

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 14 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2009 年度～2011 年度

課題番号：21340107

研究課題名（和文） パルス強磁場 XMCD による元素選択磁化測定技術の開発

研究課題名（英文） Development of high-magnetic-field XMCD technique for element-specific magnetic measurements

研究代表者

中村 哲也 (Nakamura Tetsuya)

財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主幹研究員

研究者番号：70311355

研究成果の概要（和文）：

パルス強磁場中で軟 X 線 MCD を測定する技術開発に世界で初めて成功した。従来の軟 X 線 MCD 実験で利用できる磁場は超伝導マグネットによる最大 10 T であったが、本研究によりパルスマグネットを用いた 30 T の強磁場下測定を実現し、当初の研究目標(20 T)以上の結果を達した。本測定技術により、強磁場中における合金や化合物の磁化を、その物質に含まれる磁性元素毎に区別して評価することが可能となり、磁場誘起価数転移磁性体、メタ磁性体、希土類永久磁石、交換バイアス薄膜などの磁性研究に幅広く応用されている。

研究成果の概要（英文）：

We have successfully developed a new experimental technique of soft X-ray magnetic circular dichroism (XMCD) under pulsed high magnetic fields for the first time. The maximum magnetic field of 30 T has been achieved, which greatly exceeded the previous maximum field of 10 T generated by means of superconducting magnets. By applying the present technique, we can measure the partial magnetization originating from individual elements in alloys and compounds. The high-magnetic-field soft XMCD experiments have widely been applied to studies on a magnetic-field-induced valence transition material, a meta-magnetic material, rare earth based permanent magnets, and exchange bias film, so far.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	10,200,000	3,060,000	13,260,000
2010 年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2011 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
総計	14,600,000	4,380,000	18,980,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・物性 II

キーワード：強磁場、放射光、物性実験、磁性、軟 X 線

1. 研究開始当初の背景

X線磁気円二色性(XMCD: X-ray Magnetic Circular Dichroism)は、X線領域の磁気光学効果である。磁性体による円偏光X線の吸収係数が左回り円偏光(h_L)と右回り円偏光(h_R)で異なる現象として観測される。400~1600 eVの軟X線を用いると、3d遷移金属の3d軌道や希土類の4f軌道など、磁性を主として担う電子軌道の磁気分極情報が得られる。また、XMCD強度が吸収端で特定する元素の磁化に概ね比例することから、その性質を利用して元素選択的な磁化測定ができる。XMCDによる元素選択磁化測定は、従来の磁化測定における熱磁化(M-T)曲線や磁気ヒステリシス(M-H)曲線と比較し得る情報が、試料に含まれる磁性元素毎に得られるため、強力な磁性研究手段に発展している。

XMCDは、メタ磁性や常磁性など強磁場を必要とする磁性研究への応用が期待されており、硬X線領域(>5 keV)では既に最大40 Tのパルス強磁場XMCDが報告されている。しかし、硬X線MCDでは、3d遷移金属と希土類の磁性を、それぞれ、4p軌道と5d軌道の磁気分極を通じて間接的に得るため、巨視的な磁性との直接対応が難しい問題がある。したがって、強磁場元素選択磁化測定を物性研究に確実に発展させるためには、その測定技術を軟X線MCDで実現することが不可欠である。しかし軟X線MCD実験で印加できる磁場は、これまで最大10 Tであり、その磁場発生には超伝導マグネット(SCM)が用いられてきた。SCMを用いる場合、10 Tを超える磁場領域では、磁場増加に対する開発費用の増加が著しい問題があるうえ、20 T付近が技術的な上限となる。以上より、20 T以上の強磁場実験を継続的に発展させるためにはパルス磁場下での測定技術開発が重要である。これに対して、本研究の実現に向けて克服すべき技術的課題として、パルス強磁場と超高真空(UHV)環境を融合する特殊な測定チャンバーの開発、電磁ノイズ・機械的振動を伴うパルス磁場下において、全電子収量法(TEY)による微小電流(~nA)の精度良い測定が要求された。

2. 研究の目的

本研究は、世界に先駆けてパルスマグネットを用いた20 Tを超える強磁場下での軟X線MCD測定技術を開発し、元素選択磁化測定による応用研究を展開することを目的として実施した。

