

## 「先端軟 X 線共鳴磁気光学法による産業利用スピンドYNAMICS実験技術の開拓」

東京大学物性研究所播磨分室

松田 巖

### 1 研究の背景と目的

最近、オプトスピントロニクス(Optospintronics)など新たな動作原理に基づく技術が研究されている。これらは光と電子スピンを情報の担い手とすることで多様かつ超高速な信号応答を生み出すことができたため、従来のエレクトロニクスに比べて多機能かつ高速な情報処理性能が期待されている。兵庫県播磨には高輝度放射光施設 SPring-8 や X 線自由電子レーザー(XFEL)SACLA といった世界でも珍しい短パルス X 線光源が整備されている。波長が長い領域の X 線は軟 X 線と呼ばれ、その分光実験は物質の構成元素、化学種、電子スピン状態を高感度に測定することができるため、その時間分解測定はオプトスピントロニクスにおける光誘起の電子スピン状態の高速変化を捉えることができる。そして我々はデバイスの中で構成される磁性体マルチ構造での高速スピンドYNAMICSを元素選択的に捉える軟 X 線共鳴磁気光学実験法を開発した。この手法は磁性研究の最も基本的な測定である磁気光学カー効果 (Magneto-Optical Kerr Effect, MOKE) について、そのプローブ光のエネルギーを物質吸収端に合わせたものである。そして光と物質の相互作用の結果共鳴効果(共鳴 MOKE)が発現し、(i)元素選択的かつ(ii)可視光 MOKE 測定の 50 倍の信号感度で材料内の電子スピン状態を調べることができる。そして、これまでに SPring-8 軟 X 線ビームライン BL07LSU において軟 X 線共鳴磁気光学効果を測定し、さらに SACLA の試験器であった SCSS 及び再稼働した SCSS+での軟 X 線ビームラインにおいても共鳴磁気光学効果のフェムト秒時間分解実験に成功して超高速スピンドYNAMICS研究への利用展開を実証してみせた。

そこで、本研究ではこの共鳴 MOKE という新しい測定技術について SPring-8 と SACLA での実験環境を整備して多様な試料に対応できるようにし、さらに解析法を確立することで具体的な成果として発信することを目的とする。さらにこの手法と先端光源の次の可能性を引き出し、新たな分析法の開発にも挑戦する。

### 2 研究方法・研究内容

放射光軟 X 線ビームライン SPring-8 BL07LSU 及び XFEL 軟 X 線ビームライン SACLA BL-1 に我々の実験装置を持ち込み、磁性原子層に対して共鳴磁気光学測定を行った。磁気光学信号の検出はエリプソメトリ法で行い、時間分解測定はポンプ-プローブ法を用いて行った。図 1 に SACLA BL-1 での様子を例として示す。エリプソメトリ法では回転導入器(DPRF)、多層膜ミラー(Multilayer mirror)、光検出器(MCP)から構成されたユニットで、DPRF の回転角に対する検出光強度の変化で磁気光学信

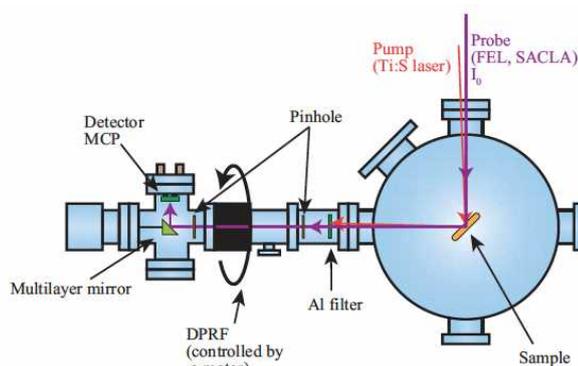


図 1 SACLA BL-1 における共鳴磁気光学効果の時間分解測定の様子。共鳴磁気光学信号はエリプソメトリ法で検出された。時間分解測定はポンプ(Ti:S laser)-プローブ(FEL, SACLA)法で行われた。

号が検出される。

### 3 研究成果

XFEL SACLA BL-1 にて共鳴 MOKE 測定を行い、その解析を行った。数原子層から成る Fe 薄膜に対して、Fe の M 殻吸収端( $h\nu=55$  eV)をプローブ光として用いた。光ポンプ( $h\nu=1.55$ eV)に対する時間変化を測定したところ、図 2 のようになった。照射に対してフェムト秒で消磁し、ピコ秒の時間をかけて緩和していくことができた。遷移金属結晶では超高速消磁現象は知られていたが、本研究によって、わずかに数原子層の Fe 薄膜でも同じように発現することが明らかとなった。時間スケールからその起源は光励起されたホットエレクトロンとマグノンのカップリングによるものと考えられる。本成果は論文にまとめられ、現在投稿中である[成果論文：3]。

