

令和 4 年 6 月 12 日現在

機関番号：32503

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04496

研究課題名(和文) ホットスポットと量子効果の増強を起源とする新原理磁気物質：センサ材料の新開発

研究課題名(英文) Novel magnetic materials generated by a combination of hot spots and enhanced-quantum effects :Development of functional materials for the application of sensors

研究代表者

安川 雪子 (Yasukawa, Yukiko)

千葉工業大学・工学部・准教授

研究者番号：10458995

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)： 磁性薄膜と貴金属ナノ粒子で構成される「磁気プラズモニック物質」について研究した。貴金属ナノ粒子が励起する局在表面プラズモン共鳴(LSPR)で増強電場を発生させ、磁気プラズモニック物質の磁気光学効果(MOKE)の増大を目指した。高効率にLSPRを励起する貴金属ナノ粒子を含む磁気プラズモニック物質のMOKEを測定したところ、単層磁性膜と比較して約17倍のMOKEの増大が見られ、またLSPRの増強電場とMOKEとの相関を実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来研究では主に理論研究から、表面プラズモン共鳴やLSPRの増強電場によるMOKEの増大について報告されてきた。それに対し実験的アプローチによりLSPRとMOKEの増大とその相関を検証したのが本研究である。複数の分光測定から貴金属ナノ粒子によるLSPRの励起を確認し、LSPRによる増強電場の定量的評価も試みた。磁気プラズモニック物質のMOKEが特に増大する光の波長において、顕著に電場が増強することを明らかにした。LSPRの励起、増強電場の定量、MOKEの増大を包括的に実験から実証したのが本研究の学術的意義である。このような物質は将来的に高感度センサや導波路等への応用を期待できる。

研究成果の概要(英文)： We studied "magneto-plasmonic materials" consisting of a magnetic thin film and self-organized noble-metal nanoparticles. We studied to enhance the magneto-optical Kerr effect, i.e., MOKE, of the materials by the use of an assistance of an enhanced-electric field generated by localized-surface plasmon resonance (LSPR) due to noble-metal nanoparticles.

We measured the MOKE of the magneto-plasmonic materials including noble-metal nanoparticles with highly LSPR efficiency. The MOKE was increased approximately 17 times compared to that of single-layered magnetic thin film. Moreover, we experimentally demonstrated a strong correlation between the enhanced-electric field of LSPR and the MOKE.

研究分野：磁性材料

キーワード：電気電子材料 磁性薄膜 プラズモン効果 貴金属ナノ粒子

## 1. 研究開始当初の背景

爆発的に増加するデジタルデータと急速な IoT 社会への変貌から、世界は超デジタル IoT 社会に突入した。超デジタル IoT 社会ではインフラ・工業・生産管理・気象情報・災害予測/計測・農業・医療等、あらゆる人類の社会的活動がセンサに支えられている。その結果、センサ市場およびセンサの経済的価値は巨大成長を現在も遂げている。その一方で、センサ産業の中核をなす既存センサ類にはない新しい原理に基づく超高感度・高 S/N 比・高速センシングを実現するセンサの開発は、センサの実用を広く拡張することにつながり超デジタル IoT 社会に重要な課題である。

希土類と遷移金属から構成される磁性合金薄膜は、優れた磁気光学効果 (MOKE) を示すため光磁気ディスクの記録媒体材料としてかつて産業的に広く実用された。これに着想を得て、本研究では希土類-遷移金属磁性合金薄膜と貴金属ナノ粒子を組み合わせた「磁気プラズモニック物質」の MOKE を活用し、従来では実現されたことのない新しい原理の超高感度・高 S/N 比・高速センシングを実現するセンサ材料の研究に取り組んだ。

提案する磁気プラズモニック物質は、MOKE の磁気旋光角 ( $\theta_k$ ) の絶対値が感度等の主たる支配要因となる。従って磁気プラズモニック物質の MOKE の増強が結果として  $\theta_k$  の増大につながると考えた。MOKE の増強を狙った従来研究は光干渉効果や磁性フォトニック結晶に関する研究が主流である。これに対し本研究は、磁気プラズモニック物質を構成する貴金属ナノ粒子が励起する局在表面プラズモン共鳴 (LSPR) によって生じる増強電場 (ホットスポット) を MOKE にカップリングさせ、MOKE の増強ならびに  $\theta_k$  の増大を目指した。

## 2. 研究の目的

本研究では磁気プラズモニック物質を研究対象とし、新しい原理による高機能センサ材料の基盤研究として、以下の 3 点を目的とした。(1) 希土類-遷移金属磁性合金薄膜の種類、磁気プラズモニック物質を構成する各層の構造と薄膜の膜厚、貴金属ナノ粒子の粒径と粒子間距離を主要パラメータとし、これらのパラメータを変化させた際の磁気プラズモニック物質の MOKE をシミュレーションする。これを指針として巨大な MOKE を実現する磁気プラズモニック物質を設計する。(2) LSPR により励起されるホットスポットをイメージング (可視化) し、ホットスポットの励起検証と、その強度を定量評価する。(3) 磁気プラズモニック物質のセンサ感度を評価する。

以上より、従来では実現されたことのない革新的原理に基づく磁気プラズモニック物質を用いて、磁性合金薄膜と比較し  $\theta_k$  を数十倍超に増大することを目的とした。

