

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 23 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(S)

研究期間：2010～2014

課題番号：22226002

研究課題名(和文) 光および弾性波励起による磁化の超高速制御とその応用

研究課題名(英文) Ultrafast manipulation of magnetization with optical or lattice-wave excitations and its applications

研究代表者

宗片 比呂夫 (Munekata, Hiro)

東京工業大学・像情報工学研究所・教授

研究者番号：60270922

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 164,200,000円

研究成果の概要(和文)：磁気パルスによる磁化反転時間限界2ピコ秒打破を目指し、フェムト秒光パルスによる磁化操作の研究を行った。強磁性半導体の磁化の光励起才差運動がMnの光イオン化による磁気異方性変化によること見出し、サブピコ秒間隔光パルス対による才差運動の非線形振幅制御を達成した。弱い光パルスで磁化才差運動が生ずるCo-Pd積層薄膜を発見し、スピン光デバイスの候補材料を得た。磁性薄膜と光ファイバを複合化した導波路デバイスを試作し、導波光偏波変調が薄膜の磁化変調位置と導波モードによって選択可能であることを見出し、スピン光デバイスの基礎を拓いた。スピン発光ダイオードを試作し、室温で円偏光切替え100 kHzを達成した。

研究成果の概要(英文)：Manipulation of magnetization with femtosecond laser pulses has been studied in order to find ways to break the two-picosecond (ps) limit shown by magnetic pulses. The photo-excited precession of magnetization (PEPM) in ferromagnetic semiconductors is found to be attributed to the change in magnetic anisotropy due to photo-ionization of Mn ions, with which non-linear control of the precession amplitude has also been demonstrated by a pair of sub-ps-separated laser pulses. Furthermore, PEPM with MW/cm² pulse power has been found possible in the Co-Pd multilayers, which indicates the discovery of candidate materials for spin-photonic devices. The spatial de-multiplexing of polarization modulated signals has been demonstrated using the optical fibers attached with magnetic thin films, through which fundamentals of spin-photonic devices are experimented. Helicity switching of circular polarized light at 100 kHz has been demonstrated at room temperature by dual-injection spin-LED.

研究分野：スピントロニクス

キーワード：光励起 磁化才差運動 超高速現象 コヒーレント制御 強磁性半導体 界面強磁性積層膜 導波路
スピンフォトニクス

1. 研究開始当初の背景

固体物理と応用物理の最前線で活発に研究されているスピントロニクス半導体に関する原点は、産業上重要な半導体にスピン自由度を組み込むことが可能であることを示した宗片らの III-V 族強磁性半導体の創製にあると広く認識されていた。この分野は、半導体や磁性体という精密制御可能な量子場における量子論的物性の探究と半導体技術を越える技術基盤の創造を目的に展開されてきた。特に最近重要視されているのがスピン軌道相互作用の探究とその応用であった。というのも、これが電子軌道の励起を経由したスピン操作方法の追求であり、外部磁場によらない磁化操作という点で、大きな工学的ブレークスルーが期待されるからであった。光励起によるスピン・磁化操作は、本報告書著者や欧州の大学研究者の間で進められていて、100 フェムト秒 (fs) 超短光パルス励起に伴う速い熱的過程[1,2] (TH 過程; スピン加熱) と非熱的過程[3-5] (NTH 過程; スピン軌道相互作用) の2つが、磁場パルスを用いた磁化反転時間の限界 2 ピコ (ps) [6]を打ち破るものとして注目されていた。TH、NTH 過程ともにその発現機構は未確立で、研究を積み重ねて整理していく必要があった。

- [1] B. Koopmans in “Spin Dynamics in Confined Magnetic Structures II” (ed. B. Hillebrands and K. Ounadjela, Springer-Verlag, 2003), Topics Appl. Phys. **87**, 253-316 (2003).
- [2] C.D. Stauniciu, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **99**, 047601 (2007); K. Vahaplar, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 117201 (2009).
- [3] A. Oiwa, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **88**, 137202 (2002); Y. Mistumori, *et al.*, Phys. Rev. B **69**, 033203 (2004).
- [4] Y. Hashimoto, *et al.*, Phys. Rev. Lett. **100**, 067202 (2008); Y. Hashimoto and H. Munekata, Appl. Phys. Lett. **93**, 202506 (2008).
- [5] I. Tudosa, *et al.*, Nature **428**, 831 (2004).

