



筑波大学
University of Tsukuba



2022 年 6 月 15 日

国立大学法人筑波大学

国立大学法人北陸先端科学技術大学院大学

国立研究開発法人科学技術振興機構（JST）

ダイヤモンド中に 10 兆分の 1 秒で瞬く磁化を観測 ～超高速時間分解磁気センシング実現に期待～

磁石や電流が発する磁気の大きさと向きを検出するデバイスや装置を磁気センサーと呼びます。現在では、生体中における微弱な磁気から電子デバイス中の 3 次元磁気イメージングに至るまで、磁気センサーの応用分野が広がりつつあります。磁気センサーの中で最も高感度を誇るのが、超伝導量子干渉素子（SQUID）で、1 nT（ナノテスラ、ナノは 10 億分の 1）以下まで検出可能です。また、ダイヤモンドの点欠陥である窒素－空孔（NV）センターと走査型プローブ顕微鏡（SPM）技術を組み合わせることで、数十 nm（ナノメートル）の空間分解能を持つ量子センシングが可能になると期待されています。

このように、従来の磁気センシング技術は感度や空間分解能に注目して開発されてきましたが、時間分解能はマイクロ秒（マイクロは 100 万分の 1）の範囲にとどまっています。このため、磁場を高い時間分解能で測定できる新しい磁気センシング技術の開発が望まれていました。

本研究では、表面近傍に NV センターを導入したダイヤモンド単結晶に超短光パルス照射し、それにより 10 兆分の 1 秒で瞬く結晶中の磁化を検出することに成功しました。検出感度を見積もると、約 35 mT（ミリテスラ、ミリは 1000 分の 1）となりました。また、計測の時間分解能は、超短光パルスにより磁化を発生させたことにより、約 100 フェムト秒（フェムトは 1000 兆分の 1）となりました。

本研究結果により、NV センターでは従来困難だった高速に時間変化する磁気のセンシングも可能であることが示され、高い時間分解能と空間分解能を兼ね備えた新たな磁気センシングの開拓につながることを期待されます。

研究代表者

筑波大学数理物質系

長谷 宗明 教授

北陸先端科学技術大学院大学ナノマテリアル・デバイス研究領域

安 東秀 准教授



研究の背景

磁石や電流が発する磁気の大きさと向きを検出するのが磁気センサーです。現在では、生体中における微弱な磁気から、電子デバイス中の3次元磁気イメージングに至るまで、磁気センサーの研究開発が進んでいます。磁気センサーには、比較的簡便なトンネル磁気抵抗素子^{注1)}によるものや、超伝導体のリングを貫く磁束の変化を電流で読み取る超伝導量子干渉素子 (SQUID)^{注2)} などがあります。その中でも最高感度を誇るのが SQUID で、1 nT (ナノテスラ) 以下の磁場をも検出できるほどです。しかし、超伝導体を用いる SQUID は電気回路や極低温などの高度な取扱いを要します。このため、近年では、ダイヤモンドの点欠陥である窒素-空孔 (NV) センター^{注3)} を用いた磁気センサーの開発が進んでいます。特に、負に帯電した NV スピン状態を利用した全光読み出しシステムが、室温でも動作する量子磁力計として注目されています。また、NV センターの利用と、走査型プローブ顕微鏡 (SPM)^{注4)} 技術を組み合わせることで、数十 nm の空間分解能^{注5)} で量子センシング^{注6)} を行うことが可能になります。

このように、従来の磁気センシング技術は感度や空間分解能に注目して開発されてきました。その一方で、時間分解能^{注7)} はマイクロ秒の範囲にとどまっています。このため、磁場をより高い時間分解能で測定できる新しい量子センシング技術の開発が望まれていました。

