

令和 6 年 6 月 8 日現在

機関番号：82401
研究種目：若手研究
研究期間：2021～2023
課題番号：21K13889
研究課題名（和文）Opto-spintronics in atomic-layer materials

研究課題名（英文）Opto-spintronics in atomic-layer materials

研究代表者

王子謙 (Wang, Ziqian)

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・特別研究員

研究者番号：00898934

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：二次元（2D）ファンデルワールス磁性体は、数原子層の厚さでも磁性を示す層状構造を持つ新しい材料である。これらの材料は、数原子層でデバイスに積層できる特性から注目されている。本研究では、2D磁性体の構造、対称性、光物性に注目し、以下の成果を得た。薄層において特異な対称性をもたらす原子スケール構造を解明した。また、従来の磁性体では見られない、2D磁性体での特異な仮想粒子間の相互作用を発見した。さらに、2D磁性体を用い、光の進行方向を反転させた際に材料応答が異なる光学非相反性を制御する方法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、新興の原子層磁性体の構造、対称性、光学特性に関する重要かつ新たな理解をもたらした。学術的には、この研究で得られた新しい知見は光スピントロニクスと低次元磁性の分野での開拓に基盤を提供していた。また、社会的には、この研究で実現した2D磁性体の新しい機能が、次世代の電子、磁気、光デバイスの開発に貢献していた。

研究成果の概要（英文）：Two-dimensional (2D) van der Waals (vdW) magnets are a new class of materials with a layered structure that exhibit magnetism even when they are just a few atoms thick. These materials have unique features compared to conventional magnets, particularly their ability to be stacked into devices with only a few atomic layers. We conducted in-depth research on these 2D magnets, focusing on their structure, symmetry, and optical properties. Our work revealed an unusual atomic-scale structure in their thin layers that leads to unexpected changes in symmetry. We also discovered unique interactions between virtual particles in a 2D magnet, which have not been observed in traditional magnets. Additionally, we developed a method to control optical nonreciprocity, a property where the material responds differently to light when the direction of light propagation is reversed.

研究分野：光物性

キーワード：van der Waals materials Magnetism Symmetry Nonlinear optics

1. 研究開始当初の背景

二次元 (2D) ファンデルワールス (vdW) 磁性体は、2017 年以来発見され、原子スケールの厚さで磁性を示す層状材料である。通常の三次元 (3D) 磁性体と比較して、外部刺激に対する高い感受性、低い磁気減衰、長いスピン波伝播距離、および原子層の積層の自由度など、優れた特性を有している。さらに、これらの磁性体は、低次元と強い電子相関によって可能にされる新しい物性を探索するための独自の可能性を提供している。

これらの材料の構造や物性は重要であるが、まだ完全に解明されていない。例えば、極薄状態における構造や対称性に関する論争が続いている。新しい準粒子や励起状態、およびそれらの特異な振る舞いはほとんど解明されていない。また、vdw 磁性体の電気・磁気・光学応答については未知の部分が多く、興味深い研究分野として注目されている。

2. 研究の目的

本研究では、2D 磁性体の電子状態を操作することを実現するために、その光物性に関する基礎的な理解を提供することを目指す。また、vdw 磁性体が持つ特異な対称性や低次元性を活かし、これらの物性を制御する可能性を探究する。vdW 磁性体は、2D 材料家族の最新の一員として位置づけられており、本研究は 2D 光スピントロニクスと低次元磁性の最前線に立っている。

3. 研究の方法

本研究は、vdW 磁性体について、以下の 3 つの主要な領域に焦点を当てて調査した。

(1) 超薄 vdW 磁性体の構造と対称性の解明

近年の文献によれば、数層の反強磁性体 MnPS_3 の対称性に関する報告が矛盾しており、極薄状態ではバルクとは異なる積層構造が示唆されている。結晶・磁気構造の不明確さは、2D 磁性体の興味深い物理現象を探索する上で重要な課題となっている。そこで、極薄 MnPS_3 の原子スケールでの構造を正確に特定するために、断面走査透過電子顕微鏡 (STEM) 実験を実施した。さらに、光学スペクトルの対称性選択則に基づいて解析し、第一原理計算と組み合わせ、この極薄 vdW 磁性体の特異な構造とその形成を解明することを目指した。

