2025年度（第50回）学術研究振興資金　学術研究報告

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		

〇研究代表者

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

〇研究分担者

氏　　名	所　　属	職　　名	役　割　分　担
藤 原　明 比 古	関 西 学 院 大 学　工 学 部	教　　授	実験・物性評価

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ダイナミクスの解明を通じて、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素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ことを長期的な目標とする。

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に着手した。そして 2025 年度には、GdFeCo 試料に対する X 線誘起磁気ダイナミクスの円偏光依存性の観測を行うことを目的とした。

3. 研究の成果

実験は SACLA の BL3 で行った。試料には厚さ 30 nm の $Gd_x(FeCo)_{100-x}$（x = 23, 25）アモルファス合金を用いた。励起光として用いた XFEL の光子エネルギーを Gd L_3吸収端の 7.2455 keV とし、プローブ光は中心波長 803 nm の Ti:サファイアレーザーを用いた。昨年度に開発した磁気ファラデー顕微鏡光学系（図 1）を SACLA のビームラインに導入し測定を行った。試料を透過したプローブ光をウォラストンプリズムで水平・垂直偏光成分に分離し、2 台の CMOS カメラで偏光顕微画像を取得することでファラデー回転角（磁性）と透過率（電子状態）の変化をシングルショットで検出した。

図 2 に $Gd_x(FeCo)_{100-x}$（x = 25）試料に対して得られた、XFEL 照射後の異なる遅延時間での測定画像を示す。磁性と透過率変化とも XFEL 照射による強度変化が見られた。また、図 3 に左右円偏光 XFEL に対する磁性変化を示す。両者ともに時定数 0.2 - 0.3 ps での減磁が観測され、その後、数 ps 秒での緩和が観測された。左回り円偏光に対する磁性変化よりも右回り円偏光に対する変化の方が約 5% 大きく観測された。この円偏光ヘリシティ依存性

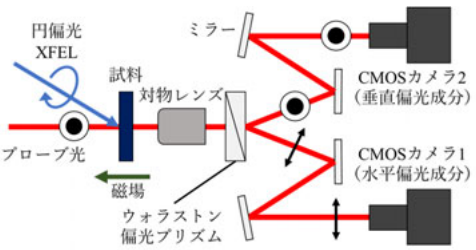


図 1. 磁気ファラデー顕微鏡を用いた XFEL 励起-近赤外レーザープローブ測定系

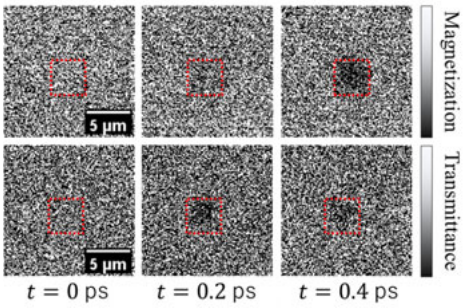


図 2. 各遅延時間における測定画像
（上：水平偏光成分(磁性変化)、下：垂直偏光成分(透過率変化)）

は Gd L_3吸収端での XMCD の符号と合致し、XMCD に起因すると考えられる。一方で、励起光に用いた X 線のエネルギーでは XMCD の大きさは 3% 程度であり、円偏光依存性は X 線吸収の際だけでなく、X 線吸収後の Gd 5d - Fe 3d、あるいは Gd 4f - Fe 3d 間相互作用等の寄与が考えられる。減磁の大きさはフルエンスに対して比例関係にあり、非線形現象は確認できなかった。また減磁時間にもヘリシティ依存性が観測されたが、フルエンスによる明確な違いは見られなかった。

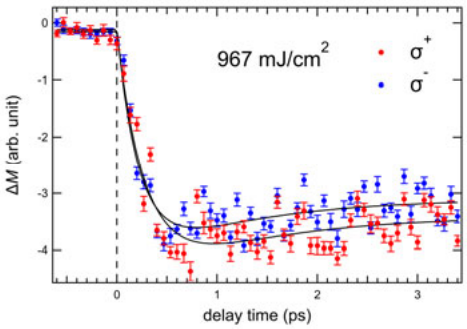


図 3. 円偏光 XFEL 励起光に対する磁性変化
（σ^+：右回り円偏光、σ^-：右回り円偏光）

つづいて、$Gd_x(FeCo)_{100-x}$（x = 23）試料に対して得られた結果と比較したところ、磁気ダイナミクスの円偏光依存性が x = 23 と x = 25 の試料で逆転していることが分かった。この結果は、補償組成（$x \approx 24$）の前後で Gd と Fe の磁気モーメントの大小関係と全磁気モーメントに対する Gd 磁気モーメントの関係が逆転していることと合致しており、Gd の内殻励起による磁気ダイナミクスが、元素ごとの磁気モーメントと励起光である XFEL の円偏光ヘリシティに依存していることを示唆している。

