■第27回日本放射光学会奨励賞受賞研究報告

軟 X 線の回折・散乱を利用した計測手法の開拓による先端的 磁性研究

石井祐太 (東北大学理学研究科)

1. はじめに

軟X線は、その波長領域に3d電子や4f電子を含む元素のX線吸収端が数多く存在することから、固体物性研究に頻繁に用いられている。特に磁性研究においては、X線吸収端での共鳴現象を利用したXMCD(X-ray magnetic circular dichroism)等の手法が確立しており、電子のスピンや軌道モーメントを調べる、強力な磁気プローブである。従って、軟X線を駆使し、新たな磁気プローブ手法の開拓を行うことは、今後の物性研究や放射光利用研究において、非常に重要であろう。本稿では、筆者らが最近取り組んだ、軟X線領域の光渦の観測手法の確立と磁気プローブへの応用に関する研究を紹介したい^{1,2)}。

光渦は,波面がスパイラルに回転しながら進行する光の 状態であり,特に可視光分野で盛んに研究が行われてい る。光渦は波面の回転により,以下の極めて特異的な2 つの性質を持つ。i)光子の回転に起因して,光が軌道角 運動量を持つ。ii)スパイラルな位相分布を持ち,その中 心には台風の目のように,位相が定義できない位相特異点 が現れる。これらの性質を利用して,光カッターや超高空 間分解能顕微鏡等の応用が提案されている^{3,4)}。軟X線領 域においても,ヘリカルアンジュレータやスパイラルゾー



Fig. 1 (Color online) Schematic view of (a) vortex wave generated by fork grating, (b) Experimental setup of Inline holography, and (c) spiral phase of *l*=3 vortex wave.

ンプレートを利用した光渦生成が報告されてきた^{5,6)}。更 に近年では、フォーク形状をした回折格子(FG: Fork grating)(詳細は後述)により、回折光としての軟 X 線光 渦の生成も報告された⁷⁾(Fig. 1(a))。一方で、軟 X 線光 渦を磁気プローブに積極的に応用する研究は、これまでほ とんど行われていない。上述した光渦の特徴的な性質を利 用することで、これまでに無い新奇な磁気プローブ手法が 期待できる。

光渦をプローブとして利用するためには、その特徴の一 っでもあるスパイラルな位相分布の可視化が非常に重要で あろう。しかしながら、通常、実験で得られる強度は構造 因子の絶対値の2乗であり($I = |F|^2$: Fは構造因子),位 相情報は失われてしまう。そこで、本研究では、干渉効果 を利用した Inline Holography 測定系を構築し、FGから 回折光として生成される軟X線光渦の位相分布の可視化 と、その定量的な評価手法の確立を目指した。

2. Inline Holography を用いた軟X線光 渦の観測

Inline Holography 測定の概要を, Fig. 1(b)に示す。本手 法では,X線はまずフレネルゾーンプレート(FZP)によ り集光される。集光点を過ぎ,X線が発散する途中でFG を設置し,更に下流にCCDカメラを設置する。CCDカ メラには,FGからの回折光だけで無く,FGの周りを透 過したダイレクトビームが届き,回折光とダイレクトビー ムの干渉パターン(ホログラム)が観測されることになる。 このホログラムには,回折光の位相情報が含まれており, これを抽出することで,光渦の位相分布が得られる。

実験結果に入る前に, FG から生成される光渦について 記述しておこう。FG の透過パターンは次の式で表され る⁷⁾。

$$t = \frac{1}{2} (1 + \operatorname{sgn}[\sin(\varphi)]), \qquad (1)$$

$$\varphi(\rho, \phi) = \frac{2\pi}{d} \rho \cos (\phi) + b\phi.$$
 (2)

ここで、(ρ , ϕ)は、FGの動径方向とアジマス方向の座標、 *d*はFGの格子のピッチである。ここで、変数 φ をFGの 位相と便宜的に呼べば、 φ の第2項はアジマス方向に一周

