

■第27回日本放射光学会奨励賞受賞研究報告

軟 X 線 MOKE 法の開発と物性研究への応用

久保田雄也 (理化学研究所放射光科学研究センター)

1. はじめに

固体は物性物理学の主要な研究対象の一つであり、固体中の格子、そしてその上に配置された電子の電荷・軌道・スピンの自由度によって様々な興味深い性質や現象が発現する。各自由度、そしてそれらの相互作用を明らかにするために、光をプローブとした測定が長年広く用いられてきた。放射光の比較的短波長領域の高輝度な光も固体の物性研究に大変有用であることから、国内外で半世紀以上の歴史を有しており、現在では専ら確立された手法のルーチン利用が中心となっている。一方で、近年、放射光源・X線自由電子レーザー (X-ray free-electron laser, XFEL) 光源ともに大きな進歩を遂げており、これらの優れた能力を最大限物性研究に活かすため、新たな手法の開発が望まれていた。このような背景の中、筆者は軟 X 線から硬 X 線の幅広い波長領域において、最先端の放射光及び XFEL を駆使した革新的な物性研究手法の開発を行ってきた。具体的には、(1)東京大学在籍時にその専用ビームラインであった SPring-8 BL07LSU にて実施した、連続型偏光変調軟 X 線光源の開発及び磁気光学効果への応用、(2)日本唯一の XFEL 施設 SACLA の BL1 にて実施した、軟 X 線 FEL を用いた高空間分解磁性測定法の開発、さらに、(3)同じく SACLA の BL3 にて実施した、硬 X 線 FEL を用いた超高速格子ダイナミクスの研究である。本稿では誌面の都合上、これら三つのうち、タイトルにもある軟 X 線 MOKE 研究にフォーカスし、(1)と(2)の研究テーマについて紹介する。

2. 連続型偏光変調軟 X 線光源の開発及び磁気光学効果への応用

まず、連続型偏光変調軟 X 線 (以下、変調軟 X 線とする) 光源の開発とそれを利用した共鳴磁気光学カー効果 (magneto-optical Kerr effect, MOKE) 測定の結果¹⁾について述べる。誌面の都合上ここでは概略を述べるに留めるが、詳細は原著論文¹⁾や「放射光」への過去の投稿記事²⁾を参照していただきたい。

2.1 磁気光学効果

本研究では、固体の物性の中でも磁性 (電子のスピン・軌道の自由度) に注目する。磁性分野における実験研究では、その測定手法として、光をプローブとした測定が19

世紀より広く用いられてきた。そこで利用されるのが、磁性体の磁化が光の偏光状態を変化させる磁気光学効果と呼ばれる現象である。磁気光学効果には、偏光面が回転する磁気旋光性と左右の円偏光の吸収の差に由来する磁気円二色性 (magnetic circular dichroism, MCD) が含まれ、それら二つの物理量から対象の磁性情報を得る。一般的には可視光領域の光を利用することが多いが、放射光を利用し、入射光の波長を軟 X 線領域まで拡張することで、多数の磁性元素の吸収端をカバーできるようになる。つまり、元素選択的な測定が可能であるとともに、共鳴効果により大きな信号が得られる。X 線 MCD (XMCD)³⁾は放射光を使った最も有名な磁性測定手法である。さらに近年では、MOKE にも軟 X 線を利用することで、元素選択的かつ大きな磁気旋光性 (カー回転角, θ_K) が得られることがわかり、共鳴 MOKE として注目されている^{4,5)}。しかし、XMCD では MCD の情報、共鳴 MOKE では磁気旋光性の情報のみというように、二つの磁気光学量のうち、一方の物理量しか取得が難しかった。この困難を克服して、軟 X 線領域にて二つの磁気光学量の同時測定を可能にし、その結果、物質の基本パラメータである誘電率テンソルを求めることが本研究の目的であった。

