

X線領域の新しい磁気光学効果 「X線磁気円偏光発光」の発見

稲見 俊哉
Inami Toshiya

1. はじめに

銅やモリブデンの特性X線（ $K\alpha$ 線）は実験室のX線源として馴染みがあると思います。もし鉄の $K\alpha$ 線を使っているなら、それは実は円偏光かも知れないよ、という話です。さて、話は磁気光学効果から始まります。磁気光学効果は、磁性体と光の、特にその偏光状態との結びつきのことを指す、ぐらゐの定義だと思ひます。後述するように磁気光学効果は古くから知られた現象で、現在は磁気測定法の原理として、あるいは実用デバイスの原理として広く使われています。よく知られている基本的な原理なので、研究は網羅的に進められたと思ひましたが、今回、この磁気光学効果の1つである磁気円偏光発光という現象をX線領域で初めて観測しました¹⁾。本稿はその内容についての簡単な解説です。続く2節ではまず磁気光学効果について概説し、3節では測定装置と実験結果について少し詳しく説明します。4節では実験結果と応用研究への展開について考察し、まとめを最後に述べます。

2. 磁気光学効果

磁気光学効果の歴史は、Michael Faradayが1846年に、直線偏光した光が磁場を印加したガラスを透過するとその偏光面が回転するという現象を発見したことに始まります。続いてJohn Kerrが1876年に、磁化した金属で直線偏光した光を反射させても偏光面が回転することを発見しました。それぞれ、Faraday効果、磁気光学Kerr効果と呼ばれ、最もよく知られた磁気光学効果だと思ひます。100年以上前から知られていたのですね。

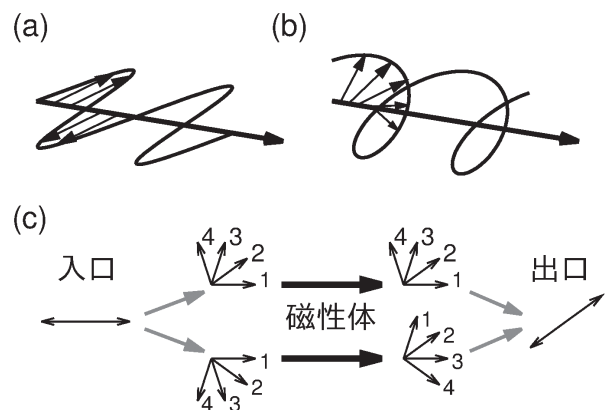


図1 (a)直線偏光, (b)円偏光, (c)Faraday効果の説明

さて、どちらも直線偏光に係る現象ですが、その本質は円偏光です。光は電場と磁場が振動する横波で、電場の振動方向が1つの平面内に閉じているのが直線偏光であり（図1(a)）、これ以外に、電場が、左、あるいは右回りに回転するように振動する（左右）円偏光という状態があります（図1(b)）。磁化した媒質中での光の屈折率が左右円偏光で異なることが磁気光学効果の本質であり、Faraday効果を例にとると、入射直線偏光を媒質入口で左右円偏光に分解し、媒質透過後に再合成すると、媒質中で左右円偏光の速度が異なるので媒質出口では位相差が生じており、結果、合成後の直線偏光面は回転している、ということになります（図1(c)）。屈折率には実部と虚部があり、虚部は吸収に対応するので、磁化した物質に円偏光を入射すると左と右で吸収量が異なることになります。これを磁気円二色性（Magnetic Circular Dichroism : MCD）と呼びます。ここまでの1次の磁気光学効果で、2次の磁気光学効果（Voigt効果や磁気線二色性）もあるのですが、

