

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 4 日現在

機関番号：32665

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04184

研究課題名(和文) 光誘起超短時間角運動量流による超高速磁化制御

研究課題名(英文) Ultrafast magnetization control using photoinduced ultrashort-time angular momentum flow

研究代表者

塚本 新 (TSUKAMOTO, Arata)

日本大学・理工学部・教授

研究者番号：30318365

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：超高速光励起プロセスをエンジニアリングする観点にて、光学多層構造化による超短パルス偏光-磁気応答特性の設計・制御に関する新規知見が得られた。GdFeCoを対象磁性材料系とし、同一磁性薄膜に対する吸収光エネルギー量、実行磁気円二色性の増強効果に加え、相反関係の符号を変えられ、偏光依存型全光型磁化反転現象の閾値低減および符号関係も変更可能である事を実証した。加えて、自由電子レーザーを用いた検討から、遠赤外線領域においてもSi基板を利用した光学干渉により超短パルス光吸収特性の増強が可能である事、異種元素界面近傍の異質磁化状態の存在が正味の薄膜磁気特性へ大きく寄与する事を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、「磁化はどこまで高速に応答・制御可能なのか?」との根本的問いに対し、超短パルス光を原因・手法に、偏光依存型全光型磁化反転現象を指導原理として、超高速光励起プロセスのエンジニアリング観点から光学多層構造化による応答特性制御について検討を行った。本成果は、同一磁性薄膜体でも適切な光学設計により実効的に超高速光磁気作用の応答等特性の設計・増強が可能であることを示すものである。本検討では、パルス長35フェムト秒の光源を用いており、THzスケールでの外部光刺激により永続的な磁化状態遷移を可能とする制御技術としての応用が期待される。

研究成果の概要(英文)：From the perspective of engineering ultrafast photo magnetic response, new knowledge was obtained regarding the design and control by optical multilayer structuring. It has been revealed that when GdFeCo is used as the target magnetic system, it is possible to change the sign of the reciprocal relationship in addition to increase the optical energy absorption and effective magnetic circular dichroism. It was also demonstrated that it is possible to lower the excitation threshold of the " helicity-dependent all-optical magnetization switching phenomenon" and change the sign of switching relationship. In addition, studies using free electron pulse laser have shown that it is possible to enhance light absorption by optical interference using a Si substrate in the far-infrared region. It was revealed that the existence of heterogeneous magnetization states near the interface of different elements seriously contributes to the net magnetic properties of thin films.

研究分野：超高速磁気ダイナミクス

キーワード：超高速磁化制御 全光型磁化反転 角運動量 フェリ磁性 超短パルス光

1. 研究開始当初の背景

現在、フェムト秒から数ピコ秒領域における超短時間光物質作用研究が活性化し、特に磁性現象に関する研究領域はフェムト・マグネティズムと呼ばれ、時間分解計測技術の飛躍的發展により種々の新奇現象が明らかとなっている。1996年ストラスブール大の **Beaurepaire** らが報告した Ni 薄膜における超短パルス光照射に続くサブ・ピコ秒での超短時間減磁現象がその始まりと認識される。その後、その機構解明が現在に至るまで続く研究テーマであり研究代表者もその一翼を担っているが、さらに、この分野を工学分野も巻き込み大きく加速する事となった新奇現象として全光型磁化反転現象 (AOS) [1]が挙げられる。超高速光磁気記録、スピン制御デバイス等への応用が期待されるためである。本課題は、理学的素過程の解明研究から、より複雑な物理システムへの演繹・発展と、超短時間領域現象のエンジニアリングへと発展を試みるものである。工学的応用に向けた研究アプローチもまだ類似した研究は非常に少ない。

2. 研究の目的

「磁化はどこまで高速に応答・制御可能であるのか？」との根本的問いに対し、超短パルス光を原因・手法とし、磁性体内に角運動量流を誘起、副格子磁化構造および多層膜構造による、偏光磁気作用・過渡応答の設計と超短パルス光誘起磁化反転現象の応答実験により、光誘起超高速磁化制御法の探究を進めるのが目的である。

これまでに多くの時間分解放射光測定等国际共同研究も含み実施してきた超短パルス光による金属磁性体の動的・過渡的応答特性研究を基盤とし、図 1 に示すよう、本質的に複合物理系となり理論構築が困難な対象現象に対し、光誘起磁化反転機構と、役割の異なる異種物質からなる多層構造化による応答特性の実計測から、実験的にアプローチするのが独特な点である。超短時間磁気物性を明らかにすると共に、その方法は超高速磁化応答を得る材料・構造の創出を意味し、磁気メモリ等デバイス応用を想定した多層薄膜構造により達成を図るものである。