放射光 Mar. 2023 Vol.36 No.2 ● 101

する間に, FG の位相が b 回回転することを表している (ちなみに第1項は,通常の回折格子パターンを表す)。 この回転数 b を,ここでは FG のトポロジカル数と呼ぼ う。また,このような回転する項を内在する構造は,トポ ロジカル欠陥構造とも呼ばれる。Fig. 1(a)に描かれている FG は, b=1 のものである。

トポロジカル数bの FG に通常の(光渦では無い)光を 入射した場合,n次の回折光の波動関数 u_n は以下の式で 表される(詳しくは,文献¹⁾に記した)。

$$u_n(\rho_n,\phi_n) \propto J_{nb}(\rho_n) \exp(inb\phi_n). \tag{3}$$

ここで、 (ρ_n, ϕ_n) は回折光の中心から測った動径方向とアジマス方向の座標、 J_{nb} はnb次の第一種ベッセル関数である。式(3)には位相因子として $\exp(inb\phi_n)$ が付いており、波動関数の位相がアジマス方向に一周する間にnb回回転することを表している。この位相の回転数lを、ここではTopological Charge (TC)と呼ぶことにすると、TC は次の式で求められる。

$$l = \frac{1}{2\pi} \oint_C \nabla \theta \cdot dr.$$
 (4)

ここで、 θ は光の位相分布、Cは位相中心を取り囲むアジ マス方向への閉曲線である。式(4)に $\theta = nb\phi_n$ を代入すれ ば、l = nbが確認できる。例として、l = 3の場合の位相分 布を Fig. 1(c)に示しておく。アジマス方向に一周する間に 位相が3回回転していることが分かる。重要な点は、FG の回折光の TC は、もとの回折格子のトポロジカル数bを 含んでいることである。

実験結果に移ろう。Inline Holography 実験は KEK-Photon Factory BL-13A, 16A にて行なった。Fig. 2(a)に, b=1の FG に対して得られたホログラム画像を示す。干 渉縞が見えている円形の強度分布は, $n=\pm 1$ の回折光と ダイレクトビームの干渉強度であり,明瞭な干渉パターン が確認できる。干渉強度は,回折光とダイレクトビームの 波動関数を,それぞれ, u_s , u_d と書けば,

$$I = |u_s|^2 + |u_d|^2 + u_s u_d^* + u_s^* u_d$$
(5)

と表され, 第3項と第4項が干渉項(*Iinter*)である。Inline Holographyの実験配置に即して*Iinter*を計算すると, 以下の表式になる(詳しくは文献¹⁾)。

$$I^{inter} \propto |J_n'| \sin(kR_2 + nb\phi_n + \alpha_n), \qquad (6)$$

$$J_n'(\rho_n) = \int_0^a e^{if_0\rho^2} \rho J_n(\rho_n \rho) \,\mathrm{d}\rho \equiv |J_n'(\rho_{fn})| \,e^{i\alpha_n},\tag{7}$$

$$R_{2} = \frac{z_{1}}{2z_{2}(z_{2} - z_{1})} \left\{ \left(x_{2} - \frac{z_{2}}{z_{1}} x_{f} \right)^{2} + \left(y_{2} - \frac{z_{2}}{z_{1}} y_{f} \right)^{2} \right\}.$$
 (8)

ここで, (x_f, y_f, z_1) は FG の中心の座標, (x_2, y_2, z_2) は検 出機の位置, kは光の波数, f_0 は z_1, z_2, k で表される関数 である¹⁾。式(6)を見れば, 干渉強度には位相の回転項 $nb\phi_n$ が潜んでいる事が分かる。次に光渦の位相分布を抽 出する方法を考える。用いるのは,空間周波数フィルタリ ングと呼ばれる方法である。強度画像 I をフーリエ変換す ると以下のように, DC 成分 (G^{DC}) と AC 成分 ($G^{AC\pm}$) に分離できる。

$$F[I] \equiv G^{DC} + G^{AC+} + G^{AC-}.$$
(9)

