

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2016～2017

課題番号：16K17722

研究課題名(和文) 時間分解X線測定で追究するレーザー励起磁化反転

研究課題名(英文) Laser-induced magnetization reversal investigated by time-resolved x-ray measurements

研究代表者

和達 大樹 (Wadati, Hiroki)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：00579972

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：我々はレーザーによる強磁性体の磁化反転機構の解明を試みた。実験手法として、シンクロトロン放射X線とX線自由電子レーザー(XFEL)による時間分解型のX線分光を用いた。主に測定したのはX線磁気円二色性(XMCD)である。日本のXFEL施設SACLAのビームラインBL3での時間分解XMCD測定を行った。800 nmのチタンサファイアレーザーをポンプ光として室温強磁性体の合金薄膜FePtに照射し、PtのL端での時間分解XMCD測定に成功した。磁化の消える時間スケールが1ps程度であり、Feサイトより長いことが分かった。このような元素別のスピンドYNAMICSは時間分解XMCDで初めて明らかになった。

研究成果の概要(英文)：We tried to reveal the mechanism of magnetization reversal in ferromagnets by laser. As an experimental technique, we used time-resolved x-ray spectroscopy by synchronicity-radiation x-ray and x-ray free electron laser (XFEL). We mainly measured x-ray magnetic circular dichroism (XMCD). We performed time-resolved XMCD measurements in BL3 in SACLA (XFEL facility in Japan). By shining 800 nm Ti:sapphire laser as a pump light onto alloy FePt thin films with room-temperature ferromagnetism, we succeeded in time-resolved XMCD measurements at Pt L edges. The time scale of demagnetization is about 1 ps, found to be longer than that of Fe sites. Such element-resolved spin dynamics was first revealed by time-resolved XMCD.

研究分野：光物性

キーワード：磁化反転 レーザー X線

1. 研究開始当初の背景

3d 遷移金属の化合物は、多くの興味深い性質のため特に近年注目を集めている。特に、光励起に対する巨大応答とそのダイナミクスは、特にレーザー光による磁化の反転がフェリ磁性合金 GdFeCo で観測されたため、大きな注目を集めている。

放射光とレーザーの組み合わせによる測定により、反転プロセスの中間状態などダイナミクス研究で物性物理学の新しい局面が生まれつつあるが、現状では時間分解能の面で壁があり、大きなブレイクスルーを起こすには至っていない。すなわち、放射光では 50 ps 程度の時間分解能しかなく、格子振動(フォノン)などを見るには不十分である。そこで現在は、50 ps 程度のパルス幅の放射光と 50 fs 以下程度のパルス幅を持つ X 線自由電子レーザー(XFEL)を併用する研究が、完全なダイナミクスの観測のために不可欠となっている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、パルスレーザーによる励起によって強磁性体の磁化を反転させる現象(磁化反転)の機構の解明と、磁化反転機構の普遍性を発見することである。

特に、フェリ磁性合金 GdFeCo では、Gd と Fe, Co が反強磁性的に結合していることが磁化反転現象の本質ではないかという解釈が多く見られたが、最近の研究では、磁化反転が強磁性体の FePt 合金でも観測されている。現状は磁化反転の機構については、全く未解明となっている。

実験には、シンクロトロン放射 X 線と XFEL による時間分解測定を用いる。磁性のシグナルは X 線磁気円二色性(XMCD)により、元素ごとに分解して観測することができる。

3. 研究の方法

(1) レーザー照射による磁区の観察

磁化反転現象は、放射光 X 線や XFEL の限られたビームタイムの中のみで探索すべき現象ではなく、ビームタイム前にレーザー強度などの条件を見つけておく必要がある。そのためのセットアップとしてすでに、レーザーを強磁性体薄膜にあて、すぐにカー顕微鏡で観測できる環境を整えた。磁化反転を起こせるレーザー条件(強度や偏光)と、試料条件(薄膜の厚さやバッファ層の有無)を探索した。

