

論文の内容の要旨

Magnetism of buried layers studied by soft X-ray resonant magneto-optical effect using polarization modulation

(偏光変調型軟 X 線共鳴磁気光学効果による埋込層の磁性研究)

氏名 久保田 雄也

磁性は自然科学で長年注目されてきた研究分野であり、さらにその技術応用は現代社会においてなくてはならないものとなっている。実験研究においては光をプローブとし、磁気光学効果を介して固体の磁性を調べる手法が 19 世紀より広く用いられている。さらに、トポロジカル絶縁体 (TI) と磁性体の接合界面や多種磁性元素を組み合わせた超格子薄膜などがスピントロニクスの研究分野で近年注目を集めている背景を受け、元素選択性と共鳴現象を利用した真空紫外 (VUV) から軟 X 線領域での磁気光学効果が、それら埋もれた磁性層を調べる有用な手法として期待されている。しかし、これまで VUV~軟 X 線領域で行われてきた研究では、磁気光学効果の一部である磁気円二色性 (MCD) にしか着目できておらず、もう一つの磁性パラメータである旋光性も観測できる新しい測定手法と包括的な議論が求められている。

このような背景を受け、本研究では埋込層の磁性に注目し、軟 X 線領域での磁気光学効果を研究した。さらに、上記の問題を克服し、磁性のさらなる理解のため、新しい軟 X 線光源とそれを利用した手法の開発も合わせて行った。

まず一つ目のトピックでは、埋込磁性層として TI と磁性体を接合した界面磁性を研究対象とした。TI はバルクが絶縁体でありながらギャップレスなディラック型の表面状態を持つ新しい物質相として近年高い注目を集めている。さらに、もともと非磁性な TI に強磁性を誘起するとディラックバンドにギャップが開き、トポロジカル電気磁気応答を示すなど、

興味深い性質を持つことが知られている。これらの性質を用いた新しいデバイスへの応用が期待されているが、今まで報告された TI の強磁性発現温度は $T = 35 \text{ K}$ ととても低く、実用化にはほど遠いことが問題であった。そのような背景の中、フェリ磁性絶縁体であるイットリウム鉄ガーネット (YIG) 上に 3 次元 TI である Bi_2Se_3 を成長させると、その界面で特異な強磁性が発現し、さらにその発現温度が $T = 130 \text{ K}$ にも達することが報告され、実用化に向けて大きな一歩を示した。この磁性の起源は Bi_2Se_3 の界面でのディラック状態が関係していると考えられてはいるが、そのバンド構造や磁気構造は不明であるため、メカニズムの解釈が進んでいない。そこで本研究では、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{YIG}$ ヘテロ接合の持つ電子状態について角度分解光電子分光 (ARPES) と X 線 MCD (XMCD) 吸収分光を用いて調べ、そのメカニズムを解明することを目的とした。まず、バンドを直接観測できる ARPES 測定を行い、図 1(a) に示すように YIG 上の TI に対して初めて表面バンドの観測に成功し、特異なディラック電子の存在を実証した。また、 $T = 20 \text{ K}$ における厚さ 3 quintuple layers (QLs) の Bi_2Se_3 及び $T = 20 \text{ K}$ 、室温 (RT) における 6 QL の Bi_2Se_3 に対して XMCD を測定した。XMCD 測定は左右の円偏光を試料に照射し、その吸収強度の差から元素の磁性情報が得られる。図 1(b) に YIG の磁性を担っている Fe の L 殻吸収端における XMCD スペクトルを示す。表面敏感な全電子収量法を用いることで、 $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{YIG}$ に対して初めて、界面における YIG の磁性情報を観測した。ARPES と XMCD の結果を組み合わせることで、図 1(c) のような界面モデルを提唱した。YIG と同様に遍歴電子を持つ磁性絶縁体、硫化ユウロピウムと Bi_2Se_3 の交換相互作用に関する理論計算からの類推により、YIG 中の Fe の $3d$ 電子と TI の表面バンドのディラック電子及びバルクの伝導電子が交換相互作用で結ばれることで TI に強磁性が発現することを明らかにした。また、XMCD スペクトルから、もともと YIG を成す Fe^{3+} の