ここで,式(6)の干渉項は,ホログラム画像に干渉縞が観 測されていることからも分かる通り,画像水平報告のAC 成分に含まれている。そこで,G^{AC+}の項だけを取り出 し,逆フーリエ変換をすると,

$$F^{-1}[G^{AC+}] = C |J_n'| e^{i(nb\phi_n + \alpha_n)} e^{-ikR_2}$$
(10)

と書ける。式(10)の余分な因子である e^{-ikR2}(正確には, 回折光とダイレクトビームの位相差を表す因子)を打ち消 す因子 e^{ikR2}を掛けることで,以下で表される光渦の位相 を含めた強度を得る。

$$I_n' \equiv e^{ikR_2} F^{-1} [G^{AC+}] = C |J_n'| \exp(inb\phi_n + i\alpha_n).$$
(11)

このような一連の計算を, $n = \pm 1$ の回折光に対して行な った結果が,**Fig.2(b)**である。得られた強度はリング形状 をしており,これは光渦に特徴的な強度分布である。**Fig. 2(b)**には位相分布も示しており, $n = \pm 1$ で逆向きの,フ ェルマー螺旋形状の位相分布が得られた。更に,それぞれ



Fig. 2 (Color online) (a) Hologram image for $n=0, \pm 1$ diffracted waves. (b) Contours of absolute values and phase distribution of I_n' for $n=\pm 1$ diffracted waves. (c) TC spectra for $n = \pm 1$ diffracted waves.

1 つの位相特異点が存在することが分かる。**Fig. 1(c)**と見た目が異なるのは、式(11)を見ると分かる通り、位相には回転項 $nb\phi_n$ の他に、回折光の発散項 α_n も含まれているためである。このようにして、FG から生成された光渦の位相分布の抽出に成功した。

次に得られた強度分布から,光渦の TC を定量的に評価 する。そのために次で定義される, *L_m*を計算する。

$$L_m \equiv \left| \int_0^{r_{\max}} dr \int_0^{2\pi} d\phi I_n' e^{-im\phi} \right|.$$
 (12)

ここで, (r, ϕ) は, I_n' の位相特異点からの動径方向とア ジマス方向の座標である。式(12)は, I_n' のうち TC が l = mの成分の強度だけを取り出す式になっている。式(12) を用いて, $n = \pm 1$ の回折光に対して得られた TC スペク トルを, Fig. 2(c)に示す。 $n = \pm 1$ のそれぞれで, $l = \pm 1$ にピークを持つスペクトルが得られており, 光渦の TC の 情報を定量的に得ることに成功したと言えよう。

磁気トポロジカル欠陥のダイナミクスに 対する Inline Holography の提案

次に、シミュレーションを通して、本手法の磁性体研究 への応用例を提案する。ターゲットは、ヘリカル磁気構造 等に現れるトポロジカル欠陥の対消滅の観測である。ヘリ カル磁気構造や強磁性体ドメイン構造には、フォーク型の トポロジカル欠陥構造(Edge dislocation とも呼ばれる) が頻繁に現れる^{8,9)}。**Fig. 3(a)**に示すように、これらの符号 が異なる2つの欠陥構造が出会った際に、対消滅を起こ す⁸⁾。これを、本手法を通して観るとどのような結果にな るであろうか。

実験配置はFig. 1(b) と同じであると仮定し, FG を Fig. 3 (a)のそれぞれの磁気パターン(I~VI)に置き換え、ホロ グラム画像を計算した。計算では、XAS に対して XMCD の信号が1割になるように、アップ(ダウン)スピンに 対する X 線吸収を f↑ = 0.55, f↓ = 0.45と仮定した [すなわ ち, $(f_{\uparrow} - f_{\downarrow})/(f_{\uparrow} + f_{\downarrow}) = 0.1$]。例としてパターン (II) に対する n = +1 の回折光のホログラム画像を Fig. 3(b) に 示す。不明瞭ながら、干渉パターンが現れていることが分 かる。この回折光に対し、位相分布を抽出したのが、Fig. 3(b)の挿入図である。2つの位相特異点を持ち、それらの 特異点周りで位相が逆向きに回転していることが見て取れ る。このような光を、光渦と呼ぶかはさておき、それぞれ の磁気パターンに対して n = +1の回折光の位相分布を抽 出し,式(12)を用いて *l*=0,±1 成分の強度をプロットし たのが, Fig. 3(c) である。2 つのトポロジカル欠陥構造が 遠い時(磁気パターン(I))は、*l*=0の光が主であるが、 欠陥構造が近づくと l=0 が減少し、 l= ±1 の成分が増加 する。更に欠陥構造が近づき対消滅が起こると,再び l=