さらに、比較のために円偏光可視光励起による磁気ダイナミクス測定を行った。その結果、可視光励起と XFEL 励起では磁気ダイナミクスに違いが見られ、XFEL 励起の減磁時間が可視光励起に対して約 2 倍速いことが分かった。また、XFEL 励起に対してのみ円偏光依存性が見られ、透過率変化も XFEL に対してのみ観測された。これらの結果からも、価電子帯励起による磁気ダイナミクスと内殻電子励起による元素選択的な磁気ダイナミクスは異なるメカニズムで起こっていることが示唆された。

4. 研究の反省・考察

本研究では、Gd L_3吸収端において、フェリ磁性体 GdFeCo の円偏光 XFEL 誘起磁気ダイナミクスを観測した。得られた円偏光依存性の結果から、XMCD が磁気ダイナミクスのメカニズムに密接に関与していることを明らかにした。一方で、磁気ダイナミクスにおける減磁強度のヘリシティ依存性は、XMCD 信号強度と比較して約 2 倍大きいことが分かった。この起源を解明するためには、内殻励起後のダイナミクスに関する詳細な解析および理論モデルの構築が必要である。

したがって、今後の課題として、内殻励起後の Gd 4f-5d 電子系と Fe 3d 電子系との相互作用を考慮した理論計算が挙げられる。また、実験的には、励起光エネルギー依存性を測定することで、元素選択的な磁気ダイナミクスをより詳細に調べる必要がある。特に、Fe の 3d バンドを直接励起可能な Fe L 吸収端および M 吸収端における軟 X 線 FEL 励起実験を実施したい。軟 X 線領域での実験には真空環境が不可欠であるため、真空槽内の試料に対する X 線励起-可視光プローブ測定系の開発が必要となる。これは本研究をさらに発展させるための、今後の実験技術における重要な課題の一つである。

5. 研究発表

(1)学会誌等

① 鈴木 基寛、西村 渉、田中 健太、大河内 拓雄、久保田 雄也、片山 哲夫、中村 哲也、松田 巌、田中 義人、“XFEL 誘起磁気ダイナミクス実験のためのＸ線ポンプー近赤外レーザープローブ測定系の開発”、SPring-8 SACLA利用研究成果集（SPring-8/SACLA Research Report）、Vol. 14、71-74（2026）。DOI 10.18957/rr.14.1.71

(2)口頭発表

① 秋山裕輔、小林玲、山田貴大、吉川大貴、竹村海輝、小幡竜世、後長葵、笹倉颯太、金島圭佑、富樫格、久保田雄也、塚本新、田中義人、鈴木基寛、“フェリ磁性体GdFeCoの円偏光 XFEL 励起磁気ダイナミクスのヘリシティ依存性”、第39回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2026年1月7日～9日、東北大学百周年記念会館 川内萩ホール・仙台国際センター展示棟。

② K. T. Yamada, R. Kobayashi, I. Sugiura, Y. Kubota, Y. Akiyama, S. Sasakura, A.

Gocho, K. Takemura, S. Mochizuki, S. Takahashi, T. Ohkochi, I. Matsuda, T. Ono, T. Togashi, Y. Tanaka, and M. Suzuki, “Helicity-dependent ultrafast spin dynamics in a Pt/Co/Pt multilayer excited by hard x-ray pulses”, Iwate spintronics School 2026, 3-6 March 2026, Iwate.

③ K. T. Yamada, R. Kobayashi, I. Sugiura, Y. Kubota, Y. Akiyama, S. Sasakura, A. Gocho, K. Takemura, S. Mochizuki, S. Takahashi, T. Ohkochi, I. Matsuda, T. Ono,T. Togashi, Y. Tanaka, and M. Suzuki, “Helicity-dependent ultrafast demagnetization in a Pt/Co/Pt multilayer excited by hard x-ray pulses”, Joint European Magnetic Symposia (JEMS) 2025, 24-29 August 2025, Frankfurt.

④ K. T. Yamada, R. Kobayashi, I. Sugiura, Y. Kubota, Y. Akiyama, S. Sasakura, A. Gocho, K. Takemura, S. Mochizuki, S. Takahashi, T. Ohkochi, I. Matsuda, T. Ono, T. Togashi, Y. Tanaka, M. Suzuki, “Ultrafast spin dynamics induced by circularly polarized hard x-ray pulses in a Pt/Co/Pt multilayer”, IcAUMS2025: International Conference of Asian Union of Magnetics Societies, 21-24 April 2025, Okinawa.

(3)出版物

なし