

令和元年6月21日現在

機関番号：14401

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2014～2018

課題番号：26103004

研究課題名(和文) 光学的スピン変換

研究課題名(英文) Optical Spin Conversion

研究代表者

大岩 顕(Oiwa, Akira)

大阪大学・産業科学研究所・教授

研究者番号：10321902

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 194,700,000円

研究成果の概要(和文)：様々なスピン系での光スピン変換の包括的な理解を目指して多角的な研究を遂行した。全光型磁化反転における角運動量移行過程の寄与を明らかにした。また反強磁性体で逆磁気光学効果を解明し、その普遍性の一端を示した。時空間分解測定から光誘起マグノンの分散関係を導出する新手法や、偏光依存マグノンモードの観測やテラヘルツ発生など光スピン変換の新技术を創出した。一方で、界面における非線形スピン変換によりマグノン励起を介したスピン流生成が統一的理解されることを解明した。さらに単一光子偏光から単一電子スピンへ量子状態の変換を実証し、光子対から電子スピンへのもつれ相関の変換が可能であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

フェリ磁性体の全光磁化反転でのエネルギーと角運動量移行の複合過程の解明や、反強磁性体での逆磁気光学効果は、光学的スピン変換の広範性を示す結果である。時空間磁気光学測定を発展させ、マグノンダイナミクス物性やテラヘルツスピン変換などを新たに開拓した。界面マグノンスピン流変換の成果は、マグノン分裂・散乱で記述されるスピン系の非線形性とフォノンまで含めたスピン変換によって現れるスピントロニクス現象の理解に繋がる。また光子から電子スピンへの角運動量変換に基づく量子状態変換は、もつれ相関など量子力学的効果をスピン系に導入できることを示すと同時に、長距離量子暗号通信への応用として社会的インパクトも大きい。

研究成果の概要(英文)：We have conducted versatile researches aiming at comprehensive elucidation of optical spin conversion in various spin systems. The contribution of energy and angular momentum transfer processes to the all-optical magnetization switch has been established. Inverse magneto-electric effect in antiferromagnets have been studied experimentally and theoretically, indicating the universality of that effect. Moreover, we have developed novel technologies; derivation of magnon dispersion relation from time-spatial resolved measurements, observation of helicity dependent magnon modes, and terahertz generation. We have also elucidated that the united understanding of the spin current generation mediated by magnon excitation via non-linear spin conversion at the interface is possible. Furthermore, we have verified the conversion of quantum states from single photons to single electron spins and have shown the feasibility of the conversion of entanglement from photon pair to electron spins.

研究分野：半導体低次元物性

キーワード：光学的スピン変換 円偏光 界面スピン変換 スピンエレクトロニクス 量子状態変換

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

本研究領域「スピン変換」では、非線形効果も含めた多彩な界面スピン変換機能を発現させるための基礎物性を、磁氣的スピン変換、電氣的スピン変換、光学的スピン変換、熱・力学的スピン変換の四つの視点から解明すると共に、理論の立場からスピン変換機能設計を行う。こうした実験・理論の連携研究からスピン変換の物理を統一的に示す学理を構築し、機能設計を目指す。光と磁気のかかわりでは、円偏光は角運動量の流れとみなすことができ、磁化へ角運動量を受け渡すことで磁化方向を制御できる可能性が指摘されつつある。その顕著な現象として、研究協力者のRasingらは、2005年に円偏光によって磁化方向が制御できる逆ファラデー効果を報告し、関連分野の研究者の大きなインパクトを与えた[Kimel et al., Nature (2005)]。その後、非熱的スピン波励起など、非熱過程による光制御の新現象が分担者らにより次々と発見されている。特に励起直後の短時間の非平衡状態では角運動量の受け渡しによる劇的な磁化変化が起きており、従来の磁化反転を凌駕する超高速磁化反転を実現する可能性が指摘されているが、その起源も含め、その研究はいまだ未踏の領域である。

一方、光と磁化の最小単位として、単一光子と単一スピンの間の変換では量子性が顕著に現れる。光子ではベル不等式の破れなど量子力学の基本原理が実証され、量子情報通信への応用が進んでいる。一方、単一スピンはパウリ則の観測や、電子スピン回転操作・検出が実現され量子ビットとして研究されている。この光子と電子スピンの単一量子間の光学的スピン変換の究極の素過程であるが、実験が難しくこれまでほとんど研究がなかった。しかし代表者の大岩は量子ドットを使った単一光子スピンの検出に成功し、その研究が可能になりつつある。