2.2 光学遅延変調法

可視光領域の MOKE 測定には磁気旋光性と MCD を同時測定する方法として、可視光レーザーの偏光を圧電振動子を使って連続的に変調させ、その変調光を入射光として用いる光学遅延変調法がある⁶⁻⁸⁾。この方法を軟 X 線領域で実現するために重要なのが、SPring-8 BL07LSU⁹⁾が有する世界唯一の分割型クロスアンジュレータである。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で構成されており¹⁰⁾、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。この分割型クロスアンジュレータの特性を活かして、変調軟 X 線光源を実現するには、電磁石移相器に交流電流を加える。Fig. 1 は変調軟 X 線のイメージを表している。電磁石移相器に周波数 ν の正弦波交流電流を流すことで、Fig. 1(b) に示すような、斜め直線偏光 (skew linearly,

SL) 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 δ は

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

という式で与えられる。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 測定の入射光として用いると (光学遅延変調法)、磁性体からの反射光強度のうち、MCD に由来する楕円率 (ε_K) の情報が ν 成分として、磁気旋光性由来する θ_K が 2ν 成分として得られる。Fig. 1(c, d) はそれらの様子を図示している。つまり、検出信号から ν , 2ν 成分を抽出することで、MCD と磁気旋光性の二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^{6,7)}。本研究では、式(1)における偏光変調を、交流電流 25 ± 0.588 A を周波数 $\nu = 12.987$ Hz で加えることで実現させた。交流電流の振幅 0.588 A が $\delta_0 = \pi/2$ に対応し、左右の円偏光へと変化する。

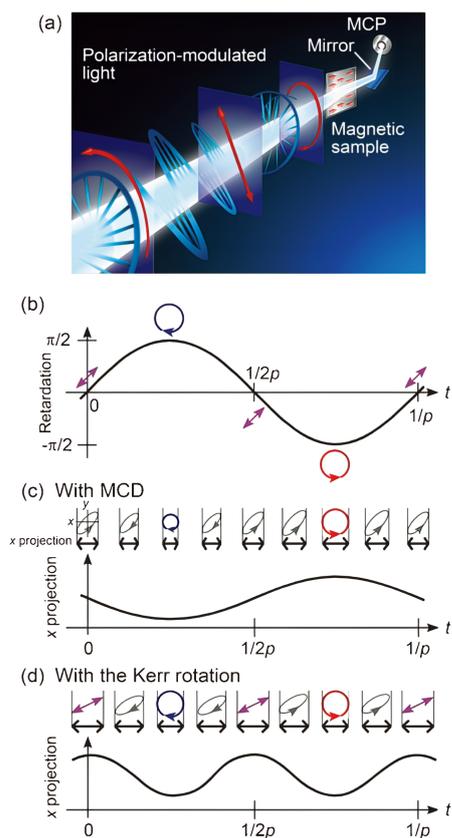


Fig. 1 (Color online) (a) Image of the polarization-modulated light for the L-MOKE setup. (b) Time dependence of the retardation $\delta = (\pi/2) \sin 2\pi\nu t$. The polarization of light with retardation δ varies skew linearly (SL) \rightarrow right-handed circular \rightarrow SL \rightarrow left-handed circular \rightarrow SL. (c) and (d) Schematics how the ν and 2ν components represent MCD and the Kerr rotation, respectively. Projections onto the x axis of the electric field reflected from samples (c) with MCD and (d) with the Kerr rotation. [Taken from Ref. 1]

2.3 変調軟 X 線を用いた共鳴 MOKE 測定

Fig. 2 に変調軟 X 線を入射光として用いた共鳴 MOKE 測定結果を示す。試料は厚さ 30 nm の Fe 薄膜で、Fe L 殻吸収端近傍にて測定した。試料面内方向かつ入射面に平行に、飽和磁場以上の $B = \pm 0.3$ T の外部磁場を加えた。この磁場方向の MOKE 配置を縦 MOKE (longitudinal MOKE, L-MOKE) 配置という^{6,11)}。入射角 ϕ_i は試料の面直方向から約 80° とし、試料温度は室温で実験を行った。 s 偏光, p 偏光を入射したことに相当する θ_K と ε_K 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較正している。 θ_K と ε_K 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^{11,12)}。 s 偏光, p 偏光を入射した時の L-MOKE で得られる θ_K と ε_K は以下の式で表現される (それぞれの偏光を上付き添え字で表す)¹¹⁾。

