, 本研究における結果はむしろ反強磁性共鳴が起源であることを強く支持している.

3.4.3 SAW の相対的な励起強度 $-S_{11}^{\text{SAW}}/S_{11}^0(H)$ と透過強度 $S_{21}^{\text{SAW}}/S_{21}^0(H)$ の定義

図 3.9(c) に示した SAW の励起強度 $-S_{11}^{\text{SAW}}/S_{11}^0(H)$ と透過信号 $S_{21}^{\text{SAW}}/S_{21}^0(H)$ の詳細な定義を説明する.

図 3.11(a) には外部磁場が $\mu_0 H = 40, 45, 50,$ and 200 mT の時のデバイスからの反射 $|S_{11}|(f)$ を示してある. 外部磁場は SAW の伝搬方向に平行に印加している. つまり $\phi = 0^\circ$ である. 観測されている反射の減衰つまりマイクロ波の吸収として鋭いディップと幅広いディップとバックグラウンドの 3 つの要素が見られる. 2.75 GHz から 3.00 GHz の間の 3 本の鋭いスパイクは測定回路

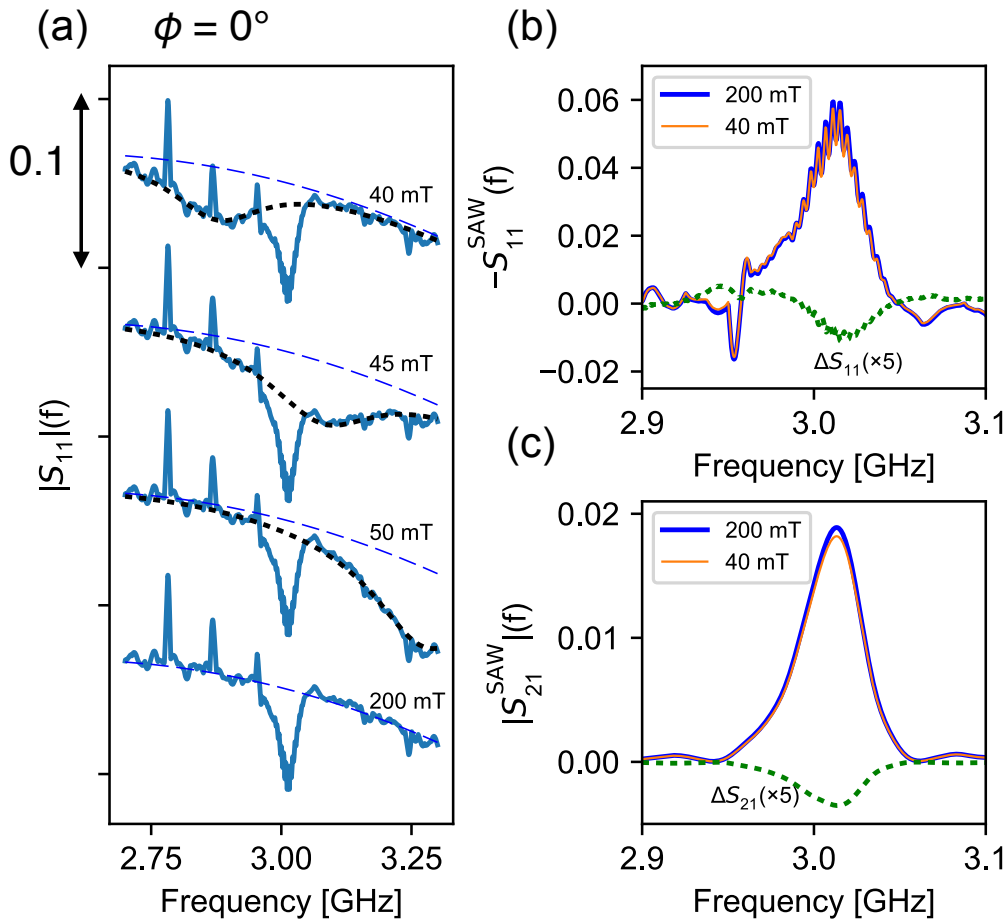


図3.11 (a) 各磁場に対する CuB_2O_4 SAW デバイスからのマイクロ波の反射 $|S_{11}|(f)$. 磁場は SAW の伝搬方向に平行に印加している. 実線は観測データで, 点線と破線はそれぞれ磁気共鳴とバックグラウンドに対するフィッティングである. (b) 40 mT と 200 mT における SAW の励起 $-S_{11}^{\text{SAW}}$ と, その差分 (ΔS_{11}). (c) 40 mT と 200 mT における SAW の透過 S_{21}^{SAW} とその差分 (ΔS_{21}). (b) の ΔS_{11} と (c) の ΔS_{21} は 5 倍に拡大してある.

のどこかで生じている共振モードのノイズだと考えられる. 3つのマイクロ波吸収のうち鋭いディップとバックグラウンドは磁場で大きく変化しないが, 幅広のディップの周波数は磁場に依存して増加している. したがって我々は鋭いディップの起源を SAW 励起に, 幅広なものは磁気共鳴だと帰属した.

SAW の寄与を正確に見積もるために, 磁気共鳴の応答とバックグラウンドをそれぞれローレンツ関数と二次関数でフィッティングし, それらの値を反射 $|S_{11}|(f)$ から引いた. このときバックグラウンドの信号は磁場に依存しないと仮定し, 200 mT でのフィッティング結果を使っている. 図 3.11(b) にはそれを -1 倍した値 ($-S_{11}^{\text{SAW}}(f)$ とする; これは SAW の励起に由来するマイクロ波吸収と解釈できる) の $\mu_0 H = 40, 200$ mT の時の値を示している. 磁場が 200 mT においては磁気共鳴周波数は図 3.9(a) のように 3 GHz よりも十分に高周波にあるので, SAW の励起は磁気共鳴に影響されない. 磁場が 40 mT まで減ると, 図 3.11(b) に示すように SAW の強度は減少する.

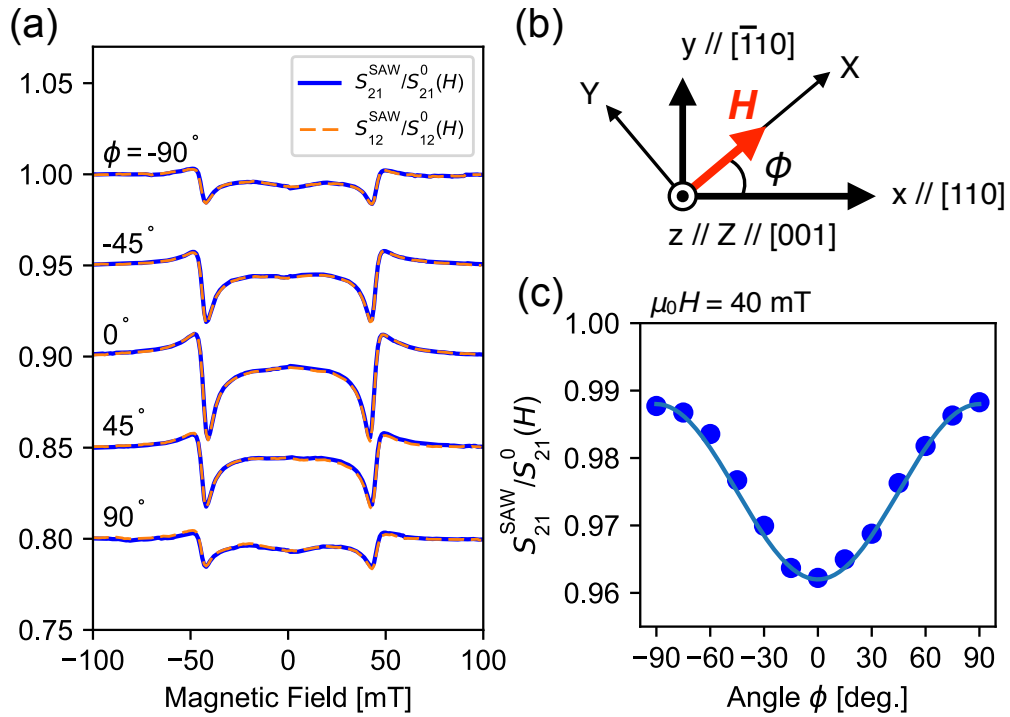


図3.12 (a) 各磁場印加方位における規格化した SAW 透過信号 S_{21}^{SAW} and S_{12}^{SAW} の磁場依存性. 実線は Port1 から Por2 への透過 (S_{21}^{SAW}/S_{21}^0) で, 破線は逆向きの透過 (S_{12}^{SAW}/S_{12}^0) である.. (b) xyz -座標系と XYZ -座標系の図示. (c) $\mu_0 H = 40$ mT における規格化した SAW 透過信号 S_{21}^{SAW}/S_{21}^0 の磁場印加方位依存性. 実線は $C_1 - C_2 \cos^2 \phi$ の曲線を表す.

同様に, 図 3.11(c) が示すように SAW の透過 $|S_{21}^{SAW}|(f)$ も 200m T での値から少し減少する. 磁場 H における SAW の励起と透過の相対変化を次のように定義する ;

$$-S_{11}^{SAW}/S_{11}^0(H) = -\max \{|S_{11}^{SAW}|(f)\} (H) / \max \{|S_{11}^{SAW}|(f)\} (H = 200 \text{ mT}/\mu_0), \quad (3.4)$$

$$S_{21}^{SAW}/S_{21}^0(H) = \max \{|S_{21}^{SAW}|(f)\} (H) / \max \{|S_{21}^{SAW}|(f)\} (H = 200 \text{ mT}/\mu_0) \quad (3.5)$$

ここで, $\max\{\}$ は測定周波数範囲における最大値を取ることを意味する. これらの値を図 3.9(c) でプロットしている.

3.4.4 SAW の磁場方位依存性

磁場依存性の起源を議論するために, 様々な磁場方位における SAW 透過信号の磁場依存性について測定した結果を図 3.12(a) に示す. 磁場依存性は磁場方位 ϕ が 0° から増加するか減少するかにつれて緩やかになり, 変化の大きさも小さくなった. しかし, 40 mT 付近での特徴的な磁場依存性は $\phi = \pm 90^\circ$ においても観測されている. また磁場方位に依らず SAW の伝搬方向や磁場方向を反転した際, 磁場依存性は変化しなかった ($S_{12}^{SAW}/S_{12}^0(H)$ は IDT2 から IDT1 に伝搬する SAW の規格化した透過強度). 図 3.12(c) は 40 mT における SAW 透過信号の磁場方位依存性である. SAW の透過強度は方位角 ϕ に対して $C_1 - C_2 \cos^2 \phi$ のように変化している (C_1 と C_2 は定数).

3.5 理論的考察

SAW の磁場依存性の微視的起源について理論的考察を行う。図 3.9(c) で観測された磁場依存性は $(\omega_{\text{Mag}} - \omega_{\text{SAW}})^{-1}$ の関数として表されそうである。ここで、 ω_{Mag} は磁場にほぼ比例する磁気共鳴周波数で、 ω_{SAW} は磁場に依存しない SAW の周波数である。 ω_{Mag} が 0 から増加する時、 $(\omega_{\text{Mag}} - \omega_{\text{SAW}})^{-1}$ は値が負で絶対値は増加する。 $\omega_{\text{Mag}} = \omega_{\text{SAW}}$ となるとときに急激に符号が変化し、その後正の値で減少していく。このタイプの因子は二つのモードが結合する現象において混成強度がこの因子に比例するため頻繁に現れる。したがって微視的な理解は現在のところ得られていないが、SAW の励起の磁場変化はマグノンと SAW との結合によってもたらされているはずである。

図 3.9(c) に現れる方位依存性はより密接に微視的起源に関連している。これについて議論するため、磁気弾性結合についての明示的な表記を考察する。反強磁性秩序状態における磁気弾性結合エネルギーは

$$F_{me} = \sum_{p,q=1,2} \sum_{i,j,k,l=1,2,3} b_{pqijkl} m_{pi} m_{qj} \epsilon_{kl}, \quad (3.6)$$

と表される。ここで m_{pi} は p 反強磁性副格子における副格子磁化の i 成分で、 ϵ_{kl} はデバイス表面でのひずみテンソルである。添字 i, j, k, l に対する 1,2,3 はそれぞれ x, y, z を表す。係数 b_{pqijkl} は磁気弾性結合定数を表す。物質の対称性の議論から b_{pqijkl} のゼロになる成分と非ゼロで有限に残る成分を決めることができる（付録参照）。SAW のひずみによって磁気弾性結合を介して、 p -副格子の磁気モーメント \mathbf{m}_p に生じる交流有効磁場 \mathbf{h}_p^{me} は $\mathbf{h}_p^{me} = -\nabla_{\mathbf{m}_p} F_{me}$ によって与えられる。SAW 励起の下での反強磁性共鳴の音響モードを理解するために、散逸項のない Landau-Lifshitz (LL) 方程式を考える。ここで、磁気モーメントは SAW 由来の有効交流磁場 \mathbf{h}_p^{me} と静磁場 \mathbf{H} および異方性磁場によって駆動されるとする。方程式を対角化することで*2、反強磁性共鳴の音響モードに関する 3 つの有効方程式を次のように導出できる（付録参照）：

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} \left((\delta m_{1X} - \delta m_{2X}) + \frac{b}{a^2} (\delta m_{1Y} + \delta m_{2Y}) \right) = (m^0)^2 \left(B_1 + \frac{b}{a^2} B_2 \right) \epsilon_{31} \cos \phi, \quad (3.7)$$

$$\left(\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} - iaH^0 \right) ((\delta m_{1Y} + \delta m_{2Y}) + ia(\delta m_{1Z} + \delta m_{2Z})) = (m^0)^2 (B_2 \epsilon_{31} \cos \phi + iaB_3 \epsilon_{11} \sin 2\phi), \quad (3.8)$$

$$\left(\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} + iaH^0 \right) ((\delta m_{1Y} + \delta m_{2Y}) - ia(\delta m_{1Z} + \delta m_{2Z})) = (m^0)^2 (B_2 \epsilon_{31} \cos \phi - iaB_3 \epsilon_{11} \sin 2\phi). \quad (3.9)$$

ここで、 γ と H^0 はそれぞれ磁気回転比、外部磁場の大きさである。 $\delta \mathbf{m}_p$ と m^0 は $\delta \mathbf{m}_p = \mathbf{m}_p - \mathbf{m}_p^0$, $m^0 = |\mathbf{m}_p^0|$ (\mathbf{m}_p^0 は磁気モーメントの静的部分) で定義される。 XYZ 座標系は図 3.12(b) に示すように定義され、 X 軸は磁場に平行である。 a と b は無次元の定数で、それぞれ

*2 散逸項がないため、対角化可能

$a = \sqrt{(-\frac{K}{m^0} \cos \psi + H^0) / H^0}$, $b = (-\frac{K}{m^0} + 2m^0 \Lambda) \sin \psi / H^0$ で定義される. ここで K, Λ and ψ はそれぞれ一軸性の磁気異方性定数, 分子場定数, 副格子磁化と磁場のなす角である. B_1, B_2, B_3 は次によって定義される定数である:

$$B_1 = 8 \sin \psi ((b_{111313} + b_{121313}) \cos \psi - b_{121323} \sin \psi), \quad (3.10)$$

$$B_2 = -8 \cos \psi ((b_{111313} + b_{121313}) \cos \psi - b_{121323} \sin \psi), \quad (3.11)$$

$$B_3 = -2 ((b_{111111} - b_{111122}) \cos 2\psi + b_{121111} - b_{121122}). \quad (3.12)$$

SAW の励起がない場合, 方程式 (3.7)-(3.9) の右辺は消える. この場合, これらの方程式は純粋な反強磁性励起を表す. $\omega_{\text{Mag}} > 0$ であるので, 右回り楕円偏向成分 $(\delta m_{1Y} + \delta m_{2Y}) + ia(\delta m_{1Z} + \delta m_{2Z})$ のみが $\omega_{\text{Mag}} = \gamma a H^0$ において共鳴する. 方程式 (3.9) は共鳴を記述せず, 方程式 (3.7) は磁気モーメントの歳差運動における磁場に平行な成分 $(\delta m_{1X}, \delta m_{2X})$ と直交する成分 $(\delta m_{1Y}, \delta m_{2Y})$ の間の関係を記述する拘束条件を表す. これらの方程式の右辺は SAW 励起による磁気トルクを表す.

方程式 (3.8) の右辺は SAW と磁気共鳴モードの間の直接の結合を表す. マグノンと SAW の間の結合は

$$|B_2 \epsilon_{31} \cos \phi + ia B_3 \epsilon_{11} \sin 2\phi|^2. \quad (3.13)$$

に比例する. 図 3.12(c) に示す通り実験的に観測された規格化された SAW 透過信号の磁場方位依存性は $C_1 - C_2 \cos^2 \phi$ であり, これは上の式の第一項を反映していると思われる. 縦波との結合を表す第二項は無視できると考えられる. したがって, ひずみの ϵ_{31} が反強磁性音響モードを効果的に励起していると考えられる.

ここで非相反性について言及する. 非相反性は Ni 薄膜における先行研究 [38] と同様に考えると, SAW の縦波起源の有効磁場と横波起源の有効磁場とが位相差を持って混成することによって生じる. しかし, 本研究においては, 縦波型の磁気弾性結合がないため, 有効磁場が直線偏向しており, この系での非相反性が観測できなくなっていると考えられる.

最後に, 定数項である C_1 は今回行なった理論解析からは説明ができない. 本解析では磁気モーメントの大きさが固定されているとして考えており, 磁場によって磁気モーメントが変化する効果が起用しているかもしれない. また, 本解析では考慮していないが SAW に特徴的なひずみの反対称成分 $\Omega_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right)$ とマグノンモードのとの結合があるのかもしれない [46] が, 本研究の範囲では明言はできない.

3.6 まとめ

我々はマルチフェロイック物質におけるマグノン励起と結合した弾性波現象の観測のため, CuB_2O_4 を用いた表面弾性波デバイスの研究を行なった. マルチフェロイック物質 CuB_2O_4 単結晶上にくし形電極を作製することで, CuB_2O_4 において表面弾性波を励起および検出することに成功した. 反強磁性相においては表面弾性波の励起と透過が反強磁性共鳴との結合に起因した特徴的な変化を示した. この磁場方位依存性を磁気弾性結合を起源とする有効磁場を用いた解析によって説明した. 磁場変化の大きさは依然として先行研究より巨大ではないが [21, 22, 43, 23, 57, 38], 本

研究はマルチフェロイック物質に基づいた表面弾性波デバイスの制御性を高める新しい方法を示すものになっている [67].

第 4 章

総括と展望

本博士論文では強磁性薄膜およびマルチフェロイクス中のマグノン励起と結合した表面弾性波 (SAW) の特性について研究を行なった. ここでは各研究において得られた結果について短くまとめる. その後, 本研究結果から考えられる新たな研究の方向性や展開について考察, 提案を行う.

4.1 総括

第 2 章においては, 電磁波や電流, マグノンにおいて観測されてきた非相反現象のフォノン系における観測を目的とし, 強磁性薄膜中の強磁性共鳴 (FMR) と結合した SAW が示す非相反伝搬の研究について報告した. 強誘電体 LiNbO_3 を基板として用いて 2GHz を超える高周波な SAW を励起できる SAW デバイスを作製した. その伝搬路上に強磁性 Ni 薄膜を蒸着し, 強磁性薄膜/強誘電基板からなるハイブリッド SAW デバイスを作製した. 室温下において SAW 伝搬の磁場依存性を測定すると SAW の強度と位相速度が磁場強度に依存して変化することを観測した. Ni 薄膜に対してマイクロ波スペクトロスコピーを行い, この周波数帯に FMR が観測されたことから, この SAW の磁場変化は FMR との結合によるものであると帰属できた. 特に, 磁場の正負で SAW の強度と位相速度に有限の差がある非対称な磁場依存性を示すことがわかった. SAW の伝搬方向を反転させるとこの非対称性も反転し, SAW の非相反伝搬を観測することができた.

