

時間分解コヒーレント軟 X 線散乱の開発とレーザー励起磁化反転への応用

Development of time-resolved coherent soft x-ray scattering and its application to laser-induced magnetization reversal

(日本放射光学会推薦)

代表研究者	兵庫県立大学	和達 大樹	University of Hyogo	Hiroki WADATI
協同研究者	防衛大学校	平田 靖透	National Defense Academy	Yasuyuki HIRATA

At the synchrotron radiation facility SPring-8 and the XFEL facility SACLA, we aimed to selectively observe the ultra-high-speed dynamics of magnetic texture due to coherent resonance soft X-ray small-angle scattering. First, two 0.5 μm pinholes were arranged at intervals of 4 μm , and interference fringes were observed from the double pinhole. In SACLA, the contrast of the interference fringes was close to 100%. It was revealed that SACLA has extremely high coherence and has a coherent length of at least 4 μm . After that, as a test pattern, we used a sample with SACLA characters processed using nanotechnology and a horizontal slit that creates a reference wave next to it. The soft X-rays that pass through the slit can be used as a reference wave to reconstruct the image of the sample. It was found that nanometer-scale spatial decomposition measurement using XFEL is possible. We then tried magnetic imaging. For the Gd / Fe superlattice, we observed changes in the interference fringes due to the resonance effect. This is considered to reflect the magnetic domain structure with a magnetic domain width of 400-500 nm. As for the laboratory light source, we have completed the setup of the Kerr microscope. This setup was improved so that the magnetic domain could be observed under laser irradiation. GdFeCo thin films showed the spin dynamics in real space under the condition of time resolution of 300 fs.

研究目的

省電力デバイスへの応用が期待されているスピントロニクスデバイスでは、光照射を使った超高速の磁化反転が活用できると考えられている。スピントロニクスデバイスにおけるスピンのダイナミクスは、磁気交換相互作用やスピン軌道相互作用、磁気異方性など様々な因子によって決定されており、デバイスの動作性能を決定する要因となっている。そのため、磁気励起のダイナミクスを微視的な観点から理解することが、スピントロニクスデバイスの材料開発や性能向上にとって必要不可欠となっている。スピンのダイナミクスを計測する有力な手法として、光照射などの外場印加に伴う磁気構造の過渡変化を時間分解測定する手法がある。一方で、複数の磁性

元素を含む物質のスピンダイナミクスは、各々の磁気モーメントが磁気相互作用しながら異なるダイナミクスを示すことがあり、多様な光制御につながる。このような観点から、磁性元素を選択的に時間空間分解して測定することは多磁性元素を含む磁性材料のスピンダイナミクスを理解する上で重要である。しかし、従来の光学的な手法では、元素別に空間分解したスピンダイナミクス計測は困難であった。本研究では、コヒーレント共鳴軟 X 線小角散乱によって磁気テクスチャの超高速イメージングを元素選択的に計測システムの構築を行う。これによってスピン波のダイナミクスや空間伝播の様子が観測できる。得られた結果の解析により、スピンダイナミクスを決定する磁気相互作用や磁気異方性、ス

ピン軌道相互作用などの情報を元素選択的に解明する。こうして、スピン波と不純物やドメイン壁との相関などを高い時間空間分解能で初めて観測し、スピンの反転、歳差運動、マグノンの伝播などのスピンダイナミクス現象を解明する。

研究経過

放射光施設 SPring-8 や XFEL 施設 SACLA において、コヒーレント共鳴軟 X 線小角散乱による磁気テクスチャの超高速ダイナミクスを元素選択的に観測することを目指した。Fig. 1 に実験のセットアップを示す。Si₃N₄ メンブレン上に設置した試料に軟 X 線を照射し、透過した軟 X 線を下流に設置した 2 次元検出器 CCD で計測している。試料と CCD の間には直接光をブロックするためのダイレクトビームキャッチャーも設置している。試料と CCD 検出器の距離は、測定対象に応じて 81~586mm 間で変えている。

