

(SPRUC 2019 Young Scientist Award 受賞 研究報告)

偏光変調型軟 X 線共鳴磁気光学効果による埋込層の磁性研究

公益財団法人高輝度光科学研究センター
XFEL 利用研究推進室 久保田 雄也

Abstract

磁気光学効果を利用した磁性測定では、磁気円二色性と磁気旋光性を調べることで対象の磁性情報が得られ、さらには、物質固有のパラメータである誘電率テンソルを決定できる。これまで可視光領域にとどまっていた手法を、本研究では磁性元素の吸収端をカバーする軟 X 線領域に拡張した。SPring-8 BL07LSU において分割型クロスアンジュレータの特性を活かして、偏光が連続的に変化する偏光変調軟 X 線光源を世界で初めて実現し、それと磁気光学カー効果測定を組み合わせることで、磁気円二色性と磁気旋光性を同時測定することに成功した。さらに、磁性情報を持つ誘電率テンソルの非対角項を完全決定し、第一原理計算とも良い一致を示した。本稿では、新しい光源と測定手法の詳細、そして、得られた結果について紹介する。

1. 序論

磁気光学効果とは、磁性体の磁化が光の偏光状態を変化させる現象であり、光をプローブとした磁性測定に 19 世紀より広く利用されてきた。代表的なものにファラデー効果や磁気光学カー効果 (magneto-optical Kerr effect, MOKE) がある^[1,2]。磁気光学効果では、磁性体による左右の円偏光の吸収の差に由来する磁気円二色性 (MCD) と左右の円偏光の位相差の変化に由来する磁気旋光性から磁性情報が得られる。ここで、本稿で用いる MOKE を例に見てみる。MOKE 測定では直線偏光の光を磁性体に照射し、その反射光の偏光状態変化を測定する。まず、MCD により直線偏光は楕円偏光に変化する。次に、磁気旋光性により、偏光面が回転する。この回転角をカー回転角と言い、楕円偏光の楕円率との 2 つのパラメータで MOKE は記述でき、磁性情報を得ることができる。これらのパラメータを同時測定する方法として、偏光が連続的に変調する可視光レーザーを使った光学遅延変調法がある^[1,3,4]。

一方、入射する光の波長を、磁性体を構成する元素の吸収端に合わせることで、元素選択的な測定ができるとともに、共鳴効果により大きな信号が得られる。代表的な 3d 磁性元素の L 殻吸収端をカバーする軟 X 線領域では、2 つの磁気光学パラメータのうち、MCD のみを用いた X 線 MCD (XMCD) 測定が有用な磁性測定手法として広く用いられてきた^[5]。さらに最近で

は、MOKE 測定においても軟 X 線領域の吸収端を利用した研究が進められており (特に共鳴 MOKE と呼ぶ)、可視光を用いるよりも大きなカー回転角 (磁気旋光性) の測定が可能となっている^[6-10]。主に全電子収量法を用いる XMCD 測定と比較して、photon-in photon-out の測定である共鳴 MOKE 測定はバルク敏感であり、埋込磁性層や界面磁性などの測定に有用である。しかし、XMCD 測定では MCD のみ、共鳴 MOKE 測定では磁気旋光性のみの情報しか観測が難しく、軟 X 線領域の磁性情報の完全な測定は実現していなかった。これは、この波長領域において偏光を連続的に変調させる方法が存在しなかったからである。

そこで、本研究では、SPring-8 BL07LSU^[11]における分割型クロスアンジュレータの特性を活かして世界初の連続型偏光変調軟 X 線 (以下、変調軟 X 線とする) 光源を開発し、それを用いた MCD と磁気旋光性の同時測定を実現した。2 つの磁気光学パラメータを測定できたことで、物質の基本的な固有パラメータである複素誘電率テンソルを完全決定できる^[2,12,13]。軟 X 線領域で初めて得られた複素誘電率テンソルの非対角項スペクトルも示す。

