

スピンのダイナミクスを元素別に見る

Keyword: 時間分解 XMCD

1. はじめに

これまでの20世紀の物質科学では、物質内の電子の自由度のうち電荷を用いるものが主流であった。これが半導体などのエレクトロニクスを生み出した。21世紀に入り、電子の自由度のうちスピンを用いるスピントロニクスが盛んに研究されている。スピンは電荷と違い散逸が少ないことから、ロスが少ない輸送が物質内で実現し、省エネルギーに貢献することが大いに期待されている。スピントロニクスにおいて、強磁性体の薄膜は特に重要な要素物質である。薄膜においてはその形状異方性よりスピンの面内を向きやすいが、高密度メモリーのためにはスピンの面直方向を向きやすい垂直磁化膜が注目を集めている。実際には強磁性の代表的な物質であるFeとPtの合金などを作ることでこのような性質が実現されることが分かっている。室温から強磁性を示すうえに酸化などに強い安定な物質であることから、デバイスへの応用に直結した研究も行われている。

スピントロニクスにおいては最近、スピン制御の究極の姿である「レーザー励起磁化反転」が盛んに研究されている。デバイスにおいてそのnmスケールの極小部分のみに磁場をかけることは難しいため、スピンの制御に磁場を使わずに光のみで行うことが求められるためである。この現象はフェリ磁性合金GdFeCoの薄膜などで最初に発見された¹⁾ことから、磁性元素を2つ以上含む垂直磁化膜であることとフェリ磁性であることの両方が必要ではないかと考えられた。しかし最近、強磁性のFePt薄膜やCo/Pt超格子薄膜などでも同様の現象が観測された。²⁾ 磁性元素を2つ以上含む垂直磁化膜であればフェリ磁性は不要とも考えられ始めているが、レーザー励起磁化反転のメカニズムは依然未解明となっている。

2. 時間分解 XMCD

ここでは、レーザー励起磁化反転のメカニズム解明のため、シンクロトロン放射光(SR) X線を用いた時間分解 X線磁気円二色性(XMCD)測定 of 最近の発展を紹介したい。XMCDは、SRのうち特に偏光とエネルギーの可変性を活かした測定である。物質中に磁化がある場合、X線の吸収率が左右の円偏光で差が生じる。これがXMCDであり、特にX線のエネルギーを元素の吸収端に合わせることで、元素別の磁化を得ることができる。より詳しくは例えば文献3を参考にいただきたい。上記のように磁化反転については混沌とした状況であるが、「磁性元素を2つ以上含む垂直磁化膜」であることは必要条件と考えられるため、

磁性元素別のレーザーに対する応答、スピンドイナミクスを時間分解XMCDで測定することが不可欠と考えられる。

そこで、フェムト秒オーダーの時間幅のレーザーをポンプ光、SRをプローブ光として、ポンププローブ型の時間分解XMCD測定を考えることになる。ポンプレーザーとしてはチタンサファイアレーザーがよく使われ、波長は800 nm (1.55 eV)程度で、時間幅は100 fs程度以下である。SRは50 ps程度のパルス幅を持つため、この測定の時間分解能はSRの時間幅である50 ps程度になってしまう。その一方で磁化反転はピコ秒以下のスケールの現象であるため、時間分解能が足りないという問題が生じる。X線自由電子レーザー(XFEL)ではこの時間スケールに到達しているが、光が強すぎることによる試料損傷の問題がある。またビームタイムもSRに比べ非常に限られている。そこで、SRで1 ps以下のX線パルスを作ることが求められている。

3. 世界の現状

上述のように磁化反転の時間スケールに到達するには、1 ps程度以下の時間分解能が必要となる。fsスケールの短いX線パルスを作り出す方法の1つに、「レーザースライシング」がある。この方法では、電子バンチを強度の高い超短パルスレーザーで撃つことで、非常に短い電子バンチを作る。この電子バンチは空間的にほかのものと分けられ、非常に短いX線パルスを生み出す。この方法で、X線の光量は非常に犠牲になるが、fsスケールのX線パルスを得ることができる。ドイツ・ベルリンのBESSY IIではレーザースライシングによって1 ps以下のX線パルスを使って時間分解XMCD測定が行われている。⁴⁾

図1(a)にフェリ磁性合金Gd₂₅Fe_{65.6}Co_{9.4}に対するBESSY IIで得られた時間分解XMCDの結果を示す。横軸の時間スケールからも分かるように、レーザースライシングによって1 ps以下の超高速な時間応答が得られている。X線のエネルギーとして、FeのL₃端(2p_{3/2}→3d)とGdのM₅端(3d_{5/2}→4f)を用いることでFe 3dとGd 4fのスピンをバラバラに観測することができる。レーザー照射前にはXMCDの符号がFeとGdで逆であり、フェリ磁性における反強磁性的な結合を示している。

レーザー照射後、FeとGd両方の元素の磁化が減少するが、Feの消磁は300 fs程度で完了するのに対しGdのほうは1.5 ps程度かかっており、時定数が4倍程度異なっている。そして、300 fsと1.5 psの間ではFeとGdのXMCDが同符号となり、磁化が平行である強磁性的な状態が1 ps程

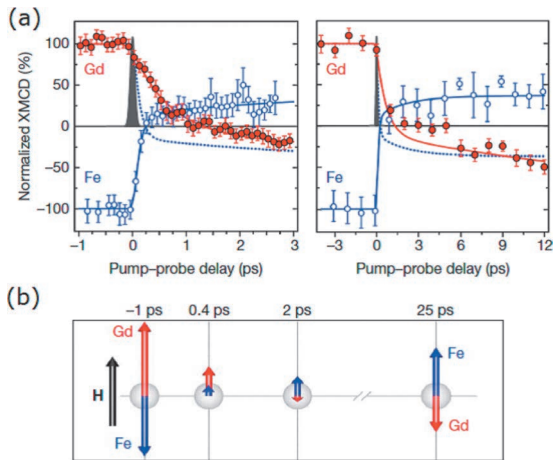


図1 (a) 時間分解 XMCD で見たフェリ磁性合金 $Gd_{25}Fe_{65.6}Co_{9.4}$ の Fe と Gd の磁気モーメントのダイナミクス. (b) (a) で得られた結果の模式図. 文献4より.

