

2024年度（第49回）學術研究振興資金 學術研究報告

学 校 名	関 西 学 院 大 学	研究所名等	
研 究 課 題	X線自由電子レーザーによるX線誘起フェムト秒磁気ダイナミクス	研 究 分 野	理 学 (理工系)
キ ー ワ ー ド	①X線自由電子レーザー ②放射光 ③磁気ダイナミクス ④円偏光X線 ⑤光誘起磁化 ⑥逆ファラデー効果		

○研究代表者

氏 名	所 属	職 名	役 割 分 担
鈴木 基 寛	関 西 学 院 大 学 工 学 部	教 授	総括・手法開発・実験・論文作成

○研究分担者

[illegible]

X線自由電子レーザーによるX線誘起フェムト秒磁気ダイナミクス

1. 研究の目的

本研究では、新たな原理に基づくスピン制御技術の構築を目指し、より高速なピコ秒からフェムト秒での元素選択的なスピンドYNAMIKSの解明を通じて、超高速スピン制御原理の探求を目的とする。

- (1) 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り、スピン偏極した励起状態、すなわち「X線誘起磁化」を瞬間的に生成し、その緩和過程の動的現象を解析するための手法を開発する。
- (2) 開発した測定手法をフェリ磁性体 GdFeCo 薄膜に適用し、フェムト秒からピコ秒の時間スケールでのスピン選択的な内殻励起状態とその緩和過程の動的現象を観察する。
- (3) 得られた結果を解析することで、上記の時間スケールで起こるスピン選択的な内殻励起状態とその緩和過程の情報を引き出し、スピンに依存した電子間相互作用や磁気素過程を元素選択的に解明する。これにより従来の 100 倍以上高速なデバイスのためのスピン制御原理を提示する。

2. 研究の計画

本研究では、円偏光 XFEL パルスを励起光とし、可視光パルスレーザーを検出光とするポンプ・プローブ法を用いる。XFEL パルスを試料に照射することで瞬間的な磁性変化を誘起し、可視・近赤外領域の磁気ファラデー効果を検出することにより磁性変化の時間分解計測を行う。2023 年度には、計測に用いる偏光顕微磁気光学系の開発と性能評価を行った。2024 年度には、開発した偏光顕微光学系をX線自由電子レーザー (XFEL) 施設 SACLA に持ち込み、X線誘起磁気ダイナミクスの観測を行うことを目的とした。具体的には以下の項目について研究を行った。

- (1) XFEL 励起-近赤外パルスレーザー検出による、ポンプ・プローブ測定系の構築
- (2) GdFeCo 試料に対するX線誘起磁気ダイナミクス測定

3. 研究の成果

- (1) XFEL 励起-近赤外パルスレーザー検出による、ポンプ・プローブ測定系の構築

2024 年度に開発した偏光顕微光学系をX線自由電子レーザー施設 SACLA に持ち込み、XFEL 励起-近赤外パルスレーザー検出による、ポンプ・プローブ測定系を構築した。実験は SACLA の共同利用ビームタイムを取得し、BL3 ビームラインにおいて行った。構築した測定系を図1に示す。励起光である XFEL の光子エネルギーは Gd の L_3 吸収端の 7.246 keV とした。円偏光した XFEL をX線屈折レンズにより試料上に $2 \times 3 \mu\text{m}^2$ のスポットに集光した。励起光である XFEL パルスと検出光である Ti サファイアレーザーパルスを同期させ、両者の時間間隔を 60 fs の精度で制御した。

偏光顕微光学系は、顕微鏡対物レンズ、ウォラストン偏光プリズム、および2台の高感度 CMOS カメラで構成される。この光学系により、プローブレーザーを光源とした試料の拡大透過像を $100 \mu\text{m}$ の視野で観察することができる。試料に垂直偏光したレーザーを入射し、ウォラストンプリズムを用いて試料透過光の垂直

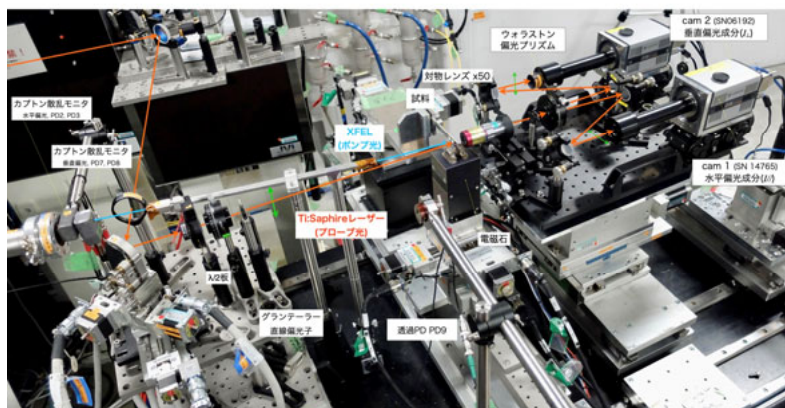


図1. SACLA に構築した XFEL 励起-近赤外パルスレーザー検出による、ポンプ・プローブ測定系。

偏光成分と水平偏光成分を分離し、2 台の高感度 CMOS カメラ上で顕微画像として撮影した。水平偏光成分を検出するカメラ 1 では、ファラデー回転による磁気コントラスト変化を測定し、垂直偏光成分を検出するカメラ 2 では、試料透過光の強度変化を測定する。この方法により、XFEL 照射による磁性（ファラデー回転角）の変化と電子状態（透過光強度）の変化を同時に取得することができる。

