

整理番号	2018-J-024	報告者氏名	松原 正和
------	------------	-------	-------

研究課題名 高機能磁性体メタマテリアルの開発と光スピントロニクスへの展開

<代表研究者> 機関名：東北大学 職名：准教授 氏名：松原正和

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：

<研究内容・成果等の要約>

既存エレクトロニクスデバイスの限界打破と新機能創出の観点から、近年、電子のスピン自由度を積極的に利用するスピントロニクスが注目を集めている。スピントロニクス機能の多くは、電流のスピン版である「スピン流」によって駆動されるため、スピン流の革新的な生成・制御技術の開発が急務となっている。本研究では、ナノ空間を人工的かつ機能的に設計した「磁性体メタマテリアル」を新たに開発することで、「室温かつゼロバイアスで、伝播方向や大きさを光の偏光自由度により完全制御可能な超高速のスピン流生成」の基礎原理の構築および体系化を世界に先駆けて行うことを目指した。

垂直磁化を持つ強磁性体金属として知られる Co/Pt 多層膜に、微細加工技術を用いナノスケールの人工的な 3 回回転対称構造を導入し、「空間反転対称性」と「時間反転対称性」が同時に破れた磁性体メタマテリアルを作製した。試料の評価を原子間力顕微鏡や磁気光学効果などを用いて行い、望み通りの試料が作製できていることを確認した。この試料にフェムト秒チタンサファイアレーザー（波長：800nm、パルス幅：~100fs、繰り返し周波数：80MHz）から出射された光を垂直入射で照射したところ、外場を印加しなくてもゼロバイアスでスピン流（スピン偏極光電流）が生じることが分かった。また、入射直線偏光の偏光方向 θ_ω により、スピン偏極光電流の伝播方向 θ_s を磁性体メタマテリアルの 2 次元面内で 360° 自在に制御 ($\theta_s = -2\theta_\omega + 90^\circ$) できること、さらに、入射光の楕円率角 ε_ω を制御することで、スピン偏極光電流の大きさ $|J_s|$ も制御 ($|J_s| \propto \cos 2\varepsilon_\omega$) できることが分かった。観測されたスピン偏極光電流は、スピンの反転で伝播方向を完全に反転し、スピンによる制御性をも有することが分かった。

本研究により、スピントロニクスにおけるスピン流の生成・制御に対して、メタマテリアルのアイデアを導入することで、元々の物質では不可能な新規な光スピントロニクス機能の創出が可能になり、光の任意の偏光情報をスピン流（スピン偏極光電流）に転写できることが判明した。

<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

【論文発表】

- [1] M. Matsubara, “Ultrafast optical control of magnetic interactions in carrier-density-controlled ferromagnetic semiconductors”, *Appl. Sci.* 9, 948/1-13 (2019). [As part of the Special Issue “Photoinduced Cooperative Phenomena”]
- [2] T. Aoyama, S. Imaizumi, T. Togashi, Y. Sato, K. Hashizume, Y. Nambu, Y. Hirata, M. Matsubara, and K. Ohgushi, “Polar state induced by block-type lattice distortions in BaFe₂Se₃ with quasi-one-dimensional ladder structure”, *Phys. Rev. B* 99, 241109(R)/1-5 (2019).
- [3] M. Matsubara, T. Kobayashi, T. Kato, S. Iawta, “Polarization-controlled directional and switchable spin-polarized photocurrents in a spintronic metamaterial”, *To be submitted*.

【解説記事・日本語論文・その他】

- [1] 松原正和, 「光パルス照射による高速磁気制御」, *応用物理* 88, 475-479 (2019).

