

令和 2 年 7 月 3 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02823

研究課題名(和文) X線自由電子レーザー誘起スピン偏極状態の生成と超高速磁気ダイナミクスの研究

研究課題名(英文) X-ray-induced spin-polarized states and ultrafast magnetization dynamics

研究代表者

鈴木 基寛 (Suzuki, Motohiro)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・分光・イメージング推進室・首席研究員

研究者番号：60443553

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 7,700,000円

研究成果の概要(和文)：円偏光した超短パルスX線自由電子レーザー(XFEL)を磁性体に照射することによって、磁性体のスピン状態を改変、すなわち「X線誘起磁気状態」を瞬間的に生成し、その緩和過程のダイナミクスを解析した。XFEL励起・可視光レーザープローブによる時間分解・磁気顕微鏡観察系を独自に開発した。XFEL施設SACLAでの測定の結果、鉄ガーネット試料に対して、円偏光XFEL照射による1ピコ秒(ピコは1兆分の1)以下での超高速な減磁過程を示唆する信号を得た。X線内殻励起に伴う磁性の変化を初めて観測した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁性の源である電子スピンの状態を非常に短い時間で観測することで、磁性が生じるメカニズムを詳細に調べることができる。本研究では、超短パルスX線自由電子レーザー光を磁性体に照射することで磁性体試料の磁気状態を瞬間的に改変し、1ピコ秒(ピコは1兆分の1)以下の時間での磁性の変化を観測した。X線照射による磁性制御に初めて成功するとともに、将来の超高速磁気記録につながる原理解明を行った。

研究成果の概要(英文)：Circularly-polarized X-ray free-electron laser (XFEL) pulses are used to modify the magnetic states of the sample instantaneously. We developed an original time-resolved magnetic microscopy technique with the XFEL-pump and laser-probe scheme. The experiment using an iron garnet sample demonstrated the XFEL-induced demagnetization within one picosecond (one-trillionth of a second). The ultrafast change in magnetism associated with X-ray core-excitation was first observed.

研究分野：放射光科学

キーワード：X線自由電子レーザー 磁気ダイナミクス 超高速現象 X線誘起現象 光磁気記録

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

X線は、レントゲンによるその発見以来、対象を観察するためのプローブとして広く用いられてきた。可視光も同様なプローブであったが、強力な短パルスレーザーの発明によって、光照射による物質の加工や物性の改変・制御が可能となった。近年では、光誘起構造相転移や光誘起磁化によって生じる、新たな構造や物性相の研究が活発に行われている。磁気ダイナミクスに関しては、可視光の円偏光レーザーを用いたピコ秒からサブピコ秒の光誘起磁化現象や逆ファラデー効果、およびその緩和過程の研究が2000年代の中頃から盛んに報告されている [1]。

2010年代に入り、X線自由電子レーザー (XFEL) 施設が稼働を開始し、X線領域での超短パルスレーザー光源が利用可能となった [2,3]。XFELはパルス幅が10フェムト秒程度と極めて短いのに加え、従来の放射光よりも9桁以上高いピーク輝度を有する。そのため、X線内殻励起によって特異な電子状態や物性を誘起するための励起光として利用できる可能性がある。XFELのこの特徴をいち早く活用した高密度の内殻励起状態の研究が始まり、成果が得られはじめている。気体ではアルゴンの多価励起状態の観測 [4]、固体ではアルミニウムの内殻励起による光学的性質の変化 [5] が報告されている。一方で、XFELを活用した内殻励起による超高速磁気現象はこれまでほとんど研究されていない。この分野でのXFEL実験が実現できれば、スピン状態や軌道整列状態、あるいは異方性を特定した超高速内殻励起状態の研究へと広く発展すると期待される。

2. 研究の目的

本研究では、XFEL光源から供給される非常に高い光子密度かつフェムト秒の時間幅をもつ、円偏光XFEL光を試料に照射することによって、スピン偏極した電子状態「X線誘起磁化」を生成し、その緩和過程を含めた磁気ダイナミクスを研究することを目的とした。(図1)

円偏光X線が内殻吸収される際には、内殻軌道が大きなスピン軌道相互作用を持つため、光励起された電子はスピン偏極している。この電子が価電子帯にとどまっている時間内(1~10フェムト秒)には価電子帯に内殻から励起されたスピンの余分が存在するため、試料は磁気モーメントを有する。その後、内殻ホールは蛍光過程やオージェ過程で緩和し、励起された価電子帯のスピンも緩和される。価電子スピンの緩和過程においては、元々価電子帯に存在した電子、あるいは内殻電子とのクーロン相互作用、交換相互作用、スピン軌道相互作用などの電子間相互作用が働き、その結果、異なる緩和時間を有する複数の電子緩和過程が存在すると推測される。これらの緩和時間はフェムト秒から100フェムト秒の時間スケールだと考えられる。さらに、電子-格子やスピン-格子緩和により、ピコ秒オーダーのより遅い緩和が生ずる。価電子帯の磁気モーメントのダイナミクスを観測することで、X線誘起によるスピン偏極状態の生成後の過程を調べることができる。