2. 実験手法

変調軟 X 線光源は SPring-8 BL07LSU^[11]にて開発した。このビームラインでは、世界唯一の分割型クロス

アンジュレータを有している。分割型クロスアンジュレータは、水平方向の直線偏光を発生する水平 8 の字アンジュレータと垂直方向の直線偏光を発生する垂直 8 (∞) の字アンジュレータの 2 種類のアンジュレータから成る。各 4 台のアンジュレータが交互に並び、その間に移相器が 7 台設置されている。移相器は永久磁石と電磁石から成り^[14]、電子ビームの軌道を変えることで、水平と垂直の直線偏光間の位相差を制御し、様々な偏光状態の高輝度軟 X 線の発生が可能である。連続的な偏光変調を実現するためには、この電磁石移

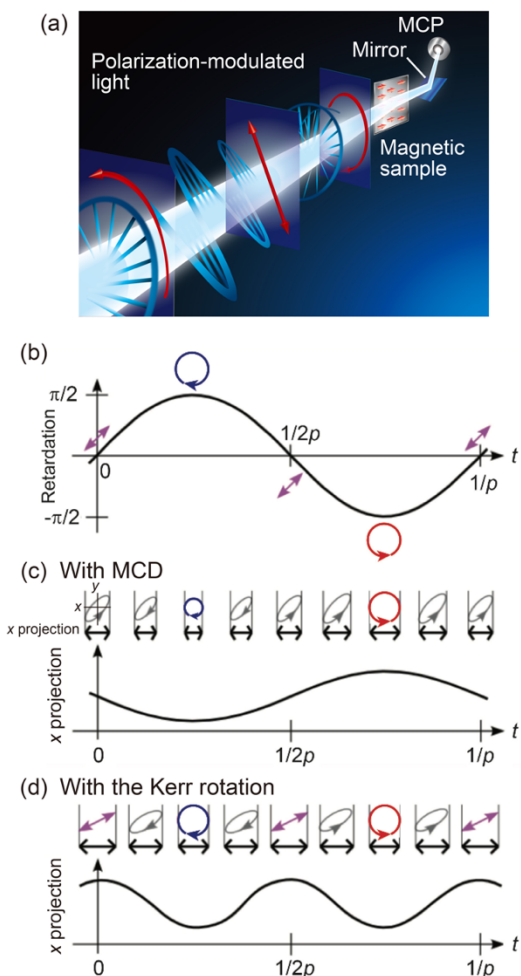


図 1 (a) 変調軟 X 線光源のイメージ図。本研究で用いた L-MOKE の測定配置とともに示す。(b) 光学遅延量 $\delta = (\pi/2)\sin 2\pi \nu t$ の時間変化とそれに対応する偏光の変化。斜め直線偏光 (skew linearly, SL) → 右円偏光 → SL → 左円偏光 → SL と連続的に変化する。(c),(d) MCD と磁気旋光性 (カー回転角) が ν 、 2ν 成分からそれぞれ得られることの説明図。磁性試料からの反射光電場の x 軸方向への投影を (c) MCD を示す場合、(d) 磁気旋光性を示す場合に対して図示している (文献 17 の Fig.1 からの転載)。

相器に交流電流を加えてやれば良い。図 1 に変調軟 X 線のイメージを示す。周波数 ν の正弦波交流電流を電磁石移相器に印加することで、図 1(b) に示すような、斜め直線偏光から左右の円偏光へ周波数 ν で切り替わる変調光源が実現できる。この時の光学遅延量は、

$$\delta = \delta_0 \sin 2\pi \nu t \dots (1)$$

で与えられる。ここで、 δ_0 は遅延量の振幅を表し、直線から右または左円偏光へ連続的に変化する際は $\delta_0 = \pi/2$ となる。この変調光源を MOKE 測定に利用すると、磁性体からの反射光強度のうち、MCD に由来する楕円率の情報が ν 成分として、磁気旋光性に由来するカー回転角が 2ν 成分として得られる (図 1(c), (d))。つまり、検出信号から ν 、 2ν 成分を抽出することで、2 つの磁気光学パラメータを同時にかつ高感度に測定することが可能である^[1,3]。