3. 研究の方法

本研究は、SPring-8の円偏光軟X線ビームライン(BL25SU)にて実施した。パルスマグネット本体は、東京大学物性研究所・金道浩一教授らの開発であり、パルス電源システムは東北大学金属材料研究所・野尻浩之教授らの開発である。本課題においては、測定真空チャンバーと試料冷却用の液体ヘリウム連続フロークライオスタットなどを中心に整備を行った。

パルス強磁場軟X線MCD測定システム開発のうち、特に重要な決定方針は全電子収量法(TEY)の採用である。図1(a)に示すように、透過吸収配置の実験では、検出器を磁場影響範囲外に設置できるので強磁場実験が容易である。しかし、透過吸収実験ができる試料形態は、厚さが高々100 nmの薄膜のみに限られる問題がある。一方、図1(b)に示したTEY法では、微小な試料電流(~nA)を計測するため、パルス強磁場発生によるノイズの影響を受けやすいが、バルク試料、粉末試料、薄膜などの広範な試料形態に適応する利点を有する。そこで、本研究では、計測手法としての発展性を重視し、TEY法による計測技術開発に挑戦した。

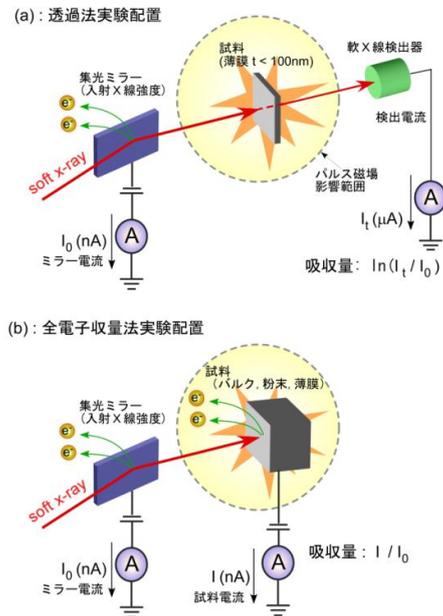


図1 (a)透過法と、(b)全電子収量法によるパルス強磁場下軟X線吸収実験レイアウト。

4. 研究成果

(1) パルス強磁場軟 X 線 MCD 測定装置

図 2 に本研究で製作したパルス強磁場軟 X 線 MCD 測定装置の測定チャンバーの模式図を示す。また、図 3 に装置外観図を示す。パルスマグネットには純銅線を用い、巻数とインダクタンスは、それぞれ、206 回と $465\mu\text{H}$ である。マグネットは液体窒素で直接冷却されており、その $\phi 18\text{mm}$ のボア径内に外径 $\phi 15.8\text{mm}$ の SUS304 製のパイプを挿入し、パイプ内部 ($\phi 13.8\text{mm}$) を超高真空(UHV) 試料空間とした。試料冷却には液体ヘリウム(He)連続フロークライオスタットを用いている。試料ホルダーは、10 K 以下の低温で良好な熱伝導が得られ、かつ、渦電流を回避する目的で、単結晶サファイヤを用いて製作した。また、ロードロックチャンバーに導入した試料をサファイヤ製試料ホルダーにセットするための、UHV 試料搬送システムを考案した。