### 2. 研究の目的

1. の状況をのりもと、本研究では、光の角運動量(円偏光)を受け渡す、あるいは光から角運動量を生成することでスピン(磁化)の方向を制御する非線形光スピン変換の解明に取り組み、スピン変換の統一的な理解とその学理の構築を目指す。研究課題の1つは、光の偏光による磁化方向の高速制御の実現である。このために逆ファラデー効果などについてサブピコ秒領域の超高速非平衡磁化ダイナミクス測定を駆使し、超高速非線形光スピン変換の機構を解明し、超高速磁化反転やコヒーレントマグノン生成の解明と制御への道筋を、理論との連携により示してゆく。関連してマイクロ波領域の電磁場によるマグノン伝導電子スピン流変換やスピン軌道相互作用によるスピン電荷変換を新たに開拓する。もう1つは光スピン変換の量子力学的効果の創成である。単一光子から単一スピンへのコヒーレント光スピン変換の実証とコヒーレント光スピン変換とスピン流との相関の解明を目指す。

### 3. 研究の方法

光学的スピン変換では、光の角運動量から磁性体の集団スピン系への変換の解明と、偏光制御による超高速磁化反転の確立と単一量子レベルのコヒーレントな変換の研究から、光とスピンの変換の学理構築と新機能の創出を目指し、具体的には、(1) 偏光依存/非依存超高速磁化反転における角運動量変換過程と微視的機構の解明、(2) 光誘起マグノンの励起機構と制御、(3) 界面スピン変換、(4) コヒーレント光スピン変換の4つの課題に多角的に遂行してきた。

平成26年度から平成27年度までに、本領域独自のシステムとしてパルス幅制御と磁性元素識別(波長選択)が可能なスピンドイナミクス測定系を構築し、超短時間偏光依存磁化反転現象の実験を開始した。特に超短パルスと元素識別を駆使して、超短時間で起こる非断熱・非平衡過程や異種磁性元素間での角運動量転写の物理を解明し、偏光依存非線形光スピン変換の学理の構築を目指した。もう一つの研究方針として界面制御の観点を導入して、高品質磁性薄膜多層構造やその微小構造にも平成26年から着手し、界面がもたらす磁気構造・磁気異方性やスピン軌道相互作用の効果と非線形光スピン変換現象の相関を重点的に研究し、コヒーレントマグノン励起や偏光依存磁化反転の制御性を研究してきた。並行してマイクロ波による動的スピン流生成を利用して、マグノン-伝導電子スピン流変換など界面スピンキャリア変換の包括的理解と新物性創成へと展開を行ってきた。こうした多角的な実験結果をA05班の理論グループと共同して超高速非線形光スピン変換や偏光依存磁化反転の学理の構築を目指した。

単一量子間の光スピン変換では、平成26年度は変換に最適な量子ドット構造の設計と作製を行い、平成27~28年度中に円偏光単一光子から単一電子スピンへの角運動量変換とさらに位相情報も移す量子状態転写の実現を目指す。この実験が本格化する平成28年度に無冷媒希釈冷凍機を導入することで安定かつ正確な単一量子間光スピン変換の達成を行った。平成29年度以降はもつれ光子対を導入して、単一量子光スピン変換を介して非局所量子もつれ生成という固体量子力学的効果の検証も試みた。

研究期間中、公募研究として、東京大学 松尾グループ、九州大学 佐藤グループ、東北大学 小野瀬グループが参加し、A03班の各グループと連携して、研究を推進した。

### 4. 研究成果

(1) 偏光依存/非依存超高速磁化反転における角運動量変換過程と微視的機構の解明  
軌道角運動量が消失していない反強磁性体 CoO において、スピン・軌道相互作用によって数テラヘルツに達する反強磁性共鳴周波数と、大きな振幅を実証し[8]、ピスマス添加希土類鉄ガーネット単結晶の表面上の周期的電極による表面プラズモンの表面増強効果により巨大な逆

ファラデー効果を観測し、逆磁気光学効果の広範性を実証した[4]。フェリ磁性体の全光型磁化反転では、国際共同研究機関との連携を活用し、時間分解 X 線円二色性計測など、サブピコ秒領域での強い非平衡加熱状態のエネルギー散逸やスピンおよび軌道角運動量の格子系への移行など磁化反転をもたらす超高速過程でのエネルギーと角運動量のダイナミクスの微視的機構の描像を構築した[3]。その他、径偏光超短パルスビーム光を用いた収束光内の空間的光角運動量分布制御により、偏光依存全光型磁化反転領域の局所化が可能である事を実証した[5]。