【国際会議発表】

- [1] （招待講演）2nd International Conference on Magnetism and Magnetic Materials（Budapest, Hungary, 2018年9月24-26日）
“Domain dynamics in multiferroics”
M. Matsubara

【国内会議発表】

- [1] （口頭）日本物理学会2018年秋季大会（同志社大学京田辺キャンパス, 2018年9月9-12日）
「非磁性金属メタマテリアル/YIG積層膜における磁気応答光電流の観測」
小林隆嗣, 富樫拓也, 日置友智, 齊藤英治, 石原照也, 松原正和
- [2] （ポスター）日本物理学会2018年秋季大会（同志社大学京田辺キャンパス, 2018年9月9-12日）
「磁性体人工ナノ構造における磁気光ガルバノ効果の観測と空間マッピング」
小林隆嗣, 加藤剛志, 岩田聡, 松原正和
- [3] （口頭）日本物理学会2018年秋季大会（同志社大学京田辺キャンパス, 2018年9月9-12日）
「光第二高調波発生による磁性体ナノ構造中のトロイダルモーメントの検出」
佐藤佳史, 櫻木俊輔, 石原照也, 松原正和
- [4] （ポスター）文部科学省ナノテクノロジープラットフォーム利用成果発表会（東京大学浅野キャンパス, 2018年9月27日）
「非空間反転対称磁性体の作製と新規スピン光機能の探索」
大島大輝, 加藤剛志, 小林隆嗣, 佐藤佳史, 松原正和
- [5] （招待講演）第14回森田記念賞受賞記念講演（東北大学青葉山キャンパス, 2018年11月10日）
「非線形光学効果を用いた機能性物質の研究」
松原正和

【受賞】

- [1] 第14回森田記念賞（2018年11月）
「非線形光学効果を用いた機能性物質の研究」
松原正和

<研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）>

【本研究の目的】

近年、電子が持つ電荷の自由度に加えてスピン（磁気）の自由度を積極的に利用する「スピントロニクス」が、電気・磁気デバイスの新しい駆動原理の創出や省エネルギー化技術の観点から注目を集め、これらに関する研究が世界的規模で進められている。スピントロニクス機能の多くは、電流のスピン版である「スピン流（スピン角運動量の流れ）」によって駆動される（図1）。スピン流を用いれば、超低損失な不揮発性磁気メモリーや量子情報伝送が実現可能になると期待されており、スピン流の革新的な生成・制御技術の開発が急務となっている。

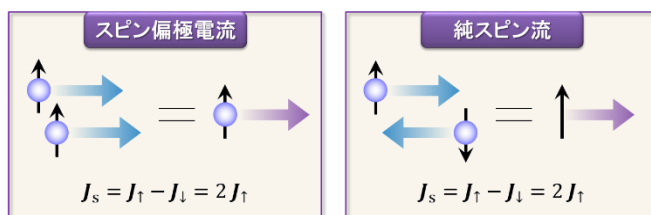


図1 スピン流 J_s の分類：電荷の流れ（電流）を伴うスピン偏極電流と伴わない純スピン流。

一方、近年の微細加工技術の進歩によるナノテクノロジーの発展は、ナノメートルスケールの微小な空間制御が新機能の創出や新たな物性の開拓、量子状態の制御に重要であることを明らかにした。とりわけ、光科学、ナノ構造・材料科学の分野において、光の波長よりも小さな構造を持つサブ波長人工物質の作製により、物質固有と考えられてきた光学応答を人工的に制御することが可能となっている。現在、サブ波長人工物質はメタマテリアルと名づけられ、負の屈折、完全レンズ、クローキング（透明マント）など多くの興味深い現象が予測・観測され、応用面でも大きな注目を集めている。これらの現象の本質は、注目する光の波長より十分に小さいナノ空間の制御により、新奇な光－物質機能を実現できることにある。現在、メタマテリアルを用いた新奇な光－物質機能は、これまでの常識を根本から覆す物性開拓の観点から大きな注目を集めている。しかしながら、次世代の革新的新機能を持つデバイス等の開発には、これらの機能を凌駕する分野横断型の新技術の開発が必要不可欠である。