(2) 時間分解 XMCD 測定

上記(1)の予備測定の結果を踏まえ、時間分解型の XMCD 測定を行った。短パルスレーザーでの励起下での測定では、800 nm の Ti:sapphire レーザーをポンプ光として用いて励起を行い、プローブとして X 線を用いる。X 線のパルス幅は放射光では 50 ps 程度、XFEL では 50 fs 程度となり、これがこの測定の時間分解能を決めている。我々が現在

SPring-8 の東大物性研ビームライン BL07LSU で開発を進めている軟 X 線回折実験装置を時間分解 XMCD 測定に向けて改造を行った。

上記の時間分解能 50 ps の測定を行ったのち、XFEL 施設 SACLA でも時間分解 XMCD 測定を行い、1 ps 以下の時間スケールでの応答の観測を試みた。FePt 薄膜の場合は、室温強磁性体のため、測定は室温で行うことができる。磁場印加は 300 mT 程度以下の磁場で十分であるため永久磁石で行える。以上のように、冷却機構や超伝導磁石など不要のため非常にシンプルな測定であり、まさにデバイスの実動作環境である。

(3) 物質探索：磁性体の臨界膜厚の決定

本研究では物質探索として、磁性体薄膜の臨界膜厚の決定を、放射光 X 線を用いて行うことも進めた。薄膜をどの程度薄くしてもその磁性が保たれるかどうかというのは、磁場によらず光による磁性の制御現象が、磁性を保つことのできる極薄膜で特に顕著に可能であると考えられるため、重要である。

例えば反強磁性体 $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ は反強磁性と同時に電荷整列も起こる系であり、電荷とスピンの強い結合から、レーザー照射によって磁気秩序の超高速(1 ps 以内)の融解が期待できる。共鳴軟 X 線散乱(RSXS)、すなわち元素の吸収端のエネルギーで行う散乱測定により、元素別の磁気秩序を共鳴増大で強力に観測し、極薄膜においても磁気秩序を目指した。

4. 研究成果

(1) レーザー照射による磁区の観察

レーザーを強磁性体薄膜にあて、カー顕微鏡で磁区観察を行った。Pt/Co 超格子薄膜は垂直磁化膜であり、室温でも強磁性である。図1のように、レーザー照射された部分の磁性が変化する消磁効果をカー顕微鏡により観察した。この2列は左右の円偏光の照射であるが、円偏光に依存した磁化反転の条件を見つめることができた。

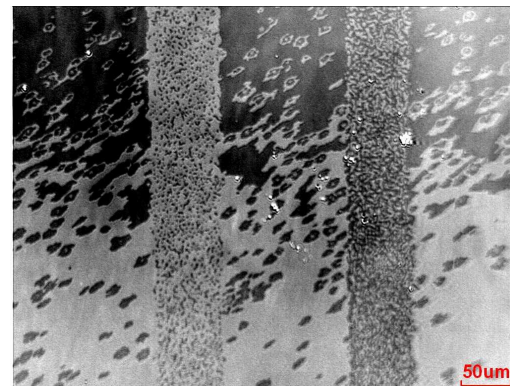


図1：カー顕微鏡による垂直磁化膜 Pt/Co 超格子薄膜へのレーザー照射効果の観察。

(2) 時間分解 XMCD 測定

FePt 薄膜のレーザー照射後の XMCD のダ

イナミクス測定を行った。まず、我々が現在 SPring-8 の東大物性研ビームライン BL07LSU で開発を進めている時間分解 XMCD 測定のセットアップの改造により、図 2 (a)のような Fe の L 端(2p 3d)での結果が得られた。また、我々の測定により、SACLA の BL3 で時間分解 XMCD 測定が Pt の L 端(2p 5d)で測定可能となった。図 2 (b)のように、ピコ秒以下のダイナミクスが明らかになった。磁化の消える時間スケールが 1ps 程度であり、Fe サイトより長い。このような元素別のスピンドイナミクスが時間分解 XMCD で初めて明らかになった。