この磁場依存性と非相反性を説明するために, 磁気弾性結合を介して SAW の振動が誘起する有効交流磁場を考察した. SAW のもつ偏向性で, 有効磁場が楕円偏向性をもつ交流磁場になること, さらに SAW の伝搬方向が反転するとその円偏向方向が反転することが明らかになった. FMR の磁化の歳差運動が片方にしか回転しないことを考慮することで, SAW 誘起の楕円偏向有効磁場が非相反伝搬の起源であることがわかった. 本研究により最近磁性体において多く観測されてきていた粒子や波動の非相反性が弾性波現象においても室温下で実現することが明らかになった. この非相反性は電子系における電流-スピン流変換であるラッシュバエデルシュタイン効果の弾性波版と言える. この結果は弾性波の新しい制御性, 機能性を提示しているとともに, 外場制御可能な新奇弾性波デバイスへの応用可能性を示すものである.

このような磁性体と圧電基板のハイブリッド SAW デバイスの機能性をより高めることを目的と

して、第3章ではマルチフェロイック物質を用いた SAW デバイスにおける SAW 一反強磁性マグノン結合現象の研究について報告した。マルチフェロイック物質として CuB_2O_4 の単結晶をフラックス法により合成した。単結晶を基板状に加工し、表面にくし形電極を作製し、 CuB_2O_4 を圧電基板として用いたマルチフェロイック SAW デバイスを作製した。くし形電極を電子ビームリソグラフィによりナノスケールに微細化することで、3GHz もの高周波な SAW を励起・検出することに成功した。磁気転移点以下の低温下で SAW の磁場依存性を測定すると、SAW が特定の磁場で大きく変化することが観測できた。SAW デバイスとは別にコプラナー導波路を用いた CuB_2O_4 単結晶のマイクロ波スペクトロスコピーを行い、一軸異方性の強い反強磁性共鳴を観測した。この反強磁性共鳴と SAW の磁場依存性を比較することで、SAW の磁場依存性はこの反強磁性マグノンとの結合が起源であることがわかった。

磁場変化の磁場方向依存性を説明するために、この物質で許される磁気弾性結合エネルギーを対称性の議論により導出し、SAW によって生じる有効交流磁場を計算した。副格子磁化を考慮した Landau-Lifshitz 方程式に基づいてこの有効交流磁場と磁化の運動の結合を解析した。磁場方位依存性の計算結果と実験結果を比較することで、SAW は反強磁性マグノンの音響モードと結合していると帰属した。本研究により、初めて単一物質上で弾性波励起とフォノン-マグノン結合現象を同時に観測することに成功し、マルチフェロイックス特有の弾性波現象を明らかにした。

4.2 展望

本研究において示した SAW 現象、およびマルチフェロイックスにおける磁気弾性結合現象からさらなる研究の方向性を考えることができる。

まず SAW の非相反性の巨大化も目指す研究が考えられる。本研究で議論した理論の枠組みでは、まず、円偏偏向した有効交流磁場の円偏向性を強くすることである。そのためには磁気弾性結合定数やひずみテンソルの比を調節することが必要になる。Co のような異方性の強い磁性体など適切な磁性体を選ぶ、SAW 自体の円偏向性の強いモードが固有状態になるように圧電基板物質や結晶方位を工夫することが効果的と考えられる。また、付録で議論するように横ずれ対称ひずみ成分ではなく、ひずみの反対称成分が重要な寄与である場合、磁性薄膜の膜厚を調節することで面直の（形状）異方性を調節することができ、円偏向性を最適化できる可能性がある。

磁性体以外での非相反性も考えられる。SAW の非相反伝搬は、対称性の観点からすると SAW と時間反転対称性を破る何らかの物理系とを結合できれば実現しうると考えられる。時間反転対称性を破る要素として、まず考えられるのは超伝導体内に入る磁束量子である。超伝導体における超音波測定は歴史があり、とくに磁束量子とバルク弾性波や SAW との相互作用も多く観測されている [15]。磁束量子の格子の相転移によっても弾性定数が変化し超音波速度変化として観測できる。また、SAW デバイスの伝搬途中に超伝導薄膜を蒸着し、面直方向に入った磁束量子を SAW によって駆動させる研究が行われている [68]。この研究では SAW を機動力として磁束量子のホール電圧が観測されている。このような系で面内で SAW の伝搬方向と直角に磁場を印加すれば対称性の観点からは SAW の非相反性が期待できる。また、表面に超伝導体で微細な周期構造を作製すれば、量子

磁束のラチェット機構 [69] との結合による SAW の非相反伝搬が期待できる。

磁束量子との結合の他に、外部の輸送現象で時間反転対称性を破ることによる SAW の非相反性制御が考えられる。先行研究 [66] のように、スピン回転結合を介して SAW からスピン流生成ができる。この逆効果を考えれば、SAW が流れているところにスピン流を注入することで SAW の強度をスピン流の流れる方向、またはスピン偏極方向による制御が期待できる。またフォノンと電流の結合現象である電気音響効果の応用として、SAW によって電流を駆動する研究も行われている。この逆効果を考えれば、SAW を電流方向によって制御できる可能性がある。これは電流によって引き起こされるマグノンドップラー効果 [70] の SAW 版と捉えることができる。また、マグノンを SAW によって励起するのではなく、外部から励起させて SAW と結合させることで SAW 信号を制御することも可能であると考えられる。

マルチフェロイック物質を用いた SAW デバイスは我々が特に開拓的な研究を行っており、今後も多くの広がりが見られる。本博士論文で示した CuB_2O_4 における SAW 励起は、磁気秩序起源ではない結晶構造由来の圧電性を利用している。マルチフェロイクスにおける特徴である電気磁気効果を反映させる方法として磁気秩序によって空間反転対称性が破れる磁性体における SAW 励起が考えられる。この場合、電気分極の向きや大きさを磁場によって制御することで SAW 励起強度を大きく変化させることができると考えられる。また、電気分極-マグノン-格子の結合が大きいマルチフェロイクス中では、光の非相反伝搬のような電気磁気光学効果に相当する電気磁気音響効果といえる現象が期待できる。例えば電気分極の方向や磁化の方向を制御することによる多様な非相反性の制御や、片方にしか音波が流れない一方向性の実現が期待できる。このようにマルチフェロイクスにおける光学応答との類推から様々な新奇現象が期待できるが、光学応答において巨大な非相反性が観測された CuB_2O_4 で SAW の非相反性が観測されなかったことから、光学現象とは異なる微視的観点に基づいた物質の選択が必要になると考えられる。

このように SAW はその対称性や微細加工との相性、他の物理系との結合のしやすさなど、多くの特徴を兼ね備えた非常に興味深い弾性波モードであり、今後も他分野を含めて研究が広がっていくと思われる。現在でも量子情報や 2 次元物質、量子液体、エキシトン、オプトメカニクス、生命科学といった領域での応用が盛んに研究されている [71]。これらの分野で発展した技術が相互に統合され、新たな研究が生まれることが期待される。

謝辞

この博士論文は多くの方の協力により形になりました。全ては書ききれませんが、ここで特にお世話になった皆様に短く感謝を申し上げます。大学院課程での研究指導をしていただいた小野瀬佳文教授に感謝いたします。研究方法や論文執筆、物理の見方などについて多くの時間を割いて直接指導していただき多くのことを学ぶことができました。前田京剛教授には学部の卒業研究の時に指導していただき、また自分が東北大学に移る際にも駒場の学生として受け入れてくださり感謝しております。助教授の新居陽一博士には弾性波測定の専門家ということもあり大学院進学当初から直接指導をしていただき、実験技術を多く教わりました。助教授の増田英俊博士は最後の一年で短い期間でしたが、研究室になかった新しい感覚を持ち込んでくださり、とても学ぶことの多い一年となりました。また、高梨弘毅教授、今井良宗准教授、上野和紀准教授、関剛斎准教授、堀田知佐准教授、鍋島冬樹博士、松葉健博士には研究についての議論や実験装置利用に協力していただきました。小野瀬研メンバーの井口雄介博士、廣金優二君、蔣男君、石井優太君、濱原義明君、大津光巧君、赤池瑞生君には実験、研究の議論、楽しい研究生活に協力していただきました。

最後にいつも応援してくれていた両親と姉と大沢桃子さんに特別の感謝を申し上げます。

出版論文リスト

- R. Sasaki, Y. Nii, Y. Iguchi, and Y. Onose. Nonreciprocal propagation of surface acoustic wave in Ni/LiNbO₃. *Physical Review B*, Vol. 95, No. 2, p. 020407, 2017.
- Y. Nii, R. Sasaki, Y. Iguchi, and Y. Onose. Microwave Magnetochiral Effect in the Non-centrosymmetric Magnet CuB₂O₄. *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 86, No. 2, p. 024707, 2017.
- Y. Ishii, R. Sasaki, Y. Nii, T. Ito, and Y. Onose. Magnetically Controlled Surface Acoustic Waves on Multiferroic BiFeO₃. *Physical Review Applied*, Vol. 9, No. 3, p. 034034, 2018.
- R. Sasaki, Y. Nii, and Y. Onose. Surface acoustic wave coupled to magnetic resonance on multiferroic CuB₂O₄. *Physical Review B*, Vol. 99, No. 1, p. 014418, 2019.

参考文献

- [1] A. Soumyanarayanan, N. Reyren, A. Fert, and C. Panagopoulos. Emergent phenomena induced by spin-orbit coupling at surfaces and interfaces. *Nature*, Vol. 539, No. 7630, pp. 509–517, 2016.
- [2] E. RASHBA. Properties of semiconductors with an extremum loop. i. cyclotron and combinational resonance in a magnetic field perpendicular to the plane of the loop. *Sov. Phys.-Solid State*, Vol. 2, p. 1109, 1960.
- [3] V. Edelstein. Spin polarization of conduction electrons induced by electric current in two-dimensional asymmetric electron systems. *Solid State Communications*, Vol. 73, No. 3, pp. 233–235, 1990.
- [4] M. Z. Hasan and C. L. Kane. Topological Insulators. *Physics*, Vol. 82, No. 4, p. 23, 2010.
- [5] S. W. Cheong and M. Mostovoy. Multiferroics: A magnetic twist for ferroelectricity. *Nature Materials*, Vol. 6, No. 1, pp. 13–20, 2007.
- [6] Y. Tokura, S. Seki, and N. Nagaosa. Multiferroics of spin origin. *Reports on progress in physics. Physical Society (Great Britain)*, Vol. 77, No. 7, p. 076501, 2014.
- [7] 有馬孝尚. マルチフェロイクス物質中の電磁気学の新展開. 共立出版, 2014.
- [8] N. Kanazawa, S. Seki, and Y. Tokura. Noncentrosymmetric Magnets Hosting Magnetic Skyrmions. *Advanced Materials*, Vol. 29, No. 25, p. 1603227, 2017.
- [9] Y. Onose, T. Ideue, H. Katsura, Y. Shiomi, N. Nagaosa, and Y. Tokura. Observation of the Magnon Hall Effect. *Science*, Vol. 329, No. 5989, pp. 297–299, 2010.
- [10] F. D. M. Haldane and S. Raghu. Possible Realization of Directional Optical Waveguides in Photonic Crystals with Broken Time-Reversal Symmetry. *Physical Review Letters*, Vol. 100, No. 1, p. 013904, 2008.
- [11] Z. Wang, Y. Chong, J. D. Joannopoulos, and M. Soljačić. Observation of unidirectional backscattering-immune topological electromagnetic states. *Nature*, Vol. 461, No. 7265, pp. 772–5, 2009.
- [12] L. Lu, J. D. Joannopoulos, and M. Soljačić. Topological photonics. *Nature Photonics*, Vol. 8, No. 11, pp. 821–829, 2014.
- [13] H. Matthews and R. C. LeCraw. Acoustic Wave Rotation by Magnon-Phonon Interaction.

- Physical Review Letters*, Vol. 8, No. 10, pp. 397–399, 1962.
- [14] 佐藤勝昭. 現代人の物理 1 光と磁気改訂版. 朝倉書店, 2001.
- [15] B. Lüthi. *Physical Acoustics in the Solid State*. Springer, Berlin, 2005.
- [16] 柴山乾夫監修. 弾性表面波工学. 社会法人電子情報通信学会, 1983.
- [17] L. Landau, E. Lifshitz, A. Kosevich, J. Sykes, L. Pitaevskii, and W. Reid. *Theory of Elasticity*. Course of theoretical physics. Elsevier Science, 1986.
- [18] D. Morgan. *Surface-wave devices for signal processing*. Studies in electrical and electronic engineering. Elsevier, 1985.
- [19] D. Morgan. *Surface acoustic wave filters: With applications to electronic communications and signal processing*. Academic Press, 2010.
- [20] S. Davis, A. Baruth, and S. Adenwalla. Magnetization dynamics triggered by surface acoustic waves. *Applied Physics Letters*, Vol. 97, No. 23, p. 232507, 2010.
- [21] M. Weiler, L. Dreher, C. Heeg, H. Huebl, R. Gross, M. S. Brandt, and S. T. B. Goennenwein. Elastically Driven Ferromagnetic Resonance in Nickel Thin Films. *Physical Review Letters*, Vol. 106, No. 11, p. 117601, 2011.
- [22] L. Dreher, M. Weiler, M. Pernpeintner, H. Huebl, R. Gross, M. S. Brandt, and S. T. B. Goennenwein. Surface acoustic wave driven ferromagnetic resonance in nickel thin films: Theory and experiment. *Physical Review B*, Vol. 86, No. 13, p. 134415, 2012.
- [23] M. Weiler, H. Huebl, F. S. Goerg, F. D. Czeschka, R. Gross, and S. T. B. Goennenwein. Spin pumping with coherent elastic waves. *Physical Review Letters*, Vol. 108, No. 17, pp. 1–5, 2012.
- [24] L. Thevenard, I. S. Camara, S. Majrab, M. Bernard, P. Rovillain, A. Lemaître, C. Gourdon, and J.-Y. Duquesne. *Physical Review B*.
- [25] V. Sampath, N. D’Souza, D. Bhattacharya, G. M. Atkinson, S. Bandyopadhyay, and J. Atulasimha. *Nano Letters*.
- [26] L. Onsager. Reciprocal relations in irreversible processes. i. *Phys. Rev.*, Vol. 37, pp. 405–426, 1931.
- [27] G. Dresselhaus. Spin-orbit coupling effects in zinc blende structures. *Physical Review*, Vol. 100, No. 2, p. 580, 1955.
- [28] A. S. Pine. Direct observation of acoustical activity in α quartz. *Phys. Rev. B*, Vol. 2, pp. 2049–2054, 1970.
- [29] M. Boiteux, P. Doussineau, B. Ferry, J. Joffrin, and a. Levelut. Acoustical Faraday Effect in Antiferromagnetic Cr_2O_3 . *Physical Review B*, Vol. 4, No. 9, pp. 3077–3088, 1971.
- [30] G. L. J. A. Rikken and E. Raupach. Observation of magneto-chiral dichroism. *Nature*, Vol. 390, No. 6659, pp. 493–494, 1997.
- [31] G. L. J. A. Rikken, C. Strohm, and P. Wyder. Observation of Magnetoelectric Directional Anisotropy. *Physical Review Letters*, Vol. 89, No. 13, p. 133005, 2002.

- [32] M. Kubota, T. Arima, Y. Kaneko, J. P. He, X. Z. Yu, and Y. Tokura. X-ray directional dichroism of a polar ferrimagnet. *Physical Review Letters*, Vol. 92, No. 13, pp. 137401–1, 2004.
- [33] G. L. J. A. Rikken, J. Fölling, and P. Wyder. Electrical Magnetochiral Anisotropy. *Physical Review Letters*, Vol. 87, No. 23, p. 236602, 2001.
- [34] Y. Iguchi, S. Uemura, K. Ueno, and Y. Onose. Nonreciprocal magnon propagation in a noncentrosymmetric ferromagnet LiFe_5O_8 . *Physical Review B*, No. 18, p. 184419.
- [35] M. Kataoka. Spin Waves in Systems with Long Period Helical Spin Density Waves Due to the Antisymmetric and Symmetric Exchange Interactions. *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 56, No. 10, pp. 3635–3647, 1987.
- [36] J. Heil, B. Lüthi, and P. Thalmeier. Nonreciprocal surface-acoustic-wave propagation in aluminum. *Physical Review B*, Vol. 25, No. 10, pp. 6515–6517, 1982.
- [37] A. Gurevich and G. Melkov. *Magnetization Oscillations and Waves*. Taylor & Francis, 1996.
- [38] R. Sasaki, Y. Nii, Y. Iguchi, and Y. Onose. Nonreciprocal propagation of surface acoustic wave in Ni/LiNbO_3 . *Physical Review B*, Vol. 95, No. 2, p. 020407, 2017.
- [39] 近角聡信. 強磁性体の物理. 裳華房, 1984.
- [40] E. M. L. L. D. Landau. *Electrodynamics of Continuous Media (Volume 8 of A Course of Theoretical Physics)*. Pergamon Press, 1960.
- [41] R. R. Birss. *Symmetry and magnetism*. North-Holland, Amsterdam, 1966.
- [42] I. Viktorov. *Rayleigh and Lamb Waves: Physical Theory and Applications*. Plenum, New York, 1967.
- [43] D. Labanowski, A. Jung, and S. Salahuddin. Power absorption in acoustically driven ferromagnetic resonance. *Applied Physics Letters*, Vol. 108, No. 2, p. 022905, 2016.
- [44] Z. Tian, D. Sander, and J. Kirschner. Nonlinear magnetoelastic coupling of epitaxial layers of Fe, Co, and Ni on $\text{Ir}(100)$. *Physical Review B*, Vol. 79, No. 2, p. 024432, 2009.
- [45] D. D. Stancil. *Theory of Magnetostatic Waves*. Springer, New York, 1993.
- [46] S. Maekawa and M. Tachiki. Surface acoustic attenuation due to surface spin wave in ferro- and antiferromagnets. *AIP Conference Proceedings*, Vol. 29, No. May 2014, pp. 542–543, 1976.
- [47] M. Matsuo, J. Ieda, K. Harii, E. Saitoh, and S. Maekawa. Mechanical generation of spin current by spin-rotation coupling. *Physical Review B*, Vol. 87, No. 18, p. 180402, 2013.
- [48] M. Maldovan. Sound and heat revolutions in phononics. *Nature*, Vol. 503, No. 7475, pp. 209–217, 2013.
- [49] R. Fleury, D. L. Sounas, C. F. Sieck, M. R. Haberman, A. Alu, and A. Alù. Sound Isolation and Giant Linear Nonreciprocity in a Compact Acoustic Circulator. *Science*, Vol. 343, No. 6170, pp. 516–519, 2014.

- [50] M. Saito, K. Ishikawa, K. Taniguchi, and T. Arima. Magnetic Control of Crystal Chirality and the Existence of a Large Magneto-Optical Dichroism Effect in CuB_2O_4 . *Physical Review Letters*, Vol. 101, No. 11, p. 117402, sep 2008.
- [51] I. Kézsmárki, N. Kida, H. Murakawa, S. Bordács, Y. Onose, and Y. Tokura. Enhanced Directional Dichroism of Terahertz Light in Resonance with Magnetic Excitations of the Multiferroic $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ Oxide Compound. *Physical Review Letters*, Vol. 106, No. 5, p. 057403, 2011.
- [52] Y. Nii, R. Sasaki, Y. Iguchi, and Y. Onose. Microwave Magneto-chiral Effect in the Non-centrosymmetric Magnet CuB_2O_4 . *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 86, No. 2, p. 024707, 2017.
- [53] Y. Takahashi, R. Shimano, Y. Kaneko, H. Murakawa, and Y. Tokura. Magnetoelectric resonance with electromagnons in a perovskite helimagnet. *Nature Physics*, Vol. 8, No. 2, pp. 121–125, 2012.
- [54] A. Pimenov, A. A. Mukhin, V. Y. Ivanov, V. D. Travkin, A. M. Balbashov, and A. Loidl. Possible evidence for electromagnons in multiferroic manganites. *Nature Physics*, Vol. 2, No. 2, pp. 97–100, 2006.
- [55] J. Ma, J. Hu, Z. Li, and C.-W. Nan. Recent Progress in Multiferroic Magnetoelectric Composites: from Bulk to Thin Films. *Advanced Materials*, Vol. 23, No. 9, pp. 1062–1087, 2011.
- [56] S. Valencia, A. Crassous, L. Bocher, V. Garcia, X. Moya, R. O. Cherifi, C. Deranlot, K. Bouzouane, S. Fusil, A. Zobelli, A. Gloter, N. D. Mathur, A. Gaupp, R. Abrudan, F. Radu, A. Barthélémy, and M. Bibes. Interface-induced room-temperature multiferroicity in BaTiO_3 . *Nature Materials*, Vol. 10, No. 10, pp. 753–758, 2011.
- [57] M. Xu, J. Puebla, F. Auvray, B. Rana, K. Kondou, and Y. Otani. Inverse Edelstein effect induced by magnon-phonon coupling. *Physical Review B*, Vol. 97, No. 18, p. 180301, 2018.
- [58] Y. Ishii, R. Sasaki, Y. Nii, T. Ito, and Y. Onose. Magnetically Controlled Surface Acoustic Waves on Multiferroic BiFeO_3 . *Physical Review Applied*, Vol. 9, No. 3, p. 034034, 2018.
- [59] U. Nagel, R. S. Fishman, T. Katuwal, H. Engelkamp, D. Talbayev, H. T. Yi, S. W. Cheong, and T. Rõm. Terahertz spectroscopy of spin waves in multiferroic BiFeO_3 in high magnetic fields. *Physical Review Letters*, Vol. 110, No. 25, pp. 1–5, 2013.
- [60] C. Caspers, V. P. Gandhi, A. Magrez, E. de Rijk, and J.-P. Ansermet. Sub-terahertz spectroscopy of magnetic resonance in BiFeO_3 using a vector network analyzer. *Applied Physics Letters*, Vol. 108, No. 24, p. 241109, 2016.
- [61] M. Boehm, B. Roessli, J. Schefer, A. S. Wills, B. Ouladdiaf, E. Lelièvre-Berna, U. Staub, and G. A. Petrakovskii. Complex magnetic ground state of CuB_2O_4 . *Physical Review B*, Vol. 68, No. 2, p. 024405, 2003.