そうした中、NV センターを高濃度に含むダイヤモンド単結晶膜において、入射された連続発振レーザーの直線偏光が回転することが分かり、ダイヤモンドにおける磁気光学効果が実証されました。NV センターに関連する集団的な電子スピンの磁化として機能することが示唆されていますが、この手法では時間分解能を高めることができません。他方、逆磁気光学効果、すなわち光パルスで磁気を作り出すという光磁気効果に対するダイヤモンド NV センターの研究については、行われてきませんでした。しかし、この光磁気効果を開拓することは、ダイヤモンドの非線形フォトンクスの新しい機能性を追求する上で非常に重要です。また、ダイヤモンド NV センターのスピンの用いた非接触かつ室温動作の量子センシング技術を、高い時間分解能という観点でさらに発展させるためにも、光磁気効果の開拓が必要だと考えられます。

研究内容と成果

本研究チームは、フェムト秒 (1000 兆分の 1 秒) の時間だけ近赤外域の波長で瞬く超短パルスレーザー^{注8)} を円偏光にして、NV センターを導入した高純度ダイヤモンド単結晶に照射し、結晶中に発生した超高速で生成・消滅する磁化を検出することに成功しました。

実験ではまず、波長 800nm の近赤外パルスレーザー光を $\lambda/4$ 波長板により円偏光に変換し、NV センターを導入した高純度ダイヤモンド単結晶に励起光として照射しました。その結果、磁気光学効果の逆過程 (光磁気効果) である逆ファラデー効果^{注9)} により、ダイヤモンド中に磁化を発生できることを見いだしました (参考図 1 挿入図)。この磁化が生じている極短時間の間に直線偏光のプローブ光を照射すると、磁化の大きさに比例してプローブ光の偏光ベクトルが回転します。これを磁気光学カー回転と呼びます。磁気光学カー回転の時間変化はポンププローブ分光法で測定しました (図 1)。測定の結果、逆ファラデー効果で生じるダイヤモンド中の磁化は、約 100 フェムト秒の応答として誘起されることが確かめられました (図 2 左)。NV センターを導入していないダイヤモンドでも磁化は発生しますが、導入すると、発生する磁化が増幅されることも明らかになりました (図 2 右)。

次に、励起レーザーの偏光状態を直線偏光から右回り円偏光、そして直線偏光に戻り、次に左回り円偏光と逐次変化させることで、波長板の角度とカー回転角 (θ) の関係を調べました。すると、NV センターを導入する前の高純度ダイヤモンド単結晶では、逆ファラデー効果を示す $\sin 2\theta$ 成分および非線形屈折率変

化である光カー効果を示す $\sin 4\theta$ 成分のみが観測されました。一方、NV センターを導入したダイヤモンドでは、それらの成分に加えて、新規に $\sin 6\theta$ の成分を持つことが明らかになりました（図 3 a）。さらに、励起光強度を変化させながら各成分を解析したところ、 $\sin 2\theta$ 成分および $\sin 4\theta$ 成分は励起光強度に対して一乗で増加しますが（図 3 b,c）、新規の $\sin 6\theta$ の成分の大きさは励起光強度に対して二乗で変化することが分かりました（図 3 d）。これらのことから、 $\sin 6\theta$ の成分は、NV センターが有するスピンの駆動力となり、ダイヤモンド結晶中に発生した非線形な磁化（逆コットン・ムートン効果^{注10}）であることが示唆されました。また、この付加的で非線形な磁化により、図 2 で観測された磁化の増幅が説明できました。この非線形な磁化による磁場検出感度を見積もると、約 35 mT（ミリテスラ）となりました。SQUID の検出感度には及びませんが、本手法では約 100 フェムト秒という高い時間分解能が得られることが示されたといえます。