価数変化が磁性に寄与する可能性も示した。

しかし、ここで得られた磁性 TI の結果は間接的なものであり、界面の埋込磁性層を調べるには、より高感度な軟 X 線磁気光学手

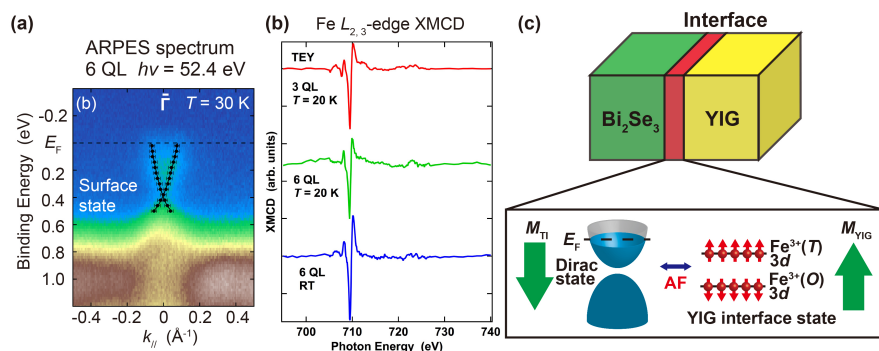


図 1 : (a) 6 QL- $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{YIG}$ の ARPES スペクトル。(b) 3, 6 QL- $\text{Bi}_2\text{Se}_3/\text{YIG}$ の XMCD スペクトル。(c) 界面モデル。YIG の四面体 (T) と八面体 (O) サイトにある Fe^{3+} イオンの $3d$ 電子が TI のディラック電子と反強磁性 (AF) 相互作用している。結果として、TI 全体の磁性 (M_{TI}) と YIG の磁性 (M_{YIG}) は逆方向になる。

法の開発が必要であることがわかった。そこで本研究では共鳴現象を利用した磁気光学カー効果 (MOKE) に注目した。MOKE とは、直線偏光した光を磁性体に照射したとき、反射光が MCD により楕円偏光となり、さらに偏光角が旋光性により変化する現象である。このときの偏光角の変化分をカー回転角 (θ_K) といい、楕円偏光の楕円率 (ϵ_K) とともに磁性情報を持つ。反射光を用いているため、MOKE 測定はバルク敏感な手法である。従来の測定には可視光領域の波長の光が用いられてきたが、その波長を VUV~軟 X 線領域の磁性元素の吸収端に合わせることで、元素選択的な測定が可能となる。加えて、共鳴効果により可視光を用いるよりも巨大なカー回転角を観測できることが理論、実験両面から知られており、高精度な測定も期待できる。しかし、その理論と実験には未だ大きな不一致が残っているのが現状である。本研究は、埋もれた磁性状態を観測できる共鳴 MOKE の正しい理解のために系統的な実験と理論の比較を行った。SPring-8 BL07LSU で採用されている分割型クロス・アンジュレータは軟 X 線領域における多種多様な偏光制御に特化しており、その特性を活かして、キャップ層 (Ta/Cu、厚さ 4 nm) に埋もれた鉄薄膜 (厚さ 30 nm) の L 殻吸収端での共鳴 MOKE 測定を実施した。そこで得られた s 偏光入射における θ_K は図 2 に示すように、 L_3 殻 ($h\nu = 709$ eV) と L_2 殻 ($h\nu = 722$ eV) 吸収端近傍で大きな値をとり、さらにその符号が反転することがわかった。また、Al キャップ層を使った先行研究に比べ、鉄試料と屈折率が大きく異なるキャップ層を採用したことで、鉄固有の θ_K スペクトルを測定することに成功した。この結果をまず現象論に基づく計算と比較し、ピークと符合反転を再現できた。これまでの研究ではこのマクロな視点の比較にとどまっていたが、本研究ではさらに、共鳴 X 線散乱理論に基づくクラスター計算と比較することで、量子論的な MOKE の起源に迫った。こ

この計算によって、測定で見られたスペクトルのディップ構造を再現し、さらに、非弾性散乱による干渉がスペクトルに大きな影響を持つ可能性を示した。図 2 に示すように s 偏光だけでなく、 p 偏光に対しても θ_K を測定し、 L_3 と L_2 殻吸収端間のみならず、偏光間でも符号反転することを軟 X 線

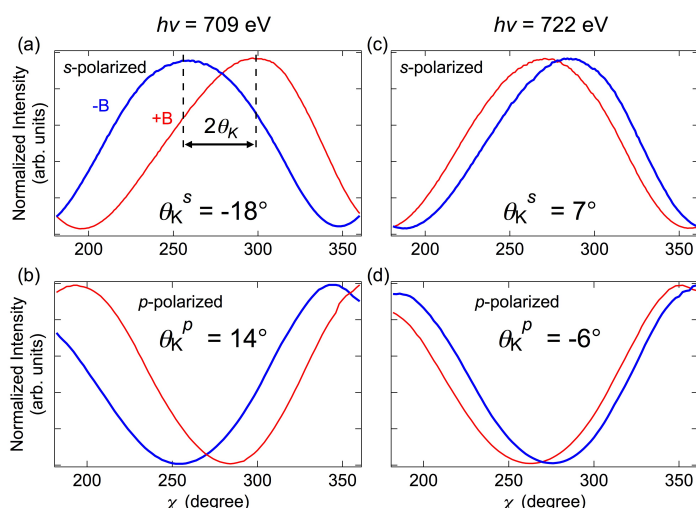


図 2: 入射光エネルギー $h\nu = 709$ eV の s 波(a)、 p 波(b)及び $h\nu = 722$ eV の s 波(c)、 p 波(d)に対する Fe 薄膜のカー回転角。外部磁場 $+B$ (赤線) と $-B$ (青線) における偏光角の差から求める。

