

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 8 日現在

機関番号：82110

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25800207

研究課題名(和文) 強磁性超伝導体への元素・電子軌道選択的な磁気プローブによる新たな実験的アプローチ

研究課題名(英文) Experimental study of ferromagnetic superconductor using an element- and orbital-specific magnetic probe

研究代表者

竹田 幸治 (Takeda, Yukiharu)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・主任研究員

研究者番号：50399416

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：軟X線磁気円二色性(XMCD)実験における精度向上および効率化のために測定位置観測システムを新規に導入した。

このシステムを用いて、超伝導強磁性体URhGeの示す強い磁気異方性を元素・電子軌道選択的に調べるために、ウラン4d-5f吸収端におけるXMCD実験をc軸(磁化容易軸)とb軸に対して行った。

キュリー温度以下において、c軸では強磁性的、b軸では常磁性的な振る舞いがそれぞれ観測された。また、c軸とb軸でXMCDスペクトルを比較すると、軌道磁気モーメントとスピン磁気モーメントの比はc軸の方がb軸よりも大きいことが分かった。この結果は、この物質の磁気異方性の起源を理解する上で重要な知見である。

研究成果の概要(英文)：In order to improve the quality of experimental data by the soft x-ray magnetic circular dichroism (XMCD), measurement-position-observation system was newly constructed. Using the system, the XMCD measurements in ferromagnetic superconductor URhGe were done at the U 4d-5f absorption edges to extract the magnetic property at the U site. The magnetic anisotropy of the compound was investigated by applying the external magnetic field along the c-axis (magnetization easy axis) and b-axis (hard axis).

Below Curie temperature, the magnetic-field dependence of the XMCD signals shows the ferromagnetic and paramagnetic behavior for the c-axis and b-axis, respectively. From the analysis of the XMCD spectra for the c- and b-axes, it has been found that the ratio of the orbital magnetic moment to the spin magnetic moment for the c-axis is larger than that for the b-axis. These results are important information to understand the origin of the magnetic anisotropy in URhGe.

研究分野：放射光分光実験

キーワード：ウラン化合物 強相関電子系 強磁性超伝導体 放射光 軟X線 内殻吸収分光 磁気円二色性

1. 研究開始当初の背景

強磁性と超伝導は互いに競合する性質だと考えられてきた。しかし、ウラン化合物において、 UGe_2 、 $URhGe$ および $UCoGe$ (U:ウラン、Ge:ゲルマニウム、Rh:ロジウム、Co:コバルト)では、真に強磁性と超伝導の共存が確認された。ウラン化合物強磁性超伝導体の発見は、超伝導における新たな研究の舞台を広げるものとなった。2001年に青木氏らにより、 $URhGe$ が常圧下において強磁性と超伝導を示すことが報告された。強磁性転移温度 $T_{Curie} = 9.5K$ で強磁性秩序を示す。磁気モーメントの大きさは $0.4m_B/U$ で、c 軸方向を向いている。そして超伝導転移温度 $T_{SC} = 0.25K$ 以下において、強磁性相の中に超伝導相が共存する。一方、b 軸方向において、 $T = 80 mK$ で $11 T < H < 14 T$ の間で、磁場により誘起される超伝導も発見されている。このような顕著な結晶軸異方性をもつ強磁性超伝導の発現機構解明には、まず磁気異方性の理解が重要であると考えられる。そして、この磁気異方性の原因をミクロスコピックに調べる必要がある。

2. 研究の目的

強磁性超伝導ではいずれも磁気異方性と超伝導が密接に関係している。磁気異方性の元素レベルでの理解は、強磁性超伝導発現機構解明にとって重要であると考えられる。本研究の目的は、元素・電子軌道選択的な磁性プローブである軟 X 線内殻吸収磁気円二色性(XMCD)を用いて、ウラン化合物強磁性超伝導体における U 5f 電子の磁氣的性質を調べることである。

XMCD は、試料の磁化方向に対して、右・左円偏光をそれぞれ照射したときの内殻吸収強度の差で定義される。また、XMCD 実験結果と理論による総和則¹を組み合わせれば、スピン磁気モーメント(M_S)と軌道磁気モーメント(M_L)についての情報を得ることができる。異なる結晶軸に対して XMCD 実験を行うことで、磁気異方性についてのミクロスコピックな知見が得られる。