Fig. 3 (Color online) (a) (I)–(VI) Schematic of pair annihilation of the defects. Positive and negative edge dislocations (indicated by arrows in figure (I)) annihilate when they meet. (b) Hologram image calculated for n = +1 diffraction from defect pattern (II). Inset shows phase distribution of n = +1diffraction wave. (c) L_m of $l=0,\pm 1$ for the n = +1 diffraction wave from each defect pattern.

±1の成分が減少し, *l*=0の光が支配的になる。このよう な回折光の位相分布の変化は,測定範囲内(今の場合, Fig. 3(a)のそれぞれの画像範囲)における磁気パターンの トポロジカル数の変化を如実に反映している。従って,磁 性体から散乱される光の位相分布を可視化しその変化を追 うことで,もとの磁性体のトポロジカル欠陥構造のダイナ ミクスを,トポロジカル数という観点から追うことが可能 になり,軟X線光渦を利用したユニークな磁気プローブ として期待できる。

4. おわりに

本研究では、軟X線領域の光渦に着目し、その観測手 法を確立することで、磁性体研究への応用を提案した。更 に、筆者らは最近、放射光のマルチバンチモードを利用 し、時分割 XMCD による磁気ダイナミクスの観測手法の 確立にも着手している。本手法に、この時分割測定を組み 込むことで、トポロジカル欠陥構造のダイナミクスに対す る有効なプローブになると期待できる。

謝辞

本研究は、多くの研究者との共同研究です。特に、学生 時代の恩師である東北大多元研の木村宏之先生や、KEK 物構研の中尾裕則氏,門野良典氏,NIMSの山崎裕一 氏, 東北大理学研究科の若林裕助先生には, 本研究に限ら ず、様々な場面で多くの助言を頂きました。ここに改めて 感謝致します。また実験は Photon Factory にて,課題 2018S2-006, 2019G590, 2019PF-22のもと、行いまし た。また、本研究は、科研費プログラム(JP17K05130, JP19H04399, JP19K23590, JP20K20107, JP20H0445), JST – PRESTO (JPMJPR177A), JST – CREST (JPMJCR1861), MEXT Q-LEAP (JPMXS0118068681) の支援を受けました。

参考文献

- 1) Y. Ishii et al.: PRApplied 14, 064069 (2020).
- 2) Y. Ishii et al.: Sci. Rep. 12, 1044 (2022).
- 3) G. David: Nature 424, 810 (2013).

- 4) Q. Xiaodong et. al.: Opt. Soc. Am. 5, 208 (2018).
- 5) J. Bahrdt et al.: PRL. 111, 034801 (2013).
- 6) A. Sakdinawat and Y. Liu.: Opt. Lett. 32, 2635 (2007).
- 7) J. C. T. Lee et al.: Nat. Photonics 13, 205 (2019).
- A. Dussaux et al.: Nat. Commun. 7, 12430 (2016). 8)
- 9) L. Pamyatnykh et al.: Sci. Rep. 7, 18084 (2017).



石井祐太

東北大学理学研究科 助教 E-mail: yuta.ishii.c2@tohoku.ac.jp 専門:構造物性,磁性体研究 [略歴]

2019年3月 東北大学大学院理学研究科 博士後期課程修了 博士 (理学)。2019 年4月高エネルギー加速器研究機構物 質構造化学研究所 博士研究員。2020年 4月より現職。