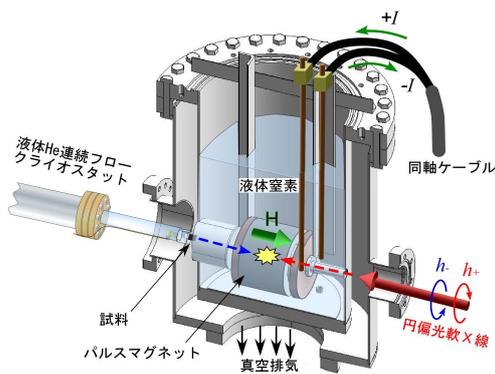


図 2 測定チャンバーの模式図。

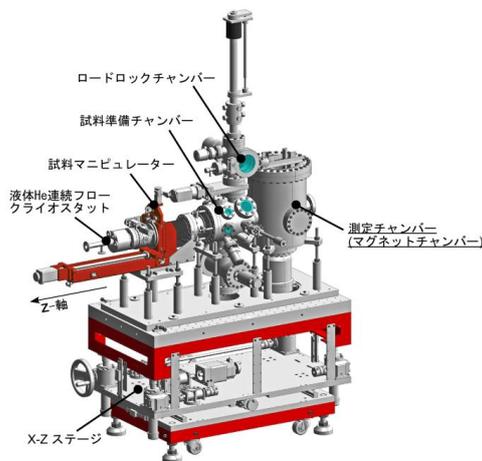


図 3 完成したパルス強磁場軟 X 線 MCD 測定装置の外観図。

また、磁場波形をパルス全幅が約 50ms のロングパルスとすることで、パルス磁場発生に伴い金属表面で発生する渦電流を軽減した。ロングパルス化により、データ積算時間も長くなり、測定精度が向上していると考えられる。軟 X 線吸収実験は、図 1 (b) で示したミラー電流と試料電流を電流アンプ (KEITHLEY 428) で増幅し、その電圧アナログ信号を、PC ボードタイプのスケイラー (16 bits, 128MB memory) で計測した。一度のパルス磁場発生で軟 X 線吸収量の磁場依存性を測定するために、1MHz のデータサンプリングによる時分割測定系を構築した。磁場強度は較正されたロゴスキーコイルによるコイル印加電流の計測値から決定した。また、測定ソフトは、NI 社製の Labview 上のソフトとして開発した。

図 4 に測定シーケンスを示す。図 4 の測定を、各円偏光 h_+ と h_- に対し、順次独立に実施し、それぞれの円偏光に対する吸収量の磁場依存性曲線 $\mu_+(H)$ と $\mu_-(H)$ を得た。さらに、 $\mu_+(H)$ と $\mu_-(H)$ の差分として XMCD ($\mu_m(H)$) を得た。また、 $\mu_+(H)$ と $\mu_-(H)$ の測定の間には、パルスマグネットの冷却に必要な時間 (21 T 発生時の場合で約 10 分) を設けている。

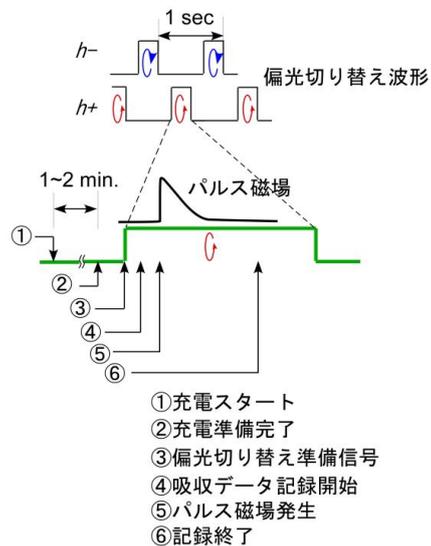


図 4 パルス磁場と同期した吸収測定シーケンス。④~⑥の間、1MHz のサンプリングレートで吸収データを計測する。

(2) 代表的測定結果

本研究で開発したパルス強磁場軟 X 線 MCD 測定装置を用いて行ったデモンストレーション実験の結果を図 5 に示す。試料にはこれまでに多くの軟 X 線 MCD 測定の実績がある CoFe/MnIr 薄膜を用いた。図 5 は本研究で得た最大 21 テスラの磁場中における Co L₃-edge (hν=780eV) の軟 X 線 MCD 実験の結果である。

