

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H03467

研究課題名（和文）マグノニクス物質のオペランド共鳴非弾性軟X線散乱測定及びX線偏光歳差分光の開発

研究課題名（英文）Development of angle-resolved resonant inelastic X-ray scattering and X-ray polarization precession spectroscopy for magnonic materials

研究代表者

宮脇 淳（Miyawaki, Jun）

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・次世代放射光施設整備開発センター・主任研究員

研究者番号：70462736

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,600,000円

研究成果の概要（和文）：マグノニクスに利用されるスピンの集団励起であるマグノンの中でも、テラヘルツ領域の高エネルギー・高波数のマグノンの分散を観測できる手法が求められていた。本研究では、これに適したX線分光法として、角度分解共鳴非弾性X線散乱によるマグノン分散の測定システムの開発と、偏光を用いた新たな手法であるX線偏光歳差分光の実現可能性を検証するための装置開発を行った。X線偏光歳差分光は、高エネルギー分解能でマグノンを観測できることを実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

次世代の電子デバイスであるマグノニクスでは、電子のスピンの集団として示す性質であるスピン波（マグノン）を利用する。この高速な動作には従来よりも高エネルギーのマグノンの利用が考えられている。そこで、このような高エネルギーのマグノンの観測に適した手法が求められていた。本研究では、X線の偏光を利用するエネルギー分解能の高い新たな分光手法であるX線偏光歳差分光の開発を行い、高エネルギーのマグノンを観測する手法を実証したものであり、今後開発への利用が期待される。

研究成果の概要（英文）：Magnons are collective excitations of electron spins and intensively investigated for magnonics application. High-energy and high-momentum magnons in the terahertz region are used for high-speed operation, and X-ray spectroscopy is a suitable technique to observe the terahertz magnons. We have developed a measurement system for angle-resolved resonant inelastic X-ray scattering and a new technique using the polarization of X-ray, X-ray polarization precession spectroscopy. We have demonstrated that X-ray polarization precession spectroscopy can observe magnons with high-energy resolution.

研究分野：軟X線分光

キーワード：共鳴非弾性X線散乱 放射光 軟X線分光 偏光解析

## 1. 研究開始当初の背景

マグノニクスとは、電子を情報の伝達、演算に利用するエレクトロニクスに代わり、スピンの集団励起によるマグノン（スピン波）を利用する次世代技術である。マグノニクスは、電子やスピンを利用するエレクトロニクス、スピントロニクスと比べて、ジュール熱の発生がないことや、平均自由行程が長く長距離の伝達に有利なこと、波動性を利用した情報処理の可能性などから、基礎・応用の両面から活発に研究が行われている。

様々な用途に利用できるよう高効率・高速に動作する（＝高エネルギーのマグノンを利用した）デバイスを製作するためには、マグノンを制御することが求められる。高効率・高速な動作の実現は、微細加工を駆使したマグノニック結晶の製作や、新物質の探索・利用などによって目指している。これらの新たなマグノニック結晶や新物質中のマグノンの振る舞いを知り、開発を進展させるためには、マグノンの分散関係（運動量とエネルギーの関係）を測定することが必須となる。これまでは数 10 GHz 程度（ $\sim 0.1$  meV）以下のマグノンが使用されてきているが、より高速な動作に向けてテラヘルツ領域のマグノンの発生・検出に関する研究が活発に行われており、デバイス中の高波数・高エネルギーのマグノンの分散をどのように観測するかという課題があった。

マグノンの分散の観測には、強磁性共鳴(FMR)やブリルアン散乱(BLS)、中性子散乱(INS)、スピン偏極電子エネルギー損失(SPEELS)、時間分解分光等が従来利用されている。FMR や BLS は運動量  $q \approx 0$  nm<sup>-1</sup> の位相の揃ったスピンの歳差運動を観測し、 $q \neq 0$  nm<sup>-1</sup> の伝搬マグノンの観測はできない。INS や SPEELS は、伝搬マグノンである高波数空間の分散を測定できるが、INS は高エネルギー領域と微小試料の測定に不向きであること、SPEELS は非常に表面敏感（検出深度：数 nm）であるため、ともにデバイス中のマグノンの観測には不向きである。このように、従来の手法では注入された伝搬マグノンの実観測が困難であり、高波数・高エネルギー領域のマグノンの詳細な挙動が明らかとなっていない。そこで、高エネルギーのテラヘルツマグノンの高波数領域での観測を可能とする手法が強く望まれていた。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、角度分解共鳴非弾性軟 X 線散乱(SX-RIXS)の測定システムを開発しテラヘルツマグノンの分散を測定すること、及び、より高エネルギー分解能でのマグノンの分散測定が可能となる X 線偏光歳差分光(XPPS)装置を開発することである。