次に、この変調軟 X 線を用いた共鳴 MOKE 測定の具体的な手法を紹介する。今回は図 2(a) のように磁化方向が光の反射面に平行な、縦 MOKE (longitudinal MOKE, L-MOKE) 配置を用いる。従来の軟 X 線領域の共鳴 MOKE では、カー回転角の測定のために rotating analyzer ellipsometry (RAE) と呼ばれる手法が用いられてきた。これは、図 2 に示すように、磁性体からの反射光を多層膜ミラーと検出器から成るユニットに導き、磁性体とミラーを結んだ直線を回転

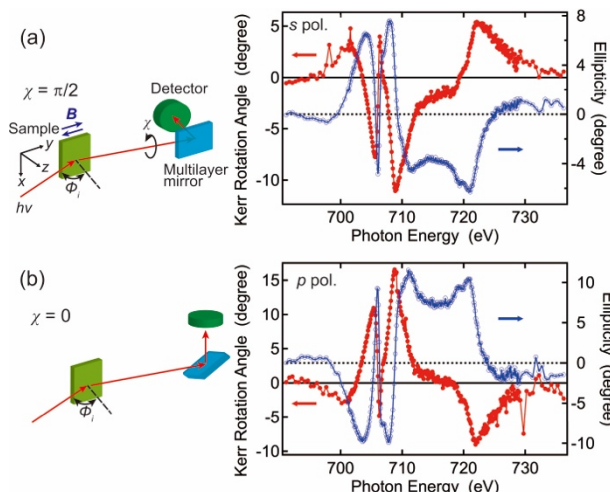


図 2 埋込 Fe 薄膜に対して行った、L 殻吸収端における変調軟 X 線 L-MOKE 測定結果。(a) s 偏光、(b) p 偏光入射に対応する場合をそれぞれ示し、その際のセットアップを左図に示している。測定結果の赤丸と青丸はカー回転角 (左軸) と楕円率 (右軸) のスペクトルをそれぞれ表す (文献 17 の Fig.2 を修正して掲載)。

軸として、ユニット全体を回転させる。その回転角を χ と定義する。多層膜ミラーからの反射光強度は s 偏光配置になった角度 χ で最大になるので、強度の χ 依存性を測定することで、偏光面方向が特定でき、カー回転角を求めることができる。詳細は先行研究[15,16]を参照していただきたい。一方、変調軟 X 線を入射光として用いると、この χ の回転が不要になる。今、図 2(a) に示したように、RAE ユニットの反射面に対して平行方向 (z 方向) に固定する場合を考える ($\chi = \pi/2$ と定義する)。この状態で検出器から得られる信号のうち、DC 成分、 ν 成分、 2ν 成分をそれぞれ $I(0)$ 、 $I(\nu)$ 、 $I(2\nu)$ とすると、従来の MOKE 測定で s 偏光を入射したことに相当するカー回転角と楕円率、 θ_K^s と ε_K^s が、

$$\begin{aligned} I(0) &= C_s \{1 + \theta_K^s{}^2 + \varepsilon_K^s{}^2 + 2\theta_K^s J_0(\delta_0)\}, \\ I(\nu) &= 4C_s \varepsilon_K^s J_1(\delta_0), \\ I(2\nu) &= 4C_s \theta_K^s J_2(\delta_0) \end{aligned} \quad \dots (2)$$

と表せられる。ここで C_s は比例定数、 $J_n(\delta_0)$ は n 次のベッセル関数をそれぞれ表す。一方、RAE ユニットの図 2(b) のように反射面に対して垂直方向 (x 方向) に固定した場合 ($\chi = 0$) は、従来手法の p 偏光を入射したことに相当するカー回転角と楕円率、 θ_K^p と ε_K^p が、

$$\begin{aligned} I(0) &= C_p \{1 + \theta_K^p{}^2 + \varepsilon_K^p{}^2 + 2\theta_K^p J_0(\delta_0)\}, \\ I(\nu) &= -4C_p \varepsilon_K^p J_1(\delta_0), \\ I(2\nu) &= 4C_p \theta_K^p J_2(\delta_0) \end{aligned} \quad \dots (3)$$