2. 研究の目的

本研究は、fs レーザ光パルスによる磁化操作における熱的ならびに非熱的過程の発現機構を整理し確立していくため、(1) 強磁性半導体の磁化における光励起才差運動の発現機構の解明と展開、(2) 磁化のコヒーレント制御とテラ・ペタヘルツ領域への展開、(3) スピン光デバイスの試作と評価、を目的とした。

3. 研究方法

前述の研究目的を遂行するには、(a) 磁性体試料の作製、(b) 光励起による磁化ダイナミクス計測、(c) 光デバイス作製とその評価、

という、三分野にまたがる専門知識と研究経験とが求められることが当初から予想されていた。そこで、それぞれの専門分野出身の博士研究員を配置して協働いただきながら本課題を追究した。具体的概要を以下に記す。

(a) 分子線エピタキシー成長法により化合物半導体 InAs ならびに GaAs に磁性元素 Mn を濃度 10%程度まで均一に添加した強磁性半導体単結晶薄膜を熱的・非熱的励起過程研究用モデル試料とした。マグネトロンスパッタ堆積法により室温で光励起効果が発現する強磁性薄膜 (以下光磁石薄膜) の作製研究を遂行した。結果、高電圧スパッタモードで作製した Co-Pd 極薄多層積層試料が光励起に対して敏感に応答することを見出した。

(b) チタンサファイアレーザを fs 光パルス光源とする超高速分光システムを光学台上に構築して光励起による磁化ダイナミクス計測の中核として実験を遂行した。具体的には、パルス幅 150 fs で、同一中心波長で励起・計測パルス光を構成する時間分解磁気光学シグナル測定法を構築した。磁気光学シグナルは磁化ベクトルの角度変化に比例した信号である。散乱光排除と精密な光軸あわせに関して不断の技術向上に取り組んだ結果、単色励起・検出システムとしての極めて高い時間分解能 26 fs を得て、信頼性および再現性の非常に良好な実験データを得るに至った。

(c) 精密研磨による光ファイバコア露出、加工面への磁性体薄膜スパッタ堆積、SiO₂ 透明誘電体薄膜スパッタ堆積、電子ビーム描画平面導波路形成、磁性体イオンリングなどを組み合わせて複合デバイス形成に取り組んだ。結果的に、デバイス作製研究が学内外との草の根共同研究ネットワーク形成構築に結びついた。

4. 研究成果

(1) 強磁性半導体の磁化における光励起才差運動の発現機構の解明と展開

① 強磁性半導体

強磁性半導体(Ga,Mn)As における磁化の光励起磁才差運動 (photo-excited precession of magnetization, PEPM、図 1) の発見 (2005 年) と非熱的過程の提唱 (2008 年) は本成果報告者らによって行われていた。その後、欧米のいくつかの研究グループで発現機構について再検討がなされてきたが、熱的、非熱的過程のどちらが支配的であるか決定的な知見が得られていなかった。本研究では、この間

題を明らかにすべく、1ps 以下の超短時間領域における磁化の動的過程に焦点を当てた実験を実施した。その結果、熱的過程に分類される超高速消磁を経ることなく磁化才差運動が発現していることを明瞭に示す実験データを得た (図2)。

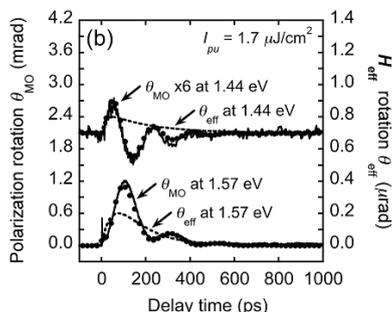


図1 ナノ秒領域に達するPEPM実験データ、励起光子エネルギー1.44 (上)と1.57 eV (下)。破線はモデル計算で得られた磁気異方性変化曲線。

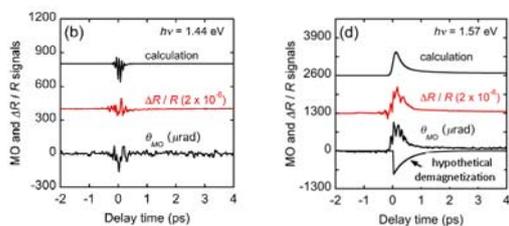


図2 ピコ秒領域におけるPEPM (黒)と過渡反射光 (赤) 実験データ。励起光子エネルギー1.44eV (左)の場合は干渉的過渡光応答が、1.57 eV (右)の場合は非干渉的過渡光応答が支配的で消磁による応答でないことがわかる。