- [62] R. Pisarev, I. Sanger, G. Petrakovskii, and M. Fiebig. Magnetic-Field Induced Second Harmonic Generation in CuB_2O_4 . *Physical Review Letters*, Vol. 93, No. 3, p. 037204, 2004.
- [63] A. I. Pankrats, G. A. Petrakovskii, and N. V. Volkov. Antiferromagnetic resonance in CuB_2O_4 single crystal. *Physics of the Solid State*, Vol. 42, No. 1, pp. 96–102, 2000.
- [64] T. Fujita, Y. Fujimoto, S. Mitsudo, T. Idehara, K. Inoue, J. Kishine, Y. Kousaka, S. Yano, J. Akimitsu, and M. Motokawa. High field ESR measurements on the chiral spin system CuB_2O_4 . *Journal of Physics: Conference Series*, Vol. 51, No. 1, pp. 111–114, 2006.
- [65] G. A. Petrakovskii, A. I. Pankrats, M. A. Popov, A. D. Balaev, D. A. Velikanov, A. M. Vorotynev, K. A. Sablina, B. Roessli, J. Schefer, A. Amato, U. Staub, M. Boehm, and B. Ouladdiaf. Magnetic properties of copper metaborate CuB_2O_4 . *Low Temperature Physics*, Vol. 28, No. 8, pp. 606–612, 2002.
- [66] D. Kobayashi, T. Yoshikawa, M. Matsuo, R. Iguchi, S. Maekawa, E. Saitoh, and Y. Nozaki. Spin Current Generation Using a Surface Acoustic Wave Generated via Spin-Rotation Coupling. *Physical Review Letters*, Vol. 119, No. 7, p. 077202, 2017.
- [67] R. Sasaki, Y. Nii, and Y. Onose. Surface acoustic wave coupled to magnetic resonance on multiferroic CuB_2O_4 . *Physical Review B*, Vol. 99, No. 1, p. 014418, 2019.
- [68] F. Jachmann and C. Hucho. Transport of magnetic vortices by surface acoustic waves. *Solid State Communications*, Vol. 142, No. 4, pp. 212 – 216, 2007.
- [69] J. E. Villegas, S. Savel’ev, F. Nori, E. M. Gonzalez, J. V. Anguita, R. Garca, and J. L. Vicent. A superconducting reversible rectifier that controls the motion of magnetic flux quanta. *Science*, Vol. 302, No. 5648, pp. 1188–1191, 2003.
- [70] V. Vlaminck and M. Bailleul. Current-Induced Spin-Wave Doppler Shift. *Science*, Vol. 322, No. 5900, pp. 410–413, oct 2008.
- [71] P. Delsing, A. N. Cleland, M. J. A. Schuetz, J. Knorzer, G. Giedke, J. I. Cirac, K. Srinivasan, M. Wu, K. C. Balram, C. Bauerle, T. Meunier, C. J. B. Ford, P. V. Santos, E. Cerda-Mendez, H. Wang, H. J. Krenner, E. D. S. Nysten, M. Wei, G. R. Nash, L. Thevenard, C. Gourdon, P. Rovillain, M. Marangolo, J.-Y. Duquesne, G. Fischerauer, W. Ruile, A. Reiner, B. Paschke, D. Denysenko, D. Volkmer, A. Wixforth, H. Bruus, M. Wiklund, J. Reboud, J. M. Cooper, Y. Fu, M. S. Brugger, F. Rehfeldt, and C. Westerhausen. *Journal of Physics D: Applied Physics*.
- [72] L. Zhang and Q. Niu. Angular Momentum of Phonons and the Einstein–de Haas Effect. *Physical Review Letters*, Vol. 112, No. 8, p. 085503, 2014.
- [73] R. Camley. Nonreciprocal surface waves. *Surface Science Reports*, Vol. 7, No. 3-4, pp. 103–187, 1987.
- [74] H. Engan. Excitation of elastic surface waves by spatial harmonics of interdigital transducers. *IEEE Transactions on Electron Devices*, Vol. 16, No. 12, pp. 1014–1017, 1969.

- [75] V. Dohm and P. Fulde. Magnetoelastic interaction in rare earth systems. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, Vol. 21, No. 4, pp. 369–379, 1975.
- [76] P. S. Wang and B. Lüthi. *Physical Review B*.
- [77] T. Goto, A. Tamaki, T. Fujimura, and H. Unoki. Quadrupolar Response and Rotational Invariance of Singlet Ground State System; HoVO₄, 1986.
- [78] M. Xu, K. Yamamoto, J. Puebla, K. Baumgaertl, B. Rana, K. Miura, H. Takahashi, D. Grundler, S. Maekawa, and Y. Otani. Tunable acoustic wave rectification in anisotropic magnets, 2020. arXiv:1410.5093.
- [79] M. F. Lewis and E. Patterson. Acoustic-Surface-Wave Isolator. *Applied Physics Letters*, Vol. 20, No. 8, pp. 276–278, 1972.
- [80] R. Wiegert and M. Levy. Temperature dependence and annealing effects on magnetoelastic SAW attenuation and magnetoresistance in Ni films. *IEEE Transactions on Magnetics*, Vol. 37, No. 4, pp. 2708–2711, 2001.
- [81] W. Mason. *Physical Acoustics V9: Principles and Methods*. Elsevier Science, 2012.

付録 A

等方性媒体中の表面弾性波

本論文中での中心となる表面弾性波モードを等方性媒体の場合に導出する。本研究中では基板は圧電基板なので異方性媒体であるが、表面弾性波の特徴的な挙動は等方性媒体を考察することで多く現れる。変位場、およびそれから導かれるひずみ場について書かれた文献が少ないので、ここでの結果が本研究には役立つ。また、得られた変位場から本研究の考察に使えるようなこと、関連する事柄についていくつかまとめた。

A.1 波動方程式

弾性体中の平衡位置からの変位した運動方程式は（圧電効果のない場合）

$$\begin{aligned}\rho\Delta x\Delta y\Delta z\frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} &= (\sigma_{11}(x+\Delta x, y, z) - \sigma_{11}(x, y, z))\Delta y\Delta z \\ &\quad + (\sigma_{12}(x, y+\Delta y, z) - \sigma_{12}(x, y, z))\Delta z\Delta x \\ &\quad + (\sigma_{13}(x, y, z+\Delta z) - \sigma_{13}(x, y, z))\Delta x\Delta y \\ \rho\Delta x\Delta y\Delta z\frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2} &= (\sigma_{21}(x+\Delta x, y, z) - \sigma_{21}(x, y, z))\Delta y\Delta z \\ &\quad + (\sigma_{22}(x, y+\Delta y, z) - \sigma_{22}(x, y, z))\Delta z\Delta x \\ &\quad + (\sigma_{23}(x, y, z+\Delta z) - \sigma_{23}(x, y, z))\Delta x\Delta y \\ \rho\Delta x\Delta y\Delta z\frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} &= (\sigma_{31}(x+\Delta x, y, z) - \sigma_{31}(x, y, z))\Delta y\Delta z \\ &\quad + (\sigma_{32}(x, y+\Delta y, z) - \sigma_{32}(x, y, z))\Delta z\Delta x \\ &\quad + (\sigma_{33}(x, y, z+\Delta z) - \sigma_{33}(x, y, z))\Delta x\Delta y\end{aligned}\tag{A.1}$$

σ_{ij} は応力テンソル. $u_i = u_i(x, y, z)$ は平衡位置からの変位. インデックスとして $\{i, j, k\} = \{x, y, z\} = \{1, 2, 3\}$ と対応付ける. 応力テンソルは添字の入れ替えに対して対称 [17] *1 :

$$\sigma_{ij} = \sigma_{ji}. \quad (\text{A.2})$$

$\Delta x \Delta y \Delta z$ で割って

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} &= \frac{\sigma_{11}(x + \Delta x, y, z) - \sigma_{11}(x, y, z)}{\Delta x} \\ &+ \frac{\sigma_{12}(x, y + \Delta y, z) - \sigma_{12}(x, y, z)}{\Delta y} + \frac{\sigma_{13}(x, y, z + \Delta z) - \sigma_{13}(x, y, z)}{\Delta z} \\ \rho \frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2} &= \frac{\sigma_{21}(x + \Delta x, y, z) - \sigma_{21}(x, y, z)}{\Delta x} \\ &+ \frac{\sigma_{22}(x, y + \Delta y, z) - \sigma_{22}(x, y, z)}{\Delta y} + \frac{\sigma_{23}(x, y, z + \Delta z) - \sigma_{23}(x, y, z)}{\Delta z} \\ \rho \frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} &= \frac{\sigma_{31}(x + \Delta x, y, z) - \sigma_{31}(x, y, z)}{\Delta x} \\ &+ \frac{\sigma_{32}(x, y + \Delta y, z) - \sigma_{32}(x, y, z)}{\Delta y} + \frac{\sigma_{33}(x, y, z + \Delta z) - \sigma_{33}(x, y, z)}{\Delta z} \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

$\Delta x \Delta y \Delta z \rightarrow 0$ の極限をとると

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} &= \frac{\partial \sigma_{11}(x, y, z)}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{12}(x, y, z)}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_{13}(x, y, z)}{\partial z}, \\ \rho \frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2} &= \frac{\partial \sigma_{21}(x, y, z)}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{22}(x, y, z)}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_{23}(x, y, z)}{\partial z}, \\ \rho \frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} &= \frac{\partial \sigma_{31}(x, y, z)}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{32}(x, y, z)}{\partial y} + \frac{\partial \sigma_{33}(x, y, z)}{\partial z}, \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

のように方程式が得られる.

ここで, 弾性体における応力テンソルとひずみの間の関係を考える. ひずみの小さい場合は応力テンソル σ_{ij} とひずみテンソル ϵ_{kl} が比例し

$$\sigma_{ij} = c_{ijkl} \epsilon_{kl} \quad (\text{A.5})$$

が成り立つ (フックの法則). c_{ijkl} は弾性スティフネスで, 媒質の種類に依存する定数である. ϵ_{ij} は (対称) ひずみテンソルで

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2} (\partial_j u_i + \partial_i u_j) \quad (\text{A.6})$$

で定義される. テンソル $\partial_j u_i$ を変形テンソルということもある. ひずみテンソルは, 定義から明らかに添字の入れ替えに関して対称である:

$$\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji} \quad (\text{A.7})$$

*1 表面のように空間の一方にしか弾性体が存在しない場合でも成り立つ. 文献 [17] での証明の概要: 物体に働く力のモーメント $M_{ik} = \oint (\sigma_{il} x_k - \sigma_{kl} x_i) df_l + \int (\sigma_{ki} - \sigma_{ik}) dV$ が内部では打ち消され, 表面積分のみによって表されるためには $\sigma_{ki} = \sigma_{ik}$ が必要であることから導かれる. (物質中の体積素 dV 同士の間には働く内力は作用反作用の関係により打ち消され, 物体に働く合力は表面に働く応力の表面積分のみで表される, という議論と同様)

フックの法則には現れないが，一般に変形テンソルを反対称化した反対称ひずみテンソル

$$\Omega_{ij} = \frac{1}{2} (\partial_j u_i - \partial_i u_j) \quad (\text{A.8})$$

という値も考えることができる．これは変形を伴わない純粋な剛体回転成分を表す．定義から Ω_{ij} の対角成分は常にゼロである：

$$\Omega_{ii} = 0 \quad (i = 1, 2, 3). \quad (\text{A.9})$$

ひずみテンソルとは異なり，添字の入れ替えに対して反対称である：

$$\Omega_{ij} = -\Omega_{ji}. \quad (\text{A.10})$$

また定義から変形テンソルは

$$\partial_j u_i = \epsilon_{ij} + \Omega_{ij} \quad (\text{A.11})$$

と書け，ひずみ成分と剛体回転成分とに分離できる． $\epsilon_{ij} = 0$ であれば純粋な回転を扱っていることとなり， $\epsilon_{ij} \neq 0$ であれば変形を伴う現象ということになる．

今は，等方性媒体を仮定しているので，式 (A.5) に関して，弾性スティフネスはラーメの定数 μ ， λ を用いて書き直すことができる：

$$c_{ijkl} = \mu(\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}) + \lambda\delta_{ij}\delta_{kl}. \quad (\text{A.12})$$

式 (A.5) と (A.12) を (A.4) に代入して

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} &= \frac{\partial}{\partial x} ((2\mu + \lambda)\epsilon_{11} + \lambda\epsilon_{22} + \lambda\epsilon_{33}) + \frac{\partial}{\partial y} \mu(\epsilon_{12} + \epsilon_{21}) + \frac{\partial}{\partial z} \mu(\epsilon_{13} + \epsilon_{31}), \\ \rho \frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2} &= \frac{\partial}{\partial x} \mu(\epsilon_{21} + \epsilon_{12}) + \frac{\partial}{\partial y} (\lambda\epsilon_{11} + (2\mu + \lambda)\epsilon_{22} + \lambda\epsilon_{33}) + \frac{\partial}{\partial z} \mu(\epsilon_{23} + \epsilon_{32}), \\ \rho \frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} &= \frac{\partial}{\partial x} \mu(\epsilon_{31} + \epsilon_{13}) + \frac{\partial}{\partial y} \mu(\epsilon_{32} + \epsilon_{23}) + \frac{\partial}{\partial z} (\lambda\epsilon_{11} + \lambda\epsilon_{22} + (2\mu + \lambda)\epsilon_{33}). \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

ひずみテンソルを式 (A.6) を用いて，変位で書き直すと，

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} &= \left((2\mu + \lambda) \frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \lambda \frac{\partial^2 u_y}{\partial x \partial y} + \lambda \frac{\partial^2 u_z}{\partial z \partial x} \right) + \mu \left(\frac{\partial^2 u_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial x \partial y} \right) + \mu \left(\frac{\partial^2 u_x}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z \partial x} \right), \\ \rho \frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2} &= \mu \left(\frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial x \partial y} \right) + \left(\lambda \frac{\partial^2 u_x}{\partial x \partial y} + (2\mu + \lambda) \frac{\partial^2 u_y}{\partial y^2} + \lambda \frac{\partial^2 u_z}{\partial y \partial z} \right) + \mu \left(\frac{\partial^2 u_y}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial y \partial z} \right), \\ \rho \frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} &= \mu \left(\frac{\partial^2 u_z}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial z \partial x} \right) + \mu \left(\frac{\partial^2 u_z}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial y \partial z} \right) + \left(\lambda \frac{\partial^2 u_x}{\partial z \partial x} + \lambda \frac{\partial^2 u_y}{\partial y \partial z} + (2\mu + \lambda) \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} \right). \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

したがって，波動方程式を得ることができ，

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} &= (\mu + \lambda) \frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \mu \Delta u_x + (\mu + \lambda) \left(\frac{\partial^2 u_y}{\partial x \partial y} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z \partial x} \right), \\ \rho \frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2} &= (\mu + \lambda) \frac{\partial^2 u_y}{\partial y^2} + \mu \Delta u_y + (\mu + \lambda) \left(\frac{\partial^2 u_z}{\partial y \partial z} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial x \partial y} \right), \\ \rho \frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} &= (\mu + \lambda) \frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} + \mu \Delta u_z + (\mu + \lambda) \left(\frac{\partial^2 u_x}{\partial z \partial x} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial y \partial z} \right), \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

のようになる。ここで、ラプラス演算子を

$$\Delta = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \quad (\text{A.16})$$

で定義した。より整理しておくとして、

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial^2 u_x}{\partial t^2} &= \mu \Delta u_x + (\mu + \lambda) \left(\frac{\partial^2 u_x}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial x \partial y} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial z \partial x} \right), \\ \rho \frac{\partial^2 u_y}{\partial t^2} &= \mu \Delta u_y + (\mu + \lambda) \left(\frac{\partial^2 u_y}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 u_z}{\partial y \partial z} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial x \partial y} \right), \\ \rho \frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} &= \mu \Delta u_z + (\mu + \lambda) \left(\frac{\partial^2 u_z}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 u_x}{\partial z \partial x} + \frac{\partial^2 u_y}{\partial y \partial z} \right). \end{aligned} \quad (\text{A.17})$$

三つの方程式をまとめると

$$\rho \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} = \mu \Delta \mathbf{u} + (\mu + \lambda) \nabla (\nabla \cdot \mathbf{u}) \quad (\text{A.18})$$

と表せる。

A.2 Rayleigh 波

上で得られた波動方程式を解く。ここで、解の形として振幅が z に依存する平面波解を仮定する*2。

$$\begin{aligned} u_x &= \tilde{u}_x(z) e^{i(\omega t - kx)} \\ u_y &= \tilde{u}_y(z) e^{i(\omega t - kx)} \\ u_z &= \tilde{u}_z(z) e^{i(\omega t - kx)} \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

y 軸方向には一様と仮定している。式 (A.19) を式 (A.15) に代入すると、

$$\begin{aligned} -\omega^2 \rho \tilde{u}_x(z) &= -k^2 (\mu + \lambda) \tilde{u}_x(z) + \mu (-k^2 \tilde{u}_x(z) + \tilde{u}_x''(z)) - ik(\mu + \lambda) \tilde{u}_z'(z) \\ -\omega^2 \rho \tilde{u}_y(z) &= \mu (-k^2 \tilde{u}_y(z) + \tilde{u}_y''(z)) \\ -\omega^2 \rho \tilde{u}_z(z) &= (\mu + \lambda) \tilde{u}_z''(z) + \mu (-k^2 \tilde{u}_z(z) + \tilde{u}_z''(z)) - ik(\mu + \lambda) \tilde{u}_x'(z) \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

記号 ($'$) は $\frac{\partial}{\partial z}$ を表す。整理して、

$$\tilde{u}_x''(z) + \left(\frac{\omega^2 \rho}{\mu} - \frac{2\mu + \lambda}{\mu} k^2 \right) \tilde{u}_x(z) - i \frac{\mu + \lambda}{\mu} k \tilde{u}_z'(z) = 0 \quad (\text{A.21})$$

$$\tilde{u}_y''(z) + \left(\frac{\omega^2 \rho}{\mu} - k^2 \right) \tilde{u}_y(z) = 0 \quad (\text{A.22})$$

$$\tilde{u}_z''(z) + \left(\frac{\omega^2 \rho}{2\mu + \lambda} - \frac{\mu}{2\mu + \lambda} k^2 \right) \tilde{u}_z(z) - i \frac{\mu + \lambda}{2\mu + \lambda} k \tilde{u}_x'(z) = 0 \quad (\text{A.23})$$

が得られる。

*2 教科書 [16] に合わせて $(\omega t - kx)$ にした。この形だと、時間が進むと位相も進む。

この $\tilde{u}_x(z), \tilde{u}_y(z), \tilde{u}_z(z)$ に関する連立常微分方程式を解く. ここでは表面波を考えているので, $z \rightarrow \infty$ で, $\tilde{u}_x(z) \rightarrow 0, \tilde{u}_y(z) \rightarrow 0, \tilde{u}_z(z) \rightarrow 0$ となる解を求める.