ここでは割愛します。

ようやく放射線（X線）の話です。X線も光の一種なので磁気光学効果があります。X線領域の磁気光学効果は、1987年にSchützらがMCDを鉄のK吸収端（7.113 keV）で報告したのが最初です²⁾。この後、1990年代に精力的な研究が行われ、主な磁気光学効果（Faraday効果、磁気光学Kerr効果、MCD）は硬X線領域や軟X線領域で報告されることとなります^{3,6)}。硬軟X線領域での磁気光学効果の報告には放射光X線の登場が必要で、高い（直線、円）偏光度とエネルギー可変という特徴が重要だったのだと思います。X線と磁性の関係としては、この他に、共鳴・非共鳴磁気X線回折や磁気コンプトン散乱が挙げられますが、可視領域に一般化できないので磁気光学効果と呼ばれないのだらうと思います。また、光電子を検出する手法（スピン分解光電子分光等）もX線領域にはありますが、光を入れて光を出す手法ではないのでここでは触れません。

ここまで、光の透過、反射、吸収における磁気光学効果（Faraday効果、磁気光学Kerr効果、MCD）について述べました。光と物質の相互作用としては、これら以外に発光があります。つまり、磁化した試料が発する光が円偏光になっているという現象があるはずで、これが本稿の主題である磁気円偏光発光（Magnetic Circularly Polarized Emission）で、可視領域ではMarroneとKablerによって1971年に発見されました^{7) 1)}。面白いのは測定した対象がアルカリハライド（臭化カリウム等）中の励起子からの発光ということで、磁性体ではなかったのです。この磁気円偏光発光のX線領域での観測はこれまで行われておらず、今回初めての報告となったわけです。X線の発光は、内殻準位間の遷移に対応する特定のエネルギーで強くなる特徴があり、特性X線と呼ばれます。今回は、励起源としてX線を、試料として金属鉄を用い、この鉄の特性X線の円偏光度を測定することにしました。なお、X線励起の特性X線は蛍光X線と呼ばれるので、以降、蛍光X線という言葉を使います。

3. 測定装置と実験結果

測定は大型放射光施設 SPring-8 のビームライン BL22XU で行いました。測定装置の配置図(上面図)

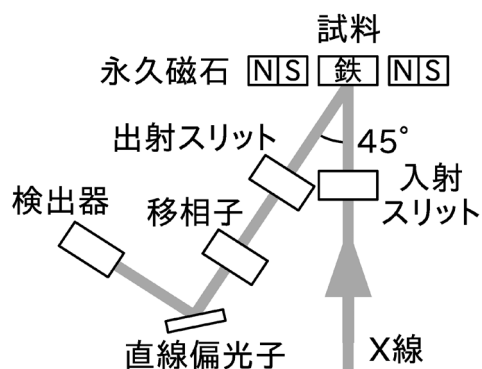


図2 上から見た実験配置図

を図2に示します。挿入光源から出た放射光は2枚のシリコン単結晶で単色化された後、2枚の全反射ミラーで高調波除去と集光が行われます（図では省略）。実験ハッチ内に導かれた放射光は金属鉄の試料に照射され、試料からは蛍光X線が発せられます。金属鉄は永久磁石で挟み、飽和磁化に達するようにしています。

X線の円偏光度を測定する手法は確立されており、移相子と直線偏光子を組み合わせた装置で行います。移相子の役割は円偏光と直線偏光の相互変換です。1/4波長板とも呼ばれ、光に $\pi/2$ あるいは $-\pi/2$ の位相差を与えます。ダイヤモンドの薄い単結晶できており、微小回転で $\pi/2$ 移相と $-\pi/2$ 移相の状態を簡単に切り替えることができます。直線偏光子は散乱角を 90° 近傍にすることにより、（図では）垂直直線偏光を水平直線偏光より選択的に反射するようにした素子で、今回はゲルマニウム単結晶の400反射を用いました。円偏光度測定装置は、大まかには、試料からの蛍光X線のうち、 $\pi/2$ 移相すると右円偏光とそれ以外の半分が、 $-\pi/2$ 移相すると左円偏光とそれ以外の半分が検出器に届く、という装置になります。なお、直線偏光子は同時にエネルギー分析器としても用い、鉛直軸回りに微小回転させることにより蛍光スペクトルを得ました。