$$\theta_K^s + i\varepsilon_K^s = -\frac{r_{ps}}{r_{ss}} \approx -\frac{in_0nQ \cos \phi_i \tan \phi_t}{(n^2 - n_0^2) \cos(\phi_i - \phi_t)}, \quad (2)$$

$$\theta_K^p + i\varepsilon_K^p = -\frac{r_{sp}}{r_{pp}} \approx -\frac{in_0nQ \cos \phi_i \tan \phi_t}{(n^2 - n_0^2) \cos(\phi_i + \phi_t)}. \quad (3)$$

式中の r_{ij} は複素フレネル係数と呼ばれ、入射光の j 偏光電場と反射光の i 偏光電場の比率を表す。また、 n と n_0 はそれぞれ磁性を担う Fe 薄膜と非磁性のキャップ層 (今回用いた試料では Ta/Cu) の複素屈折率であり、 ϕ_i は屈折角である。式(2)と(3)において、磁気光学効果の情報

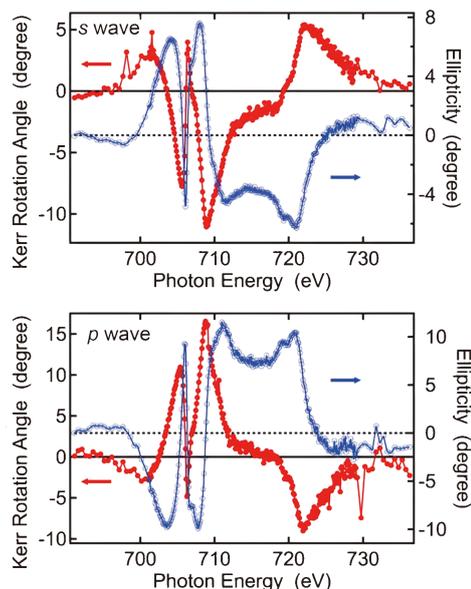


Fig. 2 (Color online) Results of L-MOKE measurements for an Fe nanofilm at the L edge using the polarization-modulated light for (upper) the s wave and (lower) the p wave. The red solid and blue open circles represent the spectra of θ_K (left axis) and ε_K (right axis), respectively. [Reproduced from Ref. 1]

はフォークトパラメータ Q に含まれている。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。

$$Q = i \frac{\epsilon_{xz}}{\epsilon_{xx}}, \quad (4)$$

ここで、本実験配置での誘電率テンソルは

$$\epsilon = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & \epsilon_{xz} \\ 0 & \epsilon_{yy} & 0 \\ -\epsilon_{xz} & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}, \quad (5)$$

と表せられる。対角成分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(2)、(3)、(4)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、 θ_K と ϵ_K から ϵ_{xz} を求めることができる^{13,14}。Fig. 3(a)に、実際に変調軟X線を使って得られた θ_K と ϵ_K 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。さらに、第一原理計算の手法^{15,16}でバルクのFe(bcc)に対する ϵ_{xz} のスペクトルも求

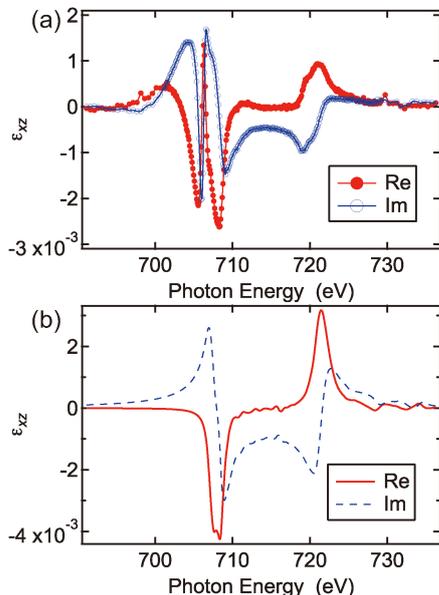


Fig. 3 (Color online) (a) ϵ_{xz} spectra of the Fe nanofilm at the L edge obtained by L-MOKE measurements with polarization-modulated light. The red solid and blue open circles represent real and imaginary parts of ϵ_{xz} , respectively. (b) Theoretical ϵ_{xz} spectra of bulk Fe (bcc) at the L edge obtained using the first-principles calculation within the KKR formalism. The red solid and blue broken lines represent the real and imaginary parts, respectively. [Reproduced from Ref. 1]