## 3. 研究の方法

RIXS は、ある元素の吸収エネルギーに合わせた共鳴条件で X 線を試料に照射し、散乱された X 線を分光することによって、電子状態や dd 励起、マグノン、フォノンなどの素励起を観測する手法である。i) 元素・化学状態選択性、ii) 偏光依存性、iii) 固体・液体・気体に適用可能、iv) 金属・半導体・絶縁体の測定が可能、v) 電場や磁場などの外場中での測定が可能、などの特徴を有し、強力な電子状態の分光手法として広く活用されている。試料からの散乱 X 線を角度分解して RIXS 測定することによって、素励起の分散も測定することが可能である。

本研究では、SPring-8 BL07LSU で RIXS 分光器の回転システムを開発し、RIXS の角度依存性を測定し、マグノンの分散の測定を行った。RIXS の現在のエネルギー分解能では低エネルギーのマグノンを観測することは困難であるため、比較的高エネルギーのマグノンを対象とした。さらに、低エネルギーのマグノンの観測に向けて、新たな超高分解能 RIXS 分光器の光学系を検討し、光学設計を行った。

XPPS の概念図を図 1 に示す。測定原理は、スピンの歳差運動が磁気線二色性を通じて散乱 X 線の偏光面を回転させる X 線版の角度/回転ドップラー効果であり、原理が提唱されている[1]。直線偏光の X 線を共鳴条件でマグノンを持つ試料に照射すると、散乱 X 線の偏光面がマグノンの振動数に応じた歳差運動を示す。この歳差運動の周期を観測することによってマグノンの振動数、すなわちエネルギーを知ることができる。周期は、散乱 X 線を多層膜偏光子に照射し、散乱 X 線の偏光子上の光路差による反射強度の違いを位置分解型の検出器で分別することによって偏光面の回転周期を同定できる。入射角、散乱角を変えることによって運動量依存も測定することができ、分散の取得も可能である。低エネルギーになるほど振動の周期が長くなるため、高エネルギー分解能化は比較的容易であるが、高エネルギーの振動は周期が短くなるため、検出器の空間分解能によって制限される。

XPPS によるマグノン観測の報告はなく、本研究では、SPring-8 BL07LSU にて、多層膜偏光子を有する偏光解析装置に XPPS 測定のための改良を施し、XPPS 測定のための開発、実証実験を行った。

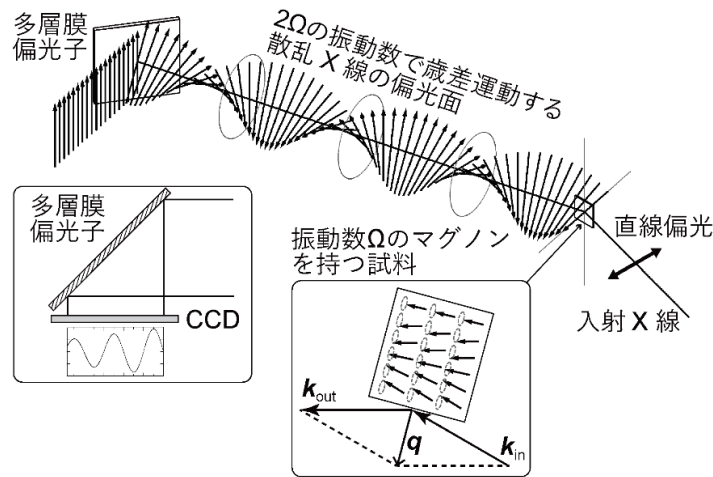


図1 XPPS の概念図。挿入図は検出方法を示す。多層膜偏光子に入射する散乱 X 線の光路差による反射強度の違いを位置分解することによって偏光面の回転周期を検出する。

#### 4. 研究成果

##### (1) 角度分解 RIXS 測定システムの開発

図2に、SPring-8 BL07LSUにて開発した角度分解 RIXS システムの全景及び模式図を示す。RIXS 分光器は石定盤上、 $2\theta=45\sim 135^\circ$ の範囲を高精度で回転する。回転時、チャンバーとの接続部のポートは3軸の回転動作の組み合わせによって連続的に RIXS 分光器の回転に追随し、超高真空を維持したまま分光器の回転が可能である。3次元的な分散測定では、試料の回転( $\theta$ )と RIXS 分光器の回転( $2\theta$ )を連動して動作させる必要があり、本システムでは、回転用チャンバーの3軸の回転も含めた5軸の回転をインターロックと連動して制御する角度分解 RIXS 測定システムを開発した。