今後の展開

本研究チームは、今回観測に成功した光磁気効果を用いた量子センシング技術をさらに高感度化し、ダイヤモンドを用いたナノメートルかつ超高速時間領域（時空間極限領域）での量子センシングに深化させることを目指して研究を進めていきます。今後は、ダイヤモンド NV センターが駆動力となった逆コットン・ムートン効果を磁気センシングに応用することで、先端材料の局所磁場やスピン流を高空間・高時間分解能で測定することが可能となります。さらに、パワーデバイス、トポロジカル材料・回路、ナノバイオ材料など実際のデバイスの動作条件下で、例えば磁壁のダイナミクスや磁化反転などデバイス中に生じるダイナミックな変化を、フェムト秒の時間分解能で観察できることになり、先端デバイスの高速化や高性能化への貢献が期待されます。

参考図

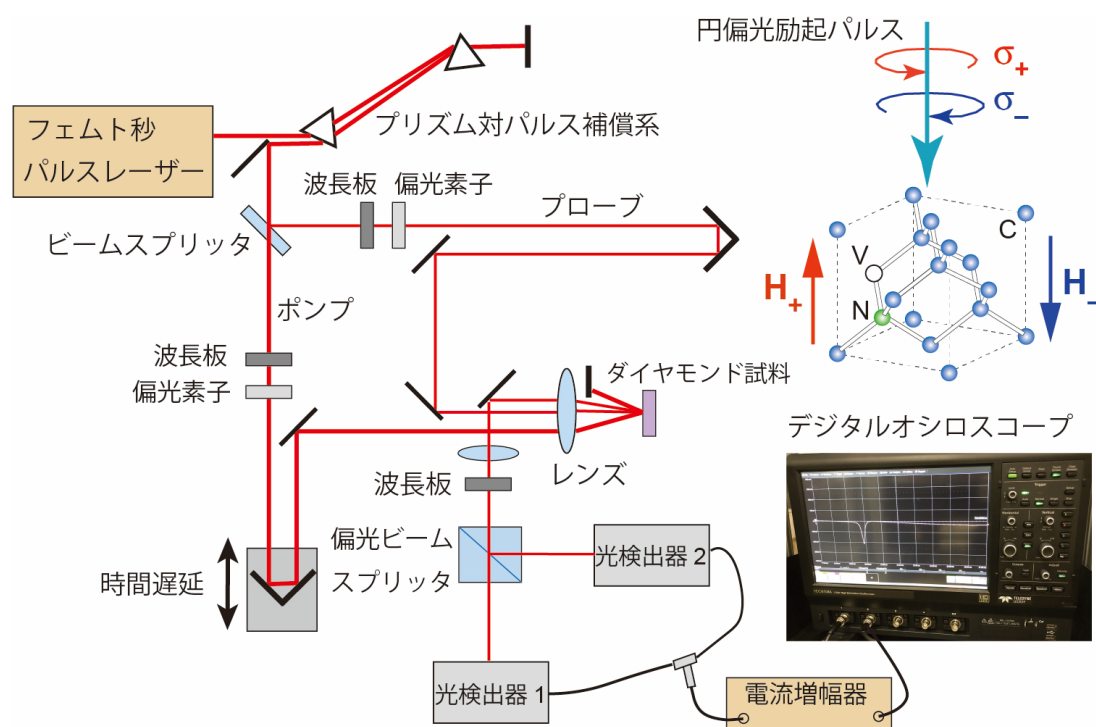


図1 本研究に用いた実験手法

パルスレーザーから出たフェムト秒レーザー光はビームスプリッターでポンプ光とプローブ光に分割され、それぞれ波長板と偏光子を通過した後、ポンプ光は光学遅延回路を経由した後レンズで試料に照射される。プローブ光も同様に試料に照射された後、偏光ビームスプリッターにより分割されて二つの検出器で光電流に変換される。その後、電流増幅された後、デジタルオシロスコープで信号積算される。右上の挿入図は、逆ファラデー効果の模式図を示し、右回り (σ_+) または左回り (σ_-) の円偏光励起パルスによりダイヤモンド結晶中に上向き (H_+) または下向きの磁化 (H_-) が生じる。なおデジタルオシロスコープでは、下向きの磁化が観測されている。