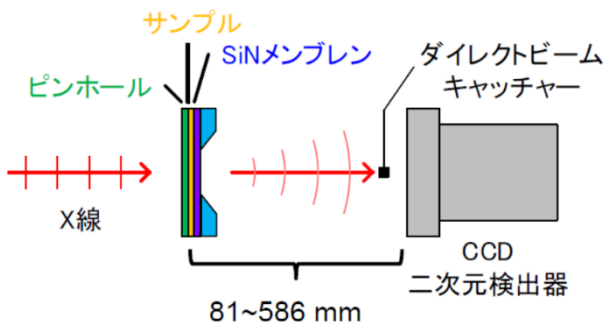


Fig. 1: Experimental setup.

そして、元素吸収端のエネルギーのコヒーレント軟 X 線を入射して、得られた回折図形から実空間の磁気イメージングを目指した。例えば鉄の M 吸収端である 70 eV 程度の軟 X 線を用い、100 nm 以下の高い空間分解能で元素選択的にイメージングできる。また、SACLA の軟 X 線は 50 fs 程度のフェムト秒パルス光である。こうして、元素選択性と高い時間空間分解能の下で測定が可能となる。

これまでに、SPring-8 の東大物性研ビームライン BL07LSU と SACLA の軟 X 線ビームライン BL1 において、Fig. 1 の測定セットアップを接続した。まずは 0.5 μ m のピンホールを 4 μ m の間隔で 2 つ並べダブルピンホールからの干渉縞の観測を行った。SACLA では干渉縞のコントラストが 100% に近かった。SACLA のコヒーレンスが極めて高く、少なくとも 4 μ m 以上のコヒーレント長を有していることが

明らかになった。

その後、下の Fig. 2 のようなテスト的な小角散乱の結果を得ている。右上にナノ加工技術を活用して加工したパターンを示す。SACLA の文字とその隣に、参照波を作り出す横方向のスリットが配置されている。スリットを通り抜けた軟 X 線は参照波として、試料の画像を再構成できる。スリットを参照光として用いるこの手法は HERALDO (holography with extended reference by autocorrelation linear differential operator) と呼ばれ、位相回復計算などなしに実空間画像が得られるホログラフィーの一種である。

左がこのパターンに軟 X 線 XFEL を照射(a)して得られた小角散乱の回折図形である。横方向のスリットを参照波の波源として用いた際の、計測した回折図形から再構成(b)した試料の画像を右下に示す。右上とよく一致していることから、XFEL を用いたナノメートルスケールの空間分解測定がすでに成功している。次に、実際の磁区構造を観測する段階となった。

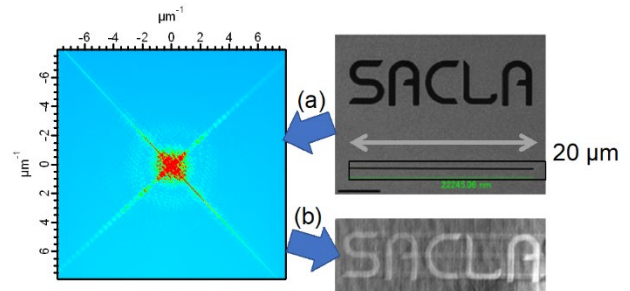


Fig. 2: Preliminary small-angle scattering at SACLA BL1. (Upper right) Processed SACLA character pattern. (Left) Diffraction patterns obtained by small-angle scattering by XFEL irradiation (a). (Lower right) Reconstructed image (b).

