

令和 6 年 5 月 15 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2022～2023

課題番号：22K18962

研究課題名（和文）磁気光電変換機能の開拓

研究課題名（英文）Development of spin photoelectric conversion functionalities

研究代表者

松原 正和（Matsubara, Masakazu）

東北大学・理学研究科・准教授

研究者番号：50450648

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、光エネルギーを電気エネルギーに変換する光電変換の新原理を開拓することを目指した。その結果、ナノ磁性体を用いることで、磁気的な光電変換（磁気光電変換）現象が起きることを明らかにした。また、詳細な測定により、その起源がナノ磁性体中に発生する空間反転対称性を破る磁気秩序（渦状磁気配列）であることを明確に示した。この結果は、半導体p-n接合界面や強誘電体を利用する従来の太陽電池とは全く異なる新規光電変換機能を世界で初めて明瞭に示すものである。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、半導体p-n接合界面や強誘電体におけるバルク光起電力効果などのこれまで知られている光電変換原理ではなく、ナノ磁性体中に発生する渦状磁気配列による磁気光電変換を世界で初めて明瞭に観測することに成功したことに意義がある。今後は、ナノ磁性体の大きさ・形状・周期・配列・膜厚などを変えることで、渦状磁気配列による磁気光電変換の巨大化を目指す。また、本研究で観測した磁気光電変換は、渦状磁気配列の直接かつ高感度なプローブとしての利用も期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we aimed to develop a new principle of photoelectric conversion, which converts light energy into electrical energy. The results revealed that magneto-photoelectric conversion can occur by using nanomagnets. Detailed measurements clearly showed that the origin of this phenomenon is the magnetic order (vortex-like magnetic arrangement) that breaks space inversion symmetry in nanomagnets. This finding is the first in the world to clearly demonstrate a novel photoelectric conversion function that is entirely different from conventional solar cells that utilize semiconductor p-n junction interfaces.

研究分野：光物性、光スピントロニクス

キーワード：光電変換 渦状磁気配列 磁気トロイダル 光電流

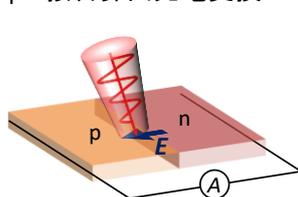
1. 研究開始当初の背景

地球は現在、エネルギー危機と二酸化炭素問題に直面している。クリーンエネルギー源として太陽電池（光-電気エネルギー変換：光電変換）への期待が高まっているが、変換効率の向上など克服すべき課題は多い。現在実用化されている光電変換素子の多くは、光照射により生成される電子と正孔を分離する過程で半導体 p-n 接合界面における内部電場の発生を必要とする（図 1(a)）。一方、p-n 接合界面を利用した変換効率が理論限界に近づきつつある昨今、新たな光電変換原理として注目を集めているのが、強誘電体のようなもともと空間反転対称性の破れた結晶構造を有する物質である（図 1(b)）。p-n 接合界面を形成しなくても光起電力を示すことからバルク光起電力効果と呼ばれているが、変換効率の面で課題が残っている。

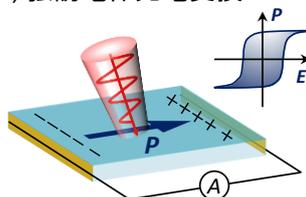
2. 研究の目的

本研究では、p-n 接合界面を利用した光電変換や強誘電体などを用いたバルク光起電力効果など既存のメカニズムとは全く異なる、空間反転対称性を破る磁気秩序（渦状磁気配列）による新規光電変換「磁気光電変換」の基礎原理・基礎特性を解明することを目指した（図 1(c)）。

(a) p-n接合界面光電変換



(b) 強誘電体光電変換



(c) 磁気光電変換

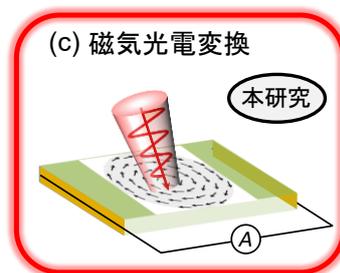


図 1 (a) p-n 接合界面を利用した光電変換。(b) 強誘電体を利用した光電変換。(c) 本研究で提案する、空間反転対称性を破る渦状磁気配列が生み出す新原理「磁気光電変換」。

