

BL25SU 軟X線固体分光ビームライン

BL25SUは、種々の軟X線分光法を用いて固体物性を解明することを目的としており、ツインヘリカルアンジュレーターによる円偏光制御と光学設計による高いエネルギー分解能を特色とする。常設装置として、光電子分光（PES）装置、光電子顕微鏡（PEEM）、2次元表示型光電子アナライザー（2D-PES）、電磁石式磁気円二色性（MCD）測定装置の合計4機の主力装置をビーム光軸に沿ってタンデムに配置している。以下では、2011年度に実施した測定技術開発、及び装置改造等について報告する。

1. ビームライン光学系

BL25SUのビームライン光学系は前置鏡が放射光を縦方向へ振り上げる配置であるため、分光器が床から約185 cmの高さの架台の上に置かれている。そのため、架台の振動による分光器の分解能への影響が懸念されていた。架台が振動すると分光器内の集光鏡や回折格子が振動するため、回折格子を通過した光も振動することになる。つまり、分光器の出口スリット上で光が分散方向に振動することになり、分解能の悪化の要因となる。2011年度には、この分光器の振動による放射光の振動を集中的に調査した。その結果、出口スリット上で光が分散方向に $\pm 3 \mu\text{m}$ 程度、定常的に振動していることがわかった。この振動は、出口スリットの開口値を考慮すると無視できない大きさである。例えば、通常使用する600本/mmの回折格子を用いて光エネルギーが900 eVの際に分解能として $E/\Delta E = 10,000$ を得ようとする、スリットの開口値は18 μm になる。つまり、前述の振動はスリットの開口値の1/3程度の大きさとなる。そこで、この振動を軽減する対策として、2012年の2月に分光器架台に振動吸収材（砂）を充填する作業を行った。2012年度において、除振の効果を評価する予定である。

2. 光電子分光装置

光電子分光ステーションでは、微小な単結晶試料の測定が可能な角度分解光電子分光（ARPES）測定法の開発を進めている^[1]。現状での試料位置での集光サイズは半値幅で横65 μm ×縦40 μm 程度であるため、測定可能な試料はこれより大きいサイズに制限されている。我々は将来的に数 μm 以下に集光可能な高縮小率の集光鏡を導入することにより、10 μm の試料の測定を可能にする装置を目指している。しかし、10 μm の試料の場合、試料の方位出しをどのように行うかが問題となる。通常のARPESでは、

試料の方位出しは実験室のラウエカメラを用いて行うことが多いが、10 μm の試料では実験室光源でのラウエ測定は難しい。そこで我々は、ARPESの励起光である放射光軟X線を用いて光電子回折によりin-situで方位を観測することを目指し、光電子回折分析器の開発を行った。この検出器は阻止電位型の単純な構造であるが、Siや MoS_2 といった単結晶において光電子回折の2次元パターンを観測することに成功した。2012年度ではさらに、この阻止電位型分析器用の高感度CCDカメラ検出器を開発する予定である。

3. 2D-PES装置

2D-PES装置は、2010年度に引き続き安定稼働しており、原子構造解析と電子状態解析を組み合わせた回折分光実験の申請が多くあった。新規ユーザーが徐々に増えてきており、従来の基礎的な物質群に加え、貴金属フリーの触媒、IV-VI族強磁性半導体やIII-V族半導体などに対して測定が行われた。光電子・オージェ電子回折パターン、及びその光エネルギー依存性の測定をすることで原子構造と原子構造情報の同時測定ができています。また試料2次元位置スキャン型の顕微光電子回折による多結晶表面の構造・電子状態複合解析が可能になり、研究の対象を大幅に広げつつある。

4. 電磁石XMCD装置

MCD装置は最大1.9 T印加できる電磁石を備え、磁場下における磁性材料の元素別磁気解析（磁気モーメントの導出や元素別磁気ヒステリシス）に利用されている。安定して運用されており、目立ったトラブルも発生していない。新たな試みとして、BL27SU設備のシリコンドリフト検出器（SDD）を電磁石XMCD装置に装着し、高収率の蛍光XMCD測定を試行した。現状装置では、装着できる真空ポートの制約により、測定対象が耐酸化保護膜を有する薄膜などに限定されるが、利用者のニーズを調査した上で測定対象を拡大するための高度化を検討したい。