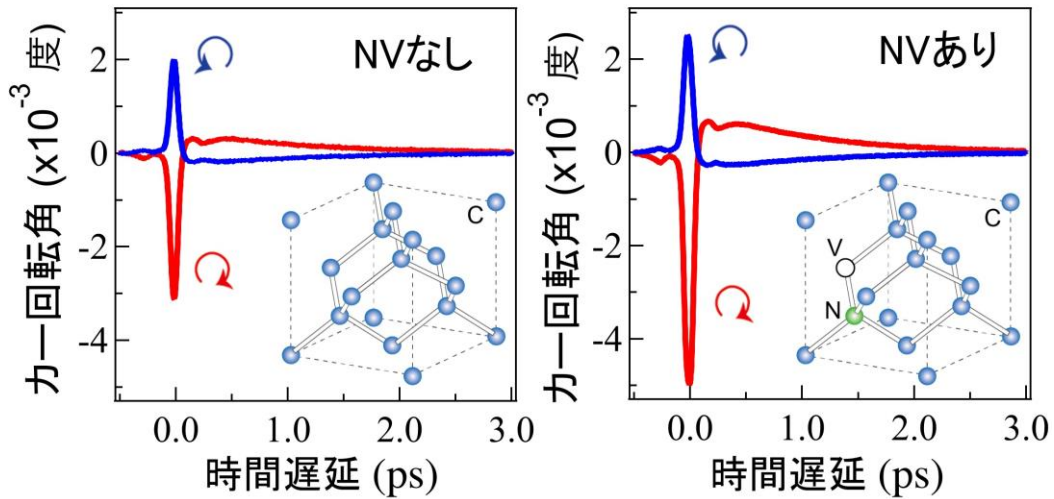


図2 高純度ダイヤモンド (NV なし) および NV センターを導入したダイヤモンド (NV あり) における時間分解カー回転測定の結果。赤色および青色の実線はそれぞれ、右回り円偏光、左回り円偏光により励起した実験結果を示す。