3. 研究の方法

本研究は 2 年間において、① 磁気シミュレーションおよびナノメートルスケールの微細加工技術を用い、渦状磁気配列を有するナノ磁性体周期配列をデザイン・作製・評価した。また、② 磁気依存するゼロバイアス（バイアス印加無し）光電流を生成・検出する測定系を新たに構築し、③ それを用いて新規な磁気光電変換機能を検証・実証することを目的とし、そのために、以下の「4. 研究成果」で述べる実験を行った。

4. 研究成果

(1) 渦状磁気配列を有するナノ磁性体周期配列のデザイン・作製・評価

軟磁性体（パーマロイ、 $\text{Py: Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$ ）薄膜に数百ナノメートル～数マイクロメートル程度の大きさの微細加工を施すことで、磁気光電変換を引き起こすナノ磁性体を作製した。群論を用いた（磁気）対称性の考察、および、渦状磁気配列の磁場制御性を考慮し、正三角形のナノ磁性体が最適であると考えた。試料作製は、研究室で所有する（あるいは、共用設備の）イオンビームスパッタ装置や電子線描画装置などを利用し、正三角形のナノ磁性体を三角格子状に配置したナノ磁性体周期配列を作製した。具体的には、1 cm×1 cm の大きさの SiO_2 基板上に、厚さ 3 nm の Cr 薄膜、厚さ 5 nm の Au 薄膜、厚さ 55 nm のパーマロイナノ磁性体を順番に積層させた。作製した試料の評価を原子間力顕微鏡（AFM）等で行い、設計通りの構造が作製できていることを確かめた（図 2(a)）。

また、マイクロマグネティックシミュレーションを用い、パーマロイナノ磁性体中の磁気状態の見積もりを行った。その結果、外部磁場ゼロ付近でマクロな磁化を持たない渦状磁気配列が実現し、外部磁場の掃引方向により渦状磁気配列の回転方向の制御が可能であることを確かめた（図 2(b)）。さらに、磁場印加により生じるマクロな磁化 ($M_x \propto \sum_i M_{i,x}$: 図 2(c)) と渦状磁気状態 ($T_z \propto \sum_i (r_i \times M_i)_z$: 図 2(d)) をそれぞれ計算することで、一様磁化と渦状磁気状態を分離してそれぞれ定量的に評価できることが分かった。

(2) 磁気依存するゼロバイアス光電流を生成・検出する測定系の構築

ナノ磁性体に光照射することで生じるゼロバイアス光電流を精度よく検出するための測定系を新たに構築した。これにより、光電流の励起強度依存性、入射光の偏光依存性、磁場依存性、入射光スポットの場所依存性の測定などが可能となった。

(3) 磁気光電変換の基礎原理・基礎特性の解明

フェムト秒チタンサファイアレーザー（波長：800 nm、パルス幅：～100 fs、繰り返し周波

数：80 MHz) から出た光をチョッパーで 1 kHz 程度の周波数に落とし、(1) で作製したナノ磁性体周期配列を励起した (図 2(e))。レーザーのスポットの大きさは直径約 250 μm であり、これはナノ磁性体周期配列を作製した領域 (250 μm \times 250 μm) と同程度である。試料の上下・左右方向に取り付けた電極間に流れる電流をそれぞれロックインアンプで検出することにより、入射光の偏光依存性・外部磁場依存性・ナノ磁性体のサイズ依存性などの測定を行い、磁気光電変換機能の基礎特性を評価した。試料には電磁石で ± 200 mT までの可変磁場を印加し、ナノ磁性体中の磁気状態の精密制御を行った。

その結果、磁場により強度が明らかに変化する磁気光電流を観測することに成功した。詳細な偏光依存性の測定から、このような磁気的に誘起される光電流には 2 種類存在することが分かった。1 つが、正三角形の形状による空間反転対称性の破れとマクロな磁化の両者により引き起こされる磁気光電変換 (図 2(f)) で、もう 1 つが、渦状の磁気配列による磁気光電変換 (図 2(g)) である。これらはどちらも「空間反転対称性」と「時間反転対称性」を同時に破り、空間反転対称性の破れのみ起因する従来の光電変換とは決定的に異なる。また、これらの振る舞いはマイクロマグネティックシミュレーションにより得られた結果をほぼ再現しており、理論的なデザイン性が高いことが分かった。さらに、ナノ磁性体のサイズ依存性の測定から、できるだけ小さいナノ磁性体を大量に含む試料がより大きな磁気光電変換を引き起こすことが明らかになった。