め、実験結果と比較を行った。その結果を Fig. 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、Fig. 2 で見られる、 θ_K と ϵ_K スペクトルのディップまたはピークに由来し、先行研究より、薄膜における干渉効果によるものと言われている^{17,18}。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。

3. 軟X線FELを用いた高空間分解磁性測定法の開発

3.1 SACLA BL1 での磁性研究

次に、XFELを用いた固体物性研究について述べる。リング型の放射光と比較した際のXFELの特長として、高強度性、超短パルス性、高コヒーレンス性が挙げられる。物性研究では特に超短パルス性を活かして、光励起後の超高速現象の研究がポンプ・プローブ法を用いて盛んに行われている。SACLA BL1でも軟X線FELと上述の共鳴MOKEを組み合わせた、フェムト〜ピコ秒スケールの磁性ダイナミクス研究成果が発表されている¹⁹⁻²¹。軟X線FELを用いるメリットとしては、波長可変性を活かした、元素選択的な測定が可能となる点が挙げられる。一方、例えばスピントロニクスに代表される磁気デバイス開発では $\mu\text{m} \sim \text{nm}$ の微細構造内でのスピンの振る舞いが盛んに研究されている。デバイスの高度化には、構造中の各元素スピンのダイナミクスを調べることが重要であり、空間分解能の向上もXFELを用いた磁性研究において課題であった。そこで本研究では、SACLA BL1にて高空間分解磁性測定手法を開発・実証²²、フェムト秒かつnmの高時空間分解磁性測定への展開を目標とした。

3.2 回転楕円ミラーを用いた高空間分解MOKE測定

高い空間分解能を得るために最も重要となるのが、いかにXFELを小さく絞れるかであり、集光光学素子の性能に大きく左右される。本研究では、東京大学三村研究室が開発した、高精度回転楕円ミラーに注目した^{23,24}。他の軟X線集光素子と比較した際の回転楕円ミラーの特長は、数 μm 以下の微小集光の実現はもちろんのこと、高スループット、色収差がない、大きな焦点距離 ($\sim 10 \text{ mm}$) が挙げられる。特に、軟X線で元素選択的に磁性測定をする上では、色収差がないことでスペクトル測定が容易であり、かつ焦点距離が大きいことで反射配置や外部磁場印加などの試料の自由度が高くなる点から非常に相性が良い。

Fig. 4 に測定の設定アップを示す。ビームライン常設の Kirkpatrick-Baez (KB) ミラー²⁵ との二段階集光により、

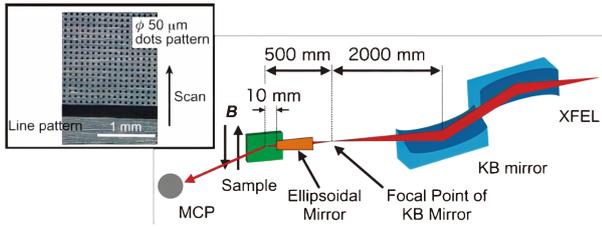


Fig. 4 (Color online) Schematic of the scanning MOKE measurement. The XFEL beam focused with the KB mirror is introduced to the ellipsoidal mirror, which produces a small focus onto the sample. The intensity of reflected beam from the sample was detected with the MCP. (inset) An optical microscopic image of the 50-nm-thick Fe film on the MgO (001) substrate with dots and line patterns. The diameter of dots pattern was $\phi = 50 \mu\text{m}$ and the width of line pattern was about $200 \mu\text{m}$. An arrow indicates the scanned direction. [Reproduced from Ref. 22]