放射光 SPring-8 BL07LSU では本助成金を元に共鳴軟 X 線磁気光学効果の実験設備及び解析法を整備した。兵庫県播磨にある本ビームラインには世界唯一のクロスアンジュレータがあり、世界最速かつ連続で軟 X 線の偏光スイッチングをすることができる。そこでこの光源特性を利用した新たな共鳴磁気光学実験法として偏光変調磁気光学法を開発した。図 3 に概略を示すように、本手法では時間周期で変化する軟 X 線偏光に対して磁気光学信号の検出を行うものである。この方法を用いると、磁気光学カー効果と磁気円二色性を同時に測定することができる。両者は相補的な光学応答であるため、これらから光物性の基本量である複素誘電率を求めることができる。歴史上、本手法が軟 X 線

となった。図 4 に Fe ナノ薄膜に対して行った測定結果を示す。複素誘電率の実部(Re)と虚部(Im)が求まり、互いに Kramers-Kronig の関係を満たしていることが分かる。本研究成果は第一原理計算によるシミュレーションと合わせて論文発表した[成果論文：1]。

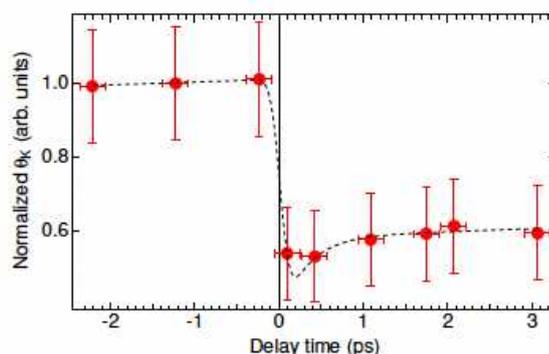


図 2 厚さ 0.35nm の Fe 薄膜におけるフェムト秒時間分解共鳴磁気光学実験お結果。SACLA BL-1 にて行われた。

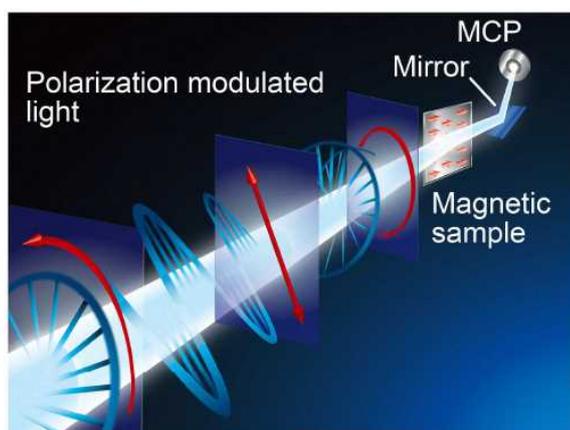


図 3 新たに開発した偏光変調軟 X 線磁気光学実験の様子。

領域で初めてその直接決定ができるもの

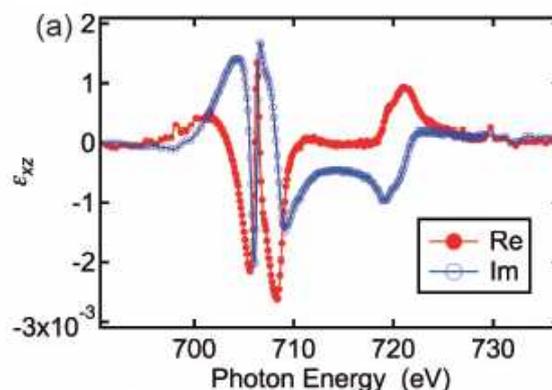


図 4 本手法で決定した Fe ナノ薄膜複素誘電率の軟 X 線エネルギースペクトル。

我々はさらに播磨 SACLA XFEL の新たな可能性を探るため、軟 X 線の非線形光学効果として第 2 次高調波発生(SHG)の研究を行った。SHG は反転対称の破れた結晶や表面/界面で発現することが知られており、本研究ではその光エネルギーとして物質吸収端に対応するものを選択することで、SHG における内殻共鳴効果とそれに伴う元素選択性を調べた。また透過性の悪い軟 X 線特性を配慮し、試料を選ばない反射配置での SHG 信号検出にこだわった。反転対称性の破れた  $\text{GaFeO}_3$  結晶について、 $h\nu=27.5$  eV の入射に対して  $h\nu=55$  eV の SHG 信号検出を行うことができ、世界で初めて軟 X 線反射 SHG の測定に成功した(図 5)。本実験結果は第一原理に基づく電子状態計算を用いた非線形分光シミュレーションで半定量的に再現をすることができた。現在成果について論文投稿中である[成果論文 : 4]。

