

新博士紹介

1. 氏名 山本航平 (分子科学研究所物質分子科学研究領域)
2. 論文提出大学 東京大学
3. 学位種類 博士 (理学)
4. 取得年月日 2022年3月1日
5. 題目 Photo-induced spin dynamics of ferro- and antiferromagnetic thin films studied by synchrotron radiation
(放射光でみる強磁性・反強磁性体薄膜の光誘起磁気ダイナミクス)
6. 使用施設 SACLA (BL3, BL1), SPring-8 (BL07LSU, BL19LSU), BESSY II (Femtopsex), Photon Factory (BL-16A, BL-19B)

7. 要旨

強磁性・反強磁性体薄膜の光照射時には、消磁や磁化の反転などの様々な現象が生じる。これらの現象は、相異なる磁性サイトや電子、格子などの自由度が絡む1 ps以内の超高速な現象であり、その学問的研究価値がある。さらに、非接触での磁性制御が低エネルギーで高速に実現できる可能性があることから、技術的応用の側面からも重視されている。これらの超高速なダイナミクスは実験室レーザーで精力的に研究されている一方、元素選択的な手段による測定や数 nm 程度の反強磁性秩序構造に対する回折の時間分解測定は限定的である。本研究では光誘起磁化反転を示す3dとPtの金属の強磁性合金薄膜および反強磁性を示す鉄ペロプスカイト薄膜における光誘起磁性ダイナミクスを調べるため、X線自由電子レーザーを含む放射光X線光源からえられる短パルス光を用いたポンププローブ法による時間分解測定および実験装置の開発を行った。

3dおよび5d元素からなる強磁性合金薄膜は、高い垂直磁気異方性やフェリ磁性体薄膜で見出されていた光誘起の磁化反転を示すことから強い注目を集めている。複数の磁性元素を含む強磁性体における超高速磁化ダイナミクスの詳細を解明するためには、個々の元素の磁気モーメントのダイナミクスを追跡する必要がある。3d元素の光誘起ダイナミクスはそのL吸収端における軟X線での時間分解X線磁気円二色性により調べられているが、5d元素についてはそのL吸収端は硬X線領域にあるため、ことなる実験装置を要することから未解明であった。X線自由電子レーザー施設SACLAにある硬X線ビームラインにおいて、時間分解X線磁気円二色性測定装置を立ち上げた。本装置はダイヤモンドX線移相子を用いて発生させた円偏光X線を試料に入射し、蛍光X線を検出することで測定を行うものである。X線パルスのジッタ補正などを組み合わせることにより、1 ps以内に起きる磁気ダイ

ナミクスを捉えられるようになった。我々は、光誘起磁化反転を示すことが報告されている強磁性FePt薄膜に着目して、5d金属Ptの超高速消磁ダイナミクスを、円偏光硬X線を用いて初めて観測した¹⁾。Pt L吸収端での時間分解X線磁気円二色性測定結果と、全体の磁化を反映する可視光での時間分解磁気光学カー効果の測定結果をFig. 1に示す。FePt薄膜中のPtのレーザー誘起減磁の時間スケールは、PtのL吸収端での測定により $\tau_{Pt} = 0.61$ psと決定され、可視光での測定により全磁化の減衰時間は $\tau_{total} < 0.1$ psであることがわかった。また、ポンプ-プローブ間の遅延時間が1 psを超えると、3dと5dの磁気モーメントの比が光によって変調される過渡的な磁気状態が観測された。

硬X線磁気円二色性は5d元素の磁気情報を直接的かつ詳細に得ることができるが、重要な磁性元素グループである3d元素へアプローチすることは、適当な元素吸収端が硬X線領域に存在しないため難しい。極端紫外領域には5dのN吸収端や3d金属のM吸収端が存在するため、これらの元素を同時に測定することが可能である。我々は同じSACLAにある極端紫外光を供給するビームラインにおいて時間分解X線磁気光学カー効果測定を準備して実

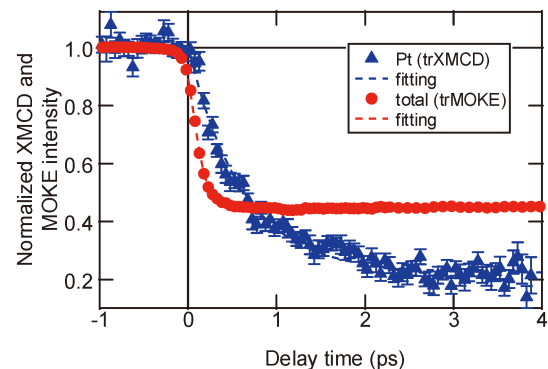


Fig. 1 (Color online) Photo-induced Pt magnetization dynamics (blue) revealed by time-resolved x-ray magnetic circular dichroism measurements and total magnetization dynamics (red) revealed by magneto-optical Kerr effect measurements¹⁾.

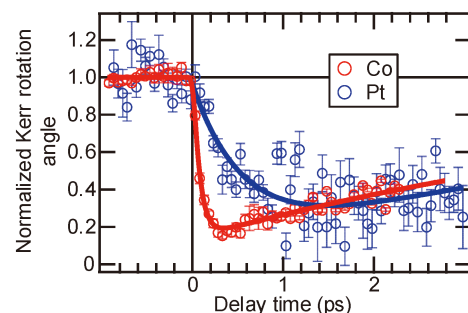


Fig. 2 (Color online) The magnetization dynamics of Co (red) and Pt (blue) elements measured with time-resolved magneto-optical Kerr effect experiment²⁾.