度の短い時間に生じていることが分かった. スピンドダイナミクスの模式図を図1(b)に示す. このような過渡的な強磁性状態は本研究によって初めて明らかになったものであり, 磁化反転メカニズム解明の鍵と提案された.

4. 国内の現状

国内では現在, 我々のグループが東大物性研ビームライン (SPring-8 の BL07LSU) で建設を行った装置で測定可能である.⁵⁾ 図2(a)に装置の模式図を示す. レーザーとSRを真空チャンバー内で測定試料に当てることのできる実験セットアップとなっている. BESSY II の図1の結果はAl膜上の $Gd_{25}Fe_{65.6}Co_{9.4}$ 薄膜に対して行われており, 透過法での測定である. その一方で我々の測定装置では, マイクロチャンネルプレート (MCP) を試料に近づけることで, 透過法でなく基板上の薄膜に対して測定が可能であり, 測定できる薄膜試料の種類が各段に広がっている. この装置から得られた FePt 薄膜に対する時間分解 XMCD の測定結果を図2(b)に示す. X線のエネルギーとして, Fe の L_3 端: 707 eV ($2p_{3/2} \rightarrow 3d$) を用いている. 同種の測定は国内ではほかに光電子顕微鏡による時間分解 XMCD などがある.⁶⁾ XMCD の消える消磁の時間スケールは SR の時間幅である 50 ps で隠れてしまっているため, 今後 XFEL による 1 ps 以下の高い時間分解能での測定が必要となる.

5. おわりに

上記の研究により, 元素別のスピンドダイナミクスの観測からレーザー励起磁化反転のメカニズムが解決され, さらに磁化反転の普遍性が追究できることが期待される. 特に, 高価な Pt が不要ということになれば, 磁化反転できる物

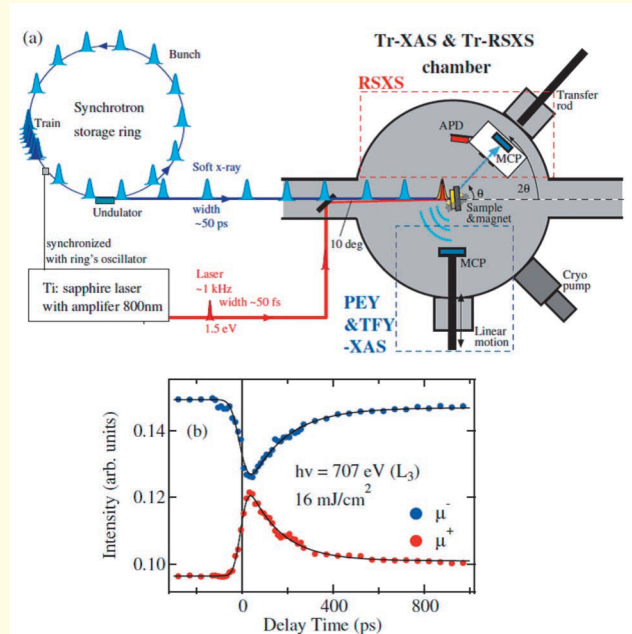


図2 (a) SPring-8 の BL07LSU における時間分解測定装置. (b) (a) を用いて得られた FePt 薄膜に対する時間分解 XMCD. 文献5より.

質の幅が大いに広がると同時に, 安価で豊富に存在する元素からなる合金でレーザー励起磁化反転を起こしたいというさらに大きな目標が掲げられる.

最近では, このような時間分解 XMCD 測定は, SR の専売特許ではなくなっており, 実験室の高次高調波レーザー (HHG) による紫外領域での測定も始められている. 例えば文献7では, HHG レーザー 800 nm (1.55 eV) 程度のチタンサファイアレーザーの39次高調波 (60.8 eV) が Co の M 端 ($3p \rightarrow 3d$) と, 35次高調波 (54.6 eV) が Pt の O_3 端 ($5p_{3/2} \rightarrow 5d$) と対応することを活かし, 実験室で時間分解 MCD 測定を行い, Co $3d$ と Pt $5d$ のダイナミクスを別々に観測することに成功している.

その一方, X線領域での時間分解 XMCD 測定には, スピン軌道相互作用の大きな深い内殻励起を使うことで, 磁化の軌道成分とスピン成分を分離できるところに大きな長所がある. 光の角運動量の受け渡しメカニズムを解明するなど, 単純な元素分離以上の展開が期待されている.

参考文献

- 1) C. D. Stanciu et al., Phys. Rev. Lett. **99**, 047601 (2007).
- 2) C.-H. Lambert et al., Science **345**, 1337 (2014).
- 3) J. Stohr et al., *Magnetism* (Springer, Berlin, 2006).
- 4) I. Radu et al., Nature **472**, 205 (2011).
- 5) K. Takubo et al., Appl. Phys. Lett. **110**, 162401 (2017).
- 6) T. Ohkochi et al., Appl. Phys. Express **10**, 103002 (2017).
- 7) F. Willems et al., Phys. Rev. B **92**, 220405(R) (2015).

和達大樹 (東京大学物性研究所 wadati@issp.u-tokyo.ac.jp)
 (2017年8月19日原稿受付)