試料組成の異なる複数試料を系統的に調べた結果、強磁性を担うMnイオンが光パルスによって軌道角運動量を生じ、それが磁化にトルクを与えるという、光イオン化に基づく非熱的機構を提唱した (図3)。自由キャリアが存在する物質において非熱的過程によ

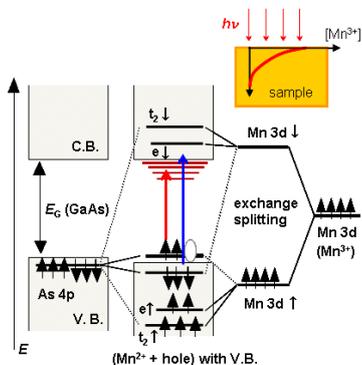


図3 GaAsおよびMnの電子状態と光励起過程によるMn光イオン化モデルの模式図

り磁化制御を示した最初の実験例であると

ともに、キャリア誘起強磁性モデルの再検討につながる実験結果である。加えて、本実験データは、もう一つの仮説であった光誘起歪起源のトルク発生機構を考慮対象から除いてよいことを示すものとなったため、弾性波励起に関する研究を閉じることにした。

オランダ・Radboud大学のRasing研究室に狭ギャップ強磁性半導体(In,Mn)As試料を提供してレーザー光パルス励起効果を協働して調べた結果、(Ga,Mn)Asに類似のPEPMを発現することを明らかにした。

② 光励起効果の室温への展開：光磁石

磁性金属を強いfsレーザー光パルスで励起(10GW/cm²以上)するとスピノ過熱による超高速消磁を経由して磁化にトルクがかかって才差運動が起こることが知られていたが、それよりも低励起で磁化操作を報告した研究例は極めて少なかった。とりわけ、スピン光デバイスを試作して応用への展開を計画する上で弱励起領域に切り込むことは重要であるとの認識が我々にあった。そこで着目したのがスピン状態の異なる2種類の物質の接合界面であった。界面では、母体での電荷分布とスピン秩序がそのまま保たれないため、電荷分布とスピン秩序は微妙なバランスを保っている。光パルス励起によって、界面で電荷のわずかな偏りが発生すれば、それに起因してスピン秩序が変化すると考え、界面誘起垂直磁化系として知られるCoとPdの積層薄膜試料の作製と光励起実験に取り組んだ。

試料作製から光励起実験までを一貫して進めた結果、弱励起領域(1MW/cm²以下)で光励起磁化才差運動が起こることを世界に先駆けて見出した (図4, 5)。

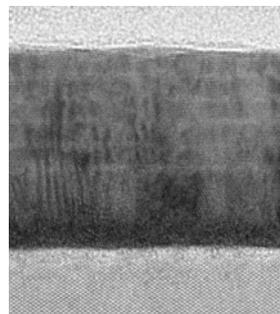


図4 単結晶Si(110)基板上に形成した[Pd/Co]₅多層積層薄膜試料の透過断面電子写真

開始当初は単結晶Si(110)基板上にTa/Pdシード層を堆積し、その上に[Pd/Co]₅多層積層

薄膜を高電圧 DC マグネトロンスパッタリング法によって作製した試料を用いて実験を進めた。3 年目以降は、使用基板を単結晶 GaAs(001)基板、超平坦ガラス基板に広げて研究を進めた。GaAs(001)基板上においては期待どおり光励起磁化才差運動 (PEPM) 現象を再現できたが、ガラス基板上では PEPM を発現する試料を得ることが期待に反して困難であることもわかった。原因は未解明である。

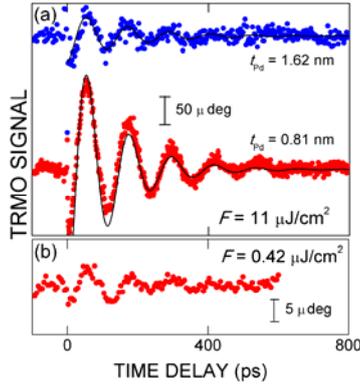


図 5 Pd 層厚の異なる 2 つの [Co/Pd]₅/Pd/Ta/Si (110) 試料で得られた PEPM 実験データ。Pd 層厚が薄い試料のほうが才差運動の振幅が顕著に増大していることがわかる。Co 層厚はともに 0.78 nm。