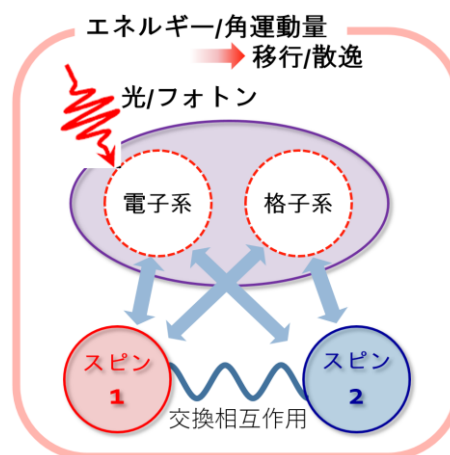


図 1 エネルギー・角運動量移行

3. 研究の方法

超高速光磁気励起プロセスのエンジニアリング観点にて、主に光学多層構造化による光磁気作用の設計と実実験に立脚し光誘起超高速磁化制御法について相補的検討を行う。具体的には、これまでに偏光依存型 AOS 現象 (HD-AOS) の発現が確認できている GdFeCo フェリ磁性希土類遷移金属アモルファス合金薄膜を典型材料とし、SiN 透明誘電体層との複合化により多重光学干渉構造を形成し、実効的に磁性層の反射・透過・光吸収特性、偏光特性の改変を行う。これにより、超短パルス光に対する、磁性層の光エネルギー吸収特性、磁気光学物性、磁化および入射円偏光のヘリシティに対する相反関係、これらの設計・制御に基づく、光誘起超高速磁化制御法の指針を得る。

主として中心波長 800nm、半値全幅約 35 fs の超短パルスレーザー光源を用いた。また、中赤外線から遠赤外線領域に渡る全光型磁化反転特性評価には、自由電子レーザーパルス光源を用いた。薄膜作成には、多元マグネトロンスパッタ装置を用い、磁気特性評価には、SQUID-VSM や磁気光学分光装置等を用いた。

4. 研究成果

(1) 超高速光磁気励起プロセス・エンジニアリングの検討

超短パルス光による励起過程の制御・評価法に注目し、光学干渉構造による超短時間光物質過渡応答の実験的検討、超短パルス光に対する光学・磁気光学物性評価機の構築および評価を行った。特に超短パルスレーザー光照射により誘起されるスピン現象(偏光依存型全光型磁化反転: HD-AOS)や物質の光学特性の非線形効果の観点を踏まえて検討した。

透明誘電体(光学干渉層)/希土類遷移金属フェリ磁性体 GdFeCo 垂直磁化膜からなる多層膜の数十フェムト秒程度の半値全幅をもつ近赤外超短パルス光に対する光学特性について探るべく、左右円偏光と試料の残留磁化状態の組み合わせに対し、透過・反射・吸収特性の3つの観点から種々の光強度毎に測定・算出し、連続発振光源(CW レーザー)の場合と比較検討を行った。具体的には、対象試料は膜面垂直方向へ垂直磁気異方性を有することから、上部誘電体面方向(+M)と下部基板面方向(-M)の残留磁化状態のみを取り得る。この M の 2 状態に対する左右円偏光(±σ)

における入射偏光での透過率・反射率の計測から光吸収率を算出した。

図2、図3に示すよう、単一パルス光のフルエンスが全光型磁化反転現象の誘起条件と同水準の高強度入射に至るまで、光学干渉層付加による光吸収特性の増大、その残留磁化状態依存性には、CW光と同水準の効果が得られた。さらに、全光型磁化反転を誘起可能な高強度超短パルス光に対し、非線形光学効果の寄与が想定されるが、光吸収特性、磁気光学効果への寄与につき検討を行い、比較的小さな水準である事も明らかとなった。

得られた注目すべき実験的知見として、GdFeCoを対象磁性材料系とし、光学干渉層厚の増大と共に磁性薄膜での吸収光エネルギー量が単調に増大する範囲（SiN厚：20～100nm）に於いて、図4に示すよう、実行磁気円二色性は中間厚にて符号反転を示す事が明らかとなった。前者は磁化反転に要する吸収光エネルギー閾値を、後者は、左右円偏光に対する吸収エネルギー差の強度および入射円偏光のカイラリティおよび磁化ベクトル間の符号関係を決定する性質であり、それらが異なる光学干渉特性を有する事を示す。これにより、入射円偏光と残留磁化状態依存性の符号関係・相反関係を反転でき、結果として、偏光依存型全光型磁化反転現象の入射偏光に対する符号関係が反転可能である事を実証した。

また、図4は、AOS現象が誘起される典型的な照射条件（パルス長約40fs、光エネルギー密度2.2 mJ/cm²）に相当する高強度超短パルス光照射下における光吸収特性の寄与を検討したものであり、照射条件はパルス長約40 fs・照射光エネルギー密度0.016、0.32、0.64、1.6 mJ/cm²としたいずれの場合にも、同様の膜厚に依存した相反性変化が確認された。

