専用ビームラインの研究から ~BL07LSU(東京大学)~

放射光軟X線の偏光を利用した磁性研究

東京大学 物性研究所 松田 巌、久保田 雄也、田久保 耕、山本 達 平田 靖透、宮脇 淳、原田 慈久、和達 大樹

Abstract

東大物性研ビームライン SPring-8 の BL07LSU の放射光軟 X線光源において、偏光を高速な周期 (10-30~Hz)で変化させる偏光スイッチングを利用し、ロックイン検出によって X 線磁気光学測定を行った。偏光スイッチングを用いると、多層膜ミラーと軟 X 線検出器を真空チャンバー内で回転させることなく、X 線磁気カー回転角を得ることができ、鉄の薄膜で得られた結果は第一原理計算により再現されている。このように偏光スイッチングによる X 線磁気光学カー効果と X 線磁気円二色性の測定に成功し、従来では測定が困難であった微弱な信号を持つ磁性体に対しても X 線磁気光学測定によってその磁気的性質を明らかにできるようになった。さらには時間分解 X 線磁気円二色性測定にも成功し、今後の系統的な磁性体のスピンダイナミクス研究につながる結果が得られた。

1. はじめに

物質科学は、物性物理学と化学の融合領域にある基礎学問として重要であるだけでなく、今後の環境にやさしい未来型の省資源社会を構築するために不可欠である。これまでの20世紀の物質科学は、物質内の電子の自由度のうち電荷を用いるものが主流であり、これが半導体などのエレクトロニクスであった。21世紀に入り、電子の自由度のうちスピンを用いるスピントロニクスが大いに研究されている。スピンは電荷と違い散逸が少ないことから、ロスの少ない輸送が物質内で実現し、省エネルギーに貢献することが大いに期待されている。

スピントロニクスにおいて常に問題となるのは、磁気秩序状態をどのように観測するのか、である。我々は、放射光 X 線を用いた磁気光学効果による磁性研究を推進している。特に、軟 X 線を用いた X 線磁気円二色性(XMCD)や X 線磁気光学カー効果(XMOKE)の測定により、磁性材料の主役である 3d 電子系遷移金属やその化合物に対し、吸収端のエネルギーを使うことで元素ごとに磁性の情報を得ることを目指している。

これらの手法では、弱強磁性体や希薄磁性半導体のような磁化の小さい試料を測定する際に精度の点で大きな困難を抱えている。例えば、XMCD は軟 X 線の元素吸収端近傍における吸収もしくは反射の、互いに偏光状態が異なる入射光に対するスペクトルの差分をとるという形でスペクトルを得るため、その差分が微小である場合には精度を上げるのが難しくなる。また XMOKE についても偏光の回転角が微小である場合には測定は困難となる。

本研究ではこれらの問題を解決するため、東大物性研ビームライン SPring-8 の BL07LSU の放射光軟 X線光源において、偏光を高速な周期(10-30 Hz)で変化させる偏光スイッチングを利用し、ロックイン検出によって X線磁気光学測定を高精度で行うことを目指した。これにより、従来では測定が困難であった微弱な信号を持つ磁性体に対しても X線磁気光学測定によってその磁気的性質を明らかにできるようになり、物質中の電子の振る舞いの解明という基礎物理学の進展へ寄与できる。さらに、応用においても次世代のデバイス開発にとって不可欠なスピントロニクスの発展につながる研究である。

2. SPring-8の BL07LSU における軟 X 線の偏光制御

東大物性研ビームラインである SPring-8 BL07LSU^{III}では、挿入光源として図 1(a)-(c)に示すク ロス型アンジュレータを用いている。図 1(a), (b)に示 すように、これは水平直線偏光用の figure-8 アンジュ レータと垂直直線偏光用の figure-8 (figure-∞) アン ジュレータという 2 つのタイプのアンジュレータか ら成っている。それぞれ電子軌道が8の文字と∞の文 字に似ているためにこのように呼ばれる。図 1(c)に示 すように、4 つの figure-8 アンジュレータと 4 つの figure-∞アンジュレータが交互に並んでいる。水平直 線偏光は4つのfigure-8アンジュレータから、垂直直 線偏光は4つのfigure-∞アンジュレータから作られ、 直線偏光度は 100%である[1]。7 つの位相シフト器が figure-8 と figure-∞のアンジュレータの間に置かれて おり、水平と垂直の電場成分の位相差をつけることが できる。こうして、直線偏光だけでなく左右円偏光、 楕円偏光なども作り出すことができる。