(2) 特異な準粒子間相互作用の探索

マグノンと励起子の複雑な相互作用は、強相関磁性体の量子挙動を理解する上で重要な役割を果たしている。vdw 磁性体 MnPS_3 の光学スペクトルでは、特異な「励起子-マグノン遷移」の特性が観察され、低次元での準粒子相互作用を調査する貴重な場を提供している。この現象を詳しく探るため、共鳴第二高調波発生分光法 (resonant SHG spectroscopy) を用い、磁場下での励起子-マグノン複合体の挙動を調査した。さらに、摂動マグノン理論を導き、実験結果と照合しながら、励起子-マグノン相互作用の強さや対称性に関する洞察を得ることを目指した。

(3) 非相反光学応答の電氣的制御

非中心対称の反強磁性体は、光の逆向きの伝播により異なる光学応答を示す光学的非相反を実現する可能性がある。制御可能な非相反光学挙動は、先端フォトニクス応用に大きく貢献することが期待される。本研究では、群論の考えを活かし、 MnPS_3 を概念実証として用い、非相反 SHG 応答を電氣的に変調する方法を探索した。このアプローチにより、従来の磁場を利用した手法に伴う大型な機器や遅い応答時間といった実用上の課題を克服することを目指した。

4. 研究成果

(1) 超薄 vdW 磁性体の構造と対称性の解明

本研究では、薄層の波打ちが局所的に原子レベルで特異な積層構造を生じる現象を明らかにした (図 1)。バルクの積層秩序は見かけ上 2 層まで保たれているように見えるが、実際にはこの特異な構造により、巨視的な積層秩序では極薄 MnPS_3 の微視的な対称性を把握できないことが明らかになった。この現象により、波打ちが普遍に存在する弱い層間相互作用を持つ数層 vdW 磁性体において、単層の特性が近似的に維持される可能性が示唆された。微視的な対称性を考慮することで、過去の報告における見かけ上の矛盾を解消し、2D 材料の対称性および物性に対する理解を深めた。本研究成果は、論文[1]にて発表された。

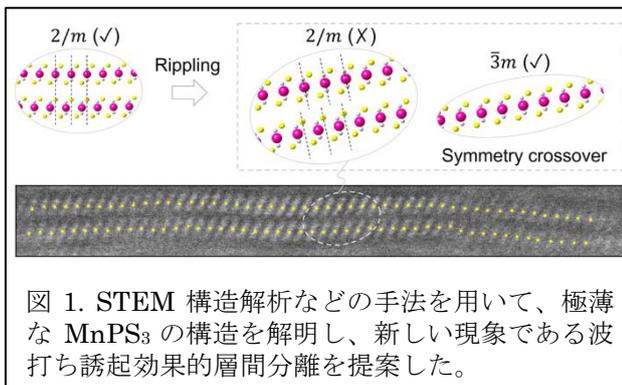


図 1. STEM 構造解析などの手法を用いて、極薄な MnPS_3 の構造を解明し、新しい現象である波打ち誘起効果的層間分離を提案した。

(2) 特異な準粒子間相互作用の探索

本研究により、vdw 磁性体 MnPS₃ において、励起子とマグノンの顕著な相互作用が明らかになった (図 2)。この相互作用により、光学スペクトル上で励起子-マグノン遷移が分裂することが観察された。群論による解析から、この相互作用が磁気対称性によって波数空間全体で許容されていることが明らかになり、この顕著の相互作用の一因となっていることが示された。また、我々が提案した理論は、実験で観測されたスペクトル形を再現し、励起子摂動下での異常なマグノン分裂挙動を説明した。この現象は、これまでの 2D または 3D 材料では初めて確認された。また、本研究により、MnPS₃ の磁気励起子において、新たな現象である「励起子線形磁気電気効果」を発見した。これらの研究成果は、論文[2]にて発表された。