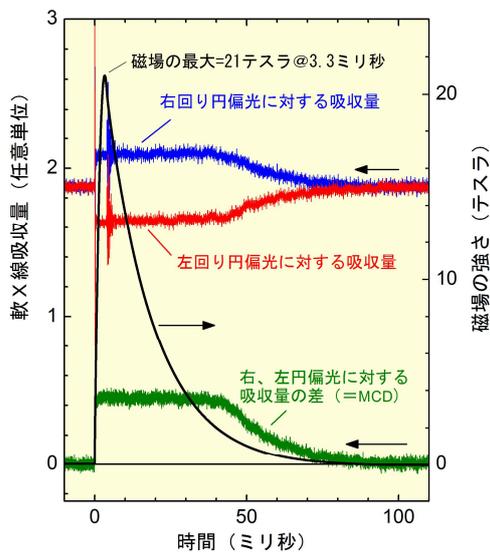


図 5 CoFe/MnIr 薄膜の Co L₃-edge におけるパルス強磁場軟 X 線 MCD 測定結果。

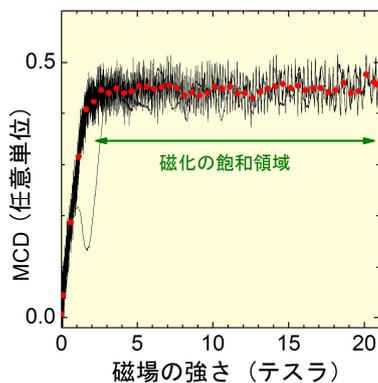


図 6 図 5 の結果から得た Co の元素選択磁化曲線。

図 5 において、磁場強度は 0 ミリ秒で急激に増加して、約 3.3 ミリ秒で最大の 21 テスラに到達した後、約 50 ミリ秒かけて緩やかに減衰していく様子がわかる。図 5 の赤線で示した $\mu_+(H)$ と、青線で示した $\mu_-(H)$ に対する吸収量は、磁場

を発生した後に差を生じ、磁場発生前の値を基準にして上下対称になるように変化を生じている。軟 X 線 MCD は赤線と青線の差分で表される。したがって、図 5 において明瞭な軟 X 線 MCD が観測されたことを示す。図 5 の結果から、横軸を磁場、縦軸を XMCD 強度としてプロットすると図 6 を得る。図 6 の曲線から、正しく Co 層の強磁性が得られたことが確認された。また、ここで示した結果以外にも磁気形状記憶効果を示す Ni-Co-Mn-In 合金や、磁場誘起価数転移を示す $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.18}\text{Ge}_{0.82})_2$ など最大 30 テスラの磁場下での測定に成功しており、論文を準備中である。

(3) 国内外の状況と位置づけ・インパクト

本研究により軟 X 線 MCD で利用できる最大磁場が約 3 倍に引き上げられた。現時点においても軟 X 線 MCD 実験用としての最高磁場記録を維持している。一方、強磁場実験への感心が高いのは他国も同様であり、英国の放射光施設 (DIAMOND) では 14 T 超伝導マグネットを備えた軟 X 線 MCD 装置が導入された。本研究の発展的課題として、2 件の科学研究費補助金 (23340094, 23324009) が実施中である他、国際ワークショップ「Workshop on Synchrotron and Neutron Applications of High Magnetic Fields (SYNEMAG 2012, Grenoble-Oct. 17-19, 2012)」での招待講演を受け、成果発表を予定している。

(4) 今後の展望

技術開発面では、最大磁場を約 40 テスラに引き上げる予定である。磁場増加に伴い、吸収計測におけるノイズも大きくなるため、磁場増加開発とあわせて、TEY 信号の高精度化も進めなければならない。一方、物質研究においては既に複数グループとの共同研究が進んでおり、さらに拡大しつつある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

① M. Hayashi, Y. Narumi, H. Nojiri, T. Nakamura, T. Hirono, T. Kinoshita, K. Kodama, and K. Kindo, "25 Tesla pulsed-high-magnetic-field system for soft X-ray spectroscopy", *J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom.* 184, 338-341 (2011), DOI: 10.1016/j.elspec.2010.12.015.(査読有)

② Tetsuya Nakamura, Yasuo Narumi, Toko Hirono, Misaki Hayashi, Kenji Kodama, Masakiyo Tsunoda, Shinji Isogami, Hirokazu Takahashi, Toyohiko Kinoshita, Koichi Kindo, and Hiroyuki Nojiri, "Soft X-ray Magnetic Circular Dichroism of a CoFe/MnIr Exchange Bias Film under Pulsed High Magnetic Field", *Applied Physics Express* 4, 066602-1-3 (2011), DOI:10.1143/APEX.4.066602. (査読有)

[学会発表] (計 18 件)

① 鳴海康雄、森岡貴之、野尻浩之、中村哲也、広野等子、木下豊彦、寺田典樹、北澤英明、金道浩一、 δ 三角格子反強磁性体 CuFeO_2 の軟 X 線磁気円二色性測定(27aAF-8) 日本物理学会・第 67 回年次大会、2012 年 3 月 27 日 (会期: 3/24-27)、兵庫県西宮市・関西学院大学