位相シフトとして電磁石コイルからの磁場を使うと、連続的な位相のシフトが実現する。図2に正弦波の交流電流を用いた様子を具体的に示す。図2(a)は位相差の時間変化を示す。軟 X 線の偏光は直線偏光→右円偏光→直線偏光→左円偏光→直線偏光→ …と変化する。このような偏光を持つ軟 X 線を用いて磁気光学

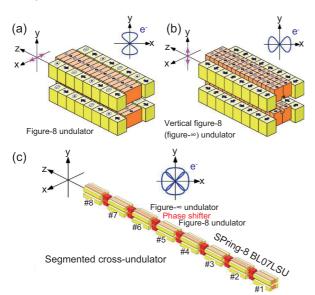


図 1 figure-8 アンジュレータ(a)と、垂直の figure-8 (figure-∞) アンジュレータ(b)の概念図。(c) SPring-8 BLO7LSU のクロス型アンジュレータの概念図。文献[1,2]より。

効果測定を行うと、楕円率が(b)の XMCD により周波数 p の成分として現れ、(c)のカー回転角が周波数 2p の成分として現れる。このようにして、p と 2p 成分の抽出により、楕円率とカー回転角が同時に測定できる。このようなシグナルは、ロックインアンプを含む測定系の確立により、高精度で測定できるようになった。例を次の3章で示す。

3. 偏光スイッチングによる XMOKE 測定

偏光スイッチングによる XMOKE 測定の具体的な 結果について述べる。測定システムは、図3のような 偏光解析装置となる。これは多層膜ミラーと軟 X 線検 出器 (マイクロチャンネルプレート:MCP) から成っている。偏光スイッチングを用いない場合、反射した 軟 X 線の偏光解析は、多層膜ミラーと軟 X 線検出器 を真空チャンバー内で回転させることによって行う。 すなわち、多層膜ミラー (Analyzer) で反射された軟 X 線の強度を軟 X 線検出器 (Detector) を用いて図3中のXの関数として測定することにより、カー回転角 (θ_K) を決定することができる。

ここで、Ta/Cu/Fe/MgO のヘテロ構造に対する測 定結果を示す^[2,3]。マグネトロンスパッタリング法に より MgO(001)基板上に 30 nm の厚さの鉄のナノ薄

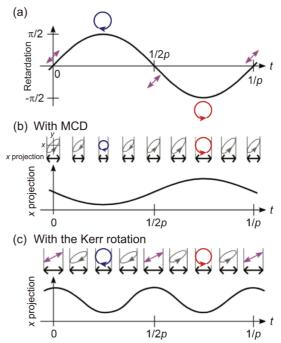


図 2 (a) 位相差の時間変化と軟 X 線の偏光。(b), (c) p 成分が XMCD、2p 成分がカー回転角となる。 文献[4]より。

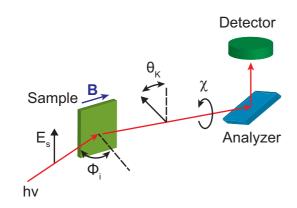


図3 XMOKE 測定の測定システム。文献[3]より。

膜を成長させ、タンタル 2 nm と銅 2 nm を鉄の酸化を防ぐためにつけている。この薄膜は面内が容易磁化軸である。測定には Fe L端近傍の軟 X線エネルギーを用いた。入射 X線のエネルギーは $\text{Fe } L_3$ 端の 709 eV と L_2 端の 722 eV である。図 4に示す結果が得られ、反射 X線の強度依存から、鉄ナノ薄膜のカー回転角は 709 eV で s 偏光の時 18° 、p 偏光の時 14° であり、722 eV で s 偏光の時 7° 、p 偏光の時 6° である。カー回転角は L_3 端と L_2 端で同程度の値を示し、両端で符号が異なる。さらに、s 偏光と p 偏光でも符号が異なる。得られたカー回転角は可視光の場合よりも大きい結果となっている。

偏光スイッチングを用いると、多層膜ミラーと軟 X 線検出器を真空チャンバー内で回転させることなく、2 章で述べたように楕円率が p 成分、カー回転角が 2p 成分として得ることができる。

図 5(a), (b)に得られたカー回転角と楕円率を示す。 得られたカー回転角は最大で 10°程度であり、L端での共鳴の効果により可視光領域の数十倍の大きさとなった。得られた結果は第一原理計算により再現されている。このように、偏光スイッチングによる XMOKE と XMCD 測定に成功した。

4. 時間分解 XMCD 測定

SPring-8 BL07LSU において、軟 X 線の偏光を活用したもう一つの研究が、時間分解 XMCD および共鳴 軟 X 線散乱である。ここでは特に、強磁性を示す合金である FePt 薄膜の時間分解 XMCD を紹介する^⑤、FePt 薄膜は、室温で強磁性を示し、面直方向に磁化が向きやすい垂直磁化膜であるため、基礎的にも応用的にも多