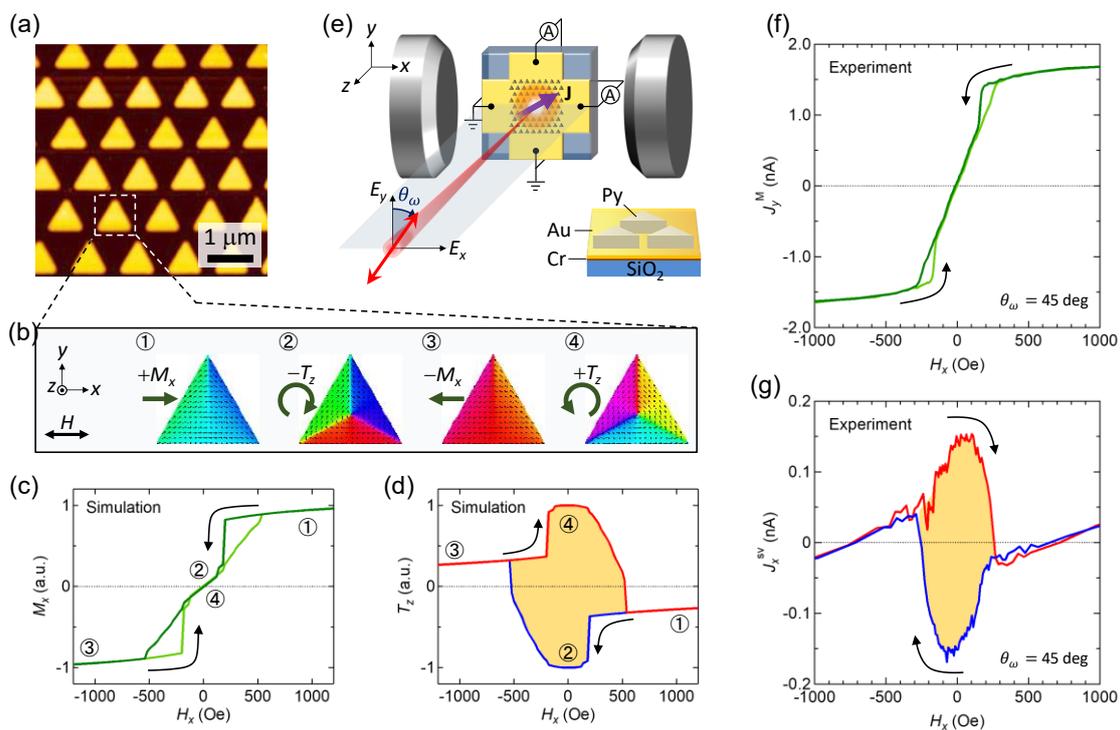


図 2 (a) 作製したパーマロイ ($\text{Ni}_{78}\text{Fe}_{22}$) ナノ磁性体周期配列の AFM 像。(b)-(d) マイクロマグネティックシミュレーションを用いたナノ磁性体中の磁気状態の見積もり。(b) 磁気状態の空間分布。(c) 一様磁化 M_x の評価。(d) 渦状磁気状態 T_z の評価。(f) 一様磁化に由来する磁気光電変換の外部磁場依存性。(g) 渦状磁気状態に由来する磁気光電変換の外部磁場依存性。