FeのM殻吸収端近傍にて、full width at half maximum (FWHM)で $0.4 \mu\text{m}$ (垂直方向) \times $1.6 \mu\text{m}$ (水平方向)の集光サイズを実現した。この集光ビームを用いてMOKE測定を行ったが、今回はシンプルなセットアップのために、上述のL-MOKEではなく、磁場方向によって反射光強度が変化する横MOKE (transverse MOKE, T-MOKE)配置^{6,11)}を採用し、強度変化をマイクロチャンネルプレート(MCP)で測定した。試料はFig. 4の挿入図に示したような、厚さ50 nmのFe薄膜で、ドットとラインのパターン構造を持つものを用い、磁気非対称度

$$R = \frac{I^+ / I_0^+ - I^- / I_0^-}{I^+ / I_0^+ + I^- / I_0^-} \quad (6)$$

が最も大きい55 eVの光子エネルギーのXFELを入射光とした。ここで、 I^+ (I^-)は外部磁場 $+B$ ($-B$)時の反射光強度で、 I_0^+ (I_0^-)はその際の入射光強度である。入射光に対して図中の矢印の方向に試料を移動させることで、磁性の空間スキャンを実施した。その結果をFig. 5に示す。基板のMgOでは磁場方向に関係なく反射光強度が一定であるのに対し、Feが蒸着されている部分でのみ磁場依存性が確認された。さらにその磁気非対称度から、本装置の空間分解能が $7 \mu\text{m}$ であると評価できた。実際の集光サイズに比べて大きな値となっているのは、MOKE測定における斜入射配置の影響と考えられる。現在はミラーの高度化を進めるとともに、これまでの共鳴MOKE測定技術を集約した新しいエンドステーションをSACLA BL1にて立ち上げ、サブ μm 集光のXFELを用いた高空間分解磁性測定や非線形光学実験を実施している。さらに、同期レーザーと組み合わせた高時間空間分解測定の実現に向け、高度化を進めているところである。

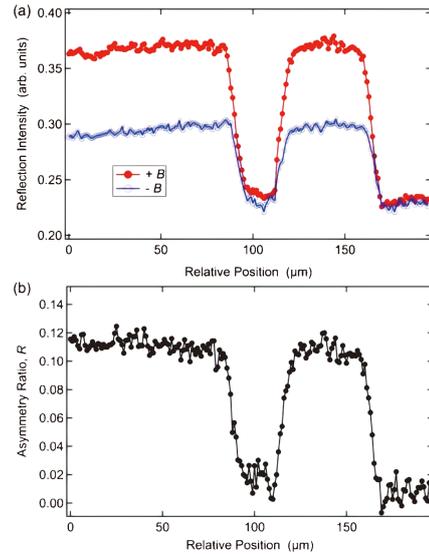


Fig. 5 (Color online) (a) Reflection intensity of the patterned sample as a function of the irradiation position with a $1 \mu\text{m}$ step. The red solid and blue open circles represent the reflection intensity under the external magnetic field of $+B$ and $-B$, respectively. The photon energy of the incident XFEL beam was fixed at $h\nu = 55 \text{ eV}$. (b) Irradiation position dependence on the magnetic asymmetry ratio, R , obtained from the reflection intensity in (a). [Taken from Ref. 22]

4. おわりに

本稿では、SPring-8 BL07LSUの変調軟X線とSACLAのXFELの新規光源を用いた固体物性研究について紹介した。誘電率テンソルは光学素子を設計する上でも重要なパラメータであるため、高次高調波レーザーや軟X線放射光技術の発展に大いに貢献し得ると期待している。SACLAでは今回紹介したBL1での磁性研究に加え、BL3²⁶⁾の硬X線FELを用いた物性研究も推進している。これまで困難であった極低温におけるポンプ・プローブX線回折測定用の装置を新たに開発し、10 K以下での格子や電子秩序状態の超高速ダイナミクスを捉えることが可能となった²⁷⁾。今後もBL1の新エンドステーションを用いた高時間空間分解磁性研究や非線形光学、BL3の極限環境下での非平衡量子物性の研究をさらに推進していきたい。さらに、各ビームライン単独で進めるのではなく、各波長の長所を活かしながら相補的に研究を行うことで、より一層の物性研究の発展に貢献したいと考えている。また、本誌のJSR2023企画講演報告にもあるように、SACLAのXFEL光源のより一層の高強度化、短パルス化、高繰り返し化も今後期待される。その新光源と組み合わせた新しい物性研究基盤の開発も引き続き進めていきたい。