くの研究がなされている。この物質にレーザーを照射 することで磁化を消す消磁のダイナミクスの観測を行 った。

我々は検出器として MCP を用い、部分電子収量法 (PEY) および蛍光法による時間分解 XMCD 測定を 可能とした。MCP は検出面に+電場を印可すると試料から放出される光電子を検出し、一電場を印可する と電子を跳ね返しフォトン (蛍光) を検出することが できる。

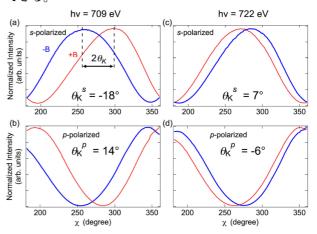


図 4 Fe ナノ薄膜のカー回転角の決定。709 eV の s 偏光(a)と p 偏光(b)、722 eV の s 偏光(c)と p 偏光(d)。文献[2]より。

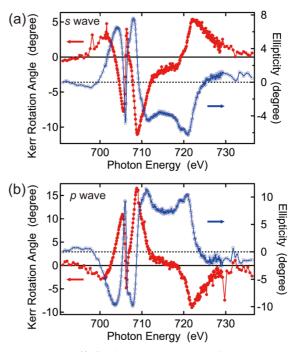


図 5 鉄ナノ薄膜に対する XMOKE 測定。(a)では s、 (b)では p 偏光の入射軟 X 線に対応する。文献 [4]より。

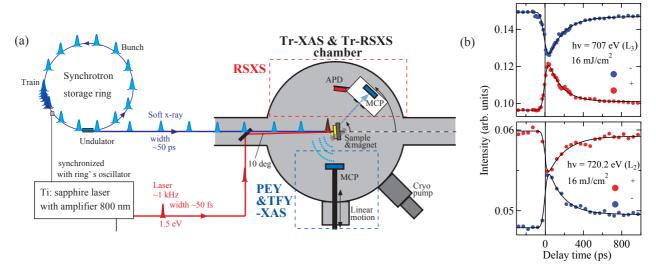


図 6 (a) SPring-8 BL07LSU における時間分解 XMCD および共鳴軟 X 線散乱測定装置。(b) FePt 薄膜の時間分解 XMCD 時間発展プロファイル(上図 Fe L_3 端、下図 L_2 端)。文献[5]より。

図 6(a)に示す実験配置により、時間分解 XMCD 測 定を行った。2θ 回転器上の MCP によって時間分解 共鳴軟 X 線散乱測定を、直線導入器上の MCP によっ て時間分解 XMCD 測定を行うことが可能である。 BL07LSU のレーザーステーションから実験チャンバ ーに放射光と同期したパルス幅 50 fs のチタンサファ イアレーザー (波長:800 nm、エネルギー:1.55 eV) をポンプ光として導入し、ポンププローブ法による時 間分解測定を行った。一方で、SPring-8の単一バンチ 幅は約50 ps であるため、時間分解能も約50 ps とな る。時間分解測定の繰り返し周波数はポンプレーザー の周波数である 1 kHz である。ポンプ光と放射光の遅 延時間は電気的に調整した。遅延回路からの信号をト リガとして、ポンプされた信号をオシロスコープによ って測定した。具体的には、オシロスコープの画面上 で、ポンプされた信号部分の面積を積分することによ って得られる。 測定に用いた FePt 薄膜は、 MgO(100) 基板上に作製された単結晶で膜厚は約50 nm である。

図 6(b)に PEY で測定した XMCD の時間発展を示す。レーザー照射後、50 ps 以内に 90%以上の XMCD が消失し、その後、熱拡散などにより数百 ps の緩和時間で元の状態に緩和していく様子が観察される。消磁の時間スケールは約 50 ps に見えるが、これは放射光の時間幅であり実際にはもっと短いと考えられる。 L。端、L。端でほぼ同じダイナミクスが得られている。

このように、我々は SPring-8 BL07LSU において時間分解 XMCD 測定に成功した。今後の系統的な磁性体のスピンダイナミクス研究につながるものである。 XMCD を用いることにより、総和則でスピンと軌道の角運動量を元素別に抜き出すことなどの実験室光源では得られない研究展開が期待できる。

5. 今後の展望

このように、SPring-8のBL07LSUにおける計8台のアンジュレータにより、軟X線のXMOKEとXMCD測定を確立することができた。XMOKEは直線偏光、XMCDは円偏光を用いた磁性測定手法であり、入射光の偏光が直線偏光でも円偏光でも磁性研究を進めることができる。今後はこの測定を通じ、磁性研究における大きなブレークスルーを、X線の偏光技術の活用によってもたらそうと考えている。