さて、移相子と直線偏光子は前述したようにどちらも単結晶を用いた光学素子で、基本的に平行光を扱うものです。一方、蛍光X線は試料から四方に発せられる発散光で、両者の相性は良くありません。今回は原理検証を目的としていたので、強度を犠牲にすることにしました。試料から約60 cm離して設置した出射スリットの開口を $75\mu\text{m} \times 75\mu\text{m}$ に、同時

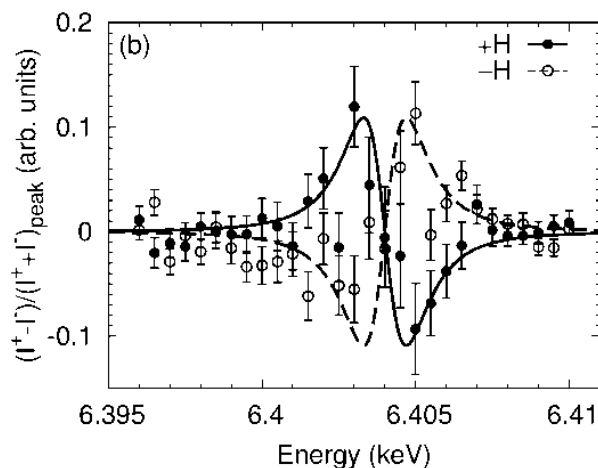
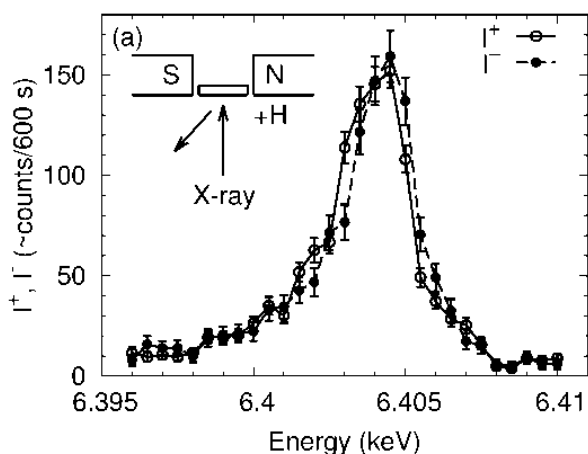


図3 (a)測定した鉄 $K\alpha_1$ 発光のスペクトル, (b)差分スペクトル

に入射スリットの開口を横 $100\ \mu\text{m}$ \times 縦 $75\ \mu\text{m}$ に制限することにより、出射スリットの後ろでの角度発散を $120\ \mu\text{rad}$ に抑えました。この程度まで平行化すると移相子や直線偏光子兼エネルギー分析器は十分働くようになります。移相子の効率は推定で 93 %、エネルギー分析器のエネルギー分解能は同じく推定で $0.83\ \text{eV}$ になります。半球（立体角： 2π ）に対する $(120\ \mu\text{rad})^2$ は 4 億分の 1 程度になるので、ここまで絞っても観測できたのはやはり第 3 世代放射光施設の挿入光源の入射強度のおかげだと思います。

測定した鉄の $K\alpha_1$ 蛍光スペクトルを図 3(a) に示します。横軸がエネルギーで、縦軸は 10 分数えた時のカウント数です。 I^+ (白丸実線) は移相子で $\pi/2$ 移相した際のスペクトルで、 I^- (黒丸破線) は $-\pi/2$ 移相した際のスペクトルです。磁場方位は挿入図に示し、この方向を正とします。統計がそれほど良くないので見づらいですが、両者が一致していないことは明らかです。ずらして重ねてみると I^+ スペクトルの方が $0.3\ \text{eV}$ だけ低エネルギー側にずれていることが分かります。両者が一致していないということは、即ち、 $K\alpha_1$ 蛍光に円偏光が含まれていることを表しています。 I^+ と I^- の差を和スペクトルのピーク強度で規格化したものを図 3(b) に黒丸で示します。この図は円偏光成分の存在を示しており、縦軸はおおよその円偏光度に対応します。円偏光度の最大値は 10 % 強ということが分かります。また、磁場方位を反転し、負の方向に印加した場合を白丸で示します。ここからは磁化を反転すると円偏光度の符号も反転することが分かります。