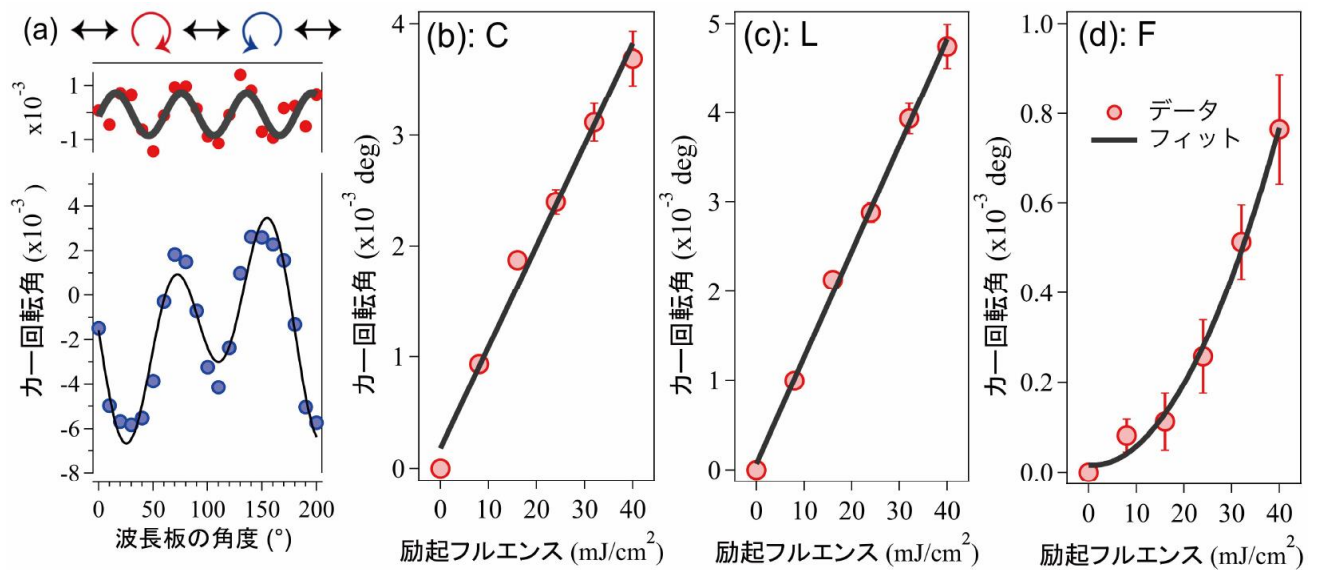


図3 NV センターを導入したダイヤモンドにおけるカー回転の解析結果

(a) 下図 (青丸) はカー回転角の波長板の角度 (θ) に対するプロットである。黒い実線は $C\sin 2\theta + L\sin 4\theta$ による最小二乗回帰曲線 (フィット) を示す。上図 (赤丸) は下図の最小二乗回帰の

残差を示す。太い実線は $F\sin 6\theta$ による最小二乗回帰曲線（フィット）を示す。また最上部は偏光状態の変化（直線偏光→右回り円偏光→直線偏光→左回り円偏光→直線偏光）を表す。(b) $C\sin 2\theta$ の振幅 C を励起フルエンスに対してプロットした図。(c) $L\sin 4\theta$ の振幅 L を励起フルエンスに対してプロットした図。(d) $F\sin 6\theta$ の振幅 F を励起フルエンスに対してプロットした図。(b)と(c)の実線は一次関数によるフィットを示し、(d)の実線は二次関数によるフィットを示す。

用語解説

注1) トンネル磁気抵抗素子

2枚の磁性体の間に非常に薄い絶縁体を挟んだ構造（磁性体／絶縁体／磁性体）からなる素子。磁性体は金属であり、電圧を加えると、薄いポテンシャル障壁を通り抜けるという量子力学的なトンネル効果により絶縁体を介したトンネル電流が流れる。各磁性体の磁化の向きが平行な場合と反平行な場合で、素子の電気抵抗が大きく変化する。これをトンネル磁気抵抗効果という。よって、この効果を原理とした素子をトンネル磁気抵抗素子と呼ぶ。

注2) 超伝導量子干渉素子（SQUID）

超伝導体のリングにジョセフソン接合（二つの超伝導体間にトンネル効果によって超伝導電流が流れるようにした接合のこと）を含む素子を、超伝導量子干渉素子（SQUID）と呼ぶ。リングを貫く磁束が変化すると、ジョセフソン接合を流れるトンネル電流が変化するため、高感度の磁気センサーとして用いられる。

注3) 窒素－空孔（NV）センター

ダイヤモンドは炭素原子から構成される結晶だが、結晶中に不純物として窒素（Nitrogen）が存在すると、そのすぐ隣に炭素原子の抜け穴（空孔：Vacancy）ができることがある。この窒素と空孔が対になった「NV（Nitrogen-Vacancy）センター」はダイヤモンドの着色にも寄与し、色中心と呼ばれる格子欠陥となる。NV センターには、周辺環境の温度や磁場の変化を極めて敏感に検知して量子状態が変わる特性があり、この特性をセンサー機能として利用することができる。

注4) 走査型プローブ顕微鏡（SPM）

微小な探針（プローブ）で試料表面をなぞることにより、試料の凹凸を観察する顕微鏡の総称である。細胞やデバイスなどにおいて、分子や原子などナノメートルの構造を観察するのに用いられる。代表的なものに原子間力顕微鏡（AFM）などがある。