図 5 に Pd 層厚の異なる 2 つの積層薄膜試料で得られた典型的な時間分解磁気光学信号時間発展軌跡を示す。磁気光学信号、すなわち、磁化ベクトルの実空間での才差運動頂角 (コーン角)、が Pd 層厚の低下によって増大している様子がわかる。Co ならびに Pd 層厚を系統的に変化させた一連の試料を用意して光励起実験繰り返して得られたデータにより、Pd 層厚を 0.32nm まで減少させると才差運動の振幅がいっそう増大することを見出した。コーン角に換算すると、パルス光パワー 10 MW/cm² において 40° に達することがわかった。また、才差運動の発現には、強磁性半導体と異なり、外部磁場が必須であることも確認できた。このことは、才差運動の引き金となるトルクが磁化の超高速消磁によってもたらされていることを示している。

才差運動振幅 A_0 と励起強度 P との関係自由エネルギーモデルに基づいて定式化した (式 1)。

$$A_0 = \frac{c\gamma\theta_{\text{Kerr}} \sin \theta}{4\pi f (1 + \alpha_{\text{eff}}^2)} \cdot P \quad (1)$$

式 1 を用いて実験データを定量的に解析した結果、振幅増大は、従来の磁気ダイナミク

スを支配する周波数 f 、有効ダンピング係数 α 、ジャイロ係数 γ によるものでなく、我々が初めて導入する電子スピンエネルギー移送効率 c [Oe-deg-erg⁻¹] の増大に起因する可能性が強いことを見出した。このような研究過程を経て、室温で比較的 low power で光励起効果が発現するスピン光デバイス候補素材 (光磁石) を見出した。

(2) 磁化のコヒーレント制御とテラ・ペタヘルツ領域への展開

① 室温における磁化のコヒーレント制御

磁化の光励起才差運動がスピン駆動全光デバイスを担う物理現象の有力候補であることを示すには、才差運動の始動と停止、すなわち才差運動のコヒーレント制御、を室温において実証する必要がある。本研究では、この実証実験を 1 対の励起光パルスを用いて行った。具体的には、第一励起光パルスにより磁化の才差運動を発生させ、第二励起光パルスにより才差運動の変調実験を実施した (図 6)。試料には GdFe 磁性金属薄膜を用いた。パルス光の波長、パルス幅、パワーはそれぞれ 790 nm、150 fs、120 MW/cm² であった。

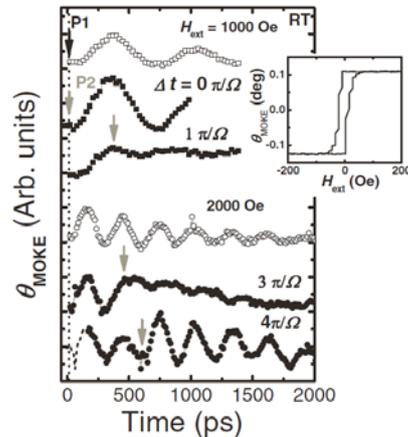


図 6 PEPM の全光制御を示す実験データ。磁気光学振動の最大位置で第二励起光を照射すると磁化才差運動が抑制される一方で、振動の最小位置で再励起すると振幅が増大することがわかる。NHK 放送技研より提供された試料を使用した。挿入図は試料の磁化特性を示す。

本実験によって、適切な遅延時間において光パルス第二励起を行うと、才差運動の位相に応じて才差運動の振幅が抑制ないし増大できる、すなわち、コヒーレント制御が可能であることを示した。ただし、中程度の励起光パルス強度を複数回使用すると、励起による

熱的蓄積効果のために才差運動周波数が時間依存性を持つようになることもわかった。この結果は、超高速消磁のような熱的過程でスピン系の動的状態を制御するには、できるだけ励起パワーの小さい光パルスが有利であることを示唆している。