(4) まとめ

本研究では、半導体 p-n 接合界面や強誘電体におけるバルク光起電力効果などのこれまで知られている光電変換原理ではなく、ナノ磁性体中に発生する渦状磁気配列による磁気光電変換を世界で初めて明瞭に観測することに成功した。今後は、ナノ磁性体の大きさ・形状・周期・配列・膜厚などを変えることで、渦状磁気配列による磁気光電変換の巨大化を目指す。さらに、磁気光電変換は渦状磁気配列の新しい検出手法としての利用も期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Hild M., Golub L. E., Fuhrmann A., Otteneder M., Kronseider M., Matsubara M., Kobayashi T., Oshima D., Honda A., Kato T., Wunderlich J., Back C., Ganichev S. D.	4. 巻 107
2. 論文標題 Terahertz spin ratchet effect in magnetic metamaterials	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 155419/1-15
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.107.155419	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 Sekine Daiki, Sato Tatsuki, Tokunaga Yusuke, Arima Taka-hisa, Matsubara Masakazu	4. 巻 38
2. 論文標題 Second Harmonic Detection of Antiferromagnetism in MnTiO ₃	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 JPS Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 011121/1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/jpscp.38.011121	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 Inoue Satoru, Higashino Toshiki, Nikaido Kiyoshi, Miyata Ryo, Matsuoka Satoshi, Tanaka Mutsuo, Tsuzuki Seiji, Horiuchi Sachio, Kondo Ryusuke, Sagayama Ryoko, Kumai Reiji, Sekine Daiki, Koyanagi Takayoshi, Matsubara Masakazu, Hasegawa Tatsuo	4. 巻 11
2. 論文標題 Control of Polar/Antipolar Layered Organic Semiconductors by the Odd Even Effect of Alkyl Chain	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Advanced Science	6. 最初と最後の頁 2308270/1-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/advs.202308270	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 Matsubara Masakazu, Kobayashi Takatsugu, Watanabe Hikaru, Yanase Youichi, Iwata Satoshi, Kato Takeshi	4. 巻 13
2. 論文標題 Polarization-controlled tunable directional spin-driven photocurrents in a magnetic metamaterial with threefold rotational symmetry	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 6708/1-8
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41467-022-34374-7	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 Sekine Daiki, Sato Yoshifumi, Matsubara Masakazu	4. 巻 120
2. 論文標題 Nonlinear optical detection of mesoscopic magnetic toroidal dipoles	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 162905 ~ 162905
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0089235	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 -

〔学会発表〕 計28件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 10件)

1. 発表者名 M. Matsubara
2. 発表標題 Spin-driven optical nonlinearities for detection and generation of spin currents
3. 学会等名 X Ultrafast Dynamics and Ultrafast Bandgap Photonics Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 H. Taketani, T. Kobayashi, T. Kato, and M. Matsubara
2. 発表標題 Spin- and polarity-switchable zero-bias photocurrents in a polar ferromagnetic metamaterial
3. 学会等名 The 7th Symposium for the Core Research Clusters for Materials Science and Spintronics and the 6th Symposium on International Joint Graduate Program in Materials Science and Spintronics (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Inoue, T. Higashino, K. Nikaido, R. Miyata, S. Matsuoka, M. Tanaka, S. Tsuzuki, S. Horiuchi, R. Kondo, R. Sagayama, R. Kumai, D. Sekine, T. Koyanagi, M. Matsubara, and T. Hasegawa
2. 発表標題 Parity control of interlayer arrangements in high performance organic semiconductor, pTol- BTBT-Cn
3. 学会等名 MRM2023/IUMRS-ICA2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松原正和
2. 発表標題 メタマテリアルを用いた光 - 電流 - スピン流制御「メタ光スピントロニクス」
3. 学会等名 量子物理学・ナノサイエンス第364回セミナー（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小柳恭徳, 松原正和
2. 発表標題 光第二高調波発生を用いたアシンメトリ量子の空間分解対称性マッピング技術の開発
3. 学会等名 学術変革領域研究(A)「アシンメトリ量子」トピカルミーティング
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 竹谷秀久, 加藤剛志, 松原正和
2. 発表標題 極性強磁性メタマテリアルにおける磁気トロイダルを用いた光電流の生成・制御
3. 学会等名 学術変革領域研究(A)「アシンメトリ量子」トピカルミーティング
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松原正和
2. 発表標題 非線形光学を用いたアシンメトリ量子の検出・可視化・新機能創出
3. 学会等名 学術変革領域研究(A)「アシンメトリ量子」トピカルミーティング（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 小柳恭徳, 松原正和
2. 発表標題 光第二高調波発生を用いた非磁性金属メタマテリアルの対称性マッピング
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 竹谷英久, 加藤剛志, 松原正和
2. 発表標題 極性強磁性メタマテリアルにおけるスピン及び極性によるゼロバイアス光電流のスイッチング
3. 学会等名 日本物理学会第78回年次大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 井上悟, 東野寿樹, 二階堂圭, 宮田稜, 松岡悟志, 田中睦生, 都築誠二, 堀内佐智雄, 近藤隆祐, 佐賀山遼子, 熊井玲児, 関根大輝, 小柳恭徳, 松原正和, 長谷川達生
2. 発表標題 層状有機半導体・pTol-BTBT-Cn 系のCn 偶奇効果とTFT 特性との相関
3. 学会等名 第84回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松原正和
2. 発表標題 非線形光学を用いた物性探索とメタ光スピントロニクス
3. 学会等名 固体物理セミナー & アシンメトリ量子セミナー (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松原正和
2. 発表標題 多極子の高感度検出・可視化と光スピントロニクス機能創出
3. 学会等名 セイコーインスツル新世代研究財団2023年度第2回スピントロニクス研究会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松原正和
2. 発表標題 非空間反転対称磁性体の作製と新規スピン光機能の探索
3. 学会等名 文部科学省マテリアル先端リサーチインフラ令和5年度「秀でた利用成果」発表会・表彰式（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 松原正和, 本田杏奈, 大島大輝, 加藤剛志
2. 発表標題 非空間反転対称磁性体の作製と新規スピン光機能の探索
3. 学会等名 nano tech 2024
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 J. Li, M. Matsubara, K. Kliemt, N. Kaya, I. Reiser, C. Krellner, J. Kroha, S. Pal, and M. Fiebig
2. 発表標題 Light-induced magnetization dynamics in a ferromagnetic semiconductor
3. 学会等名 Deutsche Physikalische Gesellschaft (DPG) Meeting of the Condensed Matter Section 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1 . 発表者名 H. Sakai, M. Kondo, M. Ochi, T. Kojima, R. Kurihara, M. Kimata, K. Sudo, D. Sekine, M. Matsubara, A. Miyake, M. Tokunaga, K. Kuroki, H. Murakawa, and N. Hanasaki
2 . 発表標題 Tunable spin-valley coupling and nonreciprocal transport in polar Dirac metal BaMnX ₂ (X = Sb, Bi)
3 . 学会等名 The 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 D. Sekine, T. Sato, Y. Tokunaga, T. Arima, and M. Matsubara
2 . 発表標題 Second harmonic imaging of multipolar domains in antiferromagnetic MnTiO ₃
3 . 学会等名 The 29th International Conference on Low Temperature Physics (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 J. Li, M. Matsubara, K. Kliemt, N. Kaya, I. Reiser, C. Krellner, J. Kroha, S. Pal, and M. Fiebig
2 . 発表標題 Light-induced magnetization dynamics in a ferromagnetic semiconductor
3 . 学会等名 The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2022 (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 M. Matsubara
2 . 発表標題 Nonlinear optical effects in magnetic metamaterials
3 . 学会等名 The 6th A3 Metamaterials Forum (招待講演) (国際学会)
4 . 発表年 2022年