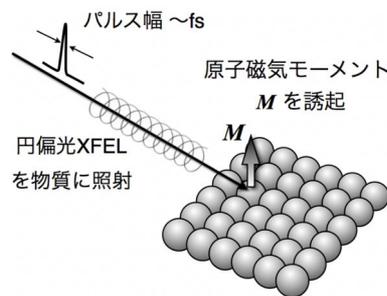


図1 円偏光X線自由電子レーザー (XFEL)

誘起によるスピン偏極状態の生成

3. 研究の方法

研究の方法は以下の通りである(1) XFEL誘起磁化の検出のために、XFELをポンプ光、可視光フェムト秒レーザーをプローブ光として用いるワンショット時分割測定系を構築する。XFEL施設SACLAでの共同利用ビームタイムを取得し、数10フェムト秒以内でのタイミング調整、数10ピコ秒の精度でのX線とレーザーの照射位置調整を行う。構築した測定系を用いて、(2) 磁性体試料におけるX線誘起磁化状態の信号の観測を試み、数10fsから100psオーダーでの緩和過程を明らかにする。

4. 研究成果

(1) XFEL励起-可視光レーザー検出によるポンプ・プローブ実験の開発

XFEL誘起磁化の検出のために、XFELをポンプ光、可視光レーザーをプローブ光としたポンプ・プローブ法を開発した。図2に、ワンショットで磁気顕微鏡観察を行うための偏光分離顕微鏡光学系の写真を示す。本装置は、試料位置決め用精密ステージ、顕微鏡用対物レンズ、偏光分離プリズム、結像レンズ、および2台のCCDカメラで構成される。ヘリウムネオンレーザーを用いた調整を行い、水平および垂直方向の直線偏光成分に対して磁気コントラストの反転した顕微鏡画像が得られることを確認した。加えて、空間分解能やファラデー回転角の測定精度の評価を行った。

つづいて、XFEL施設SACLAの共同利用ビームタイムを取得し、XFELを用いた手法開発を行った。プローブ光として、Ti:サファイヤレーザーを光学パラメトリック増幅により波長変換した630nmのフェムト秒パルスを用いた。励起光にはダイヤモンド移相子による円偏光XFELを用いた [6]。プローブレーザーとXFELとの照射位置の調整、およびフェムト秒の時間幅をもつ両光源のタイミング調整を完了し、ワンショットで偏光顕微鏡磁区像を取得する測定系の構築を完了した [7]。

上記に加えて、SACLAビームラインに設置されているX線円偏光素子と可視光ポンプレーザー

を同時に用いるためのタイミング同期システムの高性能化[8]を施設スタッフとともに行った。測定系の性能評価も兼ねて、FePt 試料のフェムト秒磁気ダイナミクスの実験を行い、1 ピコ秒よりも速い時間スケールでの Pt の減磁過程の観測に成功した[9]。

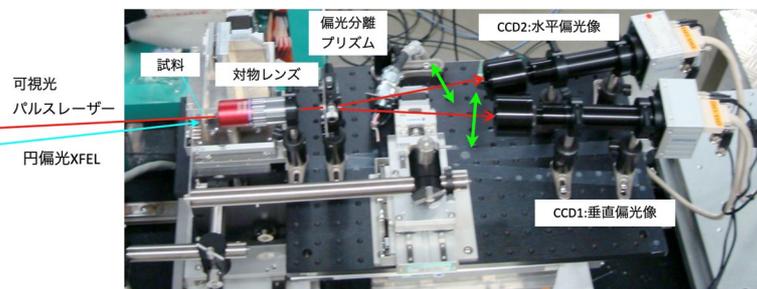


図2 XFEL 励起-可視光レーザー検出による偏光分離顕微光学系

(2) 磁性体試料における X 線誘起磁化の観測

測定系の開発を完了した後、磁性体試料に対する X 線誘起磁化現象の観測を試みた。試料として、ピスマス添加ガドリニウム鉄ガーネット ($Gd_{3-x}Bi_xFe_5O_{12}$) の単結晶膜を用いた。この試料は、プローブレーザーの波長である 630 nm においてファラデー回転角が大きく、また透過率が高いため、磁氣的応答を高感度で検出できると期待される。また、試料に含まれるガドリニウムの 2p 内殻吸収端が SACLA で利用可能な硬 X 線領域に存在するため、XFEL による内殻励起を行うことができる。