領域で初めて報告した。

これまでの共鳴 MOKE 測定では主に θ_K にのみ注目し、 ε_K は比較的測定が困難であった。そこで本研究では、両者が測定可能な手法として、図 3 に示すような分割型クロス・アンジュレータ

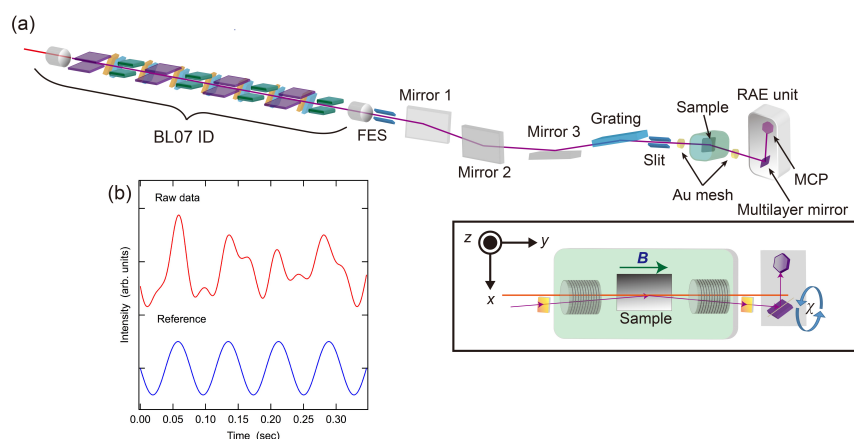


図 3 : (a)変調軟 X 線 MOKE 測定時の SPRing-8 BL07LSU 全体図。BL07 ID と FES はそれぞれ分割型クロス・アンジュレータとフロントエンドスリットを表す。挿入図は測定系の拡大図。(b) micro-channel plate (MCP)で得られた生データ (上) と 13 Hz のレファレンス信号 (下)。

タの特性を活かした連続偏光変調軟 X 線磁気分光法の開発を目指し、世界で初めてその実現に至った。分割型クロス・アンジュレータに含まれる電磁石位相器へ 10 Hz (13 Hz) の交流電流を加えると、左右の円偏光が 10 Hz (13 Hz) で連続的に切り替わるような偏光変調光源を実現できる。その光源を磁性体に入射すると、XMCD と MOKE における ε_K が 10 Hz (13 Hz) 成分として、 θ_K が 20 Hz (26 Hz) 成分として得られる。これらをロックイン手法で抽出することで、より高精度な XMCD スペクトルや、可視光領域でしか実現していなかった θ_K と ε_K を同時にかつ精密に測定できる光学遅延変調法を利用した共鳴 MOKE の測定が可能である。本研究ではまず、FePt と TI [(BiSb)₂Te₃]/YIG に対して偏光変調を用いた吸収と XMCD スペクトルの測定に成功し、この新光源が期待通りの特性を持つことを証明した。さらに、上述した鉄薄膜に対して光学遅延変調法共鳴 MOKE を実施し、高効率な θ_K と ε_K の同時測定を軟 X 線領域において世界で初めて成功した。この手法で得られたスペクトルは上述の従来手法で得られた θ_K スペクトルと良い一致を示したのみならず、より短時間で、より高分解能な測定が可能となった。さらに、旋光性に由来する θ_K と MCD に由来する ε_K が同時測定可能ということは物質固有の誘電率テンソルの非対角項を完全に決定でき、物質中の電子構造や光学遷移のマトリックスに直接結びつけて考察できる。実際にこの埋込 Fe 薄膜に対する MOKE 測定で得られた結果から、磁性情報を持つ誘電率テンソルの非対角項を実部虚部共に完全に決定できた。これは軟 X 線領域では初の成果である。

本研究において、元素選択性、バルク敏感、高感度、誘電率の決定というメリットを持ち、物質評価や理論計算に非常に有用な測定手法の開発に成功したと言える。今後希薄磁性体や埋もれた磁性体のさらなる研究展開が期待できる。