まず式 (A.22) は, $z \rightarrow \infty$ で $\tilde{u}_y(z) \rightarrow 0$ となることから振動解は不適で $k^2 - \omega^2 \rho / \mu > 0$ であり,

$$\tilde{u}_y(z) = A_2 \exp\left(-\sqrt{k^2 - \frac{\omega^2 \rho}{\mu}} z\right) \quad (\text{A.24})$$

と解ける. ただし A_2 は定数.

次に, 式 (A.21),(A.23) を解く. ここで,

$$\tilde{u}'_x(z) = \xi(z) \quad (\text{A.25})$$

$$\tilde{u}'_z(z) = \zeta(z) \quad (\text{A.26})$$

とおくと, 一階の連立方程式に帰着できる.

$$\xi'(z) = i \frac{\mu + \lambda}{\mu} k \zeta(z) - \left(\frac{\omega^2 \rho}{\mu} - \frac{2\mu + \lambda}{\mu} k^2 \right) \tilde{u}_x(z) \quad (\text{A.27})$$

$$\zeta'(z) = i \frac{\mu + \lambda}{2\mu + \lambda} k \xi(z) - \left(\frac{\omega^2 \rho}{2\mu + \lambda} - \frac{\mu}{2\mu + \lambda} k^2 \right) \tilde{u}_z(z) \quad (\text{A.28})$$

$$\tilde{u}'_x(z) = \xi(z) \quad (\text{A.29})$$

$$\tilde{u}'_z(z) = \zeta(z) \quad (\text{A.30})$$

変数をベクトルとして

$$\mathbf{X} = \begin{pmatrix} \xi(z) \\ \zeta(z) \\ \tilde{u}_x(z) \\ \tilde{u}_z(z) \end{pmatrix} \quad (\text{A.31})$$

とまとめると, 上の連立微分方程式は,

$$\frac{d}{dt} \mathbf{X} = \begin{pmatrix} & i \frac{\mu + \lambda}{\mu} k & - \left(\frac{\omega^2 \rho}{\mu} - \frac{2\mu + \lambda}{\mu} k^2 \right) & \\ i \frac{\mu + \lambda}{2\mu + \lambda} k & & & - \left(\frac{\omega^2 \rho}{2\mu + \lambda} - \frac{\mu}{2\mu + \lambda} k^2 \right) \\ 1 & & & \\ & & 1 & \end{pmatrix} \mathbf{X} \quad (\text{A.32})$$

$$= M \mathbf{X} \quad (\text{A.33})$$

とかける. 行列 M の固有値と固有ベクトルは, 順序を対応させて表記すると,

$$\langle -s, s, -q, q \rangle \left\langle \begin{pmatrix} -is^2/k \\ -s \\ is/k \\ 1 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} -is^2/k \\ s \\ -is/k \\ 1 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} -q \\ -q^2/k \\ 1 \\ -iq/k \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} -q \\ q^2/k \\ -1 \\ -iq/k \end{pmatrix} \right\rangle \quad (\text{A.34})$$

である。ここで、波数の次元を持つ定数として

$$q \equiv \sqrt{k^2 - \frac{\omega^2 \rho}{\lambda + 2\mu}} \quad (\text{A.35})$$

$$s \equiv \sqrt{k^2 - \frac{\omega^2 \rho}{\mu}} \quad (\text{A.36})$$

を定義した。 $k > q > s$ である。 $z \rightarrow \infty$ のとき、変位はゼロになるから、固有値は負でなければならない。よって得られた固有値のうち $-s, -q$ のみが適で、一般解は

$$\mathbf{X} = A_1 e^{-qz} \begin{pmatrix} -q \\ -q^2/k \\ 1 \\ -iq/k \end{pmatrix} + A_3 e^{-sz} \begin{pmatrix} -is^2/k \\ -s \\ is/k \\ 1 \end{pmatrix} \quad (\text{A.37})$$

と表せる。よって式 (A.31) から変位成分に注目すると

$$\tilde{u}_x(z) = A_1 e^{-qz} + A_3 i \frac{s}{k} e^{-sz} \quad (\text{A.38})$$

$$\tilde{u}_z(z) = -A_1 i \frac{q}{k} e^{-qz} + A_3 e^{-sz} \quad (\text{A.39})$$

となる。

式 (A.19) と式 (A.38),(A.24),(A.39) から、振動の式が得られる:

$$u_x = \left(A_1 e^{-qz} + A_3 i \frac{s}{k} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \quad (\text{A.40})$$

$$u_y = A_2 e^{-sz} e^{i(\omega t - kx)} \quad (\text{A.41})$$

$$u_z = \left(-A_1 i \frac{q}{k} e^{-qz} + A_3 e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \quad (\text{A.42})$$

定義から、 A_1, A_2, A_3 は長さの次元をもつ定数である。

求めた一般解に対し、界面の境界条件を入れることで、縦波と横波が結合する。

媒質の表面 ($z = 0$) における境界条件として自由端を考えると、 z 面にかかる応力テンソルに関して

$$\sigma_{xz} = 0 \quad (\text{A.43})$$

$$\sigma_{yz} = 0 \quad (\text{A.44})$$

$$\sigma_{zz} = 0 \quad (\text{A.45})$$

が成り立つ *3. それぞれの応力テンソルを上で求めた変位の式をつかって書き出すと,

$$\begin{aligned}\sigma_{xz} &= \mu \left(\frac{\partial u_x}{\partial z} + \frac{\partial u_z}{\partial x} \right) \\ &= \mu \left(-2qA_1 e^{-qz} - i \frac{s^2 + k^2}{k} A_3 e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)}\end{aligned}\quad (\text{A.46})$$

$$\begin{aligned}\sigma_{yz} &= \mu \left(\frac{\partial u_y}{\partial z} + \frac{\partial u_z}{\partial y} \right) \\ &= -\mu s A_2 e^{-sz} e^{i(\omega t - kx)}\end{aligned}\quad (\text{A.47})$$

$$\begin{aligned}\sigma_{zz} &= \lambda \frac{\partial u_x}{\partial x} + \lambda \frac{\partial u_y}{\partial y} + (2\mu + \lambda) \frac{\partial u_z}{\partial z} \\ &= \left(i\mu \frac{s^2 + k^2}{k} A_1 e^{-qz} - 2\mu s A_3 e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)}\end{aligned}\quad (\text{A.48})$$

σ_{yz} の条件から $A_2 = 0$ となり, y 方向の変位はないことになる. これが等方媒体自由端条件 (媒質と真空の界面を伝搬する場合) の特徴である. つまり **SH 波** が存在しない*4.

σ_{xz}, σ_{zz} の条件から, A_1, A_3 に関しての連立方程式

$$\begin{cases} -2qkA_1 - i(s^2 + k^2)A_3 = 0 \\ i\mu(s^2 + k^2)A_1 - 2\mu ksA_3 = 0 \end{cases}\quad (\text{A.49})$$

が立つ. これが自明でない解を持つための条件は

$$4qsk^2 - (s^2 + k^2)^2 = 0\quad (\text{A.50})$$

これを満たす k の範囲で, 表面波が定義され, そのモードを **Rayleigh 波** という.

上の式 (A.49) を用いて A_3 を消去すると,

$$u_x = A_1 \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)}\quad (\text{A.51})$$

$$u_z = -iA_1 \frac{q}{k} \left(e^{-qz} - \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)}\quad (\text{A.52})$$

*3 式 (A.5) からこの 3 式の境界条件はラーメ定数の式 (A.12) を使って, $\sigma_{xz} = c_{xzkl}\epsilon_{kl} = \mu(\epsilon_{xz} + \epsilon_{zx}) = 0, \sigma_{yz} = c_{yzkl}\epsilon_{kl} = \mu(\epsilon_{yz} + \epsilon_{zy}) = 0, \sigma_{zz} = c_{zzkl}\epsilon_{kl} = (\mu + \lambda)\epsilon_{zz} = 0$ と書きなおせる. これにより, 界面 $z = 0$ におけるひずみテンソルは $\epsilon_{zx} = \epsilon_{yz} = \epsilon_{zz} = 0$ となり, 横波ひずみはなくなる. このことは, 下の「ひずみの式」の節でも e_{zx} を導出し, 触れている. 等方性媒体でないとき, 横波ひずみが残るかどうかは弾性定数テンソル $c_{xzkl}, c_{yzkl}, c_{zzkl}$ ($k, l = x, y, z$) の値に依存する. 非等方性媒体を正しく扱う場合は, 媒質が圧電性を持つために変位と弾性定数の他に電気ポテンシャルや圧電定数を取り扱う必要がある. 電束密度の境界条件も考慮する必要があり, 弾性定数テンソルのみからは結論が出ない.

*4 もし, 波数ベクトル \mathbf{k} が z 成分を持つ場合, $A_2 = 0$ を課さずに境界条件を満たすことができる. つまり, 等方性媒質内にも SH 波が存在できる [19]

と u_x, u_z が求まる. 以上から, Rayleigh 波における変位場の式は

$$\begin{aligned} u_x &= A_1 \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \\ u_y &= 0 \\ u_z &= -iA_1 \frac{q}{k} \left(e^{-qz} - \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \end{aligned} \quad (\text{A.53})$$

A.3 SAW における対称ひずみと反対称ひずみ

式 (A.53) もとにひずみテンソルと対称ひずみの振動を求める.

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \frac{\partial u_x}{\partial x} = -iA_1 k \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \\ \epsilon_{zz} &= \frac{\partial u_z}{\partial z} = -iA_1 \frac{q}{k} \left(-qe^{-qz} + s \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \\ \epsilon_{zx} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_z}{\partial x} + \frac{\partial u_x}{\partial z} \right) = A_1 q \left(e^{-sz} - e^{-qz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \end{aligned} \quad (\text{A.54})$$

このことから, 表面 $z = 0$ においては $\epsilon_{zx} = 0$ であり, 横ずれひずみが存在しない. また, $k \rightarrow -k$ の置き換えをすると, $\epsilon_{xx}, \epsilon_{zz}$ の符号は反転するが, ϵ_{zx} の符号は変わらない.

剛体回転を表す反対称ひずみの振動は,

$$\begin{aligned} \Omega_{zy} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_z}{\partial y} - \frac{\partial u_y}{\partial z} \right) = 0 \\ \Omega_{xz} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_x}{\partial z} - \frac{\partial u_z}{\partial x} \right) = -A_1 q \frac{k^2 - s^2}{k^2 + s^2} e^{-sz} e^{i(\omega t - kx)} \\ \Omega_{yx} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_y}{\partial x} - \frac{\partial u_x}{\partial y} \right) = 0 \end{aligned} \quad (\text{A.55})$$

$k \rightarrow -k$ の置き換えをすると, ω_{xz} の符号は変わらない.

SAW とバルクの弾性波との違いは反対称ひずみに大きく現れる. 対称ひずみと反対称ひずみの比を考えると

$$\frac{|\epsilon_{zx}|}{|\Omega_{xz}|} = \frac{e^{-sz} - e^{-qz}}{\frac{k^2 - s^2}{k^2 + s^2} e^{-sz}} = \frac{k^2 + s^2}{k^2 - s^2} (1 - e^{-(q-s)z}) \quad (\text{A.56})$$

となり, 表面の 0 から深さ方向に向かって指数関数的に 1 程度に近く. つまり表面付近では Ω_{xz} が支配的になる. $z \rightarrow \infty$ (バルク極限) では

$$\lim_{z \rightarrow \infty} \frac{|\epsilon_{zx}|}{|\Omega_{xz}|} = \frac{k^2 + s^2}{k^2 - s^2} = \frac{2k^2 - \frac{\omega^2 \rho}{\mu}}{\frac{\omega^2 \rho}{\mu}} = \frac{2k^2 \mu}{\omega^2 \rho} - 1 \quad (\text{A.57})$$

となる.

A.4 SAW におけるバーネット磁場とフォノンの角運動量の考察

SAW, 特に Rayleigh 波は変位やひずみに関して「回転」していると言えるような特徴をいくつか持つ. SAW におけるバーネット効果や角運動量といった概念について考察する.

ベクトルとして $\boldsymbol{\Omega} = (\Omega_{zy}, \Omega_{xz}, \Omega_{yx})$ を定義すると, $\boldsymbol{\Omega} = \frac{1}{2}\nabla \times \mathbf{u}$ が成り立つ. この時間微分で渦度が求まる. 渦度と角速度を同一視すると, 角速度と磁化との結合であるバーネット効果による有効磁場 $\mathbf{B}_{\text{Barnett}}$ は,

$$\mathbf{B}_{\text{Barnett}} = \frac{\dot{\boldsymbol{\Omega}}}{\gamma} \propto (0, \sin(\omega t - kx), 0) \quad (\text{A.58})$$

で表され, y 成分のみをもち, SAW と同じ周波数を持つ交流磁場になることがわかる. このため伝搬方向 k が反転しても振動の位相を除いた方向や大きさは変わらない. 磁化 \mathbf{M} との結合は

$$\mathbf{M} = \chi \frac{\dot{\boldsymbol{\Omega}}}{\gamma} \quad (\text{A.59})$$

である. ここで, γ, χ は磁気角運動量比と磁化率である.

次に表面弾性波のフォノンがもつ角運動量を考察する. フォノンの角運動量 \mathbf{J}^{ph} は文献 [72] による定義に従うと,

$$\mathbf{J}^{ph} = \sum_{l\alpha} \mathbf{u}_{l\alpha} \times \dot{\mathbf{u}}_{l\alpha} \quad (\text{A.60})$$

l, α はそれぞれユニットセルとその中の原子の指標. $\mathbf{u}_{l\alpha}$ は原子の質量のルートを含んでいる. ここでは安直に上で求めた表面弾性波の変位の式を代入して角運動量を求める. ある原子一つが持つ角運動量の y 成分は

$$\begin{aligned} J_y^{ph} &= \text{Re}[u_z] \text{Re}[\dot{u}_x] - \text{Re}[u_x] \text{Re}[\dot{u}_z] \\ &= \text{Re} \left[-iA_1 \frac{q}{k} \left(e^{-qz} - \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \right] \text{Re} \left[i\omega A_1 \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \right] \\ &\quad - \text{Re} \left[A_1 \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \right] \text{Re} \left[\omega A_1 \frac{q}{k} \left(e^{-qz} - \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \right] \\ &= -\omega \frac{q}{k} A_1^2 \left(e^{-qz} - \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) \sin^2(\omega t - kx) \\ &\quad - \omega \frac{q}{k} A_1^2 \left(e^{-qz} - \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) \cos^2(\omega t - kx) \\ &= -\omega \frac{q}{k} A_1^2 \left(e^{-qz} - \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) \left(e^{-qz} - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{-sz} \right) \\ &= -\omega \frac{q}{k} A_1^2 e^{-2qz} \left(1 - \frac{2k^2}{s^2 + k^2} e^{(q-s)z} \right) \left(1 - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{(q-s)z} \right) \end{aligned} \quad (\text{A.61})$$

z のみに依存し, 振動しない直流成分を持つ. $q - s > 0, \frac{2k^2}{s^2 + k^2} > 1, \frac{2qs}{s^2 + k^2} < 1$ であるから, z 方向で角運動量の符号が変わる. $\left(1 - \frac{2qs}{s^2 + k^2} e^{(q-s)z} \right) > 0$ となる z が小さい表面付近 (おおよそ

$z < 0.1 \times \frac{2\pi}{k}$) で $J_y^{ph} > 0$. それより深いところで $J_y^{ph} < 0$. $z \rightarrow \infty$ で $J_y^{ph} \rightarrow 0$ である. いまは深さ方向を z 軸の正, 伝搬方向を x 軸の正とする右手系の座標系を考えていることに注意. 角運動量の x, z 成分は

$$J_x^{ph} = 0, J_z^{ph} = 0 \quad (\text{A.62})$$

である.

バーネット効果による有効磁場と, フォノンの角運動量は y 軸成分を持つという点は同じだが, 直流か交流かが異なる. これはひずみの一次に比例するか, 2 次に比例するかが異なることに起因する.

時間反転対称操作の効果について考察する. 式 (A.55) からわかるように表面弾性波に生じる剛体回転成分 Ω_{xz} は時間反転対称である. その時間微分として求まる角速度 $\dot{\Omega}$ は時間反転反対称で, それに比例するバーネット有効磁場も通常の磁場と同じく時間反転反対称となる. 一方でフォノンの角運動量は式 (A.61) からわかるように時間反転反対称であり, 角運動量としての性質を満たす.

A.5 SH 波の反対称ひずみ

等方性媒体には存在しないが, SH 波のように変位場が界面方向の変位をもつモードの反対称ひずみを考察してみる. 変位が

$$\begin{aligned} u_x &= 0 \\ u_y &= A e^{-qz} e^{i(\omega t - kx)} \\ u_z &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A.63})$$

となっているものを考えると,

$$\begin{aligned} \Omega_{zy} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_z}{\partial y} - \frac{\partial u_y}{\partial z} \right) = A \frac{q}{2} e^{-sz} e^{i(\omega t - kx)} \\ \Omega_{xz} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_x}{\partial z} - \frac{\partial u_z}{\partial x} \right) = 0 \\ \Omega_{yx} &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_y}{\partial x} - \frac{\partial u_x}{\partial y} \right) = A \frac{-ik}{2} e^{-sz} e^{i(\omega t - kx)} \end{aligned} \quad (\text{A.64})$$

となると考えられ, そのときのバーネット磁場は

$$\mathbf{B}_{\text{Barnett}} = \frac{\dot{\Omega}}{\gamma} = \frac{A}{\gamma} \left(\frac{i\omega q}{2} e^{-sz}, 0, \frac{-k\omega}{2} e^{-sz} \right) e^{i(\omega t - kx)} \quad (\text{A.65})$$

となり, バーネット磁場自体が zx 面内で偏向回転する

付録 B

電子の分散関係と SAW の非相反伝搬に関する対称性

対称性による考察はすこし混乱しやすいのでここで丁寧にまとめて議論しておく。第 2 章で行った電子の分散関係、本研究の磁場中の表面弾性波に関する議論を以下で行う。

対称性があるとは並進や鏡映などの対称操作を行った前後で系の状態 (空間配置や外部磁場の向きなど) が変化しないことを言う。対称性が破れているとは、対称操作を行った前後で系の状態が一致しない状態をいう。例えば磁場や磁化がある場合、時間反転操作の前後で磁場や磁化の向きが変わるため、時間反転対称性が破れている。

B.1 電子の分散関係の対称性

まず簡単な例として電子の分散関係 $\epsilon(k, \uparrow)$ に関する考察を行う。 k は波数, \uparrow または \downarrow はスピン自由度の向きである。ここでは対称操作として特に空間反転対称性と時間反転対称性について考察する。波数とスピンは空間反転操作によってそれぞれ

$$k, -k \longrightarrow -k, k \quad (\text{B.1})$$

$$\uparrow, \downarrow \longrightarrow \uparrow, \downarrow \quad (\text{B.2})$$

のように変換され、時間反転操作によって

$$k, -k \longrightarrow -k, k \quad (\text{B.3})$$

$$\uparrow, \downarrow \longrightarrow \downarrow, \uparrow \quad (\text{B.4})$$

のように変換される。

まず、系に空間反転対称性がある時、電子の分散関係に

$$\begin{aligned} \epsilon(k, \uparrow) &= \epsilon(-k, \uparrow), \\ \epsilon(k, \downarrow) &= \epsilon(-k, \downarrow), \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

の関係が成り立つ。あえて両方のスピンの向きに関して明記した。一方で系に時間反転対称性がある時、

$$\begin{aligned}\epsilon(k, \uparrow) &= \epsilon(-k, \downarrow), \\ \epsilon(k, \downarrow) &= \epsilon(-k, \uparrow),\end{aligned}\tag{B.6}$$

の関係が成り立つ。空間反転対称性と時間反転対称性がどちらも保たれている時、上の2条件(B.5),(B.6)が同時に成り立つので

$$\epsilon(k, \uparrow) = \epsilon(-k, \uparrow) = \epsilon(k, \downarrow) = \epsilon(-k, \downarrow)\tag{B.7}$$

が成り立つ。この時電子状態が全ての波数 k でスピンに関して縮退しており、なおかつ波数空間で対称なエネルギーを持つ。式(B.7)が成り立っている場合、この電子系に関する応答はスピンの向きによらず相反となる。