UGe_2 は圧力下においてのみ強磁性と超伝導の共存相があり実験的な困難さがある。一方、 $URhGe$ と $UCoGe$ は常圧下で共存相が出現する。特に $URhGe$ は $T_{Curie}=9.5K$ であり、 $UCoGe$ の $T_{Curie}\sim 2.7K$ と比べて高い。これらの状況から判断して、本研究では $URhGe$ をメインの研究対象とし、これまで行われていなかった XMCD を用いて、 $URhGe$ の特徴である強い磁気異方性における U 元素の役割を直接的に探ることを目指した。

3. 研究の方法

本研究では $URhGe$ の U 元素だけの磁気情報を抜き出すために U $N_{4,5}$ (4d 5f)吸収端での XMCD 実験を行った。磁気異方性を調べるために c 軸、b 軸に対してその XMCD スペクトルの温度・磁場依存性を測定した。各測

定条件での XMCD スペクトルに対して総和則を適用することにより、 M_L/M_S 実験的に調べた。本研究は大まかには以下のように進めた。

- (1) 高精度かつ高効率に測定位置を決定し XMCD 検出精度向上に資する測定位置観測システムの導入。
- (2) 上記システムを用いて、 $URhGe$ および参照物質としてのウラン化合物に対する XMCD 実験を実施。

なお、本研究における費用の約 70% は(1)の導入・整備に費やされた。

4. 研究成果

(1) 測定位置観測システムの導入

XMCD 計測において、もっとも実験的に重要なのは、いかに XMCD シグナルの「ゼロ」を高精度に決定できるかである。このゼロの精度がすなわち XMCD 検出の精度となるからである。磁場や温度を変化させると、試料の位置が数 $10\mu m$ 程度、不可避に変動する。清浄表面をへき開などにより得た試料表面には凹凸などがあり、この位置変動により、XMCD 検出精度が影響を受ける。本研究では、常磁性状態での実験も計画していたことから、微小な XMCD シグナルの観測が予想されていたため、この影響を最小限に抑える必要があった。そこで、試料の高精度かつ高効率な位置決定のための測定位置観測システムの導入から着手した。本システムは、大型放射光施設 SPring-8 BL23SU に設置されている XMCD 装置に対して導入・整備した。

検討の結果、この測定位置観測システムでは、クエスター社製長距離望遠鏡(QM-1)と JAI 社製 1/2 型プログレッシブスキャン CCD カメラ(CM-140GE)を採用した。このシステムの導入により、試料の測定位置決定の精度が格段に向上した。そして、本研究対象であるウラン化合物に対する XMCD 実験はもちろんのこと、本研究と並行して実施されたさまざまな物質系の XMCD 実験においても、質の高い実験データの取得に大いに貢献している。このことは本研究の重要な波及効果のひとつである。

一方で、位置分解能確保のため高額の長距離望遠鏡の採用を優先したため、CCD カメラの性能を妥協せざるを得なかった。今後、画像の解像度をより向上させるためには、より高感度の CCD カメラの導入が期待される。

本システム導入に関連した成果は、5. 主な論文発表等の雑誌論文、学会発表である。

(2) ウラン化合物強磁性超伝導体の XMCD による研究

本研究で使用した $URhGe$ の純良単結晶試料は日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター重元素材料物性研究グループの芳

賀氏らにより育成された。XMCD 実験は、(1) の測定位置観測システムを備えた XMCD 装置において実施した。

まずは磁化容易軸である c 軸に対する $U N_{4,5}$ 吸収端における XMCD 実験から開始した。 T_{Curie} より高い $T=15K$ の常磁性状態および、 T_{Curie} より低い $T=5.6K$ の強磁性状態いずれにおいても、明瞭な XMCD スペクトルを取得することができた。強磁性転移に伴い、 $T=15K$ に比べ $T=5.6K$ での XMCD シグナル強度は有意に増大した。また、XMCD シグナルの磁場依存性を測定することで得られる元素・電子軌道選択的磁化曲線からは、 T_{Curie} 以下で $U 5f$ 電子のもつ磁気モーメントに明瞭なヒステリシスが観測された。