ここまでの結果から次の 2 点に分かります。(1) 鉄の $K\alpha_1$ 線は円偏光成分を含んでいる。(2) 磁化を反転すると円偏光度の符号も反転する。この 2 点から鉄の $K\alpha_1$ 線が広い意味での磁気円二色性という性質を有していることが分かります。(二色性の定義は吸収に対してですが) 円偏光フィルターを通して見ると、磁化した鉄からの $K\alpha_1$ 線は円偏光フィルターの左右で色が違って見えるわけです。そして、これが磁気円偏光発光という現象ということになります。

さて、磁気光学効果の大きさを表す指標として反転比というものがあります。この実験の場合は $(I^- - I^+) / (I^+ + I^-)$ で表され、同時に円偏光度の正確な表式でもあります。反転比 (= 円偏光度) を $6.405\ \text{keV}$ の位置で統計を上げて測定したところ、 $(12 \pm 4)\%$ という値を得ました。磁化の向きと 45° 傾けた測定であること (幾何学補正) と移相子の効率を考慮すると、本来は $(18 \pm 6)\%$ であると結論しました。この値は後述するように極めて大きな値です。実験結果をまとめると、(A) X 線領域にある鉄の $K\alpha_1$ 線が磁気円偏光発光という現象を示すことを明らかにした、(B) この磁気円偏光発光の反転比は約 18 % と非常に大きな値を示す、ということになります。

4. 考察

まず、実験結果の妥当性について検討します。定性的には、 $K\alpha$ 線における磁気円偏光発光の原理は次のようなシナリオで説明できます^{8,9)}。概念図を

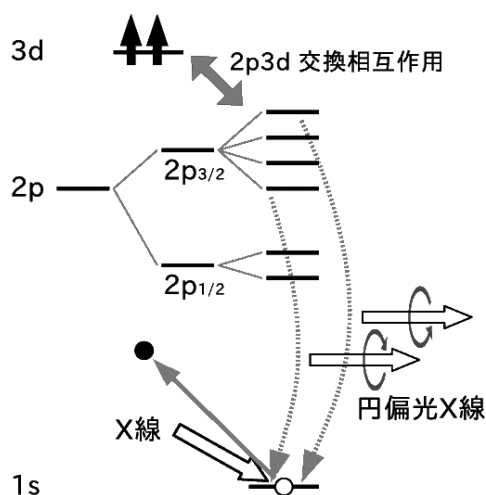


図4 鉄 $K\alpha$ 線における磁気円偏光発光の原理

図4に示します。以下、専門的になりますが、 $K\alpha$ 発光は、X線や電子線の励起により1s軌道に空孔が生じ、2p軌道の電子がその空孔を埋める際に光を放出するものです。終状態は2p軌道に5つ電子が入った $2p^5$ で、大きなスピン軌道相互作用により $2p_{3/2}$ の四重項と $2p_{1/2}$ の二重項に分かれます。金属鉄の場合この分裂幅はおおよそ13 eVです。 $2p_{3/2} \rightarrow 1s$ の遷移が $K\alpha_1$ 線と、 $2p_{1/2} \rightarrow 1s$ の遷移が $K\alpha_2$ 線と呼ばれます。3d軌道に磁気モーメントがある場合、 $2p3d$ 交換相互作用により、これら四重項と二重項は更に分裂します。この分裂は交換相互作用によるものなのでスピンを分極させ、一方、スピンと軌道は大きなスピン軌道相互作用で結合しているので、同時に軌道分極を伴います。そして、この軌道分極が円偏光を作り出すのです。定量的には、四重項の分裂幅は実験的に $0.5 \text{ eV} \pm 0.2 \text{ eV}$ と報告されており⁸⁾、今回の結果 0.3 eV に幾何学補正を施した 0.4 eV とは無矛盾であり、正しい結果を得ていると考えられます。