5. パルス磁場XMCD装置

これまでパルス磁場XMCD装置を用いて30 Tまで研究が行われてきた^[2, 3]が、さらに世界的な優位性を高めるために40 Tまでの磁場の増強を行っている。新しく開発した大容量パルス磁場電源を用いることで、従来のパルス立ち上がり時間（約3.3 ms）を維持したまま磁場強度を増加させており、このことは、渦電流による測定精度の低下を最小限に抑える効果がある。2011年度は、強度を高め

た40 T磁石を新たに開発し、磁場発生試験に成功すると共に、それに合わせた真空チェンバーの改造も行った。この結果、2012年度前期には約35 Tまでの磁場発生に成功した。2012年度後期には40 Tまで実験が可能になる予定である。これらの開発は2008年度JASRIの競争的資金(GIGNO, 中村哲也)、及び科学研究費^[4]等の援助を受けて東北大学金属材料研究所との共同研究として推進しており、国際会議で招待講演の依頼を受けるなど、国際的にも注目されている。

6. PEEMによる時間分解磁気イメージングの進展

光電子顕微鏡 (PEEM) 装置では100 nm以下の空間分解能で元素マッピングや磁区解析、局所吸収スペクトル測定などが可能で、様々な研究分野にとって有用な顕微分光ツールである。特に、時間分解 (ポンプ&プローブ) 測定システムを始めとした測定オプションの充実を進めており、パルス/高周波の磁場や電場下でのNiFe円盤の磁気コアの運動を捉えることに成功している。

2011年度は、垂直磁気GdFeCo薄膜においてパルスレーザーを励起源とした光誘起磁化反転現象のダイナミクス観察に成功した^[5]。GdFeCoは磁気光学効果が高く、レーザーの熱励起による強制磁化反転に加えて、逆ファラデー効果による円偏光依存した選択的な磁化スイッチングが可能である。こうした現象は、磁場を用いない超高速磁化反転機構として注目を集めている。レーザー励起の時分割観測では、試料に照射するレーザーのパワーやサイズ、偏光状態の制御や、再生増幅されたレーザーと同期した低周波 (~5 kHz) のプローブ実験であることなどの新たな困難があり、測定ノウハウの蓄積と改良によって解決へと導い

てきた。しかし、最も大きな課題は、励起後に磁区が自然回帰しない系における磁気状態のリセットの手段であった。即ち、これまで行ってきた磁気円盤のダイナミクス研究では、磁場印加後、ある時間が経過すると磁区が初期状態に戻っていたが、今回の系では、不可逆過程であることが問題であった。図1に実験の模式図を示す。パルスレーザーは、ビームスプリッターにより分岐され、delay lineを通過したのちに、再び光軸を一致させる。こうすることで、互いに円偏光のヘリシティが異なる2つのパルスを照射することができるようになり、磁化反転挙動の円偏光依存性を利用したポンプ・プローブ・リセットの測定サイクルを構築することができた。このシステムを適用することで、純粋円偏光依存反転が起こるレーザーパワーという限定的な条件ではあるが、GdFeCoの磁化反転のダイナミクスを50-100ピコ秒の時間分解能で捉えることに成功した (図2)。レーザーのビームプロファイルが一様ではないことを反映して、照射中心部と外縁部との間で、時間応答の差を観測することができた。現在は、試料ホルダに組み込んだ小型電磁石とパルス電流の導入により確実かつ汎用的な磁区リセット機構を確立しており、さらに詳細な磁化反転ダイナミクスを調べている。

本実験ステーションでは時分割PEEM実験が可能な対象試料や測定条件をさらに広げるため、試料への電流導入パスの完全同軸化やメカニカルチョッパーによる電氣的ノイズの回避 (空間分解能の向上)、高縮小比X線 (ビームサイズ ~10 μm) による微小領域測定での統計性の向上などの高度化を計画している。