次に、 b 軸に対する $U N_{4,5}$ 吸収端における XMCD 実験も行った。 c 軸の場合と異なり、 b 軸においては T_{Curie} 以下の温度領域でも XMCD シグナルの磁場依存性にはヒステリシスは観測されず、常磁性的な振る舞いが観測された。また、同じ温度・磁場の条件下であっても、 c 軸に比べて b 軸での XMCD シグナル強度は小さかった。以上の結果は、バルクの磁化測定の結果と一貫している。

実験で得られた XMCD スペクトルを総和則を適用し解析することで、軌道磁気モーメント(M_L)とスピン磁気モーメント(M_S)を見積もった。 M_L および M_S のそれぞれの定量的な評価については、今後慎重な検討を必要とするが、軌道磁気モーメントのスピン磁気モーメントに対する比(M_L/M_S)については、現時点でも確信的な結果が得られた。 c 軸に対しての実験からは、 M_L/M_S は、 T_{Curie} 上下でも温度に依存せず、そして磁場依存性もなく、変化しない。 b 軸に対しても、同様で M_L/M_S は温度および磁場依存性はないことが分かった。一方、 c 軸と b 軸を比較すると、明らかに磁化容易軸である c 軸の M_L/M_S の方が b 軸のそれよりも大きいことが分かった。今後、詳細な解析を行うことで、URhGe における磁気異方性の起源についての理解が深まることが期待される。

また、今回の研究では、 U 化合物強磁性超伝導体に共通して含まれる Ge 元素について、 $Ge L_{2,3}$ 吸収端での XMCD 実験も試みた。結果、 Ge サイトにおいても、 10^{-4} レベルと微小ながらも明瞭な XMCD シグナルを観測することができた。今後、他のウラン化合物強磁性超伝導体との比較検討において、重要な知見になりうる結果だと考えている。

ウラン化合物の XMCD 研究に関する成果は、雑誌論文、学会発表 である。

<引用文献>

- D. Aoki et al., Nature **413** (2001) 613.
F. Levy et al., Science **309** (2005) 1343.
B. T. Thole et al., Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 1943.
P. Carra et al., Phys. Rev. Lett. **70** (1993)

694.

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5件)

Y. K. Wakabayashi, S. Sakamoto, Y. Takeda, K. Ishigami, Y. Takahashi, Y. Saitoh, H. Yamagami, A. Fujimori, M. Tanaka and S. Ohya

Room-temperature local ferromagnetism and its nanoscale expansion in the ferromagnetic semiconductor $Ge_{1-x}Fe_x$
Scientific Reports **6**, 23295 (2016).

査読有

DOI:10.1038/srep23295

M. Ye, W. Li, S. Zhu, Y. Takeda, Y. Saitoh, J. Wang, Hong, Pan, M. Nurmamat, K. Sumida, F. Ji, Z. Liu, H. Yang, Z. Liu, D. Shen, A. Kimura, S. Qiao and X. Xie

Carrier-mediated ferromagnetism in the magnetic topological insulator Cr-doped $(Sb, Bi)_2Te_3$

Nature Communications **6**, 8913 (2015).

査読有

DOI:10.1038/ncomms9913

M. Vališka, J. Pospíšil, A. Stunault, Y. Takeda, B. Gillon, Y. Haga, K. Prokeš, M. M. Abd-Elmeguid, G. Nénert, T. Okane, H. Yamagami, L. Chapon, A. Gukasov, A. Cousson, E. Yamamoto, and V. Sechovský
Gradual Localization of 5f States in Orthorhombic UTX Ferromagnets: Polarized Neutron Diffraction Study of Ru Substituted UCoGe

J. Phys. Soc. Jpn. **84**, 084707 (2015).

査読有

DOI:10.7566/JPSJ.84.084707

M. Kobayashi, L. D. Anh, P. N. Hai, Y. Takeda, S. Sakamoto, T. Kadono, T. Okane, Y. Saitoh, H. Yamagami, Y. Harada, M. Oshima, M. Tanaka and A. Fujimori

Spin and orbital magnetic moments of Fe in the n-type ferromagnetic semiconductor $(In,Fe)As$

Appl. Phys. Lett. **105**, 032403 (2014).