さらに、自由電子レーザーを利用した中赤外線から遠赤外線領域に渡る全光型磁化反転特性の波長依存性を検討し、金属磁性体へ照射するのではなく、シリコン基板側から光入射する事で、同様に超短パルス光吸収特性の増強が可能である事を明らかにした。

これらの結果は、同一磁性体でも光学多層構造化により実効的に超高速光磁気作用の応答等特性設計・増強が可能であることを示す。

(2) 光学機能多層膜構造における磁性層磁気特性の検討

異なる光誘起超短時間磁気励起機構の出現を図る多層構造試料として、①スピン軌道相互作用の大きな非磁性重金属層、②遍歴電子磁性を有する3d系金属磁性層、③大きな局在磁気モーメントを有しフェルミレベル付近の状態密度が低い4f系金属磁性層、④3d/4f系合金磁性層、の組み合わせからなる種々の多層構造体を作成し、熱平衡下における、磁化特性、磁気光学効果、スピン依存散乱機構に基づく、異常ホール効果、異常ネルンスト効果等々を評価し、それらの存在、相関関係を明らかにした。前述の光学応答検討においては選択元素の組み合わせとしてGdFeCoを用いたが、いずれの物性も合金組成依存性を示した。垂直磁気異方性を発現し、比較的大きな異常ホール効果、異常ネルンスト効果を示す組成域で検討を行った。

また、関連事項として、前述の全光型磁化反転感受特性を有する重希土類遷移金属合金薄膜に対し、熱平衡下における、磁気光学効果、異常ホール効果、異常ネルンスト効果等の相関を解明、

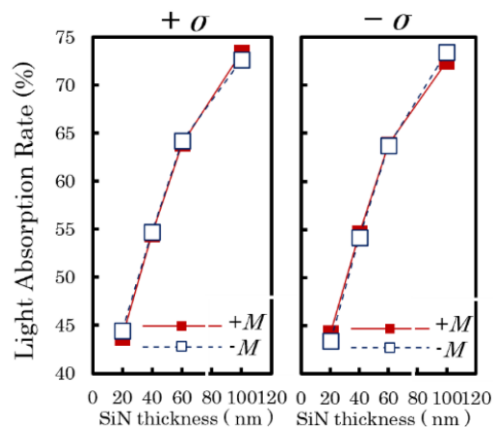


図2 超短パルス光入射における磁化状態に依存した光吸収率

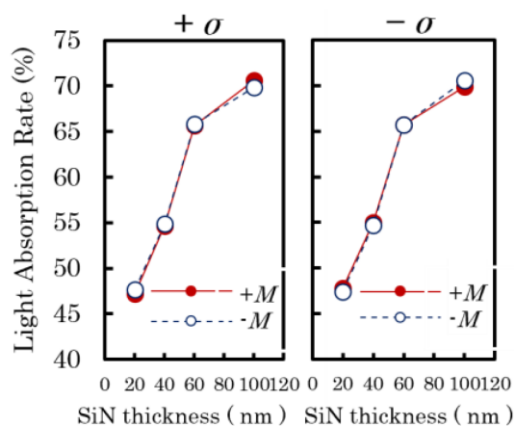


図3 連続 (CW) 光入射における磁化状態に依存した光吸収率

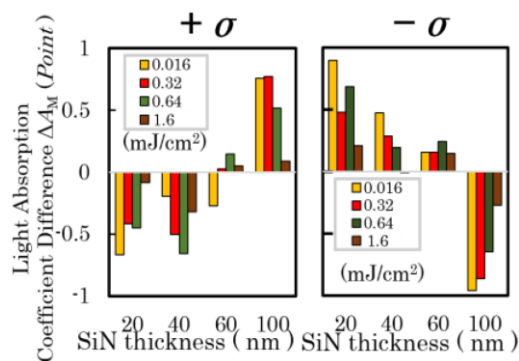


図4 超短パルス光入射における磁化状態に対応した光吸収率差 ΔA_M

薄膜内部と異なる磁性領域が界面近傍に局在して出現し、正味の磁気特性の膜厚依存性の主要因となる事、その寄与は隣接原子種により異なる事を明らかにした。

- [1] All-Optical Magnetic Recording with Circularly Polarized Light:
C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsukamoto, A. Itoh, and Th. Rasing: Phys. Rev. Lett. 99, 047601 (2007).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6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 0件）