謝辞

本稿で紹介した研究結果は論文^{1,22,27)}の共著者をはじめとする多くの研究者との共同研究や有益な議論に拠って

ます。この場をお借りして感謝申し上げます。特に、東京大学物性研究所の松田巖教授には学生時代から現在に至るまで数多くのご指導をいただきました。理化学研究所放射光科学研究センターの矢橋牧名グループディレクター、高輝度光科学研究センターの登野健介室長にも研究の進め方から、XFELを使いこなす技術など多くのご指導をいただきました。他にも、ここでは書ききれないほどの大勢のSPring-8, SACLAの関係者の方々のご協力のおかげで成果を得ることができました。この場をお借りして御礼申し上げます。

参考文献

- 1) Y. Kubota *et al.*: Phys. Rev. B **96**, 214417 (2017).
- 2) 久保田雄也, 松田巖: 放射光 **33**, 206 (2020).
- 3) C. T. Chen *et al.*: Phys. Rev. Lett. **75**, 152 (1995).
- 4) Y. Kubota *et al.*: J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. **220**, 17 (2017).
- 5) Y. Kubota *et al.*: Phys. Rev. B **96**, 134432 (2017).
- 6) 佐藤勝昭: 『光と磁気 改訂版』(朝倉書店, 2001).
- 7) K. Sato: Jpn. J. Appl. Phys. **20**, 2403 (1981).
- 8) K. Sato, H. Kida and T. Kamimura: J. Magn. Soc. Jpn. **11**, 113 (1987).
- 9) S. Yamamoto *et al.*: J. Synchrotron Radiat. **21**, 352 (2014).
- 10) I. Matsuda *et al.*: Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. **767**, 296 (2014).
- 11) P. M. Oppeneer: in Handbook of Magnetic Materials, ed. K. H. J. Buschow Vol. 13 (Elsevier, Amsterdam, 2001).
- 12) J. Kunes *et al.*: Phys. Rev. B **64**, 174417 (2001).
- 13) H.-C. Mertins *et al.*: J. Magn. Magn. Mater. **240**, 451 (2002).
- 14) L. Henke, E. Gullikson and J. C. Davis: https://henke.lbl.gov/optical_constants/
- 15) H. Akai: <http://kkr.issp.u-tokyo.ac.jp>
- 16) H. Akai: J. Phys: Condens. Matter **1**, 8045 (1989).
- 17) H.-C. Mertins *et al.*: Phys. Rev. B **69**, 064407 (2004).
- 18) S. Valencia *et al.*: Phys. B **345**, 189 (2004).
- 19) Sh. Yamamoto, Y. Kubota *et al.*: Jpn. J. Appl. Phys. **57**, 09TD02 (2018).
- 20) K. Yamamoto *et al.*: Appl. Phys. Lett. **116**, 172406 (2020).
- 21) I. Matsuda and Y. Kubota: Chem. Lett. **50**, 1336 (2021).
- 22) Y. Kubota *et al.*: Appl. Phys. Lett. **117**, 042405 (2020).
- 23) H. Motoyama *et al.*: J. Synchrotron Radiat. **26**, 1406 (2019).
- 24) G. Yamaguchi *et al.*: Rev. Sci. Instrum. **92**, 123106 (2021).
- 25) S. Owada *et al.*: J. Synchrotron Radiat. **25**, 282 (2018).
- 26) T. Ishikawa *et al.*: Nat. Photonics **6**, 540 (2012).
- 27) Y. Kubota *et al.*: Appl. Phys. Lett. **122**, 092201 (2023).

● 著者紹介 ●



久保田雄也

理化学研究所放射光科学研究センター
基礎科学特別研究員

E-mail: kubota@spring8.or.jp

専門: 固体物理, 放射光科学

【略歴】

2017年3月東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程修了。博士(理学)。
2017年4月高輝度光科学研究センター
博士研究員。2020年4月より現職。