逆に、式(B.7)が成り立っている状態から、対称性が破れた時にどうなるか考察する。

空間反転対称性のみが破れる場合、式(B.5)は成り立たず、式(B.6)のみが保たれる^{*1}。この時例えばスピン流のような片方のスピンのみに注目した応答を見る場合、式(B.5)が保証されない(一般に $\epsilon(k, \uparrow) \neq \epsilon(-k, \uparrow)$) ために、応答が非相反になりうる。ただし、電流の測定のようにスピン自由度に関して和を取るような応答を見る場合、 $\epsilon(k) = \epsilon(k, \uparrow) + \epsilon(k, \downarrow)$ といった量を考えると、式(B.6)から $\epsilon(k) = \epsilon(-k)$ となるので、相反な応答が観測される。

一方で時間反転対称性のみが破れる場合、式(B.5)のみが保たれる。この場合も電流のようにスピン自由度の和を取る応答では相反になる。

空間反転対称性も時間反転対称性も破れた系では、式(B.5)も式(B.6)も成り立たないので、相反性を保証する条件が導かれぬ。つまり(電流応答でも)非相反な応答が出る可能性がある。このように空間反転対称性と時間反転対称性が同時に破れることはスピンによらない非相反性のための必要条件である。

B.2 磁場中の SAW に対する対称操作

具体的に実験配置に即した形で表面弾性波に関する対称性の議論を行う。ここの議論は文献[73]を参考にした。系は弾性波の媒質が $z < 0$ の領域にのみ存在することで、 z 軸方向に関して鏡映対称が破れている。表面弾性波の伝搬方向 k は x 軸に沿うとする。外部磁場は界面に平行に印加され H_x, H_y 成分を持つとする。外部磁場があると時間反転対称性が破れる。

この系に対するいくつかの対称操作の影響を表 B.1 にまとめた。系が対称性を持つとは、対称操作の前後で系の状態、つまり媒質のある空間位置 ($z < 0$ or $z > 0$) と磁場の方向が変化しないことを意味する。ここで、伝搬方向 k に依存した表面弾性波の特性(強度や位相速度)を一般に $P(k; z < 0, H_x, H_y)$ と表すことにする。伝搬が相反であるとは系に対称操作を行なった結果、 $P(k; z < 0, H_x, H_y) = P(-k; z < 0, H_x, H_y)$ が導かれることを意味する^{*2}。

^{*1} 式(B.6)を特に $k = 0$ に関してあてはめると、 $\epsilon(0, \uparrow) = \epsilon(0, \downarrow)$ となり、ガンマ点ではスピン縮退がのこる(クラマ

表B.1 対称操作による系 ($k; z < 0, H_x, H_y$) の変換結果

対称操作	波数 k	媒質 $z < 0$	磁場 H_x	磁場 H_y
空間反転	$-k$	$z > 0$	H_x	H_y
x 軸鏡映	$-k$	$z < 0$	H_x	$-H_y$
y 軸鏡映	k	$z < 0$	$-H_x$	H_y
z 軸鏡映	k	$z > 0$	$-H_x$	$-H_y$
時間反転	$-k$	$z < 0$	$-H_x$	$-H_y$

まず磁場 H が y 軸に沿って印加されている状況を考える (Voigt 配置. $H_x = 0$). このとき, 系の状態は ($z < 0, H_y$) によって指定できる. 表 B.1からわかるように y 軸鏡映操作は系の状態を変えないため系は y 軸鏡映対称性をもつが, この対称操作は伝搬方向 k の向きも変えないため, 相反性は導かれない. その他の対象操作では系の状態が変換前と一致せず対称性を持たない. 対称性による応答の制限を求めるためには複数の対称操作を組み合わせてもよいが, どのような連続変換の組み合わせでも

$$(k; z < 0, H_y) \longrightarrow (-k; z < 0, H_y) \quad (\text{B.8})$$

のような変換は作り出せない. つまり, 一般に $P(k; z < 0, H_y) = P(-k; z < 0, H_y)$ は保証されず, この系における波は非相反伝搬を示す可能性があることが導かれる*3.

次に磁場が x 軸に沿って印加されている状況を考える (Faraday 配置. $H_y = 0$). Voigt 配置と異なり, x 軸鏡映操作に関して対称である. よって, $P(k; z < 0, H_x) = P(-k; z < 0, H_x)$ が成り立ち, 伝搬は相反であることが導かれる. 空間反転対称性も時間反転対称性も破れているが, 鏡映対称性があるために相反性が成り立つ場合があることは注意すべきである. この相反性は実験中でも $\phi = 0$ の場合として観測されている.

比較のために対称性の高い場合を考える. まず界面が存在しない場合, つまり空間反転対称性のある系のバルク波の伝搬を考える. この場合, Voigt 配置では空間反転対称性により $P(k; H_y) = P(-k; H_y)$ が導かれ, 相反性が保証される. また Faraday 配置では空間反転操作や x 軸鏡映操作から直接, または y 軸鏡映操作か z 軸鏡映操作と時間反転操作との組み合わせから $P(k; H_x) = P(-k; H_x)$ が導かれ相反性が保証される. 次に界面は存在するが, 磁場がかかってない時間反転対称性のある場合を考える, これは純粋な表面弾性波を意味するが, この場合 x 軸鏡映操作か時間反転操作から直接 $P(k; z < 0) = P(-k; z < 0)$ が導かれ相反性が保証される.

一ス縮退). これは時間反転操作によって k とスピンが独立でなく同時に変換されることによる.

*2 電子系との違いとしてスピンのような内部自由度 (フォノンであれば偏向が対応) を考えていない. 非相反性の議論のためには必要としないが, 強いて言えば SAW は伝搬方向と偏向が一対一対応していると考えられる. 波数の正負を選べば, 偏向の正負が決まってしまうため, 考慮する必要がない. バルクの弾性波の対称性を考える場合には電子スピンのように偏向の変換も考えることになる

*3 対称性によって相反性が保証されないだけで, 非相反性の十分条件ではなく必要条件である. 事実 Ni 薄膜の表面弾性波の研究ではマグノンと表面弾性波が結合しない高磁場領域では相反な応答となる.

付録 C

リソグラフィ条件の最適化

本研究では高周波な SAW を励起するデバイスの作製が本質的に重要である。高周波な SAW 励起のためには SAW デバイスの IDT をより細く、正確に作る必要がある。そのためにリソグラフィ工程の各種パラメータの最適化を行わなければならない。本研究中では Ni/LiNbO₃ SAW デバイスの作製にはフォトマスクによるフォトリソグラフィを、CuB₂O₄ SAW デバイスの作製には電子ビームリソグラフィを用いた。ここでは研究の中で行なった最適化の方法を説明する。

C.1 フォトリソグラフィ条件の最適化

フォトマスクを用いたフォトリソグラフィによる最小の加工スケールはフォトマスクの精度で決められ、小さくても 1 μm が限度である。本研究で用いた IDT 作製のフォトマスクは主に 5 μm 幅のものである*1。5 μm 幅の IDT で励起できる SAW の波長は基本波で 20 μm であり、Y-cut Z 伝搬の LiNbO₃ 基板では周波数は 170 MHz 程度である。そのためマグノン励起に到達しうる高周波な SAW を励起するためには、高調波の利用が必要になる。

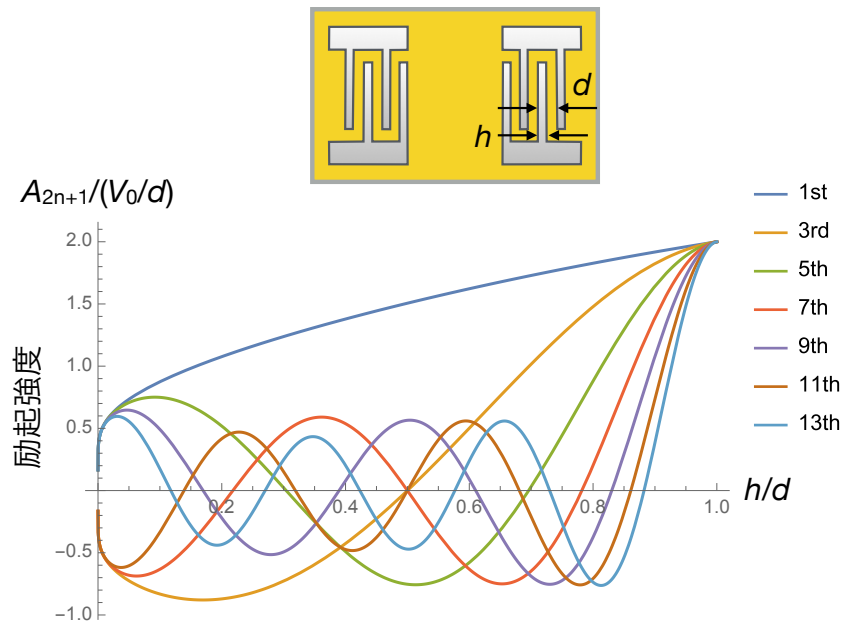
高調波の励起強度は、図 C.1 のようにくしの太さ h と空間変調の半周期の長さ d の比の関数で決まる。第 $2n + 1$ 次高調波の励起強度 A_{2n+1} は

$$A_{2n+1} = \frac{\pi V_0 P_n(2x^2 - 1)}{d K(\sqrt{1 - x^2})} \quad (\text{C.1})$$

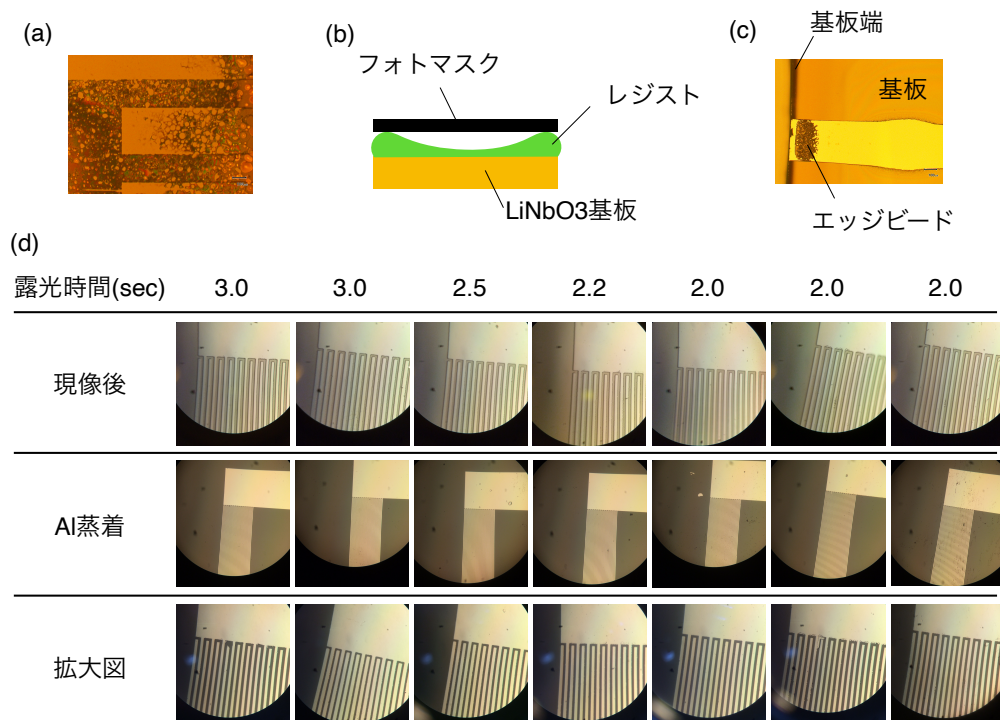
$$x = \cos\left(\frac{\pi}{2}(1 - h/d)\right) \quad (\text{C.2})$$

によって表される [74]。ここで V_0 は電圧、 P_n はルジャンドル関数、 K は第一種楕円積分である。図 C.1 のグラフから、13 倍波を強く励起するためには IDT のくしとくしの間の比をなるべく 0.5 になるように作製することが必要であることがわかる。また、電極幅と間隔の比以外に高調波をデバイス内で励起・検出するためには、結晶方位と SAW の伝搬方向を正確に合わせる必要がある。

*1 3 μm で加工したフォトマスクではフォトマスクの中にマスク加工時にでた金属微粒子が残っており機能しなかった。



図C.1 くし形電極の形状と励起強度の関係. くしの太さ h と繰り返しパターンの半周期分 d の比が 0.5 のとき, グラフから, 1st, 5th, 9th, 13th の高調波が強く励振される. 図 2.11 の測定結果はこの計算に一致している.



図C.2 (a) レジストのソフトバイク時間が 15 min の場合の基板の現像後の写真. (b) 露光時のフォトマスクとレジスト, 基板の概要図. (c) 現像後にエッジビードがのこった基板の写真. (d) 露光時間を変えてリソグラフィーを行った基板の現像後と Al 蒸着後の IDT の写真

高周波な SAW 励起のため、本研究中ではフォトリソグラフィーの各種パラメタの最適化を行なった。パラメタは主にベイク時間、スピコート回転速度、露光時間、現像時間である。

図 C.2(a) にはベイク時間が不十分だった時の現像後の基板を示している。この時は 85°C で、15 min ソフトベイクを行なった。Si 基板やサファイア基板の場合は 15 min で十分だったが、LiNbO₃ の場合は不十分で、溶媒が残ってしまったために泡のような不均一な現像結果になる。ベイク時間を 30 min に伸ばすことでこの問題は解決した。

レジストは粘性があるため、スピコートを行うと図 C.2(b) のように基板の端が中央部分に比べて盛り上がった形状になる。この部分をエッジビードという*2。IDT は基板中央部にあり、IDT のくしとくしの間を等間隔になるようにするために露光時間等を最適化すると、エッジビード部分の露光時間等は不十分になる。このため図 C.2(c) のようにエッジビード部分が現像後に残ってしまう。エッジビードはスピコート中にレジストが乾いてしまうためことが原因である。スピコート中に湿度が下がらないように蓋を密着させるなどの改善策が考えられるが、本研究ではなるべくスピコートの回転数を上げて、それでも残るエッジビード部分の金属導波路の欠損は諦め、ワイヤーボンディングを伸ばすことでガラエポ基板と IDT との導通をとった。

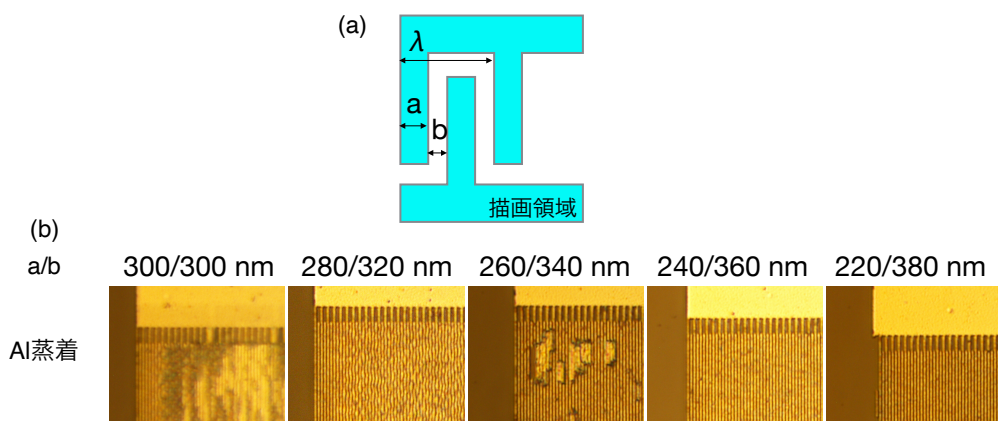
最も重要なのが露光時間と現像時間である。図 C.2(d) のように露光時間の最適化をおこなった。現像時間は固定して露光時間を変えて Al を蒸着した結果をみると、露光時間が 2 sec ほどが最適であることが分かる。スピコートの回転時間を上げてレジストを薄くすることで、現像結果の再現性が上がるため、6000 rot/min でスピコートをした。同じ露光時間でも結果に若干の差があるのは、マスクと基板との接触の角度の微妙なずれや、水銀灯の基板に対する位置のずれなどによるものである。できる限りの最適化を行い、最終的には多くのデバイスを作ることでその中から良いデバイスを探すことになる。

C.2 電子ビームリソグラフィー条件の最適化

電子ビームリソグラフィー (EBL) では、最適化する必要がある条件は少ない。細かいパターンを描画するためには基本的に電流値を下げればよく、現像時間の数秒の違いで結果が大きく変わることはない。一方で微細なパターンになると、電子線の広がりや基板からの後方散乱などの影響で設計通りにできないことがある。特に IDT のように周期構造を多くもつようなパターンだと、描画領域が設計より広がってしまう場合、くし同士が重なって描画されてしまう。

これを改善するためには、dose 量の最適化を行う必要があるが、本研究では dose 量は固定して代わりにくしとくしの間隔の比を変えて設計することで、等間隔な IDT を作製できる条件を探した。図 C.3 に、LiNbO₃ 基板上に IDT 周期を固定してくしの幅 a とくしの間隔 b の比を変えたパターンを設計し描画現象、リフトオフまでおこなった結果を示している。くしとくしの間隔が

*2 フォトリソグラフィーにはフォトマスクをレジストに密着させる密着露光と呼ばれる露光方法と、レジストから離して露光する投影露光という手法があるが、本研究では密着露光の露光手法を用いた。密着露光の場合、フォトマスクはエッジビードに接触するまでレジストに密着させる。中央部にはフォトマスクが密着せず、回折によりフォトマスクのパターンからは広がって露光されることになる。



図C.3 (a)CAD ファイル上での IDT 周期 λ とくしの幅 a , くしの間隔 b の関係 (b) 比 a/b を変えた設計の IDT のリフトオフ後の写真. $\lambda = 1200 \text{ nm}$ となるように設計した.

等間隔になるような IDT を作る時, 設計上はくし (描画領域) の幅を実際より小さく設計した方が良いことが分かる. このような最適化はくしの幅を変える際や EBL ガンの交換後などに一度のリソグラフィーで最適値がわかるため非常に有用である.