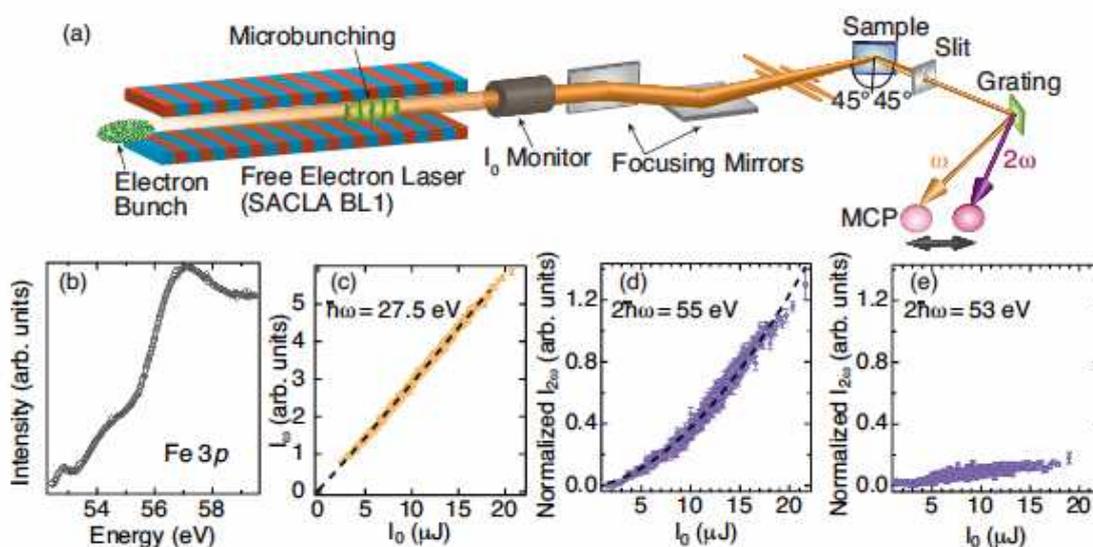


図 5 (a) SACLA BL-1 における第 2 次高調波発生実験の様子。測定試料  $\text{GaFeO}_3$  結晶に対する(b)吸収スペクトル、(c) 反射光強度依存性、(d,e) 第 2 次高調波の強度依存性。各光エネルギーは図中に示す。

軟 X 線非線形光学効果 SHG については、本研究期間中に反転対称の破れた磁性多層膜についても実験を SACLA BL-1 において行った。微弱ながら信号検出に至ったが、再現性の確認及び解析シミュレーションを行って堅実な議論を行う予定である。

### [成果論文]

本学術研究助成による支援で論文成果に至ることができたものを以下に示す。いずれの論文においても謝辞にて本助成へ感謝の意を示している。研究期間中に得られたそのほかの実験結果及び解析データについてもまとめ次第、随時論文発表を行う予定である。

1. 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, Determination of the element-specific complex permittivity using a soft X-ray phase modulator, *Phys. Rev. B* **96**, 214417 (2017).
2. Sh. Yamamoto and I. Matsuda, Measurement of resonant magneto-optical Kerr effect using a free electron laser, *Applied Sciences* **7**, 662 (23 pages) (2017).
3. Sh. Yamamoto, Y. Kubota, K. Yamamoto, Y. Takahashi, K. Maruyama, Y. Suzuki, R. Hobara, M. Fujisawa, D. Oshima, S. Owada, T. Togashi, K. Tono, M. Yabashi, Y. Hirata, S. Yamamoto,

- M. Kotsugi, H. Wadati, T. Kato, S. Iwata, S. Shin, I. Matsuda, Femtosecond resonant magneto-optical Kerr effect measurement on an ultrathin magnetic film at a soft X-ray free electron laser, Jpn. J. Appl. Phys. accepted.
4. Sh. Yamamoto, T. Omi, Y. Kubota, Y. Takahashi, Y. Suzuki, Y. Hirata, K. Yamamoto, H. Yumoto, T. Koyama, H. Ohashi, S. Owada, K. Tono, M. Yabashi, E. Shigemasa, S. Yamamoto, M. Kotsugi, H. Wadati, T. Arima, S. Shin, and I. Matsuda, Resonant enhancement of second harmonic generation at absorption edge from a bulk polar ferrite, Phys. Rev. Lett.**120**, 223902 (2018).

#### 4 生活や産業への貢献および波及効果

これらの研究成果について国内学会や国際会議へ積極的に参加し、有識者との議論を行った。さらに2018年3月12日に研究会「X-ray Optospintronics」を東京大学物性研究所にて主催し、産業とも連携研究を実施している大学及び研究所の有識者らを集めて今後の展望を一緒に検討した。その結果、本課題で達成した磁性材料の評価法は超高速磁性原子層デバイスだけでなく、熱-スピン変換によるエネルギー伝達材料や磁性半導体材料など様々な次世代スピントロニクス材料への展開も大いに期待された。研究シーズ及び開発ニーズに合わせて、今後ナノビーム集光や低温実験技術を組み合わせた手法展開をコミュニティと協力して実施することになった。

本研究助成によって新たな手法が開発され、また多種多様な試料に対していつでも測定できる実験整備も整えることができた。今後も兵庫県播磨が先端計測及び材料評価として世界的拠点となることを確信している。