本研究では、「ナノ空間を人工的かつ機能的に設計した磁性体メタマテリアル」を新たに開発することで、従来に無い全く新しい原理により、「室温かつゼロバイアスで、伝播方向や大きさを光の偏光により完全制御可能な超高速のスピン流生成」の基礎原理の構築および体系化を世界に先駆けて行う。これにより、スピン流の生成・制御手法の選択肢を広げ、次世代スピントロニクスデバイス設計の自由度の飛躍的な向上に貢献することを目指した。

【研究の学術的独自性と創造性】

報告者はこれまで、多彩な光技術を高度に発展・融合させることにより、マルチフェロイック物質（磁性強誘電体）、磁性半導体、強相関電子系物質などの次世代スピントロニクス候補物質において、特異なスピン配列の高感度検出・可視化・機能解明 [Matsubara, *Science* 2015] や、超短光パルスによるスピン制御の研究 [Matsubara, *Nature Commun.* 2015, *PRL* 2007, Manz, Matsubara, *Nature Photon.* 2016] などに取り組んできた。本研究では、スピントロニクスとメタマテリアルの2つの概念を掛け合わせ、これらの相乗効果により生み出される全く新しい概念の導入や機能性を実現するところに、独創性と新規性がある。

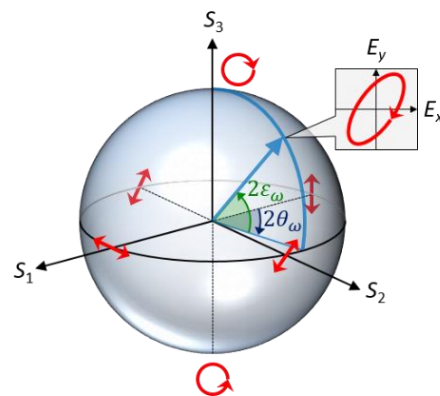


図2 光の任意の偏光状態を記述するポアンカレ球。

θ_{ω} : 偏光方向、 ε_{ω} : 楕円率。

現在、光の偏光自由度（図2）の利用は、スピンを高速・任意に生成し、自在に制御する手法として、光磁気記録や量子情報通信分野など多方面で期待されている。例えば、逆ファラデー効果と呼ばれるメカニズムを用いたスピン制御は、フェムト秒レベルでスピンの向きを反転できる手法として期待されているが、使用できる偏光は左右円偏光に限られ（図2の北極と南極のみを利用）、光の偏光を最大限利用したスピン（流）制御技術は未開拓である。

本研究で提案する手法（後述）の特徴は、a) ありふれた室温強磁性体をナノ空間制御により磁性体メタマテリアルとして機能化（室温動作機能）、b) 非接触かつゼロバイアスでスピン流を生成（スピン流整流機能）、c) 光の偏光自由度を最大限利用することで、スピン流の伝播方向や大きさを完全制御（スピン流伝播制御機能、スピン流スイッチ機能）、d) 超短光パルスを用いることで、スピン流の超高速制御が可能（超高速機能）、e) スピンの反転でスピン流の伝播方向を反転できる（スピンによる制御機能）、など革新的光スピントロニクス機能の開拓と学術的・産業的に重要な多くの波及効果をもたらす。本研究で提案する概念「物質の（磁気）対称性の人工的な制御によるスピン流の完全光操作」は他では見られない報告者独自のアイデアである。本研究の遂行は、光科学技術・スピントロニクス技術をナノテクノロジーにより横断的かつ重層的に集積・発展させる量子科学のフロンティアの開拓が期待される。

【本研究で提案する光照射によるスピン流（スピン偏極電流）の生成・制御・検出の原理】

光と物質の相互作用はマクロに見れば物質の（磁気）対称性が重要な役割を果たし、それをナノ空間で制御することで物質の（非線形）光学応答を意図的に制御することができる。例えば、3回回転対称性かつ垂直磁化を持つ物質に垂直入射で光を照射した場合、磁気光ガルバノ効果と呼ばれる一種の非線形磁気光学効果により生じるスピン流（スピン偏極電流） J_s の伝播方向 θ_s は、入射光の偏光方向 θ_ω により自在に制御できる（ $\theta_s = -2\theta_\omega + 90^\circ$ ）ことが導かれる（図3）。また、入射光の楕円率角 ε_ω の制御により、大きさの任意操作も可能（ $|J_s| \propto \cos 2\varepsilon_\omega$ ）となる。本研究では、光照射によりスピン偏極電流（図1）を生成することで、スピンの流れ（スピン流）を電荷の流れ（電流）として検出することが可能になる。