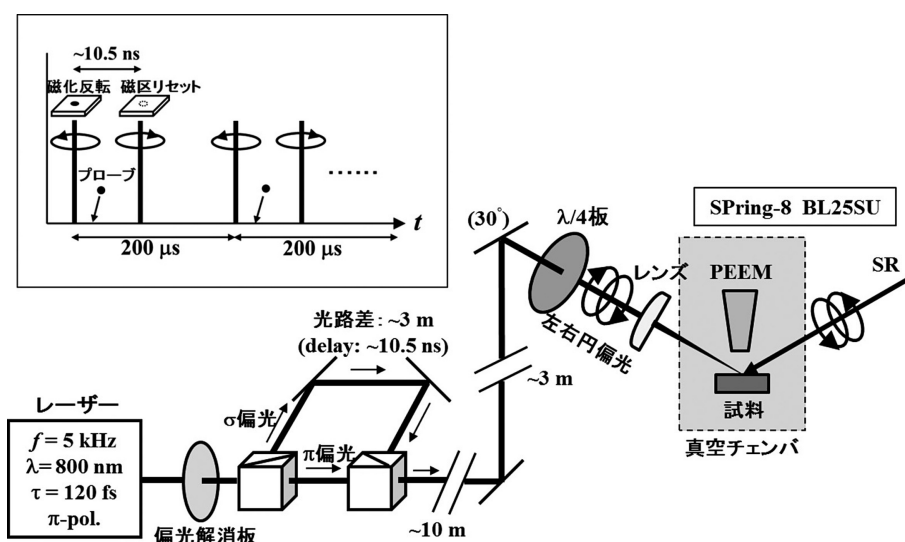


図1 レーザー誘起磁化反転の時分割PEEM測定の実験セットアップ。ビームスプリッターと遅延ライン、 $\lambda/4$ 板を用いて左右円偏光レーザーを10.5 nsの時間差で発生させている。挿入図には、磁区リセットのプロセスを含んだポンプ&プローブ測定のタイミングチャートを示している。

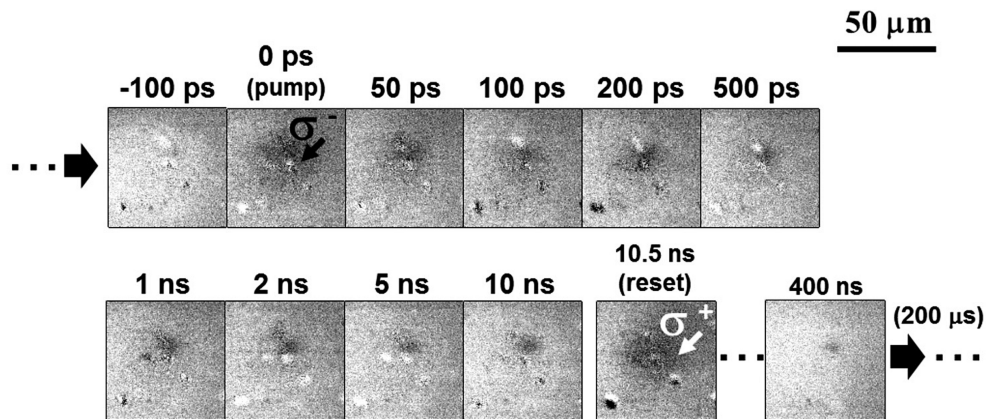


図2 左円偏光レーザー (σ^-) で磁化反転、右円偏光レーザー (σ^+) で磁区をリセットさせたときの時間分解PEEM像。画像コントラストの白色が紙面上向き、黒色が下向きの磁化を示す。

参考文献

- [1] T. Muro, Y. Kato, T. Matsushita, T. Kinoshita, Y. Watanabe, H. Okazaki, T. Yokoya, A. Sekiyama, and S. Suga: J. Synchrotron Rad., **18** (2011) 879.
- [2] T. Nakamura, Y. Narumi, T. Hirono, M. Hayashi, K. Kodama, M. Tsunoda, S. Isogami, H. Takahashi, T. Kinoshita, K. Kindo, and H. Nojiri: Appl. Phys. Express, **4** (2011), 66602.
- [3] M. Hayashi, Y. Narumi, H. Nojiri, T. Nakamura, T. Hirono, T. Kinoshita, K. Kodama, and K. Kindo: J. Electron Spectroscopy Related Phenom. J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom., **184** (2011) 338-341.
- [4] “40T超強磁場・軟X線磁気円二色性による電気磁気効果の微視的解明”, 鳴海康雄(代表), 基盤研究(B), No. 23340094, 2011年度～2013年度.
- [5] T. Ohkochi, H. Fujiwara, M. Kotsugi, A. Tsukamoto, K. Arai, S. Isogami, A. Sekiyama, J. Yamaguchi, K. Fukushima, R. Adam, C. M. Schneider, T. Nakamura, K. Kodama, M. Tsunoda, T. Kinoshita, and S. Suga: Jpn. J. Appl. Phys., **51** (2012) 073001.

利用研究促進部門

分光物性Ⅱグループ

中村 哲也、木下 豊彦

応用分光物性グループ

室 隆桂之、大河内 拓雄

制御・情報部門

制御グループ

松下 智裕