② テラ・ペタヘルツ領域への展開

光パルス励起による磁化の非平衡状態は3つの過程に分けることができるとされている。第一過程がレーザーパルス幅の時間幅で電子系に発生する強い非平衡状態、第二過程が、電子と他自由度との散乱が支配する熱平衡化過程(数 ps ~ 数百 ps)、第三過程が、熱伝導など巨視的機構が支配する温度低下と平衡(ないし準定常)への復帰(数ナノ秒以上)である。前項(2)①で述べた磁化のコヒーレント操作は、第三過程での操作であり、第一・二過程に磁化光操作が可能であるか自明ではなかった。本研究において非熱的過程が超短時間領域であらさな強磁性半導体に 1ps 以下の遅延時間で第二励起パルスを照射し、磁化操作の可能性を追究した。その結果、遅延時間 26 - 150 fs (周波数領域 10 - 100 テラヘルツ) で第二光励起した場合には才差運動の時間軌跡に影響を与えないが、遅延時間 200 fs - 1 ps (周波数領域 1 - 10 テラヘルツ) で光励起した場合には、才差運動の振幅がわずかではあるが増大するという極めて興味深い実験を見出した(図7)。第二励起光パルス遅延時間をさらに遅らせると準定常状態での磁化コヒーレント状態へと移行した。これらの実験により、テラヘルツ領域での非線形な磁化光操作の可能性が示された。

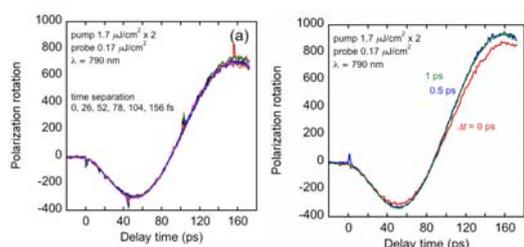


図7 (左) 遅延時間 26 - 150 fs および(右) 遅延時間 0 - 1 ps における磁化才差運動時間軌跡。

(3) スピン光デバイスの試作と評価

① 磁性体・光ファイバー複合構造

直径 50 μm の光ファイバコアの側面に GdFe 磁性膜を堆積した磁気光学ハイブリッドファイバデバイスを試作して、偏波変調信

号の多重伝送と多重分離の原理実証を電通大ならびに放送技研と共同して研究した(図8)。磁性膜上における磁化の変調場所 z を指定 ($z = -2, 0, +2 \text{ mm}$) することでコア内の多重な光に対してモード選択的に偏波変調信号を加えてそれを伝送した後に空間的に多重分離することが可能である事を定量的に示した(図9)。磁化の局所的な変調により磁気光学効果を起こすモード数は磁化変調の面積が 1 mm であるため多数存在するが、そのうちで z に対するモード群の分離が可能であることを示した。すなわち、光伝播路の断面積に対して大きな表面積をもつ形状の光導波路において、多重な光の偏光制御が可能であることを明らかにした。

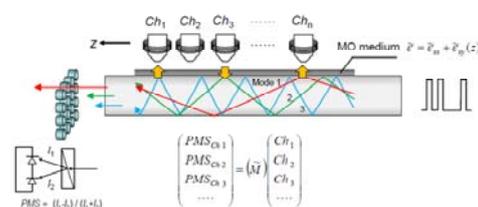


図8 光ファイバー側面からの磁気信号入力を用いた偏波変調信号の多重伝送と空間的多重分離の概念図。

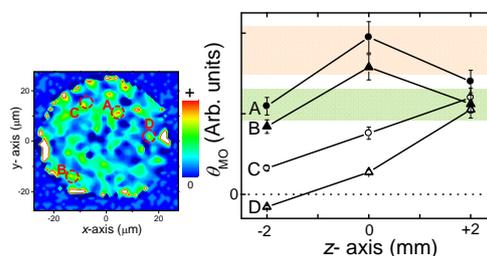


図9 (左) 実験で得られた出射光の磁気光学信号(偏光面の回転角度)の2次元分布図、(右) 磁性体薄膜の磁化変調位置 z と磁気光学信号の相関図。

② 円偏光発光素子

非熱的な過程による磁化の光操作を可能にする光として、光スピン、すなわち円偏光が有力視されているが、ナノエレクトロニクスに集積可能な一体型微小固体光源はいまだ実現していない。そこで、本研究の後半期から、スピン注入発光ダイオードの室温動作に向けた実験研究を実施した。従来、国内外で行われてきた実験では、活性層に量子井戸を採用し、スピン注入電極には試料面に垂直方向に外部磁場を印加し、かつ、発光も垂直