## (2) 光誘起マグノンの励起機構と制御

世界最高レベルの時間分解顕微磁気光学システムを構築して、時間・空間的にフーリエ変換することで、光誘起スピン波ダイナミクスからスピン波(静磁波)の分散関係を測定する画期的な方法を創出した(A04 齊藤グループとの共同研究)(図1)[7,10]。またアモルファスフェリ磁性金属の角運動量補償点近傍におけるコヒーレントマグノンを計測し、角運動量補償点近傍においてフェリ磁性体が反強磁性体のように振舞うことを示唆する右および左回りのヘリシティに対応する反強磁性マグノンモードの観測に成功した(A01 小野グループとの共同研究)〔論文投稿中〕。加えて高磁場を印加できかつ反射型で計測できる光パルス誘起テラヘルツ波放射計測装置を構築した。これを用いて、重元素/磁性金属/酸化物ヘテロ接合におけるテラヘルツ波放射を計測し、テラヘルツ波の放射強度が磁性金属の構造や磁性に大きく依存することを明らかにした。この結果から、光照射に伴うパルススピン流と磁性体の電子状態の関係に関する知見が得られた[9]。

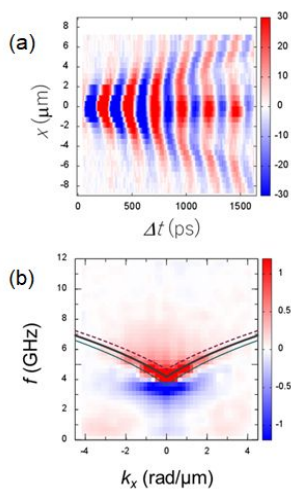


図1：金属磁性体で観測された光誘起マグノンの伝搬(a)とその分散関係(b)

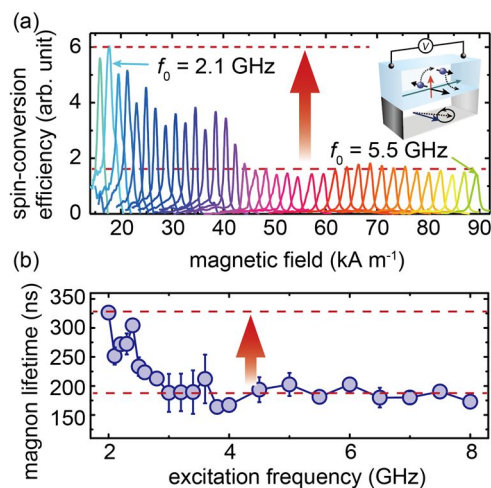


図2：(a)マグノン散乱によるスピン流変換効率の増大。(b)スピン流変換効率増大の起源となる、スピン系の寿命の変化。

## (3) 界面スピン変換

金属/絶縁体界面におけるマイクロ波誘起マグノンと伝導電子スピン流の角運動量変換を調べ、マグノン散乱によるスピンドamping変調効果により、非線形スピン流増大現象が広く一般に発現し、その非線形スピン変換によりマグノン励起を介したスピン流生成が統一的に理解できることを示した(図2)[12]。さらにマグノン・フォノン結合モードによるスピン流生成を観測した[6]。これらの成果は、マグノン分裂・散乱で記述されるスピン系の非線形性、さらにフォノンまで含めたスピン変換によって現れるスピントロニクス現象の基礎物性の理解に繋がるものである。

## (4) コヒーレント光スピン変換

当初目標にした、単一光子偏光から量子ドット中の単一電子スピンへの角運動量とその重ね合わせ状態の変換を達成した(公募研究松尾グループとの共同研究)[1,2]。これは光スピン変換の素過程では、光子から電子スピンへ位相情報を保持した角運動量の変換が可能であるというスピン変換の基本原則を示す結果である(図3)。さらに量子もつれという光子の量子力学的相関を導入し、1つのもつれ光子対から単一光子と量子ドット中の単一電子の対の生成に成功し、光子対から電子スピン対へもつれ相関を変換することも可能であることを示した(公募研究松尾グループとの共同研究)[11]。これは量子情報技術における長距離量子暗号通信の基盤技術を提供するだけでなく、固体中の非局所もつれの生成という新たな物性研究を開拓する重要な成果である。