付録 D

パルス測定における位相速度変化の算出方法

Ni 薄膜の SAW デバイスに関する研究で用いた位相変化の測定から SAW の位相速度変化を求めする方法を導出する。

測定系全体で回転した位相を θ 、信号の周波数を f 、信号の発信から受信までの時間を t とすると

$$\theta = 2\pi f t \quad (\text{D.1})$$

この位相のうち、SAW デバイスにおいて音波で回転する部分と SAW デバイス以外において高速で回転する部分で分けて考える。

$$\theta = 2\pi f (t_{\text{SAW}} + t_{\text{cable}}) \quad (\text{D.2})$$

$$= 2\pi f \left(\frac{L_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}} + \frac{L_{\text{cable}}}{v_c} \right) \quad (\text{D.3})$$

$$= 2\pi f \frac{L_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}} + 2\pi f \frac{L_{\text{cable}}}{v_c} \quad (\text{D.4})$$

ここで、信号が SAW デバイス中を透過する時間を t_{SAW} 、SAW デバイス以外を透過する時間を t_{cable} 、SAW が伝搬する電極間距離を L_{SAW} 、SAW デバイス以外のケーブルなどの距離を L_{cable} 、SAW の位相速度を v_{SAW} 、SAW 以外の信号の速度を v_c とした。式 (D.4) で $2\pi f \frac{L_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}} = \theta_{\text{SAW}}$ とする。今回の測定におけるそれぞれの特徴的な値は、 $L_{\text{SAW}} \simeq 1 \text{ mm}$ 、 $L_{\text{cable}} \simeq 1 \text{ m}$ 、 $v_{\text{SAW}} \simeq 1 \text{ km/s}$ 、 $v_c \simeq 10^8 \text{ m/s}$ 程度であるから、式 (D.4) における第 1 項と第 2 項に関して $\frac{L_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}} \gg \frac{L_{\text{cable}}}{v_c}$ であり、 $\theta \simeq \theta_{\text{SAW}}$ と近似できる*1。

θ を $f, L_{\text{SAW}}, v_{\text{SAW}}$ の関数と見ると、

$$\Delta\theta = \frac{\partial\theta}{\partial f} \Delta f + \frac{\partial\theta}{\partial L_{\text{SAW}}} \Delta L_{\text{SAW}} + \frac{\partial\theta}{\partial v_{\text{SAW}}} \Delta v_{\text{SAW}} \quad (\text{D.5})$$

*1 ケーブル中で $\lambda_c = v_c/f \simeq 10^8/10^9 = 10^{-1} \text{ m}$ で 10 回ほど位相が回転する。SAW の 8000 回程度の回転に対してこれが無視できる、という近似を行っている。

となる。偏微分をそれぞれ計算すると、

$$\begin{aligned}\frac{\partial\theta}{\partial f} &= 2\pi t \\ \frac{\partial\theta}{\partial L_{\text{SAW}}} &= \frac{2\pi f}{v_{\text{SAW}}} \\ \frac{\partial\theta}{\partial v_{\text{SAW}}} &= -2\pi f \frac{L_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}^2}\end{aligned}\tag{D.6}$$

であるから、

$$\Delta\theta = 2\pi t\Delta f + \frac{2\pi f}{v_{\text{SAW}}}\Delta L_{\text{SAW}} - 2\pi f \frac{L_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}^2}\Delta v_{\text{SAW}}\tag{D.7}$$

よって

$$\frac{\Delta\theta}{\theta_{\text{SAW}}} = \frac{\theta}{\theta_{\text{SAW}}}\frac{\Delta f}{f} + \frac{\Delta L_{\text{SAW}}}{L_{\text{SAW}}} - \frac{\Delta v_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}}\tag{D.8}$$

$\frac{\theta}{\theta_{\text{SAW}}} \simeq 1$, $\frac{\Delta L_{\text{SAW}}}{L_{\text{SAW}}} = 0$ と近似できるので、最終的に

$$\frac{\Delta\theta}{\theta_{\text{SAW}}} = \frac{\Delta f}{f} - \frac{\Delta v_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}}\tag{D.9}$$

という関係になり、これをもとに位相速度変化 $\frac{\Delta v_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}}$ を算出する。

$\Delta\theta$ は実験手法中で述べたように測定可能である。位相速度が変化しない高磁場領域で周波数を $f = 2.2335$ GHz 付近で変えながら $\Delta\theta$ を測定することで θ_{SAW}/f の比を算出しておく。それを用いて

$$-\frac{\Delta v_{\text{SAW}}}{v_{\text{SAW}}} = \frac{f}{\theta_{\text{SAW}}}\frac{\Delta\theta}{f}\tag{D.10}$$

から位相速度変化を最終的に算出する。

付録 E

反対称ひずみによる磁気弾性結合エネルギーと有効磁場の導出

表面弾性波は表面付近において対称ずれひずみ ϵ_{xz} がほとんどなく、反対称ひずみ（剛体回転） Ω_{zx} が大きいという特性がある（式 (A.56) など）。そこで、反対称ひずみと磁化との結合の効果を考えるのは有用であろう。ここでは回転不変性を考慮した超音波物性の研究 [75, 76, 77] を参考に、ひずみの反対称成分 Ω_{ij} による磁気弾性結合エネルギーを導出する。さらに SAW よって励起される強磁性共鳴と非相反性への Ω_{ij} の寄与について考察する。

E.1 反対称ひずみと磁化の結合エネルギー

今、 y 方向を回転軸とする回転行列

$$R_{\text{rot}} = \begin{pmatrix} 1 - \frac{1}{2}\Omega_{zx}^2 & 0 & \Omega_{zx} \\ 0 & 1 & 0 \\ -\Omega_{zx} & 0 & 1 - \frac{1}{2}\Omega_{zx}^2 \end{pmatrix} \quad (\text{E.1})$$

を考える。ここで、 Ω_{zx} はひずみの反対称成分で、式 (A.8) から、 $\Omega_{zx} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_z}{\partial x} - \frac{\partial u_x}{\partial z} \right)$ である。磁化 \mathbf{m} や対称ひずみ ϵ_{ij} を含む自由エネルギー $F(\mathbf{m}, \epsilon)$ に対して、回転対称性があると考え、

$$F(\mathbf{m}, \epsilon, \omega) = F(R_{\text{rot}}^{-1}\mathbf{m}, \epsilon) \quad (\text{E.2})$$

として反対称ひずみを含む自由エネルギーを導出する。回転行列 R_{rot} によって

$$R_{\text{rot}}^{-1}\mathbf{m} = R_{\text{rot}}^{-1} \begin{pmatrix} m_x \\ m_y \\ m_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} m_x - m_z\Omega_{zx} - \frac{m_x\Omega_{zx}^2}{2} + O(\Omega_{zx}^3) \\ m_y \\ m_z + m_x\Omega_{zx} - \frac{m_z\Omega_{zx}^2}{2} + O(\Omega_{zx}^3) \end{pmatrix} \quad (\text{E.3})$$

と磁化 \mathbf{m} が変換される。ここで $O(\Omega_{zx}^3)$ は Ω_{zx} の 3 次以上の項をまとめたものである。

いま, 変換される自由エネルギーとして式 (2.8) の磁気弾性結合エネルギー,

$$F_{\text{coupling}} = m_x^2 (b_1 \epsilon_{xx} + b_2 \epsilon_{yy} + b_3 \epsilon_{zz}) + 2m_x (m_y (b_1 - b_2) \epsilon_{xy} + 2m_z b_6 \epsilon_{xz}) + m_y^2 (b_1 \epsilon_{yy} + b_2 \epsilon_{xx} + b_3 \epsilon_{zz}) + 4m_y m_z b_6 \epsilon_{yz} + m_z^2 (b_4 (\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy}) + b_5 \epsilon_{zz}) \quad (\text{E.4})$$

を考えてみると, 回転行列による磁化の変換によって (Rayleigh 波に含まれないひずみに関しても $\{\epsilon_{xy} \rightarrow 0, \epsilon_{yy} \rightarrow 0, \epsilon_{yz} \rightarrow 0\}$ とすると)

$$F_{\text{coupling}} \rightarrow F_{\text{coupling}} + F_{\text{coupling}}^{\text{rot}} \quad (\text{E.5})$$

$$F_{\text{coupling}}^{\text{rot}} = \Omega_{zx} (4m_x^2 b_6 \epsilon_{xz} + 2m_z m_x (b_1 (-\epsilon_{xx}) + b_4 \epsilon_{xx} + (b_5 - b_3) \epsilon_{zz}) - 4m_z^2 b_6 \epsilon_{xz}) + \Omega_{zx}^2 ((m_z^2 - m_x^2) (b_1 \epsilon_{xx} + b_3 \epsilon_{zz}) - 8m_x m_z b_6 \epsilon_{xz} + (m_x^2 - m_z^2) (b_4 \epsilon_{xx} + b_5 \epsilon_{zz})) + O(\Omega_{zx}^3) \quad (\text{E.6})$$

と自由エネルギーが変換される. $F_{\text{coupling}}^{\text{rot}}$ がひずみの反対称成分によって新たにできた自由エネルギーである.

次に異方性エネルギーに対する変換を考える. Ni 薄膜の場合を考えると, おもに薄膜の形状異方性の大きいと考えられるため, ここでは

$$F_{\text{ani}} = K m_z^2 \quad (\text{E.7})$$

という異方性エネルギーを考える. K は異方性定数. 上と同様の変換によって

$$F_{\text{ani}} \rightarrow F_{\text{ani}} + F_{\text{ani}}^{\text{rot}} \quad (\text{E.8})$$

$$F_{\text{ani}}^{\text{rot}} = 2K m_x m_z \Omega_{zx} + K (m_x^2 - m_z^2) \Omega_{zx}^2 + O(\Omega_{zx}^3) \quad (\text{E.9})$$

のように自由エネルギーが変換され, ひずみの反対称成分の寄与が求まる. 式 (E.9) と同様の結合エネルギーによる SAW と表面スピン波との結合に関する理論研究がある [46].

E.2 反対称ひずみに起因する有効磁場と強磁性共鳴

$F_{\text{coupling}}^{\text{rot}}$ から計算される有効磁場は,

$$-\nabla_{\mathbf{m}} F_{\text{coupling}}^{\text{rot}} = \begin{pmatrix} -8m_x \Omega_{zx} b_6 \epsilon_{xz} + \Omega_{zx}^2 (2m_x (b_4 \epsilon_{xx} + b_5 \epsilon_{zz}) + 2m_x (b_1 \epsilon_{xx} + b_3 \epsilon_{zz})) + O(\Omega_{zx}^3) \\ 0 \\ -2m_x \Omega_{zx} (b_1 (-\epsilon_{xx}) + b_4 \epsilon_{xx} + (b_5 - b_3) \epsilon_{zz}) + 8\Omega_{zx}^2 (m_x b_6 \epsilon_{xz}) + O(\Omega_{zx}^3) \end{pmatrix} \quad (\text{E.10})$$

となる. ここで, $m_z = 0$ とした. いずれの項でも, ひずみ ϵ_{ij} や ω_{ij} の 2 次以上になっており, 有効磁場の振動数は弾性波の 2 倍以上となる. その結果, この有効磁場によって弾性波による共鳴現象は生じないと考えられる.

一方 $F_{\text{ani}}^{\text{rot}}$ から求まる有効磁場は

$$-\nabla_{\mathbf{m}} F_{\text{ani}}^{\text{rot}} = \begin{pmatrix} -2K m_x \Omega_{zx}^2 + O(\Omega_{zx}^3) \\ 0 \\ -2K m_x \Omega_{zx} + O(\Omega_{zx}^3) \end{pmatrix} \quad (\text{E.11})$$

と求まる. これは Ω_{zx} の 1 次の項を含むため, 共鳴現象を起こしうる.

以上から, 共鳴現象に関与しうるエネルギーから導かれる有効磁場は, ひずみの 1 次まで考慮すると,

$$-\nabla_{\mathbf{m}}(F_{\text{coupling}} + F_{\text{ani}}^{\text{rot}}) = - \begin{pmatrix} 2m_x b_1 \epsilon_{xx} + 2m_x b_3 \epsilon_{zz} \\ 2m_y (b_2 \epsilon_{xx} + b_3 \epsilon_{zz}) \\ 4m_x b_6 \epsilon_{xz} + 2m_x K \Omega_{zx} \end{pmatrix} \quad (\text{E.12})$$

となる. 式 (2.12) と比較すると, z 成分の $2m_x K \Omega_{zx}$ の項が増えている.

以上で得た結合エネルギー由来の有効磁場が誘起する磁気共鳴強度, および SAW の非相反性について考える. 磁化の方位を式 (2.10) のようにとって, 強磁性共鳴を効果的に励起するような, 磁化に直交する右回り円偏向成分を求めると,

$$\mu_0 h_{\perp}^+ = -2m_0 \cos \phi ((b_1 - b_2) \epsilon_{xx} \sin \phi + 2ib_6 \epsilon_{xz}) - 2im_0 K \Omega_{zx} \cos \phi \quad (\text{E.13})$$

$$= -2m_0 (b_1 - b_2) \epsilon_{xx} \cos \phi \sin \phi - i2m_0 (2b_6 \epsilon_{xz} + K \Omega_{zx}) \cos \phi \quad (\text{E.14})$$

これと同様の有効磁場がごく最近 SAW の非相反性の起源のひとつではないかと検討されている [78]. 式 (A.54), (A.55) から, ϵ_{xx} と ϵ_{xz} , Ω_{zx} は振動の位相が $\pi/2$ ずれているため, 式 (2.9) と同様に

$$\Omega_{zx} = i\Omega_{zx0} \exp[i(kx - \omega t)] \quad (\text{E.15})$$

と置くことができる. Ω_{zx0} は実数. 式 (A.56) が示すように, 表面付近では $\epsilon_{xz} \ll \Omega_{zx}$ と考える場合, 強磁性共鳴励起強度に関して,

$$P \propto \chi_+'' |h_{\perp}^+|^2 \propto |(b_1 - b_2) \epsilon_{xx0} \cos \phi \sin \phi + (2b_6 \epsilon_{xz0} + K \Omega_{zx0}) \cos \phi|^2 \quad (\text{E.16})$$

$$\simeq |(b_1 - b_2) \epsilon_{xx0} \cos \phi \sin \phi + K \Omega_{zx0} \cos \phi|^2 \quad (\text{E.17})$$

と考えるのが妥当である. この時, 非相反性は

$$(b_1 - b_2) K \Omega_{zx0} \epsilon_{xx0} \cos^2 \phi \sin \phi \quad (\text{E.18})$$

に比例することとなる.

この理論と本研究で得られた実験結果とを比べた場合, 強磁性共鳴の $\cos^2 \phi$ に比例する角度依存性は有効磁場のうち反対称ひずみ Ω_{zx} の寄与が縦波 ϵ_{xx} の寄与よりも大きいという解釈となる. 一方で非相反性は縦波 ϵ_{xx} と反対称ひずみ Ω_{zx} の位相差に由来する有効磁場の円偏向を起源とし, その大きさは今の場合反対称ひずみの大きさと異方性定数 K に比例し, 角度依存性 $\cos^2 \phi \sin \phi$ は変わらないという結果が導かれた. つまり, 対称ずれひずみ ϵ_{xz} をとつても, 代わりに反対称ひずみ Ω_{zx} をとつてもどちらでも吸収と非相反性の角度依存性には違いがない. 角度依存性だけでは ϵ_{xz} と Ω_{zx} の寄与の違いを区別できない.

結果としては形式上はずれひずみ ϵ_{xz} が反対称ひずみ Ω_{zx} に, また磁気弾性結合定数 b_6 が異方性定数 K に置き換わっただけだが, ここで想定している K は形状異方性由来のものであるので, 物性値である磁気弾性結合定数とは独立に制御できる可能性がある. そこで, 非相反性の増大の指針として, 薄膜の膜厚を調整するなどして異方性 K を大きくするという方向性が考えられる.

いずれにせよ，SAW の非相反性の起源として対称ずれひずみ ϵ_{xz} と反対称ひずみ Ω_{zx} のどちらが支配的であるかは現段階では明らかではなく，磁性体の膜厚依存性などを調べるといった系統的な研究が必要であると考える。

付録 F

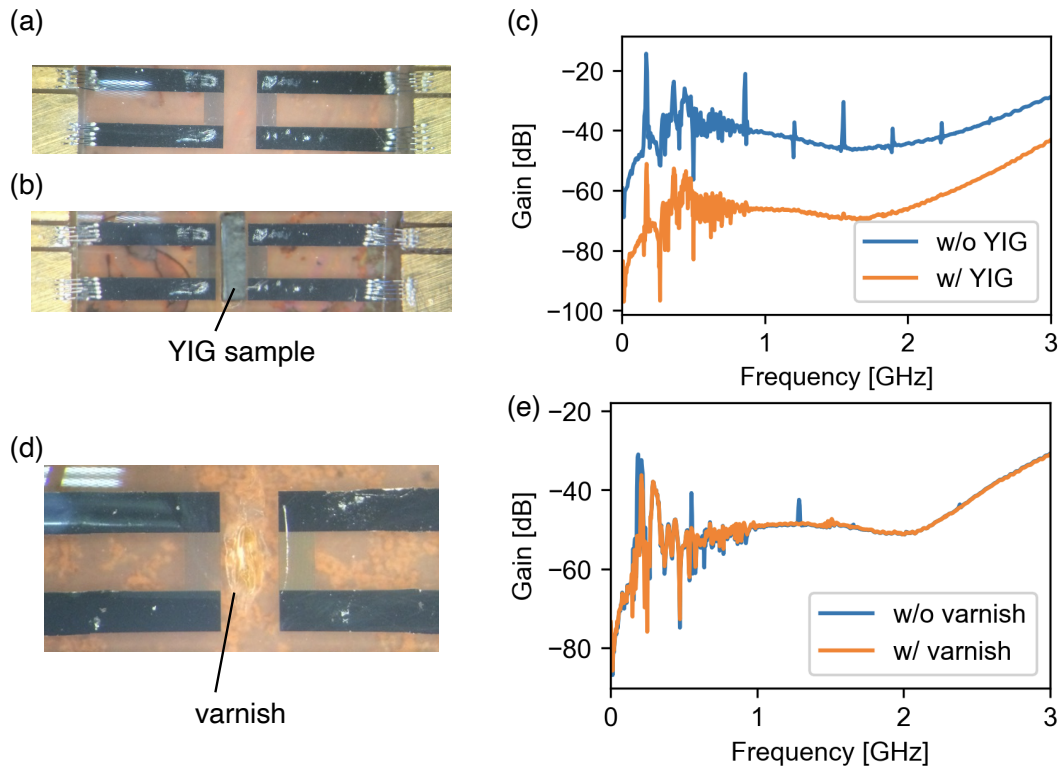
Ni 以外の磁性体を用いた SAW の非相反性観測の試み

Ni 薄膜以外の磁性体を用いた SAW 非相反伝搬観測の試みについてこれまで行なった研究の範囲内で報告する。これまで Ni 以外に、YIG 単結晶, Py (Ni-Fe 合金) 薄膜, Co 薄膜を対象とした研究を行ってきた。実際には、まず YIG 単結晶を対象とし、その次に Py, その次に Co と Ni を同時期に対象とした研究を行なった。その中で Ni 薄膜を対象としたもので非相反性が観測されたために Ni 薄膜に注力したという経緯がある。他の磁性体に関しては非相反性は観測されなかった。結論を先にまとめると、YIG サンプルでは SAW の減衰が大きすぎたため伝搬が観測されず、Py では磁気弾性が小さく SAW とマグノンの結合が見られず、Co ではマグノン周波数が高くなっていったため SAW が結合できなかった。以下それぞれについて詳細に述べる。

F.1 YIG 単結晶を用いた SAW デバイス

研究当初は YIG 単結晶を SAW デバイスの IDT 間に設置することでマグノンとの結合の観測を試みた。図 F.1(a) に示すような SAW デバイスをフォトリソグラフィーで作成し、その IDT 間に図 F.1(b) のように YIG 単結晶を置いた。単結晶のサイズは $1.4 \times 0.32 \times 0.34 \text{ mm}^3$ である。SAW デバイス表面にワニスをぬり、その上に YIG を乗せることで固定した。このデバイスの YIG を置く前と後の透過スペクトルは図 F.1(c) である。YIG を置く前は高周波まで SAW の透過ピークが見えていたのに対し、置いた後は 170MHz 程度の 1st ピーク以外は消えていることがわかる。YIG サンプルを置いたことで伝搬中の SAW の減衰が大きくなり、IDT 間を透過しなくなったと考えられる。SAW 透過ピーク以外のバックグラウンドの透過強度も全体的に下がっており、YIG 単結晶でマイクロ波の信号も遮られている。

この減衰の起源を明らかにすべく、YIG 単結晶を用いず、図 F.1(d) のように固定用のワニスだけを IDT 間に塗った SAW デバイスの透過強度の変化を調べた。図 F.1(e) には室温下での塗る前と塗った後の透過スペクトルが示してある。ワニスを塗る前には 500MHz 程度と 1.2 GHz 程度に見えていた SAW の透過ピークが、塗った後のデバイスでは消えていることがわかる。このことか



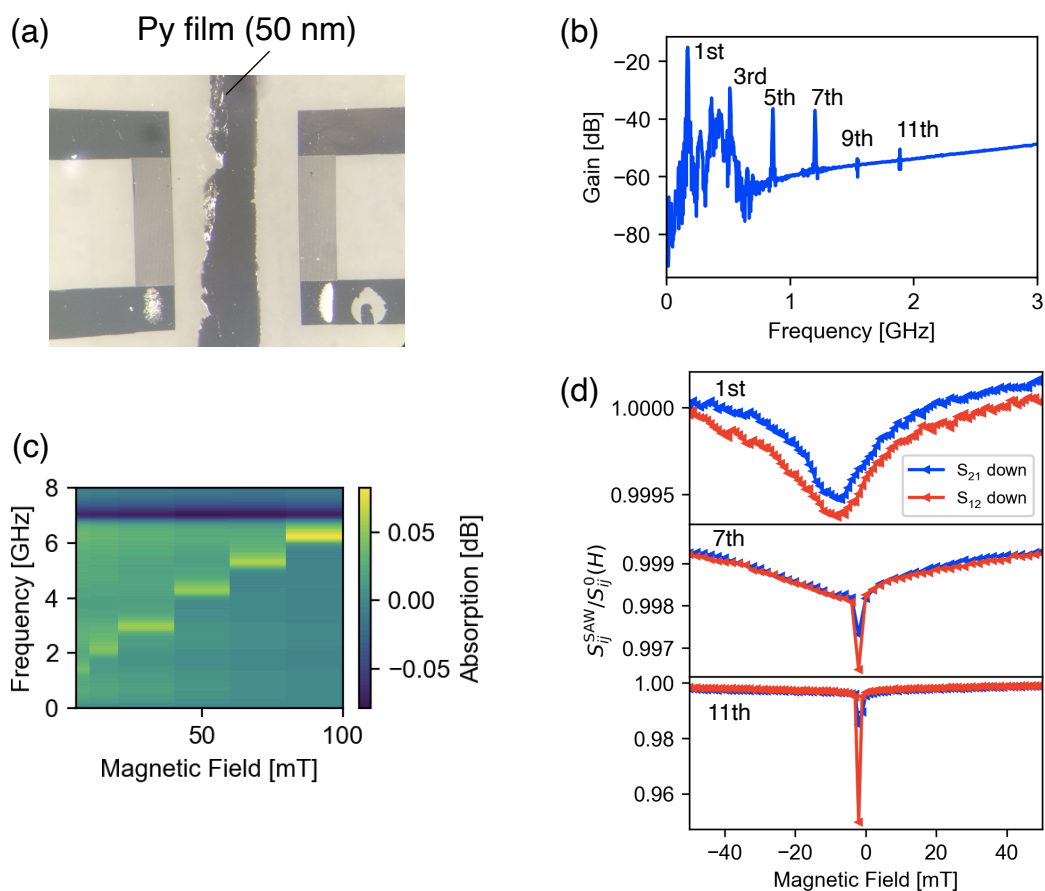
図F.1 (a)YIG 単結晶を置く前の SAW デバイス (b)YIG 単結晶を置いた SAW デバイス. (c)YIG サンプルを置く前と置いた後の SAW デバイスの透過スペクトル. (d)IDT 間にワニス塗った SAW デバイス. (e) ワニスを塗る前と塗った後の SAW デバイスの透過スペクトル.