方向に取り出す配置で行われてきた。本研究では、活性層にバルク層を、スピン注入には外部磁場を印加せずに面内残留磁化電極を採用し、発光は面内を導波して側面から取り出す配置を採用した。そして、半導体レーザ級高品質ウェーハ上に本研究で開発した結晶性酸化アルミ層をスピントネル層として形成してデバイスを試作した。実験を進めた結果、研究延長期にあたる H27 年度に、純度の極めて高い円偏光発光を室温において達成するとともに、デュアルスピン電極を実装した発光ダイオードにより、100 kHz 円偏光切替えを実証した (図 10)。

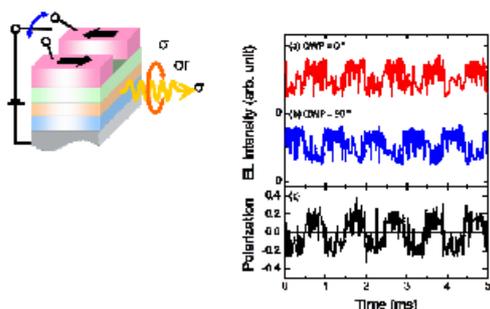


図 10 (左) デュアルスピン注入電極型スピ
ン LED と発光方向の概念図、および (右) 室
円偏光切替えデータ。

5. 主な発表論文等

[学術論文誌] (計 30 件)

① T. Matsuda and H. Munekata: Mechanism of photoexcited precession of magnetization in (Ga, Mn)As on the basis of time-resolved spectroscopy; Phys. Rev. B **93**, 075202 1-8 (2016) [査読有].

② K. Nishibayashi, H. Yoneda, K. Kuga, T. Matsuda, and H. Munekata: Demonstration of polarization modulated signals in a multi-mode GdFe-silica hybrid fiber; Appl. Phys. Lett. **106**, 151110 1-5 (2015) [査読有]

③ N. Nishizawa, K. Nishibayashi and H. Munekata: A spin light emitting diode incorporating ability of electrical helicity switching; Appl. Phys. Lett. **104**, 111102 1-4 (2014) [査読有].

④ 宗片比呂夫: 光によるスピン秩序の制御 - 新しいフォトンクス材料を磁性でつくる研究 - ; 応用物理 **83**, 536-542 (2014) [査読有].

⑤ K. Yamamoto, T. Matsuda, K. Nishibayashi, Y. Kitamoto and H. Munekata: Low-power photo-induced precession of magnetization in ultra-thin Co/Pd multi-layer films; IEEE Trans. Mag. **49**, 3155 - 3158 (2013) [査読有].

[学会発表] (計 148 件)

① H. Munekata: Consideration on new functionality based on photo-excitation of

magnetization in ultra-short time region; UMC-2015, Nijmegen, the Netherlands, Oct. 22, 2015.

② H. Munekata, M. Aoyama, R. Roca, and N. Nishizawa: Spin-photonic devices based on crystalline-AlO_x/GaAs for emission and detection of circular polarized light (invited); SPIE. OPTICS + PHOTONICS, San Diego, USA, Aug. 13th, 2015.

③ H. Munekata: Spin-photronics (invited); Moscow Intern'l Symp. on Magnetism 2014, Moscow, Russia, June 30th, 2014.

[産業財産権] (計 3 件)

○ 取得状況 (1 件)

名称: p-i-n 型円偏光変調発光半導体素子及びレーザー素子

発明者: 田中健一郎、近藤剛、宗片比呂夫

番号: 特許番号 4820980

登録日 2012 年 9 月 16 日

○ 出願状況 (2 件)

名称: 磁壁移動型スピン発光素子

発明者: 宗片比呂夫、西沢望

番号: 特願 2013-171741

出願日: 2013 年 8 月 21 日

名称: デュアル電極型スピン発光ダイオード及びレーザー

発明者: 宗片比呂夫、西沢望

番号: 特願 2012-276273

出願日: 2012 年 12 月 18 日

[その他]

東工大ニュース 磁性で創る新しいフォトンクス材料とデバイス—弱い光で磁化が変化する光磁石の発見と応用—

<http://www.titech.ac.jp/news/2015/031962.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

宗片 比呂夫 (MUNEKATA, Hiro)

東京工業大学・像情報工学研究所

教授

研究者番号: 60270922

(2) 連携研究者

北本 仁孝 (KITAMOTO, Yoshitaka)

東京工業大学・総合理工学研究科 (研究院)

教授

研究者番号: 10272676

西林 一彦 (NISHIBAYASHI, Kazuhiro)

東京工業大学・像情報工学研究所

研究員 (特任講師)

研究者番号: 20361181