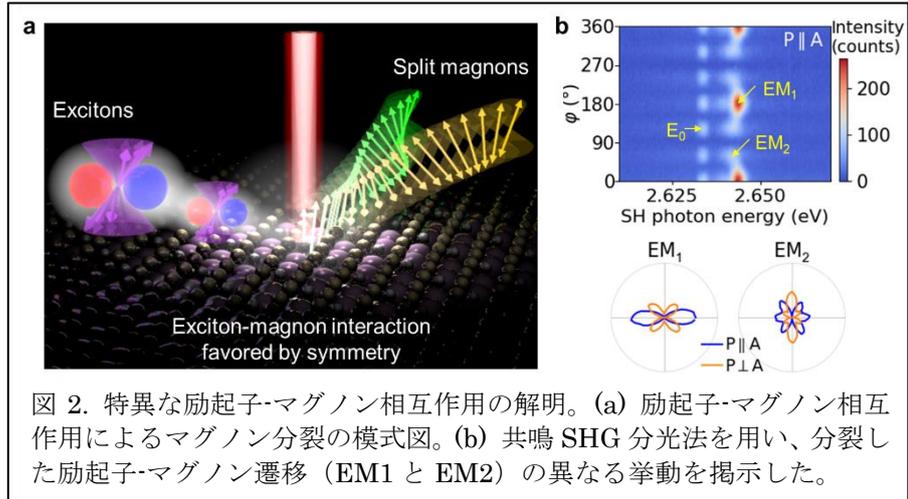


図 2. 特異な励起子-マグノン相互作用の解明。(a) 励起子-マグノン相互作用によるマグノン分裂の模式図。(b) 共鳴 SHG 分光法を用い、分裂した励起子-マグノン遷移 (EM1 と EM2) の異なる挙動を掲示した。

性によって波数空間全体で許容されていることが明らかになり、この顕著の相互作用の一因となっていることが示された。また、我々が提案した理論は、実験で観測されたスペクトル形を再現し、励起子摂動下での異常なマグノン分裂挙動を説明した。この現象は、これまでの 2D または 3D 材料では初めて確認された。また、本研究により、MnPS₃ の磁気励起子において、新たな現象である「励起子線形磁気電気効果」を発見した。これらの研究成果は、論文[2]にて発表された。

(3) 非相反光学応答の電氣的制御

本研究では、群論の観点から踏まえ、空間時間反転対称性を持つ反強磁性体において、SHG 応答の非相反性を電氣的に制御する一般的な方法を提案した (図 3)。この手法は、特定の結晶方位に電場を印加することで、SHG における固有の電気双極子遷移、磁気双極子遷移、そして電場誘導電気双極子遷移の干渉を操作し、SHG 非相反性の制御を実現する。さらに、この手法を一般化し、適用可能な磁気点群と最適な電場方向のリストを作成し、反強磁性体における非線形光学非相反性の電氣的制御のガイドラインを確立した。この対称性に基づく独自の設計は、従来の研究に比べ、広帯域光源での実現可能性、電気信号による迅速な応答、装置の複雑さの低減、幅広い反強磁性材料の選択肢など、実用的な利点を提供している。本研究成果は、現在論文誌に査読中である[3]。

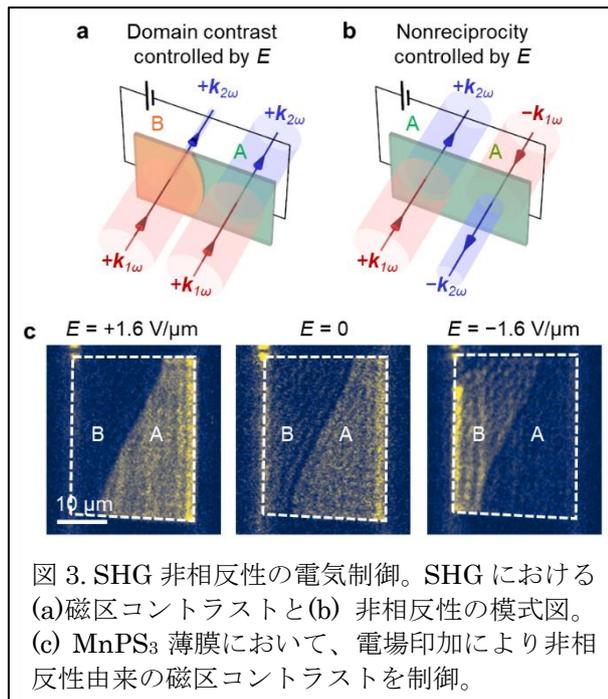


図 3. SHG 非相反性の電氣的制御。SHG における (a)磁区コントラストと (b) 非相反性の模式図。(c) MnPS₃ 薄膜において、電場印加により非相反性由来の磁区コントラストを制御。