こうして、次の段階として、コヒーレント軟 X 線による X 線小角散乱により、集光レンズを用いずに実空間磁気イメージングを目指した。軟 X 線領域に Fe などの 3d 遷移金属の L, M 吸収端があり磁気モーメントの情報が検出可能なため、コヒーレント共鳴軟 X 線小角散乱によりナノ領域の磁気イメージングを行うことができる。磁性体薄膜試料 Ta(5 nm) / [Gd(0.4 nm)/Fe_{0.9}Co_{0.1}](0.34 nm)]₈₀/Ta(10 nm)/Si₃N₄ 膜での測定を行った。Gd/(Fe,Co) 超格子は Gd と(Fe, Co) 間でスピニングがフェリ磁性な相互作用を示し、弱い磁場印加によりスキルミオンが形成されることな

どが特徴である[1]。この試料からは、400-500 nm の磁区幅が Kerr 顕微鏡から得られている。Fig. 3 に示すように、SACLABL1において、54 eV (Fe M 端) で干渉縞に共鳴効果によると考えられる干渉縞の変化を観測した。ここで、(a)がピンホール上に置いた磁性体薄膜。(b)がピンホールのみ結果である。これは400-500 nm の磁区幅の磁区構造を反映したものと考えられる。

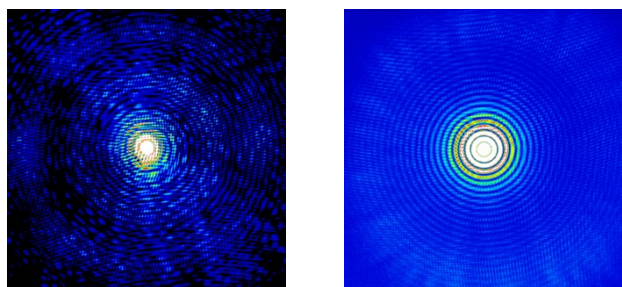


Fig. 3: Small-angle scattering measured at 54 eV (Fe M edge) at SACLA BL1. (a) A magnetic thin film placed on a pinhole. (b) Pinhole only.

さらに、実験室光源においても、磁区観察ユニットを用いた磁区観察のためのカー顕微鏡のセットアップを完成させた。そして、参照資料としてガーネット薄膜の観察を行い、迷路状の磁区構造を見ることができた。

その後、レーザー照射下で磁区を観察するようにセットアップの改良を行った。レーザー光による磁化の制御は記録媒体への応用が期待されている。今回我々は、[2]のようにレーザーの偏光依存性が磁化に与える影響について実験を行った。波長 1030 nm, 周波数 1 kHz のパルスレーザーを偏光板を通して試料に当て、カー顕微鏡を用いて磁区を観測を行った。実験では Ta (1 nm)/Ru (1 nm)/GdFeCo (20 nm)/ Ru (20 nm)/Ta (5 nm)/glass (substrate)薄膜と、断熱効果があるとされる Si₃N₄層を GdFeCo (20 nm)/ Ru (20 nm)の間に挿入した薄膜に、直線偏光のレーザーを照射し、Fluence の依存性を解析した(Fig. 4 上)。

また、さらにレーザー照射下での時間分解カー顕微鏡を確立し、実験室での時空間分解を可能とした。時間分解能はレーザーのパルス幅である 200 fs の自己相関である 300 fs 程度となる。円偏光のレーザーを試料に照射した際に、時間分解測定も行い磁区の形成過程を画像のコントラストから定量的に解析し

た。Fig. 4 下にレーザー照射後の GdFeCo 薄膜の磁区を示す。レーザーの偏光に依存して磁区の違いが見られており、磁化反転のダイナミクスの解釈のための実空間における重要な情報が得られている。