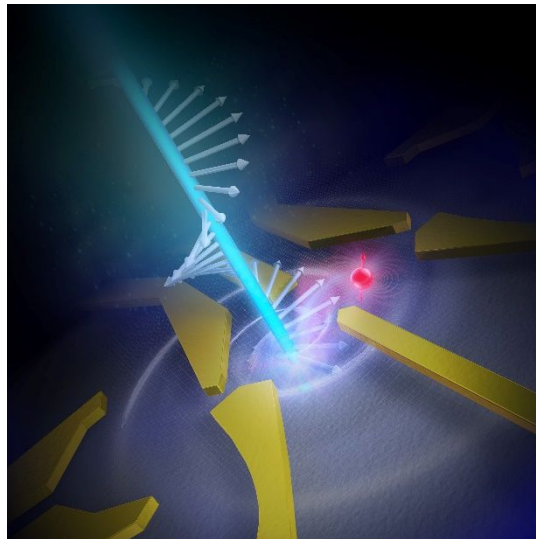


図3：円偏光単一光子から半導体量子ドット中の単一電子スピンへ角運動量が変換される概念図。

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計81件)

T. Fujita, K. Morimoto, H. Kiyama, G. Allison, M. Larsson, A. Ludwig, S. R. Valentin, A. D. Wieck, A. Oiwa and S. Tarucha, Angular momentum transfer from a single-photon polarization to an electron spin in a gate defined quantum dot, Nature communications (accepted)

K. Kuroyama, M. Larsson, J. Muramoto, K. Heya, T. Fujita, G. Allison, S. R. Valentin, A. Ludwig, A. D. Wieck, S. Matsuo, A. Oiwa, S. Tarucha, Photogeneration of a single electron from a single Zeeman-resolved light-hole exciton with preserved angular momentum, Phys. Rev. B, 査読有, **99**, 2019, 85203-1-5. DOI: 10.1103/PhysRevB.99.085203

M. Hennecke, I. Radu, R. Abrudan, T. Kachel, K. Holldack, R. Mitzner, A. Tsukamoto, and S. Eisebitt, Angular Momentum Flow during Ultrafast Demagnetization of a Ferrimagnet, Physical Review Letters, 査読有, **122**, 2019, 157202-1-5. DOI: 10.1103/PhysRevLett.122.157202

A. L. Chekhov, T. Satoh, et al., Surface plasmon-mediated nanoscale localization of laser-driven sub-THz spin dynamics in magnetic dielectrics, Nano Letters, 査読有, **18**, 2018, 2970-2975. DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b00416

S. Wang, C. Wei, Y. Feng, Y. Cao, H. Wang, W. Cheng, C. Xie, A. Tsukamoto, A. Kirilyuk, T. Rasing, A. V. Kimel, and X. Li, All-optical helicity-dependent magnetic switching by first-order azimuthally polarized vortex beams, Appl. Phys. Lett., 査読有, **113**, 2018, 171108-1-5. DOI: 10.1063/1.5051576

H. Hayashi and K. Ando, Spin Pumping Driven by Magnon Polarons, Physical Review Letters, 査読有, **121**, 2018, 237202-1-6. DOI: 10.1103/PhysRevLett.121.237202

Y. Hashimoto, T. Satoh, E. Saitoh, et al., All-optical observation and reconstruction of spin wave dispersion, Nature Communications, 査読有, **8**, 2017, 15859-1-6. DOI: 10.1038/ncomms15859

T. Satoh, et al., Excitation of coupled spin-orbit dynamics in cobalt oxide by femtosecond laser pulses, Nature Communications, 査読有, **8**, 2017, 638-1-6. DOI: 10.1038/s41467-017-00616-2

Y. Sasaki, K.Z. Suzuki, and S. Mizukami, Annealing effect on laser pulse-induced THz wave emission in Ta/CoFeB/MgO films, Appl. Phys. Lett. 査読有, **111**, 2017, 102401. DOI: 10.1063/1.5001696

A. Kamimaki, S. Iihama, Y. Sasaki, Y. Ando, and S. Mizukami, Reciprocal excitation of propagating spin waves by a laser pulse and their reciprocal mapping in magnetic metal films, Phys. Rev. B, 査読有, **96**, 2017, 014438-1-11. DOI: 10.1103/PhysRevB.96.014438

K. Kuroyama, M. Larsson, S. Matsuo, T. Fujita, S. R. Valentin, A. Ludwig, A. D. Wieck, A. Oiwa, and S. Tarucha, Single electron-photon pair creation from a single polarization-entangled photon pair, Scientific Reports, 査読有, **7**, 2017, 2045-1-8. DOI: 10.1038/s41598-017-16899-w

H. Sakimura, T. Tashiro, and K. Ando, Nonlinear spin-current enhancement enabled by spin-damping

tuning, Nature Communications, 査読有, 5, 2014, 5730-1-7.