例えば、磁性薄膜のレーザー照射による磁化反転は 興味深いテーマである。磁場を使わないレーザーによ る磁化の制御、特に磁化反転は大変興味深い現象であ る。磁化反転が生じる物質としてフェリ磁性合金 GdFeCo や、Co/Pt、Fe/Pt など強磁性の多層膜などが 発見されているが、その磁化反転機構は未解明である。 本研究で 1 nm 未満の極めて薄い FePt 薄膜と Co/Pt 多層膜の微弱な磁気光学効果を偏光スイッチングによ り検出し、磁化反転物質における膜厚の磁性への影響 を解明したい。そして、偏光スイッチングとレーザー 励起による時間分解測定を組み合わせた新しい測定シ ステムの構築も目指す。

謝辞

本研究の偏光スイッチングの実現には、SPring-8/JASRI グループにお世話になりました。ビームタイムとしては、課題番号 2014A7401、2014B7401、2014B7473、2015A7401、2015B7401、2016A7403、2016A7504、2016B7403、2016B7518 で行われました。

参考文献

- [1] S. Yamamoto, Y. Senba, T. Tanaka, H. Ohashi, T. Hirono, H. Kimura, M. Fujisawa, J. Miyawaki, A. Harasawa, T. Seike, S. Takahashi, N. Nariyama, T. Matsushita, M. Takeuchi, T. Ohata, Y. Furukawa, K. Takeshita, S. Goto, Y. Harada, S. Shin, H. Kitamura, A. Kakizaki, M. Oshima and I. Matsuda: *J. Synchrotron Radiat.* 21 (2014) 352.
- [2] Y. Kubota, Sh. Yamamoto, T. Someya, Y. Hirata, K. Takubo, M. Araki, M. Fujisawa, K. Yamamoto, Y. Yokoyama, M. Taguchi, S. Yamamoto, M. Tsunoda, H. Wadati, S. Shin and I. Matsuda: *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* 220 (2017) 17-20.
- [3] Y. Kubota, M. Taguchi, H. Akai, Sh. Yamamoto, T. Someya, Y. Hirata, K. Takubo, M. Araki, M. Fujisawa, K. Yamamoto, Y. Yokoyama, S. Yamamoto, M. Tsunoda, H. Wadati, S. Shin and I. Matsuda: *Phys. Rev. B* **96** (2017) 134432.
- [4] Y. Kubota, Y. Hirata, J. Miyawaki, S. Yamamoto, H. Akai, R. Hobara, Sh. Yamamoto, K. Yamamoto, T. Someya, K. Takubo, Y. Yokoyama, M. Araki, M. Taguchi, Y. Harada, H. Wadati, M. Tsunoda, R. Kinjo, A. Kagamihata, T. Seike, M. Takeuchi, T. Tanaka, S. Shin and I. Matsuda: *Phys. Rev. B* 96 (2017) 214417.
- [5] K. Takubo, K. Yamamoto, Y. Hirata, Y. Yokoyama, Y. Kubota, S. Yamamoto, S. Yamamoto, I. Matsuda, S. Shin, T. Seki, K. Takanashi and H. Wadati: *Appl. Phys. Lett.* 110 (2017) 162401.

松田 巌 MATSUDA Iwao

東京大学 物性研究所

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3405

e-mail: imatsuda@issp.u-tokyo.ac.jp

久保田 雄也 KUBOTA Yuya

東京大学 物性研究所

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5 (現所属)

(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: 0791-58-0802 ext 3902 e-mail: kubota@spring8.or.jp

田久保 耕 TAKUBO Ko

東京大学 物性研究所

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3405

e-mail: ktakubo@issp.u-tokyo.ac.jp

<u>山本 達 YAMAMOTO Susumu</u>

東京大学 物性研究所

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3405

e-mail: susumu@issp.u-tokyo.ac.jp

平田 靖透 HIRATA Yasuyuki

東京大学 物性研究所

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3405

e-mail: hirata@issp.u-tokyo.ac.jp

<u>宮脇 淳 MIYAWAKI Jun</u>

東京大学 物性研究所

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3405

e-mail : miyawaki@issp.u-tokyo.ac.jp

原田 慈久 HARADA Yoshihisa

東京大学 物性研究所

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3405

e-mail: harada@issp.u-tokyo.ac.jp

<u>和達 大樹 WADATI Hiroki</u>

東京大学 物性研究所

〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5

TEL: 04-7136-3405

e-mail: wadati@issp.u-tokyo.ac.jp

BL07LSUでは東大物性研軌道放射物性研究施設の共同利用を受け入れております。

詳細は、https://www.issp.u-tokyo.ac.jp/maincontents/jointinfo/offering10.html をご覧ください。