データ取得系については、CMOS カメラを制御するための Windows PC 上の LabView プログラムと、SACLA のデータ収集システム（Linux）との連携制御・同期測定シーケンスを構築した。これにより、XFEL 30 Hz、近赤外ポンプレーザー 60 Hz の繰り返しに同期して 2 台の CMOS カメラの画像データ取得を行うシステムを構築した。

上記の測定系により、ワンショットでの磁気ファラデー回転角画像の取得が行えることを確認した。取得画像のノイズとコントラスト比から、磁気ダイナミクス測定の十分な精度が得られることを確認した。

(2) GdFeCo 試料に対する X 線誘起磁気ダイナミクス測定

上記の測定系を用いて、GdFeCo フェリ磁性合金の X 線誘起磁化観測を行った。Gd 組成 25%、膜厚 30 nm の試料に対するワンショット磁気画像を図 2 に示す。XFEL を照射した視野中心部分のコントラストが、XFEL 照射後の時間とともに変化する様

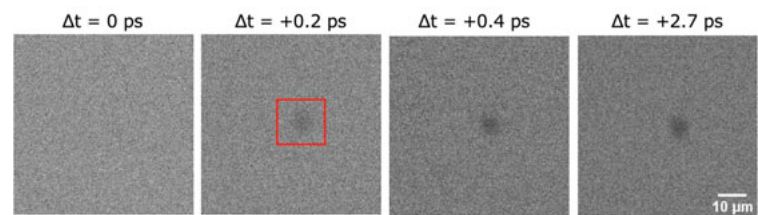


図 2. GdFeCo 試料の XFEL 照射によるフェムト秒での磁性変化。

子を捉えることができた。この結果は、XFEL 照射により試料の磁化が瞬間的に減少していることを示しており、X 線誘起による磁気ダイナミクスを直接観察することに成功した。

2 台の CMOS カメラ画像の XFEL 照射位置のコントラスト変化（図 2 中の赤い四角で囲んだ領域の画像強度）の、XFEL 照射後のディレイ時間に対する依存性を解析した。その結果、カメラ 1 によるファラデー回転角の変化から、XFEL 照射により磁化が減少することが明らかになった。また、逆方向に試料を磁化した場合にも、減磁を示す同様な結果が得られた。減磁は XFEL パルス照射後 300 fs で完了しており、XFEL の照射によって、1 ps 以内の高速な減磁が誘起されることが初めて明らかになった。照射後 2 ps までは一定の磁化の値を保ち、その後、数 10 ps 以上の緩和時間で、元の磁化の値に戻っていく様子が観測された。磁気コントラストの減少量から、減磁量は飽和磁化に対して 10～20%であり、磁化反転、あるいはゼロ磁化までの減磁には到達していないといえる。

また、垂直偏光成分を検出するカメラ 2 による画像のコントラストは試料の透過率に対応しており、XFEL 照射によって試料の透過率も変化することが観測された。透過率変化は XFEL 照射後 100 fs で起こっており、上で述べた減磁よりも速い変化であった。X 線照射により誘起される磁性変化と電子状態の変化が異なる時間で起こることを示唆しており、興味深い結果である。一方で、照射による SiN メンブレン基板の透過率変化を観測している可能性もあるため、慎重に判断する必要がある。そのため、2025 年度に検証のための追実験を予定している。

4. 研究の反省・考察

3. で述べたように、GdFeCo 試料に対して X 線誘起磁気ダイナミクスの観測を行い、磁性と電子状態の変化に関して、異なる時間スケールでのダイナミクスが誘起されることを初めて明らかにした。一方で、励起光として用いた XFEL の円偏光ヘリシティに対する依存性については、実験誤差内では有意な変化として観測されなかった。左右円偏光に対する磁性変化の違いが観測されれば、よりインパクトの高い成果となるため、今後は測定と解析の精度を高め、励起光のヘリシティ依存性について精査していきたい。さらに、XFEL 励起強度、光子エネルギー、試料組成など異なる条件に対するデータの蓄積を行う予定である。この目的のため、セルフシード XFEL の利用や、ダイヤモンド移相子の高速駆動による XFEL とパルスと同期した円偏光スイッチング法の開発・導入を行う。これらの計画に沿って、XFEL 誘起磁化信号の測定精度をさらに高めるための装置開発と測定条件の最適化を、今後も継続していく予定である。

5. 研究発表

- (1) 学会誌等
なし
- (2) 口頭発表
なし
- (3) 出版物
なし