1. 発表者名 J. Li, M. Matsubara, K. Klient, N. Kaya, I. Reiser, C. Krellner, J. Kroha, S. Pal, and M. Fiebig
2. 発表標題 Light-induced magnetization dynamics in a ferromagnetic semiconductor
3. 学会等名 International Conference on Molecular Ultrafast Science and Technology (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 D. Sekine, T. Sato, and M. Matsubara
2. 発表標題 Direct detection of mesoscopic magnetic toroidal moment by optical second harmonic generation
3. 学会等名 EPSRC International Network for Spintronics Early Career Researchers Meeting "From Material Development to Novel Energy Efficient Technologies" (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 関根大輝, 佐藤樹, 徳永祐介, 有馬孝尚, 松原正和
2. 発表標題 MnTiO ₃ における多極子ドメインの非線形光学イメージング
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 竹谷英久, 加藤剛志, 松原正和
2. 発表標題 極性強磁性メタマテリアルにおけるゼロバイアス光電流の生成
3. 学会等名 日本物理学会2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 関根大輝, 佐藤樹, 徳永祐介, 有馬孝尚, 松原正和
2. 発表標題 MnTiO ₃ 中の多極子ドメインの実空間イメージング
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」第9回QLC若手コロキウム
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 関根大輝, 佐藤樹, 徳永祐介, 有馬孝尚, 松原正和
2. 発表標題 光第二高調波発生を用いた多極子ドメインの実空間観察
3. 学会等名 東北大学理学・生命科学研究科合同シンポジウム2023
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 D. Sekine, T. Sato, Y. Tokunaga, T. Arima, and M. Matsubara
2. 発表標題 Real space imaging of multipolar domains in MnTiO ₃
3. 学会等名 新学術領域研究「量子液晶の物性科学」令和4年度領域研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 荒井俊人, 吉田海琉, 井上悟, 関根大輝, 小柳恭徳, 松原正和, 長谷川達生
2. 発表標題 層状有機半導体pToI-BTBT-Cnの極性型分子配列様式の評価と制御
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 小柳恭徳, 関根大輝, 松原正和
2. 発表標題 非線形光学によるナノ空間の対称性マッピング
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

ホームページ
<https://web.tohoku.ac.jp/sspp/matsubara/>

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