最後に、このX線磁気円偏光発光の応用研究への可能性について触れます。さて、X線は物質への侵入長の短い軟X線と侵入長の長い硬X線に大別されます。そのため、例えば、軟X線MCDは表面磁性や磁性薄膜の測定に適しており、これに対し、硬X線MCDは数ミクロンから数十ミクロンにわたるバルク敏感測定に適しています。硬X線領域の磁気光学効果の問題点の1つは、3d遷移金属元素に対して回転角や反転比が非常に小さいことです。

3d遷移金属には鉄やコバルト、ニッケルといった磁性材料において重要な元素が含まれる一方、例えば金属鉄のMCDの反転比は、硬X線領域にある鉄のK吸収端では僅か0.5%に過ぎません。この問題は位相敏感検波を用いることにより、MCDで透過法が使える場合には大幅に緩和されたのですが¹⁰⁾、対象を塊で測定したいという需要は存在します。これに対し、今回報告した硬X線領域の磁気円偏光発光の反転比は18%に達し、この値は軟X線領域にある鉄のL吸収端での金属鉄に対するMCDの反転比約30%に匹敵するものです。この特長を活かし、3d遷移金属元素を対象としたバルク敏感なX線磁気顕微鏡への発展と、それをういた永久磁石や電磁鋼板等機能性磁性材料研究への展開が期待されます。

5. おわりに

本稿では、最近行った磁気円偏光発光のX線領域における初めての観測について解説しました。こういう基本的な現象の発見に立ち会えることはなかなか無いことなので大変な幸運であったと思います。浅学ですが歴史を振り返ってみると、X線磁気円偏光発光は、「偶然」「見逃されていた」のではなく、「蛍光X線の円偏光解析」に心理的な壁があったのではないかと、私の研究はそこが評価されたのではないかと考えています。

文章は他分野の方が取り付きやすいよう平易な表現を選んだつもりですが、近い分野の方には要点を伝えようとしたので、少し二兎を追ったかもしれません。重要な説明も省いたところがあるので、興味のある方は、良書がありますので、そちらをご参考下さい^{11,12)}。

本研究を進めるにあたり、有益な議論をしていただきました林久史教授、田口宗孝特任助教、松村武准教授、鈴木基寛博士に感謝致します。本研究はJSPS 科研費 15K13508 の助成を受けたものです。

参考文献

- 1) T. Inami, *Phys. Rev. Lett.*, **119**, 137203/1-5 (2017)
- 2) G. Schütz, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **58**, 737-740 (1987)
- 3) D. P. Siddons, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **64**, 1967-1970 (1990)

-
- 4) C. T. Chen, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **42**, 7262-7265 (1990)
 - 5) J. B. Kortright, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **51**, 10240-10243 (1995)
 - 6) J. B. Kortright, *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.*, **191**, 79-89 (1999)
 - 7) M. J. Marrone, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **27**, 1283-1285 (1971)
 - 8) L. Baumgarten, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **65**, 492-495 (1990)
 - 9) H. Ebert, *et al.*, *Phys. Rev. B*, **44**, 4406-4409 (1991)
 - 10) T. Nakamura, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **82**, 021006/1-20 (2013)
 - 11) 光と磁気 [改訂版], 佐藤勝昭著, 朝倉書店 (2001)
 - 12) 放射光 X 線磁気分光と散乱, 橋爪弘雄, 岩住俊明編著, アイピーシー (2007)
- ¶ Pieter Zeeman [P. Zeeman, *Nature*, **55** 347 (1897)]の業績まで遡るべきかもしれません。

((国研)量子科学技術研究開発機構
量子ビーム科学研究部門
放射光科学研究センター
磁性科学研究グループ)