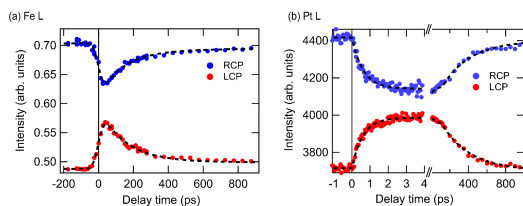


図 2 : FePt 薄膜のレーザー照射後の XMCD のダイナミクス。右円偏光(RCP)と左円偏光(LCP)の差が XMCD である。(a) Fe L 端 (SPring-8) (b) Pt L 端 (SACLA)。

(3) 物質探索：磁性体の臨界膜厚の決定

$\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3/\text{SrTiO}_3(111)$ 薄膜 (膜厚を 5, 15, 34, 78 nm と制御したもの) に対し、Fe L_3 吸収端 (およそ 710 eV) での RSXS を行った。6 倍周期の磁気秩序由来の(1/6 1/6 1/6)の回折ピークを調べた。磁気秩序の臨界膜厚が 5-15 nm の間にあることがわかった。さらに、ピーク幅に着目すると、大きな膜厚依存性があることが分かった。ピーク幅の逆数として得られる相関長を図 3 に示す。磁気秩序の相関長 λ_{mag} はその回折ピーク幅の変化を反映して、薄くなるほど減少しており膜厚に比例したような振る舞いを見せる。RSXS で決めた磁気秩序と比較して、硬 X 線回折で決めた電荷秩序の相関長 λ_{ch} の膜厚依存性は少ない。さらに臨界膜厚近傍の 5 から 15 nm でちょうど二つの秩序の相関長が一致していることが分かる。磁気秩序の相関が膜厚によって幾何学的に制限され、電荷秩序と同程度になったところで、電荷・磁気秩序が消失する、すなわち臨界膜厚となっている。

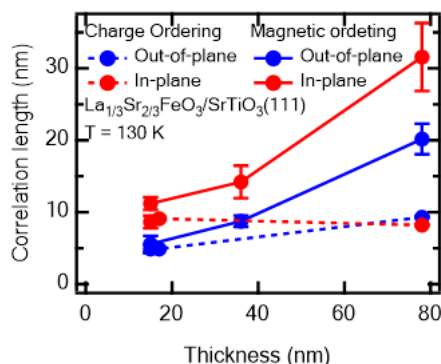


図 3 : 電荷と磁気の秩序の面内と面直の相関長の膜厚依存。

5 . 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 2 件)

1. K. Yamamoto, Y. Hirata, M. Horio, Y. Yokoyama, K. Takubo, M. Minohara, H. Kumigashira, Y. Yamasaki, H. Nakao, Y. Murakami, A. Fujimori, and H. Wadati: “Thickness dependence and dimensionality effects of charge and magnetic orderings in $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ thin films”, Phys. Rev. B **97**, 075134 (2018).
2. 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: “Capturing ultrafast magnetic dynamics by time-resolved soft x-ray magnetic circular dichroism”, Appl. Phys. Lett. **110**, 162401 (2017).

〔学会発表〕(計 17 件)

1. 山本航平, 箕原誠人, Niko Pontius, 平田靖透, 横山優一, 深谷亮, 田端千紘, 山崎裕一, Christian Schssler-Langeheine, 組頭広志, 和達大樹, 時間分解共鳴軟 X 線回折で見る $\text{La}_{1/3}\text{Sr}_{2/3}\text{FeO}_3$ の磁気秩序の光誘起変化、日本物理学会 第 73 回年次大会、2018 年 3 月
2. 山本航平、久保田雄也、平田靖透、田久保耕、上村洋平、田中健太、西村渉、大河内拓雄、鈴木基寛、片山哲夫、富樫格、玉作賢治、矢橋牧名、田中義人、関剛斎、高梨弘毅、和達大樹、Pt L 端時間分解 X 線磁気円二色性測定でみる FePt 薄膜の磁化ダイナミクス、第 65 回応用物理学会春季学術講演会、2018 年 3 月
3. Hiroki Wadati, Observing novel electronic states in transition-metal compounds by soft x-ray, Emergent Condensed-Matter Physics 2018 (Hirohima)、2018 年 3 月
4. 山本航平、田久保耕、平田靖透、横山優一、山本達、松田巖、辛埴、関剛斎、高梨弘毅、和達大樹、時間分解磁気円二色性でみた Co/Pt 多層膜の光誘起磁化変化のレーザー偏光依存性、第 31 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2018 年 1 月
5. Hiroki Wadati, Time-resolved x-ray scattering and its application to magnetism, Current trends in Optical and X-Ray metrologies of key enabling nanomaterials/devices for the Ubiquitous Society, renewable energy and health (Okayama)、2017 年 11 月
6. Hiroki Wadati, Ultrafast Magnetic Dynamics Studied by Time-Resolved Soft X-Ray Diffraction and Absorption, BIT's 7th Annual World Congress of Nano-S&T