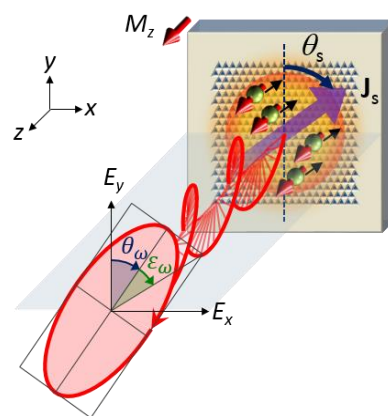


図3 磁性体メタマテリアルを用いたスピン流（スピン偏極電流）の光操作。

【結果と考察】

① 磁性体メタマテリアルのデザイン・作製・評価

群論を用いた（磁気）対称性の考察により、光照射によりゼロバイアスでスピン流（スピン偏極電流）の生成・制御が可能になる磁気・空間構造を設計した。その結果、3回回転対称性と垂直磁化を有する構造が最適であることが分かった。試料作製は、研究室で所有する（あるいは、共用設備の）イオンビームスパッタ装置、イオンビームエッチング装置、電子線描画装置などを利用し、室温強磁性体である Co/Pt 多層膜に人工的な 3 回回転対称性を導入した磁性体メタマテリアルを作製した。1 cm×1 cm の大きさの SiO₂ 基板上に、5 nm の SiN、2 nm の Pt、[Co(0.5 nm)/Pt(0.9 nm)]₅ 多層膜、2 nm の Pt の順に積層させた。その後、電子線描画装置を利用し、

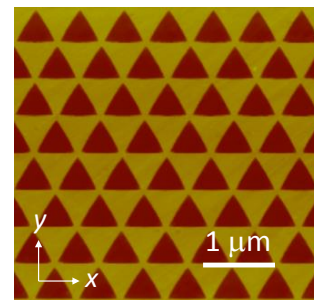


図4 Co/Pt 多層膜に人工的な 3 回回転対称性を導入した磁性体メタマテリアルの AFM 像。

一辺が 480 nm の正三角形の穴（周期 558 nm）を三角格子状に描画（描画領域 $250\ \mu\text{m} \times 250\ \mu\text{m}$ ）することで 3 回回転対称性を持つ磁性体メタマテリアルを作製した。作製した試料の構造評価を研究室で所有する原子間力顕微鏡（AFM）等で行い、設計通りの構造を作製することに成功した（図 4）。また、Faraday 効果の測定により試料の磁気特性を評価し、1000 Oe 程度の保持力を持つ強磁性ヒステリシスを示すことを確認した。

② ゼロバイアス光電流の生成・検出系の構築

今回、磁性体メタマテリアルにおいて光照射により生じるゼロバイアスのスピン偏極電流 J_s の大きさ $|J_s|$ と伝播方向 θ_s を精度よく測定するための測定系を新たに構築した。これにより、光電流の励起強度依存性、入射直線偏光の偏光角依存性、円偏光度依存性、磁場依存性、入射光スポットの場所依存性の測定などが可能となった。

③ 磁性体メタマテリアルにおけるスピン偏極電流の完全光操作

フェムト秒チタンサファイアレーザー（波長：800 nm、パルス幅：~100 fs、繰り返し周波数：80 MHz）から出た光を光チョッパーで 1 kHz 程度の周波数に落とし、試料（磁性体メタマテリアル）を励起した。レーザーのスポットの大きさは直径約 $200\ \mu\text{m}$ であり、これは人工構造を描画した領域の大きさよりやや小さい程度である。試料の上下・左右方向に取り付けた電極間に流れる電流をそれぞれロックインアンプで検出することにより、誘起されるスピン偏極光電流の大きさと方向を測定した（図 5 (a)）。