査読有

DOI:10.1063/1.4890733

Y. Takeda, Y. Saitoh, T. Okane, H. Yamagami, T. D. Matsuda, E. Yamamoto, Y. Haga, Y. Ōnuki, and Z. Fisk

Separation of magnetic properties at uranium and cobalt sites in UCoAl using soft x-ray magnetic circular dichroism

Phys. Rev. B **88**, 075108 (2013).
査読有
DOI:10.1103/PhysRevB.88.075108

〔学会発表〕(計 8 件)

竹田幸治、齋藤祐児、岡根哲夫、山上浩志、Jiří Pospíšil、山本悦嗣、芳賀芳範
ウラン化合物強磁性超伝導体の軟X線磁気円二色性による研究
日本物理学会第 71 回年次大会
2016 年 3 月 22 日
「東北学院大学(宮城県仙台市)」

藤森伸一、小島雅明、竹田幸治、岡根哲夫、齋藤祐児、藤森淳、山上浩志、芳賀芳範、山本悦嗣、大貫惇睦
ウラン化合物の U 4d-5f 共鳴光電子分光
日本物理学会第 71 回年次大会
2016 年 3 月 19 日
「東北学院大学(宮城県仙台市)」

Y. K. Wakabayashi, S. Sakamoto, Y. Takeda, K. Ishigami, Y. Takahashi, Y. Saitoh, H. Yamagami, A. Fujimori, M. Tanaka and S. Ohya
Observation of the room-temperature local ferromagnetism and its nanoscale growth in the ferromagnetic semiconductor GeFe
American Physical Society March Meeting 2016
2016 年 3 月 16 日
「ボルチモア(米国)」

竹田幸治
BL23SU における軟X線磁気円二色性装置の紹介
第一回 SPring-8 先端利用技術ワークショップ(招待講演)
2016 年 3 月 11 日
「グランパークプラザ(東京都港区)」

J. Pospíšil, M. Vališka, A. Stunault, Y. Takeda, B. Gillon, Y. Haga, K. Prokeš, M. M. Abd-Elmeguid, G. Nénert, T. Okane, H. Yamagami, L. Chapon, A. Gukasov, A. Cousson, E. Yamamoto, and V. Sechovský
Evolution of ferromagnetism in Ru doped UCoGe studied by PND and XMCD
日本物理学会第 70 回年次大会
2015 年 3 月 24 日
「早稲田大学(東京都新宿区)」

叶茂, W. Li, B, J. J. Wang, H. Pan, 竹田幸治, 齋藤祐児, 朱思源, M. Nurmamat, 角田一樹, F. H. Ji, Z. Liu, H. F. Yang, Z. T. Liu, D. W. Shen, 木村昭夫, S. Qiao
トポロジカル絶縁体 Cr ドープ (Sb,Bi)₂Te₃ のキャリア誘起強磁性
日本物理学会第 70 回年会

2015 年 3 月 22 日
「早稲田大学(東京都新宿区)」

竹田幸治、齋藤祐児、岡根哲夫、山上浩志、松田達磨、山本悦嗣、芳賀芳範、大貫惇睦
軟X線磁気円二色性による UCoAl の元素選択的磁化測定
日本物理学会第 69 回年次大会
2014 年 3 月 28 日
「東海大学(神奈川県平塚市)」

竹田幸治、齋藤祐児、岡根哲夫、山上浩志、松田達磨、山本悦嗣、芳賀芳範、大貫惇睦
軟X線磁気円二色性による UCoAl の元素選択的磁化測定
第 27 回日本放射光学学会年会
2014 年 1 月 13 日
「広島国際会議場(広島県広島市)」

6. 研究組織

(1) 研究代表者

竹田幸治 (Yukiharu Takeda)
国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門 量子ビーム応用研究センター・主任研究員
研究者番号: 50399416