② 齋藤康太、鳴海康雄、野尻浩之、中村哲也、広野等子、木下豊彦、深田幸正、永田知子、神戸高志、池田直、田畑吉計、金道浩一、 δ 電荷秩序型マルチフェロイック物質 LuFe_2O_4 の価数選択強磁場磁化測定(27aAF-3) 日本物理学会・第 67 回年次大会、2012 年 3 月 27 日 (会期: 3/24-27)、兵庫県西宮市・関西学院大学

③ 田添昂、野尻浩之、M. Baker、鳴海康雄、田中豪、大塩寛紀、飯島史周、中村哲也、 $\delta\text{Fe-Co}$ 1 次元錯体のスピントロニックオーバー転移における誘電異常と XMCD(25aAF-4) 日本物理学会・第 67 回年次大会、2012 年 3 月 25 日 (会期: 3/24-27)、兵庫県西宮市・関西学院大学

④ 小谷章雄、中村哲也、鳴海康雄、林美咲、光田暁弘、広野等子、児玉謙司、森岡貴之、木下豊彦、和田裕文、金道浩一、野尻浩之、 δ パルス強磁場による $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.18}\text{Ge}_{0.82})_2$ の軟 X 線吸収 MCD 実験の理論解析(23aTC-5) 日本物理学会・2011 年秋期大会、2011 年 9 月 23 日 (会期: 9/21-24)、富山県富山市・富山

大学

⑤ 中村哲也、鳴海康雄、林美咲、光田暁弘、広野等子、児玉謙司、森岡貴之、木下豊彦、和田裕文、金道浩一、野尻浩之、小谷章雄、 δ パルス強磁場による $\text{EuNi}_2(\text{Si}_{0.18}\text{Ge}_{0.82})_2$ の軟 X 線吸収 MCD 実験(23aTC-4) 日本物理学会・2011 年秋期大会、2011 年 9 月 23 日 (会期: 9/21-24)、富山県富山市・富山大学

⑥ 鳴海康雄、森岡貴之、齋藤康太、野尻浩之、中村哲也、広野等子、木下豊彦、児玉謙司、金道浩一、 δ 30T 軟 X 線 MCD 測定に向けた強磁場発生技術開発(21aPS-134) 日本物理学会・2011 年秋期大会、2011 年 9 月 21 日 (会期: 9/21-24)、富山県富山市・富山大学

⑦ 鳴海康雄、中村哲也、野尻浩之、児玉謙司、広野等子、平賀晴弘、山田和芳、金道浩一、木下豊彦、 δ パルス強磁場軟 X 線 MCD で見る $\text{Co}(\text{S},\text{Se})_2$ のメタ磁性転移(21pRA-4) 日本物理学会・2011 年秋期大会、2011 年 9 月 21 日 (会期: 9/21-24)、富山県富山市・富山大学、

⑧ 中村哲也、 δ X-ray magnetic spectroscopy using soft x-rays and future prospects with the XFELö, RIKEN-POSTECH Joint-Workshop on Spectroscopy using Synchrotron and FEL radiation, 2011 年 7 月 1 日 (会期: 7/1-2)、兵庫県佐用郡佐用町・SPring-8

⑨ 鳴海康雄、中村哲也、林美咲、野尻浩之、児玉謙司、広野等子、平賀晴弘、山田和芳、金道浩一、木下豊彦、 δ パルス強磁場軟 X 線 MCD による $\text{Co}(\text{S},\text{Se})_2$ のメタ磁性転移の観測(25aHE-8) 日本物理学会・第 66 回年次大会、2011 年 3 月 25 日 (会期: 3/25-28)、新潟県新潟市・新潟大学 (震災の影響により中止、要旨集の出版により講演を代替)

⑩ 林美咲、森岡貴之、鳴海康雄、野尻浩之、中村哲也、広野等子、木下豊彦、児玉謙司、金道浩一、 δ 30T パルス強磁場軟 X 線 MCD 測定装置の開発(25aPS-66) 日本物理学会・第 66 回年次大会、2011 年 3 月 25 日 (会期: 3/25-28)、新潟県新潟市・新潟大学 (震災の影響により中止、要旨集の出版により講演を代替)