図 5 (b)-(d) に、3 回回転対称を持つ磁性体メタマテリアルに垂直入射で光照射した際に、試料の x 方向と y 方向に流れるスピン偏極光電流 $J_{s,x}$ と $J_{s,y}$ 、スピン偏極光電流の大きさ $|J_s| = \sqrt{J_{s,x}^2 + J_{s,y}^2}$ 、スピン偏極光電流の流れる方向 $\theta_s = \tan^{-1}\left(\frac{J_{s,y}}{J_{s,x}}\right)$ をそれぞれ入射直線偏光の偏光方向 θ_ω の関数としてプロットした。図 5 (b) より、 $J_{s,x} \propto \cos 2\theta_\omega$ 、 $J_{s,y} \propto \sin 2\theta_\omega$ の関係が確認でき、スピン偏極光電流の大きさ $|J_s|$ は θ_ω に依存せず一定となる（図 5 (c)）。また、 $\tan^{-1}\left(\frac{J_{s,y}}{J_{s,x}}\right) = -2\theta_\omega + 90^\circ$ より、スピン偏極光電流の流れる方向と入射直線偏光の偏光方向の間には、 $\theta_s = -2\theta_\omega + 90^\circ$ の関係が成立する（図 5 (d)）。この結果は、入射直線偏光の偏光方向を変調することで、3 回回転対称性を持つ磁性体メタマテリアルの 2 次元面内で生成されるゼロバイアスのスピン偏極光電流の大きさを一定に保ったまま流れる方向を 360° 自在に制御できることを示している。

さらに、入射光の楕円率角 ε_ω を制御することで、スピン偏極光電流の大きさも制御 ($|J_s| \propto \cos 2\varepsilon_\omega$) することに成功した（図 6 (a), (b)）。この結果、光の任意の偏光情報をスピン偏極光電流に転写できることが半明

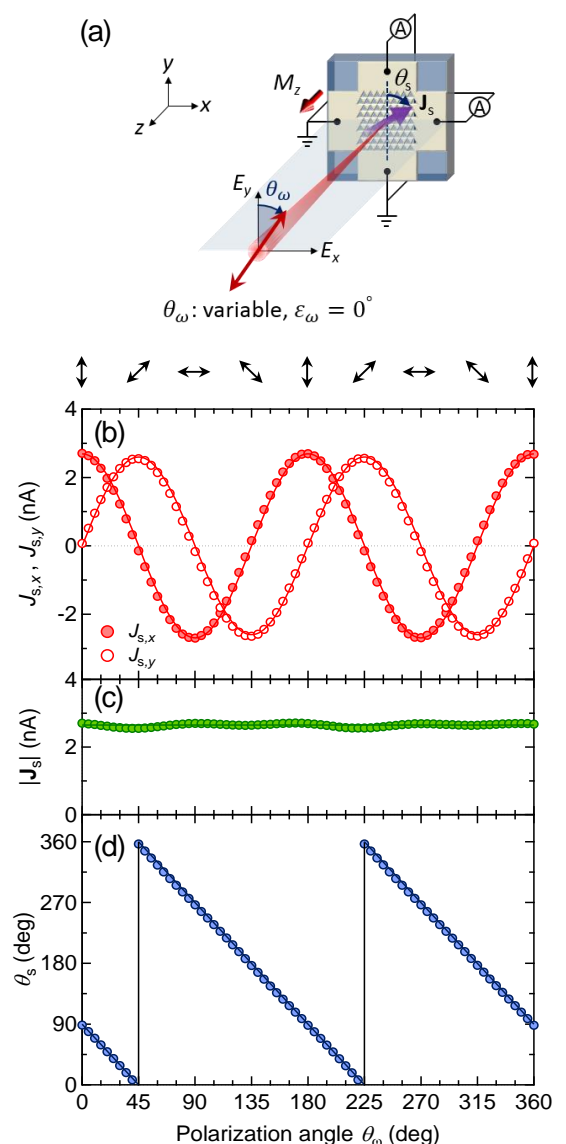


図 5 (a) ゼロバイアスのスピン偏極光電流測定の実験配置。(b)-(d) 磁性体メタマテリアルにおけるスピン偏極光電流 J_s の入射直線偏光角 θ_ω 依存性。