1. 著者名 吉川 大貴, 北澤 楓太, 宋 嘉浩, 笠谷 雄一, 塚本 新	4. 巻 MAG24002
2. 論文標題 異種元素薄膜を隣接したフェリ磁性希土類遷移金属合金薄膜の磁化の温度特性	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 電気学会研究会資料（マグネティックス研究会）	6. 最初と最後の頁 5-8
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 無
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 小林 祐希, 笠谷 雄一, 吉川 大貴, 塚本 新	4. 巻 MAG23089
2. 論文標題 GdFe系合金フェリ磁性薄膜における異常ネルンスト電圧の計測	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 電気学会研究会資料（マグネティックス研究会）	6. 最初と最後の頁 19-24
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 無
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 Hiroki Yoshikawa, Daiki Tajima, Yuichi Kasatani, Arata Tsukamoto	4. 巻 62
2. 論文標題 Different helicity dependency of all-optical magnetization switching in GdFeCo films with optical interference layer	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Jpn. J. Appl. Phys.	6. 最初と最後の頁 SB1009-SB1009
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/ac9318	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 Davies C. S., Rzdolski I., Janssen T., Mishra K., Tsukamoto A., Kirilyuk A.	4. 巻 120
2. 論文標題 Silicon-substrate-induced enhancement of infrared light absorption for all-optical magnetic switching	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 042406(1~6)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0080052	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 該当する

1. 著者名 田島 大輝, 高橋 蒔生, 吉川 大貴, 塚本 新	4. 巻 MAG22045
2. 論文標題 超短パルス円偏光における光学干渉層GdFeCo垂直磁化膜の光吸収特性の検討	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 電気学会研究会資料 (マグネティックス研究会)	6. 最初と最後の頁 43~47
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 無
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 笠谷 雄一, 吉川 大貴, 塚本 新	4. 巻 MAG21099
2. 論文標題 GdFeCoフェリ磁性合金薄膜における全光型磁化反転の電氣的検出と電流制御	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 電気学会研究会資料 (マグネティックス研究会)	6. 最初と最後の頁 1~6
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 無
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 -

[学会発表] 計10件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Yuki Kobayashi, Yoshihiro Sou, Yuichi Kasatani, Hiroki Yoshikawa, and Arata Tsukamoto
2. 発表標題 Composition variation behavior of galvanomagnetic effect in GdFe collinear coupled ferrimagnetic alloy thin films
3. 学会等名 International Symposium on Quantum Electronics 2024 (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 北澤楓太, 宋嘉浩, 吉川大貴, 塚本新
2. 発表標題 GdFe系フェリ磁性薄膜における磁性体界面近傍磁化量へのCo置換効果
3. 学会等名 第47回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 宋嘉浩, 北澤楓太, 小林祐希, 笠谷雄一, 吉川大貴, 塚本新
2. 発表標題 異なる温度でのGdFe薄膜の異常ホール抵抗・縦抵抗の膜厚依存性
3. 学会等名 第47回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小林祐希, 北澤楓太, 笠谷雄一, 吉川大貴, 塚本新
2. 発表標題 GdFeCoフェリ磁性多層薄膜における異常ネルンスト電圧
3. 学会等名 第47回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 北澤 楓太, 吉川 大貴, 塚本 新
2. 発表標題 GdFeCo磁性二層膜の合成磁気モーメント量低減の検討
3. 学会等名 第83回応用物理学会, 秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宋 嘉浩, 笠谷雄一, 吉川大貴, 塚本新
2. 発表標題 組成比の異なるGdFe薄膜における異常ホール効果の温度依存性
3. 学会等名 第46回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小林祐希, 笠谷雄一, 吉川大貴, 塚本新
2. 発表標題 アモルファスGdFeフェリ磁性薄膜における異常ネルンスト係数への異常ホール抵抗率の寄与
3. 学会等名 第46回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuichi Kasatani, Hiroki Yoshikawa and Arata Tsukamoto
2. 発表標題 Electrical detection and current control of All-Optical magnetization Switching in GdFeCo ferrimagnetic alloy thin film
3. 学会等名 MORIS2022MORIS(Magnetics and Optics Research International Symposium) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hiroki Yoshikawa, Daiki Tajima, Yuichi Kasatani, and Arata Tsukamoto
2. 発表標題 Helicity Dependent All-Optical magnetization Swiching on GdFeCo films with optical interference layer
3. 学会等名 MORIS2022(Magnetics and Optics Research International Symposium) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Arata Tsukamoto, Tokio Takahashi, Hiroki Yoshikawa
2. 発表標題 Modification of dynamic properties by extrinsic interaction in double layered ferrimagnetic film
3. 学会等名 MORIS2022(Magnetics and Optics Research International Symposium) (国際学会)
4. 発表年 2022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
研究協力者	吉川 大貴 (YOSHIKAWA Hiroki) (50822128)	日本大学・理工学部・助教 (32665)	

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			
オランダ	Radboud University			
ポーランド	University of Bialystok			