という式から得られる。ここで C_p は p 偏光に対する比例定数である。式(2)と(3)の詳細に関しては原著論文 [17]を参照していただきたい。本研究では、式(1)における偏光変調は交流電流 25 ± 0.588 A を周波数 $\nu = 12.987$ Hz で印加して実現させた。交流電流の振幅 0.588 A が $\delta_0 = \pi/2$ に対応し、左右の円偏光を作る。

本研究では測定試料として、マグネトロンスパッタ法で作成した、Ta/Cu/Fe/MgO(001)ヘテロ構造試料を用いた。Ta、Cu、Fe の厚みはそれぞれ 2、2、30 nm であり、Ta/Cu は Fe の酸化を防ぐためのキャップ層である。この埋込 Fe 薄膜は面内に容易磁化方向を持ち、図 2(a) に示す y 軸方向に飽和磁場以上の $B = \pm 0.3$ T の外部磁場を超伝導マグネット で印加した。変調軟 X 線の入射角 ϕ_i は yz 平面内で試料の面直方向から約 80° とした。試料温度は室温である。

3. 結果と考察

変調軟 X 線を用いた Fe L 殻吸収端における L-MOKE 測定結果を図 3 に示す。 s 偏光、 p 偏光を入射したことに相当するカー回転角と楕円率のスペクトルがそれぞれ得られた。絶対値は実際の光の偏光度を考慮して校正している。 L_3 、 L_2 殻吸収端近傍に構造が見られ、カー回転角スペクトルは従来手法で測定した先行研究結果を再現している^[16]。さらに、新しい測定手法では、RAE ユニットの回転する必要がなくなったため、測定時間の大幅短縮につながり、より詳細なスペクトル構造がより短い時間で得られた。また、カー回転角と楕円率はクラマースクローニヒの関係で結ばれており、それを反映した、お互いの微分形のスペクトルを示していることが見て取れる^[2,18]。ここで、 s 偏光、 p 偏光を入射した時の L-MOKE は以下の式で表現される^[2]。

$$\theta_K^s + i\varepsilon_K^s = -\frac{r_{ps}}{r_{ss}} \approx -\frac{in_0 n Q \cos \phi_i \tan \phi_t}{(n^2 - n_0^2) \cos(\phi_i - \phi_t)} \quad \dots (4)$$

$$\theta_K^p + i\varepsilon_K^p = -\frac{r_{sp}}{r_{pp}} \approx -\frac{in_0 n Q \cos \phi_i \tan \phi_t}{(n^2 - n_0^2) \cos(\phi_i + \phi_t)} \quad \dots (5)$$

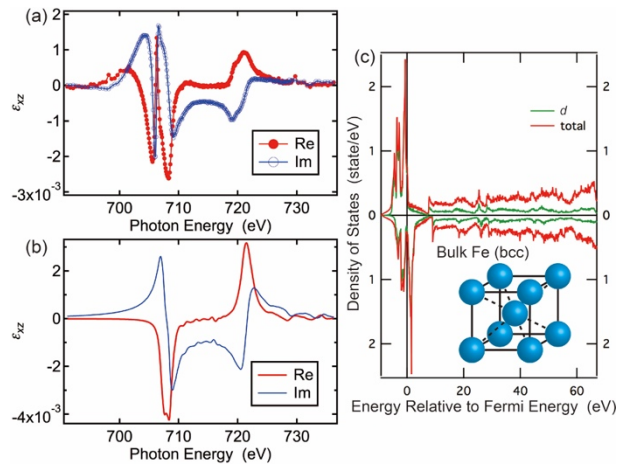


図 3 (a) 埋込 Fe 薄膜の L 殻吸収端における ε_{xz} スペクトル。赤丸と青丸は ε_{xz} の実部と虚部をそれぞれ表す。(b) 第一原理計算により得られたバルク Fe(bcc) の L 殻吸収端における ε_{xz} スペクトル。赤線と青線は ε_{xz} の実部と虚部をそれぞれ表す。(c) 第一原理計算から得られたバルク Fe(bcc) の状態密度。赤線と緑線は全状態の状態密度と d 電子状態の状態密度をそれぞれ表している。図の上半分が majority スピン、下半分が minority スピンの状態密度である。バルク Fe(bcc) の結晶構造を挿入図にて表す (文献 17 の Fig.3 からの転載)。