⑪ 中村哲也、鳴海康雄、広野等子、児玉謙司、林美咲、角田匡清、金道浩一、野尻浩之、木下豊彦、 δ パルス強磁場を用いた軟 X 線 MCD 測定技術の開発(5B005) 第 24 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2011 年 1 月 9 日 (会期: 1/7-10)、茨城県つくば市・つくば国際会議場エポカル

⑫ 中村哲也、鳴海康雄、広野等子、児玉謙司、林美咲、磯上慎二、高橋宏和、角田匡清、伊東航、梅津理恵、金道浩一、貝沼亮介、野尻浩之、木下豊彦、 δ パルス強磁場を用いた軟 X 線 MCD 測定技術の開発(23pRG-8)ö、日本物理学会・2010 年秋期大会、2010 年 9 月 23 日 (会期: 9/23-26)、大阪府堺市・大阪府立大学

⑬ 林美咲、鳴海康雄、野尻浩之、中村哲也、広野等子、木下豊彦、児玉謙司、金道浩一、 δ 軟 X 線分光実験用パルス強磁場システム(23pWL-7)ö、日本物理学会・2010 年秋期大会、2010 年 9 月 23 日 (会期: 9/23-26)、大阪府堺市・大阪府立大学

⑭ 鳴海康雄、中村哲也、林美咲、野尻浩之、児玉謙司、広野等子、伊藤航、梅津理恵、貝沼亮介、金道浩一、木下豊彦、 δ NiCoMnIn メタ磁性形状記憶合金の元素選択強磁場磁化測定(23pWL-9)ö、日本物理学会・2010 年秋期大会、2010 年 9 月 23 日 (会期: 9/23-26)、大阪府堺市・大阪府立大学

⑮ 中村哲也、鳴海康雄、広野等子、児玉謙司、林美咲、磯上慎二、高橋宏和、角田匡清、伊東航、梅津理恵、金道浩一、貝沼亮介、野尻浩之、木下豊彦、 δ パルスマグネットを用いた強磁場軟 X 線 MCD 測定技術の開発(4pE-15)ö、日本磁気学会・第 3 4 回日本磁気学会学術講演会、2010 年 9 月 4 日 (会期: 9/4-7)、茨城県つくば市・つくば国際会議場エポカル

⑯ 中村哲也、鳴海康雄、広野等子、児玉謙司、林美咲、角田匡清、金道浩一、野尻浩之、木下豊彦、 δ パルス強磁場による軟 X 線 MCD 測定技術の開発(2C001)ö、第 2 3 回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム、2010 年 1 月 7 日 (会期: 1/6-9)、兵庫県姫路市・イーグレひめじ

⑰ 林美咲、鳴海康雄、野尻浩之、中村哲也、広野等子、児玉謙司、角田匡清、金道浩一、木下豊彦、 δ 強磁場 X 線 MCD 測定用コンパクト電源の開発と応用ö、物構研シンポジウム '09、2009 年 11 月 18 日 (会期: 11/17-18)、茨城県つくば市・つくば国際会議場エポカル

⑱ 中村哲也、鳴海康雄、広野等子、児玉謙司、林美咲、角田匡清、金道浩一、野尻浩之、木下豊彦、 δ パルス強磁場下での軟 X 線 MCD 測定技術の開発(27pPSA-44) ö、日本物理学会・2009 年秋期大会、2009 年 9 月 27 日 (会期: 9/25-28)、熊本県熊本市・熊本大学

[その他]

(1) 2011 年 5 月 30 日 SPring-8 プレスリリース
http://www.spring8.or.jp/ja/news_publications/press_release/2011/110530

(2) T. Nakamura and Y. Narumi,
High-magnetic-field soft X-ray spectroscopy using 1 30 T pulse magnetö, SPring-8 Research Frontiers 2011.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村 哲也 (Nakamura Tetsuya)
財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主幹研究員
研究者番号: 70311355

(2) 研究分担者

鳴海 康雄 (Narumi Yasuo)
東北大学・金属材料研究所・准教授
研究者番号: 50360615