## 3. 研究の方法

### (1) 磁気プラズモニック物質の設計 (構造最適化)

効率的に LSPR およびホットスポットを励起し、かつ磁性合金薄膜にホットスポットを強固に作用させる磁気プラズモニック物質の構造設計を行う。磁性合金薄膜の種類、磁気プラズモニック物質を構成する各層の構造や膜厚、貴金属ナノ粒子の粒径と粒子間距離を主要パラメータとし、これらのパラメータを変化させた際に予測される MOKE をシミュレーションする。シミュレーション結果から MOKE の最大化を実現する物質の構造を決定する。

### (2) ホットスポットの励起状態と強度

海外研究協力者が現有する Scanning Near-field Optical Microscopy (SNOM) は、ホットスポットを可視化し、イメージング画像を得ることができる。そこで貴金属ナノ粒子近傍に生じるホットスポットを SNOM でイメージングし、ホットスポットの励起状態や空間分布状態を解明する。得られた結果から、計算によりホットスポットの電場強度を定量評価する。

また我々の独自開発技術を利用し、貴金属ナノ粒子の粒径と粒子間距離を厳密に調整・制御してホットスポットの強度を系統的に変調する。各試料の電場強度は SNOM の実験結果から定義する。これにより MOKE とホットスポット強度の相関を解明する。

### (3) センサ性能評価

磁気プラズモニック物質に数 nm の極薄酸化膜等を堆積し、MOKE を測定する。極薄膜の有無による  $\theta_k$  の差異を検出可能かどうか試験し、センサ性能を評価する。

## 4. 研究成果

我々の独自開発技術を駆使し、様々な粒径と粒子間距離を有する貴金属ナノ粒子を作製し、各粒子の LSPR 励起状態を測定した。その結果、LSPR の励起には粒径と粒子間距離の比率が重要であり、条件によっては LSPR が励起しないことや、逆に高効率に LSPR を励起する条件があることを見出した。これを基に最も高効率に LSPR を励起する貴金属ナノ粒子径と粒子間距離の条件を決定し、磁気プラズモニック物質を作製した。

次いで入射光波長を掃引して磁気プラズモニック物質の MOKE を測定したところ、貴金属ナノ粒子の LSPR 励起波長において磁気プラズモニック物質の MOKE が最大となった。単層の磁性合金薄膜の MOKE と比較して数十倍の MOKE の増大となった。従って MOKE と LSPR の相関が実証された。本研究ではホットスポット電場強度と MOKE の相関について明確には解明できなかったが、本結果より MOKE とホットスポット電場強度にも相関が示唆される。センサ性能評価については、最適な実験系を確立中である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yukiko Yasukawa and Chitose Takahashi	4. 巻 88
2. 論文標題 Creation of Materials Based on Novel Principles Utilizing an Interaction between Magnetism and Electromagnetic Waves	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Electrochemistry	6. 最初と最後の頁 515-521
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yukiko Yasukawa, Kouhei Nozawa, Taneli Tiittanen, Maarit Karppinen, Johan Linden, Sagar E Shirsath, and Shin Yabukami	4. 巻 -
2. 論文標題 Dynamical-magnetic behavior of anisotropic spinel-structured ferrite for GHz technologies	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-020-79768-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 3件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Yukiko Yasukawa
2. 発表標題 Enhancement of magneto-optical properties through localized-surface plasmon resonance of Au nanoparticles
3. 学会等名 Asia Pacific Society for Materials Research 2019 Annual Meeting（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yukiko Yasukawa
2. 発表標題 Nano-Design of the Magneto-Optical Materials
3. 学会等名 NanoWorld Conference-2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Haruki Yamane, Yukiko Yasukawa, and Masanobu Kobayashi
2. 発表標題 2-Dimensional Nano-Arrays on Antiferromagnetically Coupled CoPt Stacked Films for Magneto-Photonic Crystals
3. 学会等名 32nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kanta Itsubo, Haruki Yamane, and Yukiko Yasukawa
2. 発表標題 Novel magneto-plasmonic materials interplayed by magneto-optical effects and nanostructured Au
3. 学会等名 The 7th International Symposium on Organic and Inorganic Electronic Materials and Related Nanotechnologies (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yukiko Yasukawa, Ryosuke Hara, Haruki Yamane, and Masanobu Kobayashi
2. 発表標題 Manipulation of physical properties by interplay of nanostructuring and plasmons
3. 学会等名 2019 Spring Meeting of European Materials Research Society (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 朝原昌毅、山根治起、安川雪子
2. 発表標題 磁気光学カー効果と局在表面プラズモン共鳴の相互作用による新規機能性材料の開発
3. 学会等名 第31回日本MRS年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 伊藤 雅晃, 金子 佳史, 山根 治起, 安川 雪子
2. 発表標題 表面プラズモンFeSi/Au系における磁気光学応答の飛躍的な向上 -高性能バイオ化学センサへの応用
3. 学会等名 第31回日本MRS年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 安川 雪子
2. 発表標題 機能デザインに基づいた新しい磁性材料の創製
3. 学会等名 長野県テクノ財団 令和3年度第2回 磁気エレクトロニクス研究会（招待講演）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	小林 政信  (Kobayashi Masanobu)  (70296325)	千葉工業大学・工学部・教授   (32503)	
研究 分担者	山根 治起  (Yamane Haruki)  (80370237)	秋田県産業技術センター・電子光応用開発部・上席研究員   (81406)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
その他の国・地域	国立臺灣大学			