引用文献

- [1] Z. Wang*, M. Gao, T. Yu, S. Zhou, M. Xu, M. Hirayama, R. Arita, Y. Shiomi, W. Zhou*, and N. Ogawa*, Real-Space Observation of Ripple-Induced Symmetry Crossover in Ultrathin MnPS₃, *ACS Nano* 17, 1916-1924 (2023). <https://doi.org/10.1021/acsnano.2c04995>
- [2] Z. Wang*, X.-X. Zhang, Y. Shiomi, T.-h. Arima, N. Nagaosa, Y. Tokura, and N. Ogawa, Exciton-magnon splitting in van der Waals antiferromagnet MnPS₃ unveiled by second-harmonic generation, *Phys. Rev. Res.* 5, L042032 (2023). <https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.5.L042032>
- [3] Z. Wang*, M. Wang, J. Lehmann, Y. Shiomi, T.-h. Arima, N. Nagaosa, Y. Tokura and N. Ogawa, Electric-field-enhanced second-harmonic domain contrast and nonreciprocity in a van der Waals antiferromagnet. arXiv:2401.11222 (2024). <https://doi.org/10.48550/arXiv.2401.11222>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Wang Ziqian, Gao Meng, Yu Tonghua, Zhou Siyuan, Xu Mingquan, Hirayama Motoaki, Arita Ryotaro, Shiomi Yuki, Zhou Wu, Ogawa Naoki	4. 巻 17
2. 論文標題 Real-Space Observation of Ripple-Induced Symmetry Crossover in Ultrathin MnPS3	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 1916 ~ 1924
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnano.2c04995	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 Wang Ziqian, Zhang Xiao-Xiao, Shiomi Yuki, Arima Taka-hisa, Nagaosa Naoto, Tokura Yoshinori, Ogawa Naoki	4. 巻 5
2. 論文標題 Exciton-magnon splitting in the van der Waals antiferromagnet MnPS3 unveiled by second-harmonic generation	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 L042032
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.5.L042032	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 -
1. 著者名 Aoki Shunta, Dong Yu, Wang Ziqian, Huang Xiang S.W., Itahashi Yuki M., Ogawa Naoki, Ideue Toshiya, Iwasa Yoshihiro	4. 巻 36
2. 論文標題 Giant Modulation of the Second Harmonic Generation by Magnetoelectricity in Two Dimensional Multiferroic CuCrP2S6	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2312781
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202312781	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 -
1. 著者名 Nakayama Yuki, Hirai Daigorou, Sagayama Hajime, Kojima Keita, Katayama Naoyuki, Lehmann Jannis, Wang Ziqian, Ogawa Naoki, Takenaka Koshi	4. 巻 8
2. 論文標題 Odd-parity multipole order in the spin-orbit coupled metallic pyrochlore Pb2Re207-	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 55001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.8.055001	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

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Ziqian Wang, Yuki Shiomi, Akiko Kikkawa, Yasujiro Taguchi, Taka-Hisa Arima, Naoki Ogawa
2. 発表標題 Electronic and magnetic excitations in van der Waals antiferromagnet MnPS ₃ probed by second-harmonic generation
3. 学会等名 The 29th International Conference on Low Temperature Physics (LT29) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ziqian Wang, Yuki Shiomi, Taka-Hisa Arima, Naoki Ogawa
2. 発表標題 Second-harmonic generation by electronic and magnetic excitation in van der Waals antiferromagnet MnPS ₃
3. 学会等名 The 15th Asia Pacific Physics Conference (APPC15) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ziqian Wang, Yuki Shiomi, Taka-Hisa Arima, Naoki Ogawa
2. 発表標題 Second-harmonic generation study of excitations in van der Waals antiferromagnet MnPS ₃
3. 学会等名 JPS 2022 Autumn Meeting
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ziqian Wang, Yuki Shiomi, Taka-Hisa Arima, Naoto Nagaosa, Yoshinori Tokura, Naoki Ogawa
2. 発表標題 Revealing exciton-magnon correlation in van der Waals antiferromagnet MnPS ₃ by second harmonic generation spectroscopy
3. 学会等名 The 13th TOYOTA RIKEN International Workshop: Integrated Spectroscopy for Strong Electron Correlation - Theory, Computation and Experiment (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ziqian Wang, Yuki Shiomi, Taka-Hisa Arima, Naoto Nagaosa, Yoshinori Tokura, Naoki Ogawa
2. 発表標題 Second harmonic generation from exciton-magnons in van der Waals antiferromagnet MnPS3
3. 学会等名 APS March Meeting (国際学会)
4. 発表年 2023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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------