ら、YIG 単結晶を固定するためのワニスがダンパーとなり、SAW の透過を妨げていることがわかった。このため、磁性単結晶を IDT 間に設置することでマグノンと SAW を結合させるという方針は SAW の実験に適していないと結論した。

F.2 Py 薄膜を用いた SAW デバイス

次に磁性薄膜を用いた SAW デバイスの研究に移った。まずは Py 薄膜を用いた SAW デバイスを作製した。図 F.2(a) に示すように IDT 間に Py 薄膜を 50 nm した。このデバイスの透過スペクトルは図 F.2(b) の通りで、SAW の透過ピークが 11 th まで観測できている。このデバイスの SAW の透過強度の磁場依存性を測定した結果が図 F.2(d) である。このデータは CuB_2O_4 SAW デバイスの研究と同様の数値的な時間ゲート、高磁場下 (100 mT) の透過強度での規格化の解析を行いプロットしている*1。磁場は伝搬方向から 20 度面内で傾け、+100 mT から -100 mT ヘスイープさせながら測定した。VNA のパワーは 0.1 dBm である。最も SAW の強度が強い 1st の透過

*1 研究当時はフーリエ変換による時間分解はせず、VNA の生データの透過ピークの最大値の磁場依存性を解析していた。

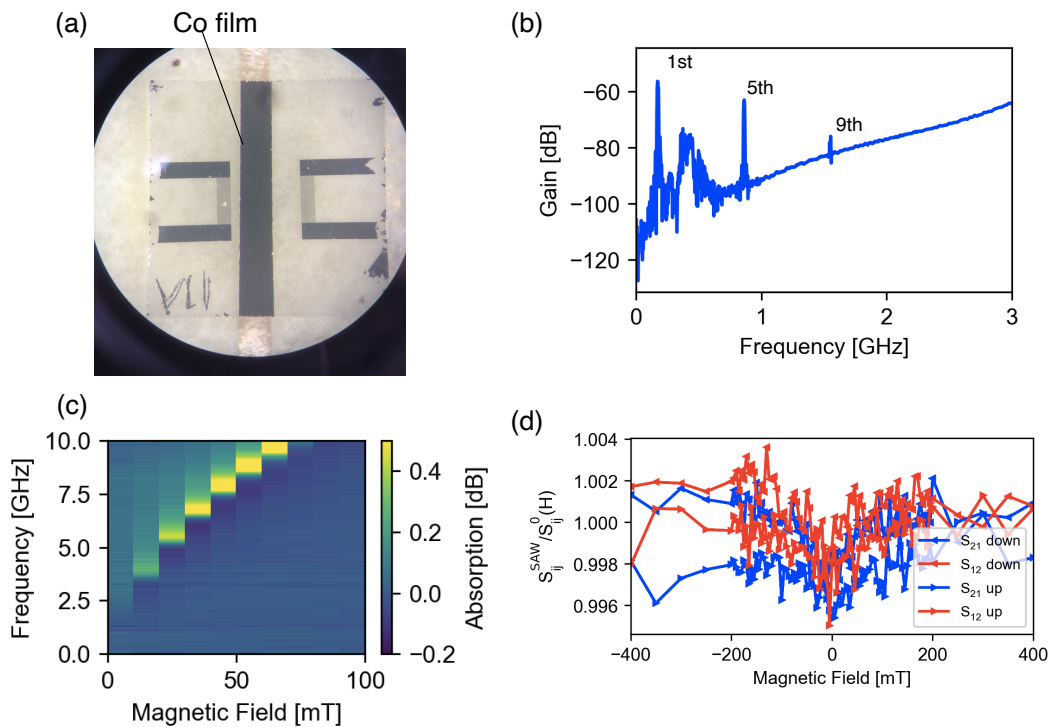


図F.2 (a)Py 薄膜を蒸着した SAW デバイス (b) デバイスの透過スペクトル (c)Py 薄膜の FMR によるマイクロ波吸収スペクトルの磁場依存性 (d)SAW の 1st, 7th, 11th ピークにおける規格化した透過強度の磁場依存性

では 0.05 % ほどの非常に小さななだらかな磁場変化が観測された。一方で 7 th と 11 th の透過は 0 mT を少し過ぎたところで、それぞれ 0.3 % と 5 % 程度の鋭い磁場変化が観測された。この 7 th と 11 th の鋭い磁場依存性は、似たようなものが Ni 薄膜を用いた SAW デバイスの先行研究において観測されており、磁化が反転する際の磁壁の運動との結合であると説明されている。いずれにせよ非相反性は観測されていない。他の磁場方位での磁場依存性は測定していない。

Py 薄膜（膜厚 70 nm）の FMR スペクトルは図 F.2(c) であり、低磁場において 2 GHz より低い周波数で FMR が観測されている。今回用いた SAW デバイスでは 11th ピークで 1.8 GHz 程度の SAW の励起が行われており、十分にマグノンとの結合が起こっても良いと考えられが、それを示すような SAW の磁場依存性は得られなかった。

SAW の磁場依存性の小ささは、Py の磁気弾性結合の小ささに帰属した。そもそも Py は磁歪定数が小さくなるように Ni と Fe の比を調整した合金であるため、格子系と磁化の間の結合が非常に小さい [39]。そのために、SAW の周波数とマグノンの周波数が仮に同じであったとしても SAW とマグノンの結合が小さく FMR との結合による SAW の減衰が見られなかったのではないかと考



図F.3 (a)Co 薄膜を蒸着した SAW デバイス (b) デバイスの透過スペクトル (c)Co 薄膜の FMR によるマイクロ波吸収スペクトルの磁場依存性 (d)SAW の 9th ピークにおける規格化した透過強度の磁場依存性

えた。ただし SAW と磁壁の運動との結合は見られているため、結合の弱さが原因ではなく Py を SAW デバイスに蒸着した時にマグソンの周波数が高くなっていることが原因である可能性がある。この点やその他の可能性に関しては後述する。

F.3 Co 薄膜を用いた SAW デバイス

Py では磁気弾性結合（磁歪定数）が小さいために SAW との結合が見られなかったと考えたため、結晶磁気異方性が大きく、磁歪定数も大きい Co 薄膜を対象とした SAW デバイスを Ni 薄膜と同時期に行なった。図 F.3(a) は Co 薄膜が蒸着された SAW デバイスの写真である。図 F.3(b) に示す通り、1st, 5th, 9th(約 1.53 GHz) の SAW の透過信号が観測された。このうち 9th の SAW の透過信号の磁場依存性を測定したものが図 F.3(d) である。磁場は伝搬方向から 30 度面内に傾け、+500 mT から-500 mT へのスイープと逆方向のスイープを示している。VNA のパワーは 10 dBm である。低磁場部分で 0.4 % 程度のなだらかな磁場依存性は観測されているが、非相反性は見られない。

Co 薄膜の FMR スペクトルを図 F.3(c) に示す。この磁場依存性から、Co の FMR は 2.5 GHz よりも高い周波数にあり、SAW デバイスで励起できていた 9 th の 1.53 GHz 程度の SAW では到達できていないと考えた。そのために SAW の磁場依存性に大きな磁場変化が現れなかったのだと

結論した。バルクの結晶磁気異方性が Ni より大きい Co の物性から考えてもこれは妥当であると判断し、同時期に Ni 薄膜を用いた SAW デバイスで大きな磁場依存性及び非相反性が観測できていたことから Co の SAW デバイスの測定は中断した。

F.4 YIG 単結晶と、Py, Co 薄膜を用いた SAW デバイスについての再検討

最後に、研究を行っていた当時、非相反性を測定できなかった以上のデバイスに関し、その理由について現段階で再度検討する。

まず、YIG 単結晶については LiNbO_3 などのような圧電基板を用いる SAW デバイスでの実験には適していない。IDT 間にワニスで接触させるとそれによるダンピングが避けられない。仮にワニスを用いずに何らかの方法で単結晶を IDT 間に設置できたとしても SAW の減衰は大きいままだと予想される。対応策として YIG 上に圧電膜を使って SAW 励起をする方法が考えられる。YIG には圧電性はないので、 ZnO のような圧電膜と IDT による SAW 励起の手法が適切である。後になってわかったことだが、磁性基板と圧電膜を組み合わせた手法の研究は既に 1960–1970 年代に行われている。特に Lewis らによる 1972 年の GGG 基板/Ga doped YIG 薄膜/ ZnO 薄膜を用いた系で、IDT による Rayleigh 波の励起、およびその非相反性の報告がある [79]。SAW の伝搬方向と垂直な面内に磁場をかけた場合に非相反性が観測され、その起源が SAW と表面静磁波 (DE モード) との結合か、SAW の回転の効果のどちらかであると説明している。この研究では磁場の方位が一方であり、マイクロ波と表面静磁波と SAW のシグナルの分離などがなされていない。同じ系でより詳細な測定を行う意義ははまだあると考えられる。しかし、YIG も Py 同様に異方性が小さく磁気弾性結合が小さい物質である。また ZnO のような圧電膜もマイクロ波から SAW への変換効率が小さい。このような背景から、磁性基板と圧電膜の組み合わせではなく、Ni のような磁性薄膜と LiNbO_3 のような圧電基板の組み合わせを対象とした系の研究に分野が移っていったという歴史がある。

次に Co 薄膜を用いた研究に関してはマグノンの周波数が SAW の周波数より高いため SAW の減衰が見られなかったと結論した。このデバイスでは SAW の周波数で 1.5 GHz 程度のものしか得られなかったため、EBL を用いるなどしてより高周波な SAW を励起できるデバイスを作製すれば、FMR との結合現象が観測できるはずである。Ni よりも磁気弾性結合が大きいはずであり、より大きい非相反性が期待できる。一方で、Weiler らの SAW によるスピンポンピングに関する先行研究 [23] をよく見ると、Co 薄膜を用いたデバイスで 1.5 GHz 程度の SAW の強度が 10 mT 以下の低磁場において 1 % 程度減衰している。これは FMR との結合によるものであり、このことから 1.5 GHz 程度の SAW でも Co 薄膜の FMR との結合が可能であるということになる。これは本研究のデバイスの測定結果とは一致しないが、その理由として考えられるのは、蒸着時に薄膜内に生じたひずみの影響である。磁性薄膜を圧電基板に蒸着する際、高温な金属と基板の間に温度差が生じ、室温に冷えた際薄膜内に静的な歪みとして残る場合がある。この歪みが磁気弾性結合によ

って薄膜内に有効的な異方性磁場を生じさせることがある。この静的な異方性磁場により FMR のギャップが高くなり、SAW の周波数よりも高くなったことで結合が見られなかったということが考えられる。このひずみは Ni 薄膜の場合 400K 程度まで温めてアニールすることで取り除けるといふ報告があり [80], Co に対しても同様の効果が期待できる。

最後に Py 薄膜を用いた研究に関してだが、先に述べたようにマグノン周波数と SAW の周波数が一致しているはずであるが SAW の減衰が見られなかった。Py の物性として磁気弾性結合が小さいことが理由であれば、これ以上 Py を対象とする必要はないと思われる。一方で、非線形な効果が出ないように VNA のパワーを 0.1dBm と弱く測定していたが、その後パワーが強い方がマグノンとの結合が見やすいことがわかっているため、その点での改善の余地がある。また Co と同様に SAW デバイスに Py を蒸着した際にできるひずみにより、マグノン周波数が SAW の周波数より十分に高くなっていたために結合が起こらなかったという可能性が考えられる。この場合でも (磁気弾性結合の小さい Py ではひずみ由来の異方性磁場は小さいはずであるが) アニールしてひずみを取り除くことにより FMR と SAW との結合が期待できるが、いずれにせよ磁気弾性結合が小さいため大きな効果は期待できない。

付録 G

CuB₂O₄ SAW デバイス研究の補足

G.1 CuB₂O₄ の対称性に従う磁気弾性結合エネルギー

本論中で述べたように、スタックガード反強磁性状態の磁気弾性結合エネルギーは

$$F_{me} = \sum_{p,q=1,2} \sum_{i,j,k,l=1,2,3} b_{pqijkl} m_{pi} m_{qj} \epsilon_{kl}. \quad (\text{G.1})$$

のように表される。磁気弾性結合エネルギーは空間群 $I\bar{4}2d$ に従う対称操作において変化しないので、定数 b_{pqijkl} いくつかはゼロになり、独立な磁気弾性結合定数の数は減る*1。それを考慮することにより簡約化された磁気弾性結合エネルギーは次のように表される。

$$\begin{aligned} F_{me} = & \epsilon_{11} [b_{111111} m_{11}^2 + 2b_{121111} m_{21} m_{11} + b_{111111} m_{21}^2 + b_{111122} (m_{12}^2 + m_{22}^2) \\ & + b_{113311} (m_{13}^2 + m_{23}^2) + 2b_{121122} m_{12} m_{22} \\ & + 2b_{121211} (m_{11} m_{22} - m_{12} m_{21}) + 2b_{123311} m_{13} m_{23}] \\ & + \epsilon_{12} [4b_{111212} (m_{11} m_{12} + m_{21} m_{22}) + 4b_{121212} (m_{12} m_{21} + m_{11} m_{22})] \\ & + \epsilon_{13} [4(m_{21} (b_{111313} m_{23} + b_{121313} m_{13}) + m_{11} (b_{111313} m_{13} + b_{121313} m_{23}) \\ & + b_{121323} (m_{13} m_{22} - m_{12} m_{23}))] \\ & + \epsilon_{22} [b_{111111} m_{12}^2 + 2b_{121111} m_{22} m_{12} + b_{111111} m_{22}^2 + b_{111122} (m_{11}^2 + m_{21}^2) \\ & + b_{113311} (m_{13}^2 + m_{23}^2) + 2b_{121122} m_{11} m_{21} \\ & + 2b_{121211} (m_{11} m_{22} - m_{12} m_{21}) + 2b_{123311} m_{13} m_{23}] \\ & + \epsilon_{23} [4(m_{22} (b_{111313} m_{23} + b_{121313} m_{13}) + m_{12} (b_{111313} m_{13} + b_{121313} m_{23}) \\ & + b_{121323} (m_{11} m_{23} - m_{13} m_{21}))] \\ & + \epsilon_{33} [b_{111133} m_{11}^2 + 2m_{11} (b_{121133} m_{21} + b_{121233} m_{22}) + b_{111133} m_{12}^2 + b_{111133} (m_{21}^2 + m_{22}^2) \\ & + b_{113333} (m_{13}^2 + m_{23}^2) + 2m_{12} (b_{121133} m_{22} - b_{121233} m_{21}) + 2b_{123333} m_{13} m_{23}]. \end{aligned} \quad (\text{G.2})$$

*1 ここで、磁気秩序や磁化の方向変化に伴う結晶構造の低対称化は考慮していない。高温相の結晶構造の対称性のもとで計算している。

ここで、自由エネルギーに対する空間群 $I\bar{4}2d$ に従う対称操作を P とすると、

$$F_{me} = PF_{me} \quad (\text{G.3})$$

$$= \sum_{p,q=1,2} \sum_{i,j,k,l=1,2,3} b_{pqijkl} P(m_{pi} m_{qj}) P(\epsilon_{kl}). \quad (\text{G.4})$$

という等号により、 b_{pqijkl} に関する方程式を導出し、 F_{me} を簡略した。

G.2 表面弾性波励起のもとでの反強磁性共鳴の有効運動方程式

副格子磁化 \mathbf{m}_p ($p = 1, 2$) に働く有効磁場は

$$\mathbf{h}_p^{me} = -\nabla_{\mathbf{m}_p} F_{me} = (h_{p1}^{me}, h_{p2}^{me}, h_{p3}^{me}). \quad (\text{G.5})$$

のように定義される。添字 p は秩序化したスピンの二つの副格子の指標を表す。

有効磁場 \mathbf{h}_p^{me} が実際の磁場と同様に磁気モーメントに作用すると想定すると、散逸項のない LL 方程式は次のように表される；

$$\frac{\partial \mathbf{m}_p}{\partial t} = -\gamma \mathbf{m}_p \times \left\{ -\Lambda \mathbf{m}_q + \frac{K}{|\mathbf{m}_p|^2} (\mathbf{m}_p \cdot \hat{\mathbf{z}}) \hat{\mathbf{z}} + \mathbf{h}_p^{me} + \mathbf{H} \right\} \quad (\text{G.6})$$

ここで、 $\hat{\mathbf{z}}$ は z 軸方向の単位ベクトルである。 $\mathbf{m}_p = \mathbf{m}_p^0 + \delta \mathbf{m}_p$ とおき、6つの方程式を $\delta \mathbf{m}$ と \mathbf{h}_p^{me} に対して線形化することで、次を得る；

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\partial \delta \mathbf{m}_p}{\partial t} + \mathbf{m}_p^0 \times \left(-\Lambda \delta \mathbf{m}_q + \frac{K}{(m^0)^2} (\delta \mathbf{m}_p \cdot \hat{\mathbf{z}}) \hat{\mathbf{z}} \right) + \delta \mathbf{m}_p \times (-\Lambda \mathbf{m}_q^0 + \mathbf{H}) = -\mathbf{m}_p^0 \times \mathbf{h}_p^{me} \quad (\text{G.7})$$

ここで、 $p, q = 1$ or 2 で、 $p \neq q$ とする。

簡約化された磁気弾性結合エネルギー (G.2) から有効磁場成分を求めると、次のようになる。

$$\begin{aligned} h_{11}^{me} &= -2m_{11}^0 (b_{111111}\epsilon_{11} + b_{111122}\epsilon_{22} + b_{111133}\epsilon_{33}) \\ &\quad - 4b_{111212}m_{12}^0\epsilon_{12} - 2m_{21}^0 (b_{121111}\epsilon_{11} + b_{121122}\epsilon_{22} + b_{121133}\epsilon_{33}) \\ &\quad - 2m_{22}^0 (b_{121211}(\epsilon_{11} + \epsilon_{22}) + 2b_{121212}\epsilon_{12} + b_{121233}\epsilon_{33}), \\ h_{12}^{me} &= -2b_{111111}m_{12}^0\epsilon_{22} - 2b_{111122}m_{12}^0\epsilon_{11} - 2b_{111133}m_{12}^0\epsilon_{33} - 4b_{111212}m_{11}^0\epsilon_{12} - 2b_{121111}m_{22}^0\epsilon_{22} \\ &\quad - 2b_{121122}m_{22}^0\epsilon_{11} - 2b_{121133}m_{22}^0\epsilon_{33} + 2m_{21}^0 (b_{121211}(\epsilon_{11} + \epsilon_{22}) - 2b_{121212}\epsilon_{12} + b_{121233}\epsilon_{33}), \\ h_{13}^{me} &= -4b_{111313}m_{11}^0\epsilon_{31} - 4b_{111313}m_{12}^0\epsilon_{23} - 4b_{121313}m_{22}^0\epsilon_{23} - 4b_{121323}m_{22}^0\epsilon_{31} \\ &\quad + 4m_{21}^0 (b_{121323}\epsilon_{23} - b_{121313}\epsilon_{31}), \\ h_{21}^{me} &= -2m_{21}^0 (b_{111111}\epsilon_{11} + b_{111122}\epsilon_{22} + b_{111133}\epsilon_{33}) - 2m_{11}^0 (b_{121111}\epsilon_{11} + b_{121122}\epsilon_{22} + b_{121133}\epsilon_{33}) \\ &\quad + 2(m_{12}^0 (b_{121211}(\epsilon_{11} + \epsilon_{22}) - 2b_{121212}\epsilon_{12} + b_{121233}\epsilon_{33}) - 2b_{111212}m_{22}^0\epsilon_{12}), \\ h_{22}^{me} &= -2b_{111111}m_{22}^0\epsilon_{22} - 2b_{111122}m_{22}^0\epsilon_{11} - 2b_{111133}m_{22}^0\epsilon_{33} - 4b_{111212}m_{21}^0\epsilon_{12} - 2b_{121111}m_{12}^0\epsilon_{22} \\ &\quad - 2b_{121122}m_{12}^0\epsilon_{11} - 2b_{121133}m_{12}^0\epsilon_{33} - 2m_{11}^0 (b_{121211}(\epsilon_{11} + \epsilon_{22}) + 2b_{121212}\epsilon_{12} + b_{121233}\epsilon_{33}), \\ h_{23}^{me} &= -4b_{111313}m_{21}^0\epsilon_{31} - 4b_{111313}m_{22}^0\epsilon_{23} - 4b_{121313}m_{12}^0\epsilon_{23} + 4b_{121323}m_{12}^0\epsilon_{31} \\ &\quad - 4m_{11}^0 (b_{121313}\epsilon_{31} + b_{121323}\epsilon_{23}). \end{aligned} \quad (\text{G.8})$$