験を行った²⁾。強磁性体である Co/Pt 薄膜の光誘起磁化ダイナミクスを Pt N 吸収端および Co M 吸収端での共鳴 X 線極磁気光学カー効果測定によって調べることにし、元素固有の情報を得ることができた。その結果を Fig. 2 に示す。光消磁の時定数の元素依存性が得られ、Pt は $\tau_{\text{Pt}} = 0.64 \pm 0.14$ ps, Co は $\tau_{\text{Co}} = 0.08 \pm 0.06$ ps と決定された。この結果は、上述した Pt L 吸収端での時間分解 X 線磁気円二色性測定結果と一致している。この結果は、Co および Pt の磁化ダイナミクスが、Co/Pt 薄膜における特徴的な光誘起現象と関連していることを示している。

強磁性体のみならず、反強磁性体の光誘起ダイナミクスも注目されている。反強磁性体は、そのマクロな磁化が消失していることにより、より高いエネルギー効率で超高速の光誘起磁化ダイナミクスを示すことが期待されている。本論文では、反強磁性・らせん磁性を示す鉄ペロブスカイト酸化物薄膜における光誘起磁化ダイナミクスを調べた³⁾。

$\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ 薄膜は、電荷不均化を伴う整合的な反強磁性秩序を示し、一方、 $\text{SrFeO}_{3-\delta}$ 薄膜は、Fe イオン間の強磁性結合の増加により非整合的な強磁性秩序を示す。どちらの物質も反強磁性相と同時に高い価数の Fe を持つ。反強磁性体はマクロな磁化が消失しているため、直接的な観測手段は限られる。反強磁性秩序を直接的に観測可能な手段である共鳴軟 X 線散乱は、内殻吸収により限られた試料体積の薄膜の測定が可能であり、X 線パルスを用いることにより時間分解測定が可能であるという特長をもっている。Fe L 吸収端での $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ および $\text{SrFeO}_{3-\delta}$ 薄膜に対する時間分解共鳴軟 X 線散乱法による測定を行った。これにより、反強磁性秩序の光誘起状態の時間発展を直接検出した。実験は BESSY II においてレーザースライシングによる短パルス X 線が得られるビームラインで行った。

$\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ 薄膜の反強磁性磁気秩序のレーザー照射による消失は、 $\text{SrFeO}_{3-\delta}$ 薄膜に比較して低いレーザーフルエンスで引き起こされることが見出された。さらに $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ 薄膜に対して時間分解能 130 fs での測定を行ったところ、変化はおよそ 100 fs 以内に引き起こされることが分かった。 $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ 薄膜での結果を Fig. 3 に示す。この現象の機構として、Fe 原子間の電荷移動とそれに続く磁気的相互作用の結果として理解できることを提案した。

博士論文では、強磁性体、反強磁性体に対して自由電子レーザーを含む放射光 X 線光源から得られる X 線パルスを用いて光誘起磁気ダイナミクスを調べた。放射光のパル

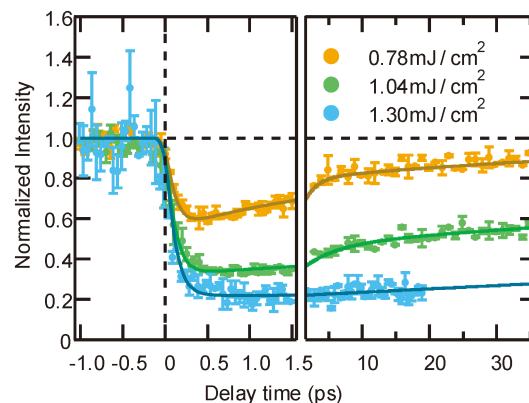


Fig. 3 (Color online) The time-evolution of the diffraction peak intensity of antiferromagnetic $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ thin films obtained by time-resolved soft x-ray diffraction measurement³⁾.

ス性と光子エネルギーの可変性を駆使することにより利用可能となる、元素選択的測定、磁気秩序の直接的測定により新規な光誘起過渡の状態を見出した。強磁性体 FePt, Co/Pt 薄膜はレーザーによる磁化反転などが報告されている物質であり、これらの現象の機構の理解に寄与しうる。高い価数を持つ Fe を含む反強磁性体の超高速な磁気秩序の消失は高エネルギー効率での超高速な反強磁性秩序の光による変化の可能性を示す。本論文で得られた強磁性・反強磁性体の光誘起ダイナミクスに関する情報は磁性体の光制御方法の開発に有用な示唆を与える。また同時に今回新たに実証された X 線自由電子レーザーを用いた磁化の時間分解測定手法は、光誘起磁気ダイナミクスの研究に有用であろう。

参考文献

- 1) K. Yamamoto, Y. Kubota, M. Suzuki, Y. Hirata, K. Carva, M. Berritta, K. Takubo, Y. Uemura, R. Fukaya, K. Tanaka, W. Nishimura, T. Ohkochi, T. Katayama, T. Togashi, K. Tamasaku, M. Yabashi, Y. Tanaka, T. Seki, K. Takanashi, P. M. Oppeneer and H. Wadati: *New J. Phys.* **21**, 123010 (2019).
- 2) K. Yamamoto, S. E. Moussaoui, Y. Hirata, S. Yamamoto, Y. Kubota, S. Owada, M. Yabashi, T. Seki, K. Takanashi, I. Matsuda and H. Wadati: *Appl. Phys. Lett.* **116**, 172406 (2020).
- 3) K. Yamamoto, T. Tsuyama, S. Ito, K. Takubo, I. Matsuda, N. Pontius, C. Schüßler-Langeheine, M. Minohara, H. Kumigashira, Y. Yamasaki, H. Nakao, Y. Murakami, T. Katase, T. Kamiya and H. Wadati: *New Journal of Physics* **24**, 043012 (2022).