実験の結果、ガドリニウムの 2p 内殻吸収端吸収端の X 線エネルギーである 7.2465 keV の単色円偏光 XFEL パルスを照射することによって、図 3 のような磁気顕微像の瞬間的な変化を得た[10]。XFEL パルスが試料に照射された直後に、照射位置でのコントラストが変化している。水平および垂直偏光成分に対する 2 枚の磁気像を解析することで、400 fs の時間で試料の磁化が減少する過程を可視光ファラデー回転角の変化として観測した。試料の可視光透過率も同じ時間内で変化が見られた。これらの結果は、それぞれ XFEL 照射による超高速な減磁過程および価電子帯の電子状態変化に対応している。この 2 つの現象の時間スケールは一致したため、これらは互いに関連した現象だと考えている。XFEL による内殻励起に起因する価電子状態の変化が、光学性質および磁性の双方に影響を及ぼしていることが明らかになった。電子温度モデルによる解析を現在すすめており、これによって、電子系・スピン系・格子系間のエネルギー移送の時間スケールを見積もることで、内殻励起による新しい超高速現象のメカニズムの解明が行える。

以上のように、磁性体試料のガドリニウム吸収端での、円偏光 XFEL 照射による可視光ファラデー回転角の変化を測定し、XFEL 照射による超高速減磁過程とその緩和過程を示唆する信号を得た。本研究は、X 線内殻励起に伴う磁性の変化を、フェムト秒スケールでの時間分解測定によって初めて明らかにしたものであり、元素選択的な磁気励起状態のダイナミクス[11]の解明に寄与すると考えられる。本研究をさらに発展させ、ポンプ光、プローブ光とともに円偏光した XFEL を用いることで、元素選択的な磁氣的過渡状態を元素ごとに観測する研究へと発展させることが可能である。ピコ秒からフェムト秒領域の磁気相互作用の解明に寄与するとともに、パルスレーザーあるいは X 線によるより高速な磁気記録への応用の可能性も期待できる。

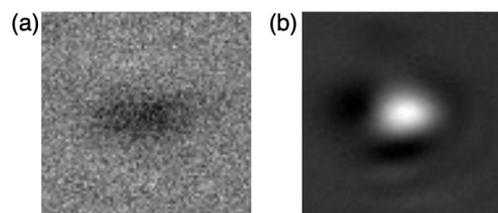


図3 XFEL 励起による磁気顕微像の変化。(a) XFEL 照射の 4 ピコ秒前、(b) XFEL パルス照射から 1 ピコ秒後。画像の視野は $12 \times 12 \mu\text{m}$ 。

< 引用文献 >

- V. Kimel et al., Nature **435**, 655 (2005).
- P. Emma et al., Nat. Photon **4**, 641 (2010)
- T. Ishikawa et al., Nat. Photon **6**, 540 (2012).
- L. Young et al., Nature **466**, 56 (2010).
- B. Nagler et al., Nat. Phys **5**, 693 (2009).
- M. Suzuki et al. J. Synchrotron Rad. **21**, 466-472 (2014).
- 西村涉、岡部純幸、近藤啓介、小倉弓枝、片山哲夫、佐藤堯洋、久保田雄也、富樫格、松田巖、田中義人、鈴木基寛、日本物理学会 第 75 回年次大会 (2020).
- Y. Kubota, M. Suzuki, T. Katayama, K. Yamamoto, K. Tono, Y. Inubushi, T. Seki, K. Takanashi, H. Wadati, and M. Yabashi, J. Synchrotron Rad. **26**, 1139 (2019).
- 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).