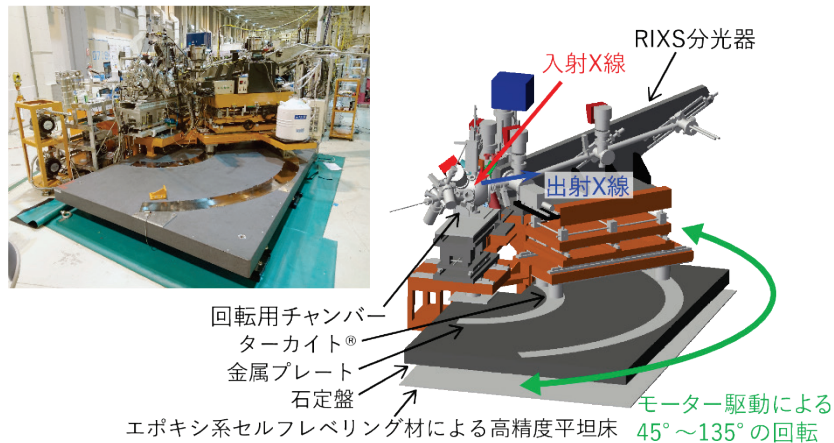


図2 角度分解 RIXS 装置の写真と模式図。

図3に本システムで測定した  $Y_3Fe_5O_{12}(YIG)(111)$  単結晶の RIXS スペクトルの弾性散乱近傍を示す。励起エネルギーは、Fe  $L_3$  端のメインピークに設定し、 $2\theta=45\sim 117^\circ$ を  $9^\circ$ 刻みで  $\theta$ - $2\theta$  スキャンによって(111)方向の分散を取得した。測定温度は室温であり、エネルギー分解能は約 175 meV に設定した。0 eV 付近のピークはエネルギー分解能から予想される弾性散乱のピーク幅よりも太いピーク構造を示し、非弾性散乱が含まれていることが示唆された。弾性散乱と非弾性散乱をフィッティングによって分解したところ、マグノンと考えられる 100 meV 付近の非弾性散乱が分散を持つことを明らかにした。

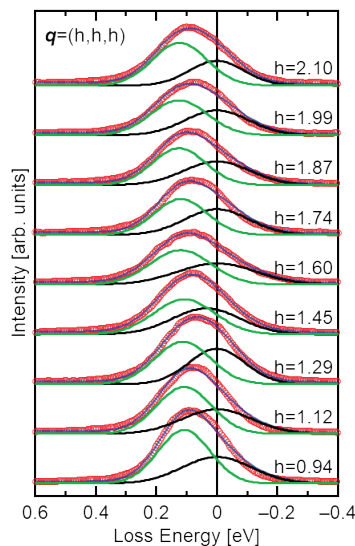


図3 YIG(111)単結晶の RIXS スペクトル。赤丸が実験データを、青線がフィッティング結果を示す。黒と緑の線はフィッティングによって分解された弾性散乱、非弾性散乱であり、非弾性散乱は分散を有する。

### (2) 超高分解能 RIXS 分光器の光学設計

YIG のマグノンにはより低エネルギーのブランチも多数存在するが、現在の世界最高レベルのエネルギー分解能の RIXS でも 20–30 meV 程度であり、より低エネルギーのマグノンを観測するために十分とは言えない。分解能向上のための開発が行われているが、効率が高分解能化に相反して低下するため、さらなる高分解能化には単色光を使う従来の手法では限界に達しつつある[2]。これを克服するために、単色光ではなく、エネルギー分散型の原理を用いる「2D-RIXS」という新たな RIXS 分光器を検討し、10 meV を切るエネルギー分解能を達成するための光学設計、性能評価を行った。2D-RIXS 分光器では、ビームラインからのエネルギー分散光を試料に照射し（分散方向は鉛直）、散乱 X 線は、その鉛直方向の入射エネルギーの分散情報は結像素子で位置関係を保ったまま検出器に結像するとともに、水平方向でエネルギーを分光して検出器上にエネルギー分散させる。これにより、鉛直と水平の2次元で入射 X 線と散乱 X 線のエネルギー情報を同時に取得することが可能となり、測定効率を飛躍的に向上させることができる。ただし、入射 X 線の水平方向を 1  $\mu\text{m}$  以下に安定的に集光し、散乱 X 線の鉛直方向を精密に結像させる必要がある。そこで、ウォルターミラーを用いた最新の集光・結像光学技術を投入することとし、最適化した。これにより、10 meV 以下の設計分解能において、従来型の光学系と比較して 10 倍以上という飛躍的に高効率を得られることを明らかとし、超高分解能 RIXS の実現可能性を示した。