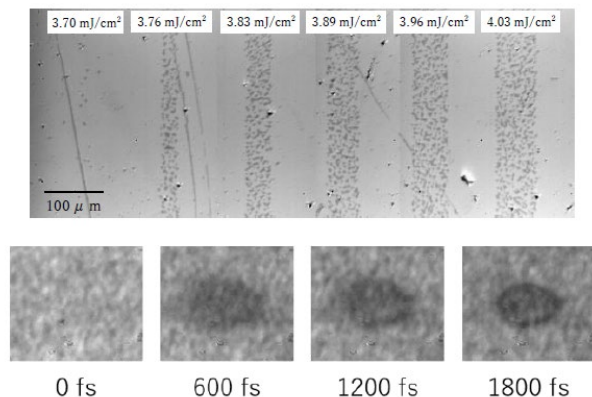


Fig. 4: (Top) Magnetic domains of GdFeCo after irradiation with linearly polarized laser. (Bottom) Time evolution of magnetic domains of GdFeCo after laser irradiation.

考察

以上のように我々は、コヒーレント共鳴軟 X 線小角散乱のセットアップを Fig. 1 のように確立し、SPRing-8 や SACLA に接続して測定を行うことができた。そして、2次元 CCD 検出器上に、ダブルピンホールからの干渉縞の観測を明確に観察することができた。こうして、X 線のコヒーレンスを活かした研究を行う舞台は整った。

その後に行ったのが Fig. 2 のようなテストパターンの測定であった。このテストパターンは X 線の透過率が 0 の部分と 1 の部分のみからなるデジタルな試料と考えられ、成功する可能性が非常に高かったが、実際その通り SACLA の文字を再生することができた。

その一方で、Gd/(Fe,Co) 超格子の磁気イメージングについては、実際の磁区構造を X 線のコヒーレンス利用により観測するまでにはいたらなかった。磁区は 0 と 1 のみでなく、アナログの試料であることから難易度は高いと予想される。そのため、ピンホールの穴のサイズをいくつも試すなど行ったが、磁区の明確な姿はとらえられなかった。SACLA の X 線が直線偏光のみであることが問題であり、今後の対策としては、円偏光 X 線を使えるようにしてより磁

気コントラストを明確にすることが必要と考えられる。

磁区観察に関しては、物質の屈折率が1よりやや小さくレンズの作れないX線領域よりは、レンズの存在する可視・赤外領域のほうが容易であることにより、実験室光源においても、磁区観察ユニットを用いた磁区観察のためのカー顕微鏡のセットアップを完成させた。これにより、時空間分解したスピンダイナミクスの観測に成功している。

以上のように、コヒーレント共鳴軟X線小角散乱については、SACLAのみで進めていくことの困難さも強く感じられる結果であった。磁気イメージングのような難しい研究課題については、大型施設のビームタイムに制約を受けない必要もあると考えらえる。そこで、実験室レーザーの高次高調波発生により、軟X線領域までカバーし、強度が弱くてもSACLAのような測定が可能となることを目指したいと考えている。

参考文献

- [1] J. C. T Lee *et al.*, Appl. Phys. Lett. **109**, 022402 (2016).
- [2] T. Ohkochi *et al.*, Appl. Phys. Express **10**, 103002 (2017).

研究の発表

口頭発表

1. H. Wadati, “Ultrafast x-ray study of charge/spin dynamics”, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES2019), Okayama Convention Center, Okayama, Japan, 2019/9/25, Invited
2. H. Wadati, “Time-resolved x-ray measurements for observing spin/charge dynamics”, OptoX-NANO 2019 conference, Okayama Convention Center, Okayama, Japan, 2019/12/4, Invited
3. 和達大樹, X線の時間構造を使った磁性体研究、レーザー学会学術講演会第40回年次大会、仙台国際センター、2020/1/21
4. 和達大樹, X線で元素別に見るスピンのダイナミクス、第75回スピントロニクス専門研究会、オンライン、2020/7/22
5. 安部弘隆、高橋龍之介、高橋宏和、山本航平、角田匡清、大河内拓雄、木下豊彦、○和達大樹、レーザー照射下でのカー顕微鏡によるGdFeCo薄膜の磁区の観察、2021年 第68回応用物理学会春季学術講演会、オンライン、2021/3/16