式中の、複素フレネル係数 r_j は入射光の j 偏光電場と反射光の i 偏光電場の比率である。また、 n と n_0 はそれぞれ磁性 Fe 薄膜とキャップ層 (Ta/Cu) の複素屈折率であり、 ϕ_i は屈折角を表す。今回のように ϕ_i が大きく ($70^\circ \leq \phi_i \leq 90^\circ$)、 $\phi_r \approx \phi_i$ と近似できる時、分母の余弦関数により s 偏光入射と p 偏光入射でカー回転角と楕円率の符号が反転する^[8,15,16]。図2を見ると、確かにそのような振る舞いをしているのがわかる。磁気光学の情報、式(4)と(5)内に現れているフォークトパラメータ Q に含まれる。この Q は物質の基本的な固有パラメータである複素誘電率テンソルの 2 成分の比で表すことができる。

$$Q = i \frac{\epsilon_{xz}}{\epsilon_{xx}} \dots (6)$$

ここで、磁場を y 方向に印加した (L-MOKE) 時の誘電率テンソルは、

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & \epsilon_{xz} \\ 0 & \epsilon_{yy} & 0 \\ -\epsilon_{xz} & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \dots (7)$$

と表せられる。対角成分 ϵ_{xx} は磁性情報を持たず、 $\epsilon_{xx} = n^2$ で与えられる。それに対して、非対角成分 ϵ_{xz} が磁気光学特性を表し、磁性を議論する上で重要な物理量となる。式(4)–(6)から、測定条件 ϕ_i と ϕ_r 、磁性に依存しない n と n_0 の値がわかれば、カー回転角と楕円率から ϵ_{xz} を求めることができる^[19,20]。図3に本研究で得られたカー回転角と楕円率の結果から求めた ϵ_{xz} のスペクトルを実部虚部ともに示す。 ϵ_{xz} の実部、虚部の間にもクラマースクローニヒの関係が成り立つため、スペクトルがそれを反映した微分の関係になっていることがわかる。さらに、第一原理計算で求めた ϵ_{xz} のスペクトルと比較を行った。この計算では、KKR-CPA-LDA パッケージの Machikaneyama (AkaiKKR) を使用し、バルクの Fe(bcc) に対する ϵ_{xz} スペクトルを KKR グリーン関数法から計算した^[21]。電子構造は密度関数理論の局所密度近似 (local-density approximation, LDA) の枠組みで求め、相対論的効果は内殻電子及び価電子ともに考慮している。計算手法の詳細は先行研究を参照していただきたい^[22]。その計算結果を図3(b)に示す。スペクトルの絶対値、形状ともに実験値と良い一致を示しているのがわかる。つまり、本研究で新

たに開発した測定手法と、本計算手法が、物質の最も基本的なパラメータである複素誘電率テンソルを軟 X 線領域で求めるのに大変有用であると言える。実験値では 706 eV 辺りで ϵ_{xz} の実部のピークと、虚部のディップが確認できる。これは、先行研究から薄膜における干渉効果であると言われており^[7,8,16]、バルクに対する計算スペクトルで見られないことから、試料の形状に由来するスペクトル構造であると考えられる。その詳細は今後他の厚みの試料も測定することで明らかにしていきたい。

4. 結論

本研究において、SPRING-8 BL07LSU の分割型クロスアンジュレータの特性を十分に活かし、偏光が連続的に変調する軟 X 線光源を世界で初めて開発した。そして、その光を使って、光学遅延変調法を使った共鳴 MOKE 測定を埋込 Fe 薄膜に対して実施し、L 殻吸収端におけるカー回転角と楕円率の両スペクトルが得られた。磁気光学効果の 2 つのパラメータである、MCD と磁気旋光性が同時測定できたことで、物質の基本パラメータである誘電率テンソルを求め、第一原理計算とも良い一致を示すことができた。本研究で新たに開発した磁性測定手法は、1) 軟 X 線を用いることで元素選択性を持つ、2) photon-in photon-out のバルク敏感な測定である、3) 特定の周波数を抽出することで高感度に磁性測定ができる、そして、4) 誘電率テンソルが決定できる、という特長を持っている。特に、4) の誘電率を求められるということは、物質中の電子構造や光学遷移を軟 X 線のエネルギースケールで考察できるようになる。さらに、光学素子を設計する上でも有用な情報を与え、高次高調波レーザーや放射光技術の発展に大いに貢献できると期待している。