鈴木基寛、西村渉、岡部純幸、近藤啓介、小倉弓枝、片山哲夫、佐藤堯洋、久保田雄也、富
樫格、松田巖、田中義人、日本物理学会 第 75 回年次大会 (2020).
D. J. Higley et al., Nat Commun. 10, 5289 (2019).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 鈴木基寛	4. 巻 88
2. 論文標題 X線トモグラフィを用いた磁気微粒子の3次元観測	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 応用物理	6. 最初と最後の頁 198-202
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Tanaka Yoshihito, Nagashima Maki, Tanaka Kenta, Hasegawa Takayuki, Fukuyama Yoshimitsu, Yasuda Nobuhiro	4. 巻 2054
2. 論文標題 Time-resolved optical spectroscopy of a GaAs single crystal irradiated by SR X-ray pulses	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 AIP conference proceedings	6. 最初と最後の頁 40009
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5084610	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Suzuki Motohiro, Kim Kab-Jin, Kim Sanghoon, Yoshikawa Hiroki, Tono Takayuki, Yamada Kihito T., Taniguchi Takuya, Mizuno Hayato, Oda Kent, Ishibashi Mio, Hirata Yuushou, Li Tian, Tsukamoto Arata, Chiba Daichi, Ono Teruo	4. 巻 11
2. 論文標題 Three-dimensional visualization of magnetic domain structure with strong uniaxial anisotropy via scanning hard X-ray microtomography	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 036601 ~ 036601
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7567/APEX.11.036601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Kubota Y., Suzuki M., Katayama T., Yamamoto K., Tono K., Inubushi Y., Seki T., Takanashi K., Wadati H., Yabashi M.	4. 巻 26
2. 論文標題 Polarization control with an X-ray phase retarder for high-time-resolution pump-probe experiments at SACLA	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Synchrotron Radiation	6. 最初と最後の頁 1139 ~ 1143
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1107/S1600577519006222	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yamamoto K, Kubota Y, Suzuki M, Hirata Y, Carva K, Berritta M, Takubo K, Uemura Y, Fukaya R, Tanaka K, Nishimura W, Ohkochi T, Katayama T, Togashi T, Tamasaku K, Yabashi Makina, Tanaka Y, Seki T, Takanashi K, Oppeneer P M, Wadati H	4. 巻 21
2. 論文標題 Ultrafast demagnetization of Pt magnetic moment in L10-FePt probed by magnetic circular dichroism at a hard x-ray free electron laser	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 New Journal of Physics	6. 最初と最後の頁 123010 ~ 123010
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1367-2630/ab5ac2	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Suzuki M., Yumoto H., Koyama T., Yamazaki H., Takeuchi T., Kawamura N., Mizumaki M., Osawa H., Kondo Y., Ariake J., Yasui A., Kotani Y., Tsuji N., Nakamura T., Hirose S., Yamada K. T., Kim S., Kim K.-J., Ishibashi M., Ono T., Ohashi H.	4. 巻 33
2. 論文標題 Magnetic Microscopy Using a Circularly Polarized Hard-X-ray Nanoprobe at SPring-8	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Synchrotron Radiation News	6. 最初と最後の頁 4 ~ 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/08940886.2020.1725795	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 5件/うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Y. Tanaka, M. Nagashima, K. Tanaka, T. Hasegawa, Y. Fukuyama, N. Yasuda
2. 発表標題 Time-resolved optical spectroscopy of a GaAs single crystal irradiation by SR X-ray pulses
3. 学会等名 SRI2018 (Synchrotron Radiation Instrumentation) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Motohiro Suzuki, Kab-Jin Kim, Sanghoon Kim, Hiroki Yoshikawa, Takayuki Tono, Kihiro T. Yamada, Takuya Taniguchi, Hayato Mizuno, Kento Oda, Mio Ishibashi, Yuushou Hirata, Tian Li, Arata Tsukamoto, Daichi Chiba, and Teruo Ono
2. 発表標題 Three-Dimensional Observation of Magnetic Domain Structure Using Scanning Hard X-ray Microtomography
3. 学会等名 2018 Korean Physical Society Fall Meeting (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木基寛
2. 発表標題 硬X線MCDトモグラフィーによる磁区構造の3次元観察
3. 学会等名 第32回日本放射光学会年会・放射光化学合同シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木基寛
2. 発表標題 X線自由電子レーザーでの円偏光利用と展望
3. 学会等名 日本物理学会2017年秋季大会（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 鈴木基寛
2. 発表標題 放射光XMCD分光によるスピントロニクス材料の微視的機構の研究
3. 学会等名 第33回日本磁気学会光機能磁性デバイス・材料専門研究会（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 永島麻紀, 田中健太, 福山祥光, 安田伸広, 長谷川尊之, 田中義人
2. 発表標題 放射光パルスX線照射下のGaAs単結晶の時間分解近赤外分光
3. 学会等名 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
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木基寛、西村渉、岡部純幸、近藤啓介、小倉弓枝、片山哲夫、佐藤堯洋、久保田雄也、富樫格、松田巖、田中義人
2. 発表標題 XFEL照射により誘起される希土類鉄ガーネットの超高速磁気ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 西村渉、岡部純幸、近藤啓介、小倉弓枝、片山哲夫、佐藤堯洋、久保田雄也、富樫格、松田巖、田中義人、鈴木基寛
2. 発表標題 XFELポンプ-可視光プローブ時間分解磁気顕微鏡の開発とXFEL誘起磁気ダイナミクスの解析
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Motohiro Suzuki
2. 発表標題 Three-dimensional observation of magnetic domain structure by scanning hard X-ray microtomography
3. 学会等名 The 15th Symposium of Japanese Research Community on X-ray Imaging Optics (X102019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	田中 義人 (Tanaka Yoshihito) (80260222)	兵庫県立大学・物質理学研究科・教授 (24506)	