DOI: 10.1038/ncomms6730

〔学会発表〕(計 373 件)

A. Tsukamoto, Ultrafast magnetization switching and Ultrafast spin dependent phenomena, The 5th International Conference of Asian Union of Magnetics Societies, 2018, Jeju, Korea

K. Ando, Spin-orbitronics in metal-based systems, SPIE, 2018, San Diego, USA.

T. Satoh, Enhancement of photoinduced sub-THz spin precession via the spin-plasmon coupling, 第 79 回応用物理学会秋季学術講演会 JSAP-OSA Joint Symposia, 2018, Nagoya, Japan.

S. Mizukami, Ultrathin manganese alloys with perpendicular magnetic anisotropy for spintronic devices, The 5th International Conference of Asian Union of Magnetics Societies (ICAUMS2018), 2018, South Korea.

A. Oiwa, Photon-spin conversion using gate-defined GaAs quantum dots, QD2018, 2018, Toronto, Canada.

T. Satoh, Time-resolved imaging of photo-induced spin wave tunneling through an air, Magnonics 2017, 2017, Oxford, UK.

S. Mizukami, Manganese-based Spintronics, International Conference of Frontiers in Materials Science (FMS2017), 2017, Greifswald, Germany.

A. Oiwa et al., Conversion from single photons to single electron spins in gate-defined quantum dots, ICPS2016, 2016, Beijing, China.

A. Tsukamoto, Ultrafast photo manipulation of magnetization and non-local spin dynamics, The 40th Annual Conference on Magnetism in Japan Symposium "Advance and development of photo magnonics", 2016, Kanazawa, Japan.

S. Mizukami, A. Sugihara, Q. Ma, S. Iihama, K. Z. Suzuki, R. Ranjbar, S. Pham, T. Miyazaki, Tetragonal Mn-based Heusler compounds and their spintronics application, 13th Joint MMM-Intermag Conference, 2016, San Diego, USA.

K. Ando, Spin-current emission governed by nonlinear spin dynamics, SPINTECH 8, 2015, Basel, Switzerland.

A. Oiwa, T. Fujita and S. Tarucha, Photon-electron spin coupling using gate-defined GaAs double quantum dots, SPINTECH 8, 2015, Basel, Switzerland.

他

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

大阪大学産業科学研究所大岩研究室

<https://www.sanken.osaka-u.ac.jp/labs/qse/>

東北大学材料科学高等研究所水上研究室

[https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/mizukami\\_lab/](https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/mizukami_lab/)

日本大学理工学部塚本研究室

<http://atlab.ecs.cst.nihon-u.ac.jp>

慶應義塾大学理工学部安藤研究室

<https://www.ando.appi.keio.ac.jp/styled-3/page/>

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：水上 成美

ローマ字氏名：MIZUKAMI Shigemi

所属研究機関名：東北大学

部局名：材料科学高等研究所

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：00339269

研究分担者氏名：塚本 新

ローマ字氏名：TSUKAMOTO Arata

所属研究機関名：日本大学

部局名：理工学部

職名：教授

研究者番号(8桁)：30318365

研究分担者氏名：安藤 和也

ローマ字氏名：ANDO Kazuya

所属研究機関名：慶應義塾大学

部局名：理工学部

職名：准教授

研究者番号(8桁)：30579610

研究分担者氏名：大野 裕三

ローマ字氏名：OHNO Yuzo

所属研究機関名：筑波大学

部局名：数理物質系

職名：教授

研究者番号(8桁)：00282012  
(平成26年度から平成27年度まで研究分担者)

研究分担者氏名：佐藤 琢哉

ローマ字氏名：SATOH Takuya

所属研究機関名：九州大学

部局名：理学研究院

職名：准教授

研究者番号(8桁)：40451885  
(平成28年度から研究分担者)

## (2)研究協力者

研究協力者氏名：長谷川 繁彦

ローマ字氏名：HASEGAWA Shigehiko

研究協力者氏名：木山 治樹

ローマ字氏名：KIYAMA Haruki

研究協力者氏名：藤田 高史

ローマ字氏名：FUJITA Takafumi

研究協力者氏名：飯浜 賢志

ローマ字氏名：IIHAMA Satoshi

研究協力者氏名：笠谷 雄一

ローマ字氏名：KASATANI Yuichi

研究協力者氏名：吉川 大貴

ローマ字氏名：YOSHIKAWA Hiroki

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。