謝辞

本稿で紹介した研究結果は、松田巖氏、赤井久純氏、田中隆次氏、辛埴氏、原田慈久氏、和達大樹氏、角田匡清氏、平田靖透氏、田口宗孝氏、宮脇淳氏、山本達氏、保原麗氏、藤澤正美氏、山本真吾氏、山本航平氏、染谷隆史氏、田久保耕氏、横山優一氏、荒木実穂子氏、金城良太氏、鏡畑曉裕氏、清家隆光氏、竹内政雄氏、小飼真

人氏、大門寛氏、成田尚司氏、高橋良暢氏らを始めとする多くの研究者との共同研究や有益な議論に寄っている。この場をお借りして感謝申し上げる。また、本研究は文科省の「X線自由電子レーザー重点戦略研究課題」と「光・量子融合連携研究開発プログラム」にて実施された。また、光科学技術研究振興財団、ひょうご科学技術協会、科学技術振興機構の科学研究費基盤研究(C) (科研費番号:26400328)、東京大学フotonサイエンス・リーディング大学院(ALPS)より助成を受けた。実験は東京大学放射光分野融合国際卓越拠点及び東京大学物性研究所の共同利用(Spring-8の課題番号:2014A7401、2014B7401、2014B7473、2015A7401、2015B7401、2016A7403、2016A7504、2016B7403)にて行われた。

参考文献

- [1] 佐藤勝昭: 光と磁気 改訂版 (朝倉書店、2001)
- [2] P. M. Oppeneer: *Handbook of Magnetic Materials* **13** (Elsevier, Amsterdam, 2001).
- [3] K. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.* **20** (1981) 2403-2409.
- [4] K. Sato, H. Kida and T. Kamimura: *J. Magn. Soc. Jpn.* **11** (1987) 113-116.
- [5] C. T. Chen *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995) 152.
- [6] J. B. Kortright and S.-K. Kim: *Phys. Rev. B* **62** (2000) 12216.
- [7] H.-C. Mertins *et al.*: *Phys. Rev. B* **69** (2004) 064407.
- [8] S. Valencia *et al.*: *Phys. B Condensed Matter* **345** (2004) 189-192.
- [9] J. B. Kortright: *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **189** (2013) 178.
- [10] M. F. Tesch *et al.*: *Appl. Opt.* **52** (2013) 4294-4310.
- [11] S. Yamamoto *et al.*: *J. Synchrotron Radiat.* **21** (2014) 352-365.
- [12] L. L. Landau and E. M. Lifshitz: *Electrodynamics of Continuous Media* **8** (Pergamon, Elmsford, NY, 1960).
- [13] B. Donovan and T. Medcalf: *Proc. Phys. Soc.* **86** (1965) 1179.
- [14] I. Matsuda *et al.*: *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **767** (2014) 296-299.
- [15] Y. Kubota *et al.*: *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.* **220** (2017) 17-20.
- [16] Y. Kubota *et al.*: *Phys. Rev. B* **96** (2017) 134432.

- [17] Y. Kubota *et al.*: *Phys. Rev. B* **96** (2017) 214417.
- [18] J. Kunes *et al.*: *Phys. Rev. B* **64** (2001) 174417.
- [19] H.-C. Mertins *et al.*: *J. Magn. Magn. Mater.* **240** (2002) 451-453.
- [20] L. Henke, E. Gullikson and J. C. Davis: http://henke.lbl.gov/optical_constants/
- [21] H. Akai: <http://kkrissp.u-tokyo.ac.jp>
- [22] H. Akai: *J. Phys: Condens. Matter* **1** (1989) 8045.

久保田 雄也 KUBOTA Yuuya

(公財) 高輝度光科学研究センター XFEL 利用研究推進室
〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1
TEL : 0791-58-0992
e-mail : kubota@spring8.or.jp