### (3) XPPS の開発

XPPS を実証するため、SPring-8 BL07LSU の偏光解析装置の検出器を改造し、XPPS 測定のための開発を行った。図 4 に開発した XPPS 測定のための実験配置を示す。測定チャンバー内に設置した試料からの散乱 X 線を偏光解析装置まで導き、偏光解析装置内の多層膜偏光子からの反射光を CCD によって位置分解して検出することによって XPPS の振動構造を得る。偏光子からの最適な反射角度にはエネルギー依存があるため、励起エネルギーに応じて最適な反射角で検出できるように CCD は位置調整機構上に設置した。散乱面が水平面内のため、励起光の偏光として鉛直の直線偏光を用い、偏光子を水平に、検出器を鉛直方向に配置した。これにより、鉛直の直線偏光を持った弾性散乱の強度を抑えて、XPPS の振動の信号を効率的に検出することが可能となっている。

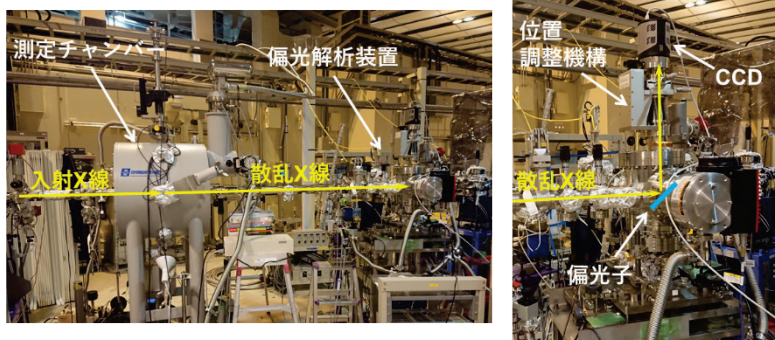


図 4 XPPS 測定の実験配置。

実証実験の対象にした試料は YIG(111)単結晶で、図 5 に Fe  $L_3$  端での XPPS の結果を示す。 $L_3$  端のメインピークでの測定で、XPPS による明瞭な振動構造の観測に成功した。吸収端より前に励起エネルギーを設定すると、振動構造は観測されなかったため、偏光子の反射強度の不均一性等によるアーティファクトではなく、共鳴効果によって偏光面に歳差運動が生じた結果得られたものと判断される。この周期は約 79  $\mu\text{m}$  で、マグノンの 2 倍の振動数を示すので、マグノンのエネルギーは 1.89 THz $\approx$ 7.8 meV と求められ、INS の結果と良い一致を示した[3]。以上のように、XPPS 測定のための装置開発を完了し、XPPS の実証実験に成功した。

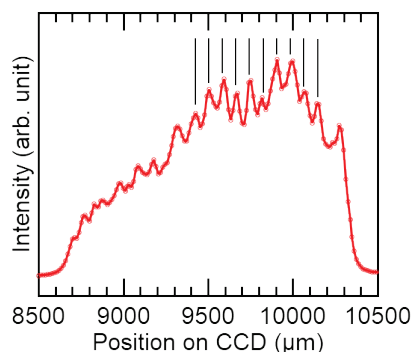


図 5 YIG(111)単結晶の XPPS。散乱 X 線の偏光子からの反射強度を表示しており、縦線は 79  $\mu\text{m}$  の周期を示す。

- [1] R. Röhlsberger, Phys. Rev. Lett. **112**, 117205 (2014).
- [2] K.-J. Zhou *et al.*, J. Synchrotron Rad. **27**, 1235 (2020).
- [3] J. S. Plant, J. Phys. C: Solid State Phys. **10** 4805 (1977).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Jun Miyawaki, Susumu Yamamoto, Yasuyuki Hirata, Masafumi Horio, Yoshihisa Harada, Iwao Matsuda	4. 巻 31
2. 論文標題 Fast and versatile polarization control of X-ray by segmented cross undulator at SPring-8	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 AAPPS Bulletin	6. 最初と最後の頁 25[24pp]
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s43673-021-00026-z	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 -