注5) 空間分解能

近い距離にある2つの物体を区別できる最小の距離である。この距離が小さいほど空間分解能が高く、微細な画像データの測定が可能になる。

注6) 量子センシング

量子化したエネルギー準位や量子もつれなどの量子効果を利用して、磁場、電場、温度などの物理量を超高感度で計測する手法のこと。

注7) 時間分解能

観測するデータに識別可能な変化を生じさせる最小の時間変化量である。最小時間変化量が小さいほど時間分解能が高く、高速で変化する画像などのデータ識別が可能となる。

注8) 超短パルスレーザー

パルスレーザーの中でも特にパルス幅（時間幅）がフェムト秒以下の極めて短いレーザーのことをいう。光電場の振幅が極めて大きいため、2次や3次の非線形光学効果を引き起こすことができる。

注9) 逆ファラデー効果

ファラデー効果は磁気光学効果の一種で、磁性体などに直線偏光が入射し透過する際に光の偏光面が回転する現象のことをいう。その際、入射光の伝播方向と物質内の磁化の向きは平行である。逆ファラデー効果はこれとは逆に、円偏光したレーザー光を物質に入射することで、入射した方向に平行に磁化が生じる現象のことをいう。磁性体に限らず、あらゆる物質で生じる非線形光学過程である。

注10) 逆コットン・ムートン効果

コットン・ムートン効果は磁気光学効果の一種で、磁性体などに直線偏光が入射し透過する際に、光の偏光面が回転する現象のことをいう。その際、入射光の伝播方向と物質内の磁化の向きは垂直である。逆コットン・ムートン効果は、逆に、磁界が印可された物質に直線偏光のレーザー光を入射した際に、入射した方向に垂直に磁化が生じる現象であり、磁性体などで生じる高次の非線形光学過程である。

研究資金

本研究は、国立研究開発法人 科学技術振興機構 CREST「ダイヤモンドを用いた時空間極限量子センシング (JPMJCR1875)」(研究代表者：長谷 宗明)、および独立行政法人 日本学術振興会 科学研究費補助金「サブサイクル時間分解走査トンネル顕微鏡法の開発と応用」(研究代表者：重川 秀実) による支援を受けて実施されました。

掲載論文

【題 名】 Ultrafast opto-magnetic effects induced by nitrogen-vacancy centers in diamond crystals.
(ダイヤモンド結晶中の窒素空孔センターが誘起する超高速光磁気効果)
【著者名】 Ryosuke Sakurai, Yuta Kainuma, Toshu An, Hidemi Shigekawa, and Muneaki Hase
【掲載誌】 APL Photonics
【掲載日】 2022 年 6 月 15 日 (現地時間)
【DOI】 <https://dx.doi.org/10.1063/5.0081507>

問い合わせ先

【研究に関すること】

長谷 宗明 (ハセ ムネアキ)

筑波大学数理物質系・物理工学域 教授

TEL: 029-853-5305

E-mail: mhase@bk.tsukuba.ac.jp

<http://bukko.bk.tsukuba.ac.jp/~mhase/indexJ.html>

安 東秀 (アン トウシュウ)

北陸先端科学技術大学院大学先端科学技術研究科ナノマテリアル・デバイス研究領域 准教授

TEL: 0761-51-1551

E-mail: toshuan@jaist.ac.jp

<https://www.an-laboratory.com>

【取材・報道に関すること】

筑波大学広報局

TEL: 029-853-2040

E-mail: kohositu[at]un.tsukuba.ac.jp

北陸先端科学技術大学院大学広報室

TEL: 0761-51-1031

E-mail: kouhou[at]ml.jaist.ac.jp

科学技術振興機構広報課

TEL: 03-5214-8404 FAX : 03-5214-8432

E-mail: jstkoho[at]jst.go.jp

【J S T 事業に関すること】

嶋林 ゆう子 (シマバヤシ ユウコ)

科学技術振興機構戦略研究推進部グリーンイノベーショングループ

TEL: 03-3512-3531 FAX: 03-3222-2066

E-mail: crest[at]jst.go.jp