ここで、我々は小さいひずみに由来する有効磁場を求めた。したがって、磁化の動的成分 (δm_p) の寄与は無視した。つまり、ひずみの 1 次、磁化の動的成分の 0 次まで考慮した。 $T=10$ K における CuB_2O_4 の磁気秩序は容易面 Néel 型なので、磁化の z 成分はない、つまり $m_p^0 = 0$ と仮定した。

表面弾性波デバイスの矢状面 (zx 面) は結晶の鏡映対称面になるように設計しているので、我々の実験では表面弾性波の中でもレイリー波が励起されていると仮定できる [81]。 ϵ_{11} , ϵ_{33} , ϵ_{31} 以外を無視する。方程式 (G.7) を対角化することで反強磁性共鳴の 6 つの方程式を次のように得る；

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} \left((\delta m_{1X} - \delta m_{2X}) + \frac{b}{a^2} (\delta m_{1Y} + \delta m_{2Y}) \right) = (m^0)^2 \left(B_1 + \frac{b}{a^2} B_2 \right) \epsilon_{31} \cos \phi, \quad (\text{G.9})$$

$$\left(\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} - iaH^0 \right) ((\delta m_{1Y} + \delta m_{2Y}) + ia(\delta m_{1Z} + \delta m_{2Z})) = (m^0)^2 (B_2 \epsilon_{31} \cos \phi + iaB_3 \epsilon_{11} \sin 2\phi), \quad (\text{G.10})$$

$$\left(\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} + iaH^0 \right) ((\delta m_{1Y} + \delta m_{2Y}) - ia(\delta m_{1Z} + \delta m_{2Z})) = (m^0)^2 (B_2 \epsilon_{31} \cos \phi - iaB_3 \epsilon_{11} \sin 2\phi), \quad (\text{G.11})$$

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} ((\delta m_{1X} + \delta m_{2X}) + c(\delta m_{1Y} - \delta m_{2Y})) = (m^0)^2 (B_4 + cB_5) \epsilon_{13} \cos \phi, \quad (\text{G.12})$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} - ie(2m\Lambda \cos \psi - H^0) \right) (d(\delta m_{1X} + \delta m_{2X}) + (\delta m_{1Y} - \delta m_{2Y}) - ie(\delta m_{1Z} - \delta m_{2Z})) \\ = (m^0)^2 (dB_4 + B_5) \epsilon_{13} \cos \phi - ie(B_6 \epsilon_{33} + \epsilon_{11}(B_7 \cos 2\phi + B_8)), \end{aligned} \quad (\text{G.13})$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{1}{\gamma} \frac{\partial}{\partial t} + ie(2m\Lambda \cos \psi - H^0) \right) (d(\delta m_{1X} + \delta m_{2X}) + (\delta m_{1Y} - \delta m_{2Y}) + ie(\delta m_{1Z} - \delta m_{2Z})) \\ = (m^0)^2 (dB_4 + B_5) \epsilon_{13} \cos \phi + ie(B_6 \epsilon_{33} + \epsilon_{11}(B_7 \cos 2\phi + B_8)), \end{aligned} \quad (\text{G.14})$$

ここで、 $\delta m_{1X} = \delta m_{11} \cos \phi + \delta m_{12} \sin \phi$, $\delta m_{2X} = \delta m_{21} \cos \phi + \delta m_{22} \sin \phi$, $\delta m_{1Y} = -\delta m_{11} \sin \phi + \delta m_{12} \cos \phi$, $\delta m_{2Y} = -\delta m_{21} \sin \phi + \delta m_{22} \cos \phi$, $\delta m_{1Z} = \delta m_{13}$, $\delta m_{2Z} = \delta m_{23}$. とした。無次元の定数 c, d, e はそれぞれ、

$$c = \frac{K \sin \psi}{(2\Lambda(m^0)^2 + K) \cos \psi - m^0 H^0}, \quad (\text{G.15})$$

$$d = \frac{2m^0 \Lambda \sin \psi}{2m^0 \Lambda \cos \psi - H^0}, \quad (\text{G.16})$$

$$e = \frac{\sqrt{(H^0)^2 - (4\Lambda(m^0) + K/m^0) \cos \psi H^0 + 2\Lambda(\Lambda(m^0)^2 + (\Lambda(m^0)^2 + K) \cos 2\psi)}}{2m^0 \Lambda \cos \psi - H^0} \quad (\text{G.17})$$

によって定義する。 B_4, B_5, B_6, B_7, B_8 は磁気弾性結合定数をまとめた定数で、次のように定義する；

$$B_4 = 8 \sin \psi ((b_{121313} - b_{111313}) \sin \psi + b_{121323} \cos \psi), \quad (\text{G.18})$$

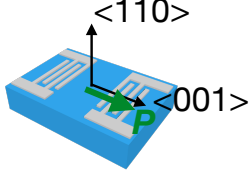
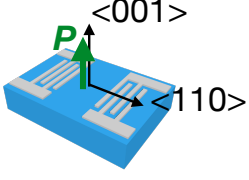
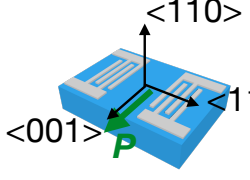
$$B_5 = -8 \cos \psi ((b_{121313} - b_{111313}) \sin \psi + b_{121323} \cos \psi), \quad (\text{G.19})$$

$$B_6 = -4 (b_{121133} \sin 2\psi + b_{121233} \cos 2\psi), \quad (\text{G.20})$$

$$B_7 = -2 \sin 2\psi (b_{111111} - b_{111122}), \quad (\text{G.21})$$

$$B_8 = -2 ((b_{121111} + b_{121122}) \sin 2\psi + 2b_{121211} \cos 2\psi). \quad (\text{G.22})$$

k,H,P ,Surfaceに対する対称操作のみを考慮
結晶点群は考慮していない

		Non-reciprocity from ME (Polar // P_{001}) Non-reciprocity from Surface (Polar // z)		
				
(a)	$H//x$	× (T + y-mirror) (non-polar)	× (x-mirror)	× (x-mirror)
		× (x-mirror)	× (x-mirror)	× (x-mirror)
	$H//y$	× (T + z-mirror)	OK	× (T + z-mirror) (non-polar)
		OK	OK	OK
$H//z$	× (T + y-mirror)	× (T + y-mirror) (non-polar)	OK	
	× (T + y-mirror)	× (T + y-mirror)	× (T + y-mirror)	
(b)	圧電 テンソル $d_1 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} a & -a & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -b & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$d_2 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & b & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -b & 0 & 0 \\ a & -a & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$	$d_3 = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & -b & 0 & 0 \\ a & -a & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & b & 0 \end{pmatrix}$	
(c)	Rayleigh & SH	混成しない	混成しない	混成

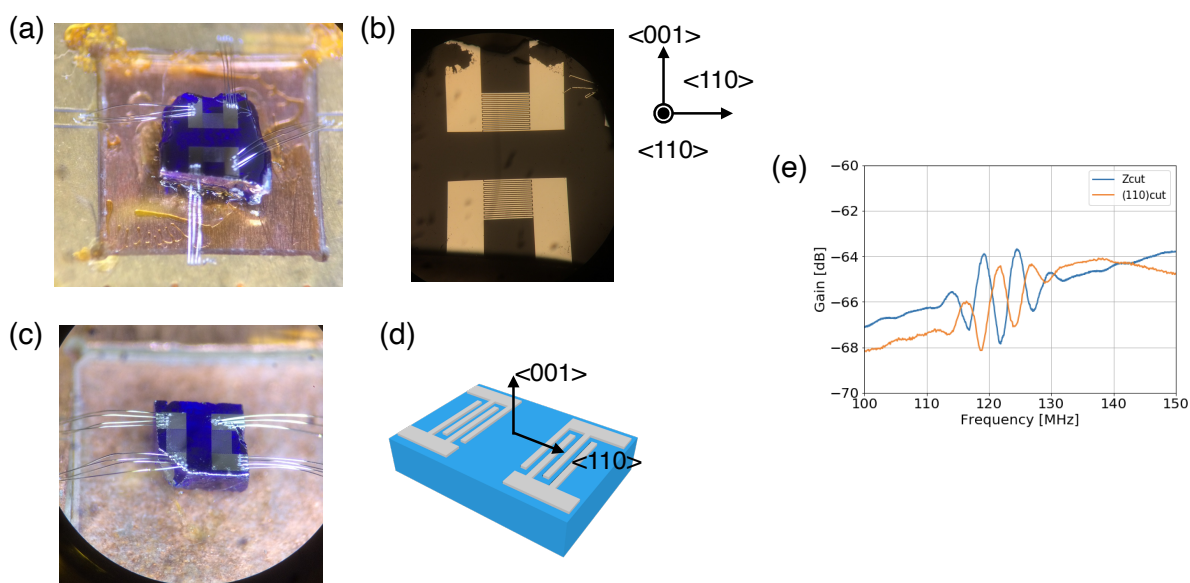
図G.1 CuB_2O_4 単結晶の3種類の方位のSAWデバイスに関する (a) 非相反性, (b) 圧電テンソル (a, b は定数), (c) SAW モード. デバイス概要図中の P は, 電気磁気効果によってでうる電気分極の方向を表す. (a) 対称性から非相反性が許されるか. 非相反性のための空間反転対称性を破る要素として, 電気磁気効果による電気分極と媒質表面の二つの可能性を考慮している. (b) 対称性上残る圧電テンソルの非ゼロ成分. (c) SAW の固有モードの Rayleigh モード (zx 面内にひずみを持つ) と SH モード (y 軸方向に変位を持つ) が独立か混成するか.

方程式 (G.9)-(G.11) と, (G.12)-(G.14) はそれぞれ, 反強磁性共鳴の音響モードと光学モードに関係する.

G.3 低周波, 異なる結晶方位の CuB_2O_4 SAW デバイス

CuB_2O_4 を用いた SAW デバイスは本文中に載せたもの以外にも, フトリソグラフィーによる低周波のデバイスや他の結晶方位のデバイスも作製し測定を行なっていた. ここではそれらについてまとめる.

表 G.1に三種類の結晶方位で SAW デバイスを作った時にでうる非相反性とその時の圧電テンソル, SAW の Rayleigh モードと SH モードが独立するか混成するかについて対称性の範囲から分かることをまとめた. 非相反性に関しては3つの方位で SAW デバイスを作った時に表面の効果か



図G.2 フォトリソグラフィーにより作製した CuB_2O_4 SAW デバイス. (a)(b)(110) 面を表面とする SAW デバイスの写真 (a) とその拡大写真と結晶方位 (b). (c)(d)(001) 面を表面とする SAW デバイスの写真 (c) と結晶方位 (d). (e) 二つのデバイスの透過スペクトル.

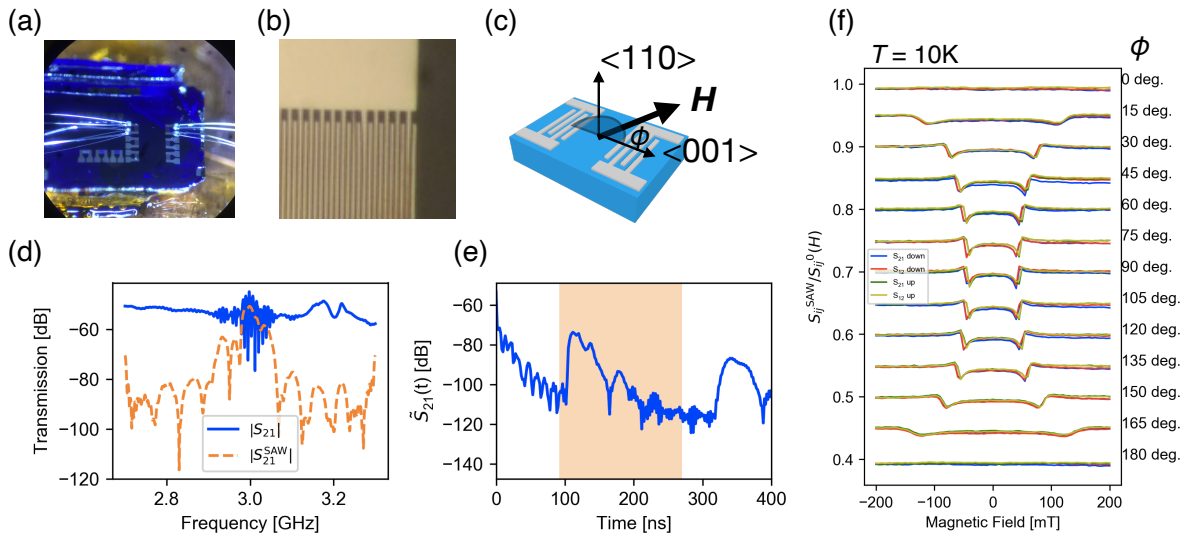
電気磁気効果によって発現する極性の効果のどちらで非相反性が許されるかを考察した.

研究ではまず, 圧電テンソルが対称性からある程度わかるので, それをもとに単結晶の方位を選んで基板状に加工し, フォトリソグラフィーにより低周波の SAW デバイスを作製して SAW が励起できるかを調べた. 図 G.2 に示す通り, (110)-cut, $\langle 001 \rangle$ 方向伝搬のデバイスと, (001)-cut, $\langle 110 \rangle$ 方向伝搬のデバイスを作製した. IDT の幅は $10 \mu\text{m}$ である. 図 G.2(e) の透過スペクトルの通り, いずれのデバイスでも SAW が励起できることが分かる. 二つの速度はおおよそ一致している.

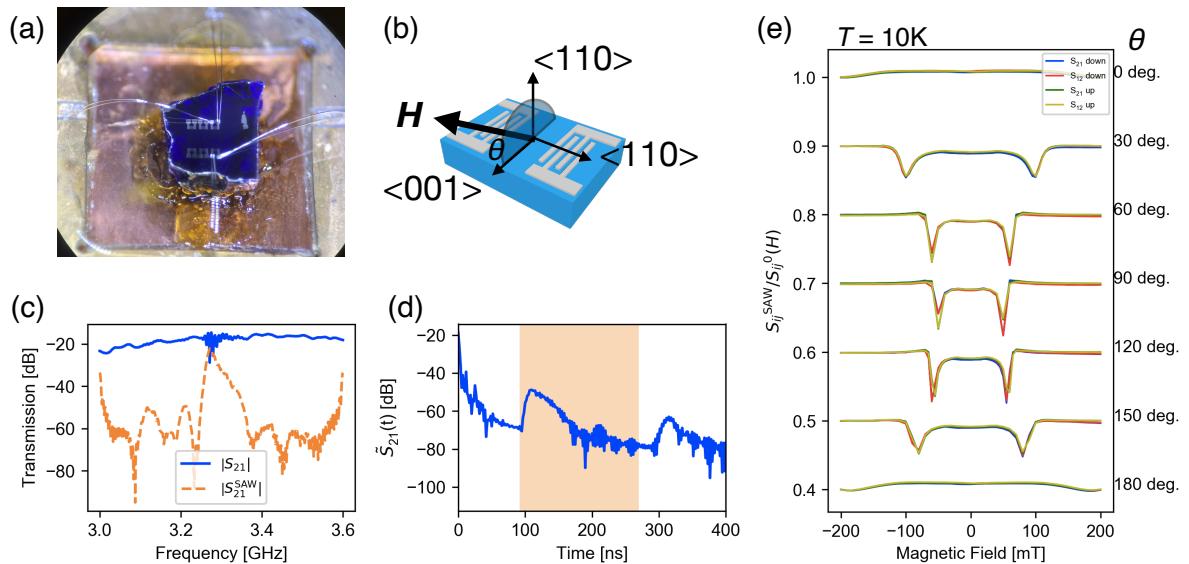
フォトリソグラフィーによる簡易的な SAW デバイスの作製により, CuB_2O_4 単結晶を圧電基板として SAW が励起できることがわかったため, EBL による高周波な SAW デバイスの作成を行った.

本文で議論した (001)-cut, $\langle 110 \rangle$ 伝搬の SAW デバイス以前に図 G.3 と図 G.4 に示すような二つの高周波 SAW デバイスを作製し, その磁場依存性を測定した. いずれの図にもそのデバイスの透過スペクトルとフーリエ変換を用いた数値的な時間ゲート解析を行なった SAW の透過スペクトルを示している. いずれのデバイスでも IDT の幅は 400 nm であり, 3 GHz 程度に SAW の透過信号が観測されている. $\langle 110 \rangle$ 伝搬の SAW デバイスの方が他の二種類の方位のデバイスに比べて少し高周波 (音波の速度が速い) なのは表 G.1 にある通り Rayleigh 波が SH 波と分離できないことと関連があるかもしれない.

図 G.3(f) と図 G.4(e) に示されている磁場依存性の特徴としてはどちらのデバイスに関しても非相反性は観測されていない. また, 磁場の方位によって SAW の信号が変化する磁場が異なっている. (001) 面内に磁場がある時に低磁場で結合し変化が大きく, $\langle 001 \rangle$ 軸に近い時に高磁場で結合し変化が小さい.



図G.3 (a)(110)-cut, $\langle 001 \rangle$ 伝搬の $\text{Cu}_2\text{B}_2\text{O}_4$ SAW デバイスの写真.(b)IDT の写真 (c) デバイスの概要図と結晶方位, および磁場の方位角の定義. 磁場はデバイス表面に平行に印加している. (d) デバイスの透過スペクトルと数値的時間ゲート解析を行なった SAW の透過スペクトル. (e) 時間領域の透過信号. (f) 各磁場方位における SAW の規格化した透過強度の磁場依存性



図G.4 (a)(110)-cut, $\langle 110 \rangle$ 伝搬の $\text{Cu}_2\text{B}_2\text{O}_4$ SAW デバイスの写真.(b) デバイスの概要図と結晶方位, および磁場の方位角の定義. 磁場は SAW の伝搬方向と垂直な面内で回転させている. $\langle 001 \rangle$ から測った角度を θ と定義している. (c) デバイスの透過スペクトルと数値的時間ゲート解析を行なった SAW の透過スペクトル. (d) 時間領域の透過信号. (e) 各磁場方位における SAW の規格化した透過強度の磁場依存性

このような磁場方位に大きく依存した SAW の変化は、磁気弾性結合の異方性ではなく、反強磁性マグノンの異方性に起因するものである。本文中の図 3.10 で示したように、この反強磁性マグノンは容易面内に磁場を印加する方が面直磁場の場合よりもマグノンの周波数が高い。この異方性により、マグノンの周波数が SAW の周波数に到達するまでに必要な磁場の強さが異なる。これが SAW の磁場依存性の異方性に現れている。この異方性が現れない方が Ni デバイスとの比較が容易になると考え、本文中のような (001)-cut, <110> 伝搬の SAW デバイスに注力した研究を行った。