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 5件/うち国際学会 7件）

1. 発表者名 Jun Miyawaki
2. 発表標題 Current Challenges and Future Perspectives of Resonant Inelastic Soft X-ray Scattering at SPring-8 and Next Generation Synchrotron Radiation
3. 学会等名 International Young Researchers Workshop on Synchrotron Radiation Science 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jun Miyawaki
2. 発表標題 High Performance Soft X-Ray RIXS and applications to Magnetic Materials
3. 学会等名 11th International Conference on Inelastic X-ray Scattering（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮脇 淳
2. 発表標題 共鳴非弾性軟X線散乱による磁性研究と次世代放射光施設での展開
3. 学会等名 日本放射光学会第11回若手研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮脇 淳
2. 発表標題 超高分解能共鳴非弾性軟X線散乱で切り拓く磁性研究
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 J. Miyawaki, K. Fujii, T. Imazono, K. Horiba, Y. Ohtsubo, T. Nakatani, A. Agui, H. Kimura, and M. Takahashi
2. 発表標題 Ultrahigh Energy Resolution RIXS Beamline at Next Generation 3 GeV Synchrotron Facility in Tohoku
3. 学会等名 14th International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 J. Miyawaki
2. 発表標題 Ultrahigh Resolution hv2-RIXS Spectrometer at New 3 GeV Synchrotron Facility in Tohoku
3. 学会等名 Workshop on Resonant Inelastic and Elastic X-Ray Scattering 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 J. Miyawaki, K. Amemiya, and Y. Harada
2. 発表標題 Design Concept of Single-meV Resolution Soft X-ray RIXS Spectrometer
3. 学会等名 The 40th International Conference on Vacuum Ultraviolet and X-ray Physics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 宮脇淳
2. 発表標題 超高分解能2D-RIXSで挑むサイエンス
3. 学会等名 第35回日本放射光学会年会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮脇淳、藤井健太郎、今園孝志、堀場弘司、大坪嘉之 中谷健、安居院あかね、木村洋昭、高橋正光
2. 発表標題 次世代放射光施設 共用ビームライン検討状況 II 軟X線超高分解能共鳴非弾性散乱(RIXS)ビームライン
3. 学会等名 第35回日本放射光学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 宮脇淳、平田靖透、山神光平、松田巖、原田慈久
2. 発表標題 X線偏光歳差分光による高分解能スピン波検出II
3. 学会等名 日本物理学会第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮脇淳
2. 発表標題 超高分解能2D-共鳴非弾性軟X線散乱分光器の光学設計
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 宮脇淳、藤井健太郎、今園孝志、堀場弘司、大坪嘉之、中谷健、安居院あかね、木村洋昭、高橋正光
2. 発表標題 次世代放射光施設 共用ビームライン検討状況 軟X線超高分解能共鳴非弾性散乱(RIXS)ビームライン
3. 学会等名 第34回日本放射光学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 宮脇淳、平田靖透、山神光平、松田巖、原田慈久
2. 発表標題 X線偏光歳差分光によるスピン波の観測
3. 学会等名 第33回日本放射光学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 宮脇淳、平田靖透、山神光平、松田巖、原田慈久
2. 発表標題 X線偏光歳差分光による高分解能スピン波検出
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 宮脇淳、小瀬川友香、山添康介、崔藝濤、Ralph Ugalino、趙源衡、原田慈久
2. 発表標題 回折実験のための共鳴非弾性軟X線散乱装置の開発
3. 学会等名 日本物理学会2018年秋季学会
4. 発表年 2018年



1. 発表者名 宮脇淳、小瀬川友香、山添康介、崔藝洵、Ralph Ugalino、原田慈久
2. 発表標題 共鳴非弾性軟X線散乱装置による回折実験
3. 学会等名 日本放射光学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Jun Miyawaki, Shigemasa Suga, Hidenori Fujiwara, Masto Urasaki, Hidekazu Ikeno, Hideharu Niwa, Hisao Kiuhi, Yuka Kosegawa, Kousuke Yamazoe, Yitao Cui, Yoshihisa Harada
2. 発表標題 Dzyaloshinskii-Moriya Interaction in Fe203 Measured by RIXS MCD and Upgrade of SPring 8 BL07LSU
3. 学会等名 Workshop on Resonant Inelastic and Elastic X-ray Scattering 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Jun Miyawaki, Shigemasa Suga, Hidenori Fujiwara, Masto Urasaki, Hidekazu Ikeno, Hideharu Niwa, Hisao Kiuhi, Yuka Kosegawa, Kousuke Yamazoe, Yitao Cui, Yoshihisa Harada
2. 発表標題 Magnetic Circular Dichroism in Resonant Inelastic Soft X-ray Scattering of Fe203 and Status of SPring-8 BL07LSU
3. 学会等名 International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure (国際学会)
4. 発表年 2018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
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------