した。また、観測されたスピン偏極光電流は、スピンの反転で伝播方向を完全に反転し、通常の光電流とは異なりスピン制御性をも有することが分かった (図7)。

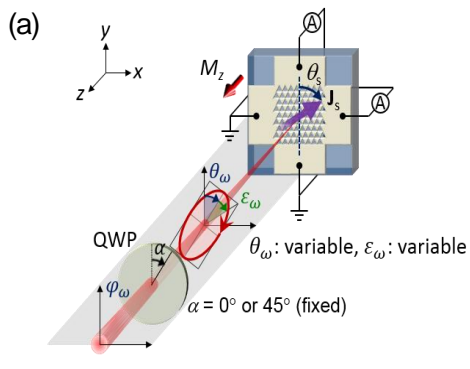


図6 (a) ゼロバイアスのスピン偏極光電流測定の実験配置。
(b) スピン偏極光電流強度 $|J_s|$ の楕円率角 ϵ_ω 依存性。

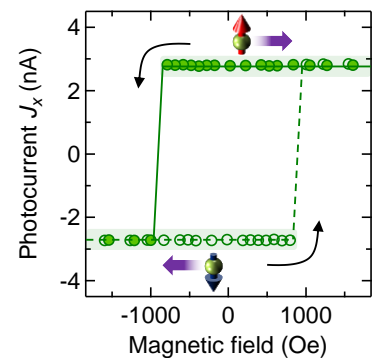
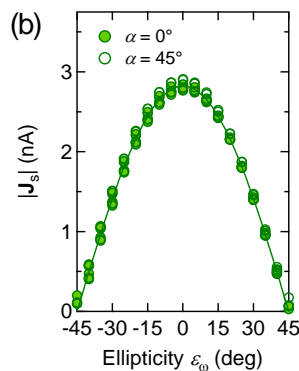


図7 スピンの反転で伝播方向を反転するスピン偏極光電流。

④ スピン偏極光電流の空間マッピング

光パルスのスポットを絞り、その位置を磁性体メタマテリアルの2次元面内でスキャンすることで、磁気光ガルバノ効果により生じるスピン偏極光電流と、光照射による温度勾配により生じる熱電流(ゼーベック効果による通常の熱電流と異常ネルンスト効果による磁気的な熱電流)の空間分布を実空間でマッピングした。対称性の議論から、これらの電流は入射光の偏光やスピンに対する依存性が異なるため、これらを明確に分離することができる。これにより、磁気光ガルバノ効果により生じるスピン偏極光電流は三角形の人工構造がある部分のみから生じることが分かり、熱的な電流とは全く異なる空間分布を持つことが明らかになった。

【まとめ・今後の展望】

本研究では、新たに開発した磁性体メタマテリアルが有する新規光スピントロニクス機能として、光の偏光状態によりスピン流(スピン偏極光電流)の伝播方向や大きさを任意に操作できることを明確に示すことができた。今後の課題として、①励起光として用いるフェムト秒チタンサファイアレーザーの波長を変化させ、スピン偏極光電流の波長依存性を測定する。これにより、(より高効率な)スピン偏極光電流を創出する量子論的なメカニズムを見出す。②スピン偏極光電流のダイナミクス測定により、スピン偏極光電流の応答速度を解明する。③磁性体メタマテリアルにおいて生成・制御されたスピン偏極光電流を別の磁性体に注入し、スピントルクを利用した超高速磁化制御を行う。

【謝辞】

本研究を遂行するにあたり多大なご支援を賜りました公益財団法人 泉科学技術振興財団に厚く御礼申し上げます。