- (Fukuoka)、2017年10月
7. Hiroki Wadati, Ultrafast spin dynamics studied by time-resolved soft x-ray measurements, EMN Meeting On Ultrafast (Orland)、2017年10月
 8. 山本航平, 田久保耕, 平田靖透, 横山優一, 山本達, 松田巖, 辛埴, 関剛斎, 高梨弘毅, 和達大樹、時間分解磁気円二色性で見る Co/Pt 多層膜の光誘起磁化変化のレーザー偏光依存性、日本物理学会 2017年秋季大会、2017年9月
 9. 和達大樹, 山本航平, 田久保耕, 平田靖透, 横山優一, 山本達, 松田巖, 辛埴, 関剛斎, 高梨弘毅、時間分解磁気円二色性でみた Co/Pt 多層膜の光誘起磁化変化のレーザー偏光依存性、第78回応用物理学会 秋季学術講演会、2017年9月
 10. Hiroki Wadati, Ultrafast magnetic dynamics revealed by time-resolved x-ray measurements, XXVI International Materials Research Congress (Cancun)、2017年8月
 11. 山本航平, 山本真吾, 大河内拓雄, 平田靖透, 横山優一, 田久保耕, 松田巖, 関剛斎, 木下豊彦, 高梨弘毅, 和達大樹、Kerr顕微鏡・X線磁気円二色性で見る垂直磁化 Co/Pt 薄膜、日本物理学会 第72回年次大会、2017年3月
 12. 和達大樹, 山本航平, 田久保耕, 平田靖透, 横山優一, 山本達, 大河内拓雄, 木下豊彦, 関剛斎, 高梨弘毅, 辛埴, 松田巖、レーザー励起磁化反転観測のための時間分解 X 線磁気円二色性装置開発、第64回応用物理学会春季学術講演会、2017年3月
 13. 山本航平, 田久保耕, 平田靖透, 横山優一, 山本達, 大河内拓雄, 木下豊彦, 関剛斎, 高梨弘毅, 辛埴, 松田巖, 和達大樹、Time-resolved x-ray magnetic circular dichroism measurements of Fe(Pt,Pd) thin films、第64回応用物理学会春季学術講演会、2017年3月
 14. 和達大樹、共鳴軟 X 線散乱で見た遷移金属酸化物の新しい磁気秩序、第30回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2017年1月
 15. 山本航平, 平田靖透, 田久保耕, 横山優一, 山本達, 大河内拓雄, 木下豊彦, 関剛斎, 高梨弘毅, 辛埴, 松田巖, 和達大樹、FePtPd 薄膜の時間分解磁気円二色性測定、第30回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2017年1月
 16. Hiroki Wadati, Ultrafast dynamics of transition-metal-compound thin films studied by time-resolved x-ray diffraction、BIT's 6th Annual World Congress of Nano-S&T 2016 (Singapore)、2016年10月
 17. 山本航平, 田久保耕, 堀尾眞史, 横山優一, 山本真吾, 久保田雄也, 松田巖, 平田靖透, 関剛斎, 池永英司, 高梨弘毅, 藤森淳, 尾崎泰助, 和達大樹、垂直磁化膜

Fe(Pt,Pd)の硬 X 線光電子分光と軟 X 線磁気円二色性、日本物理学会 2016年秋季大会、2016年9月

〔その他〕

ホームページ等

<http://wadati.i.issp.u-tokyo.ac.jp/index.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者

和達 大樹 (WADATI Hiroki)

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：00579972