



平成 23 年 5 月 30 日
財団法人 高輝度光科学研究センター
国立大学法人 東北大学
国立大学法人 東京大学 物性研究所

世界で初めて超強力磁場中の軟 X 線分光実験を実現

－ レアアースを低減した高性能磁石開発を加速 －

高輝度光科学研究センター（以下「JASRI」、理事長 白川 哲久）は、東北大学（総長 井上 明久）、東京大学物性研究所（所長 家 泰弘）などと共同で、大型放射光施設 SPring-8^{※1}の軟 X 線^{※2} 固体分光ビームライン BL25SU において、21 テスラ（=21 万ガウス）の超強力磁場を用いた軟 X 線分光実験に世界で初めて成功し、強力なネオジウム磁石を含むほぼ全ての实用磁気材料について軟 X 線磁気円二色性(MCD)^{※3}による磁気分析を可能にしました。

軟 X 線 MCD 分光は、調べたい元素ごとに原子磁石（磁気モーメント^{※4}）を解析でき、かつ、原子 1 層分の磁性を検出できるほどの高感度性も備えています。磁場の強さに対する磁気モーメントの向きや大きさの応答を調べることで、その磁性体の性質を解明するために最も基本的かつ重要な情報が得られます。このとき、磁場の強さが十分でないと磁気モーメントに有意な変化が生じないため、多様な物質の磁性を網羅的に調べるためには強い磁場が必要となります。しかし、軟 X 線 MCD の実験で利用できる最高磁場はこれまで 10 テスラにとどまり、10 年間以上にわたり更新されませんでした。

今回、研究グループでは最高磁場を格段にアップするための技術開発に挑戦しました。その方法として、電源装置に蓄えた電気を磁場発生コイルに一気に流し込み、短時間（100 分の 5 秒）ではありますが超強力磁場を発生できる「パルス磁場方式」を採用しました。しかし、軟 X 線の検出信号である約 10 億分の 1 アンペアという極めて微弱な電流を、雷のように一瞬で大電流を流すときに生じる強烈なノイズ環境下で精度良く測定することは容易ではありませんでした。そこで、ノイズの発生量が電流の時間勾配に比例することに着目し、この勾配を従来に比べて 10 分の 1 以下に減らす対策を講じたほか、信号ケーブルの配線経路を工夫するなど、徹底したノイズ対策を行いました。その結果、従来の最高磁場を 2 倍以上も上回る 21 テスラの超強磁場を用いた軟 X 線 MCD 実験に成功しました。

今回開発した計測技術を用いると、ネオジウム磁石の成分として用いられるジスプロシウム(Dy)などの価格が高騰するレアアースが磁石中で担う役割を解明することにつながり、レアアースを代替する安価な元素（ユビキタス元素）を見出す研究の進展が期待されます。

本成果は、JASRI の中村哲也 主幹研究員、東北大学の鳴海康雄 准教授、東京大学の金道浩一 教授らの共同研究で得られたもので 2011 年 5 月 24 日に日本応用物理学会の英文雑誌「Applied Physics Express (APEX)」オンライン版に掲載されました。

《研究の背景》

磁性体のなかではN極とS極をもつ磁気モーメントが規則的に並んでいるか、または、方向が定まらずに絶えず揺らいでいるなどの状況が生じています。外部から磁場を印加すると磁気モーメントの並び方に変化を生じますが、このときの磁場の強さと磁気モーメントの変化量（主に方向）の対応から、その物質が材料としてどのような用途に適しているのかが分かります。また、このような磁気モーメントと印加磁場の相関は、磁性体の性質を物理的に解明するための最も基本的かつ重要な情報でもあります。

磁気モーメントと印加磁場の相関を調べるための実験は、従来、試料全体の性質を測定した結果からマイクロな磁気モーメントの振る舞いを予測するものでした。しかし、ほとんどの磁気材料は複数の元素を含有しており、成分元素の各磁気モーメントを試料全体の磁氣的振る舞いから予測して解明することは容易ではありません。特に近年では、磁気記録媒体やハイブリッド自動車のモーターなど今日の生活に欠くことのできない様々な磁気材料において、材料機能を追求する開発の結果として含有元素の種類や構成も複雑化しています。そのため、材料のなかで添加した元素がどのような性質をもって磁石全体の特性に寄与しているのかを調べることも以前に比べて更に難しくなっています。このように、元素毎に磁氣的な性質を調べることは従来の実験では大変難しいことでしたが、放射光軟X線を用いた磁気円二色性(MCD)実験を利用すると磁気材料に含まれる元素ごとに磁気情報を得ることができるので、軟X線 MCD は複雑な磁気材料を解析するための非常に強力な手段となっています。

一方、いくら磁気モーメントと印加磁場の相関を調べようとしても、磁場の強さが不十分だと物質によっては磁気モーメントに有意な変化が生じないため、軟X線 MCD ではより強い磁場を利用できることが求められています。特に、高性能な希土類磁石の研究や磁気冷凍材料の原理として重要なメタ磁性物質には、非常に強い磁場が必要とされています。しかし、軟X線 MCD の実験で利用できる最大の磁場はこれまで10テスラにとどまり、10年間以上にわたり更新されませんでした。一方で、SPring-8では軟X線に先行して硬X線^{*1}を用いた実験が行われ、近年、東京大学物性研究所の松田康弘准教授らによって超強磁場下(40テスラ)でのMCD実験技術が確立しています[2009年にプレスリリース]。しかし、このように硬X線MCDが成功している状況にあっても、強磁場を用いた軟X線MCD実験を開発することには大きな意義があります。その理由は、軟X線MCDには磁性の起源となる電子(電子軌道)を狙って観測できる特徴があるからです。原子のもつ磁性の起源は、鉄(Fe)、ニッケル(Ni)、コバルト(Co)が属する遷移金属元素の3d電子軌道や、ネオジウム(Nd)、ガドリニウム(Gd)、ジスプロシウム(Dy)などが属するレアアース元素の4f電子軌道における不対電子^{*5}スピンであることが知られています。軟X線を用いると原子の内殻軌道から励起される電子を、丁度、これらの電子軌道に遷移させることができます。つまり、軟X線MCDで得られる情報は磁性に直接的なものとなり、従来の磁気測定との比較がより有意義なものとなります。このように、硬X線MCDでの超強磁場中での実験成功をきっかけに、超強磁場中での軟X線MCDの実現を目指して開発が始まりました。

《研究内容と成果》

これまで軟X線 MCD 実験用の強磁場発生装置には、超伝導磁石が用いられてきました。超伝導磁石には安定した磁場が得られる利点がありますが、この先、超伝導磁石を用いた装置を開発しても現状で約 20 テスラが限界となります。そこで研究グループでは、将来 40 テスラ以上での実験の実現も視野に入れ、硬X線 MCD と同様のパルス磁場方式を採用しました。パルス磁場は、電源装置に蓄えた電気を磁場発生コイルに一気に流し込むことによって発生します。磁場の持続時間は短時間（0.001～0.1 秒）ですが強烈な磁場が得られる特徴があります。

一方、軟X線では物質の透過能が 0.1 ミクロン程度しかなく、硬X線実験のように透過したX線を測定するような吸収分光実験が難しいため、一般的には、試料による軟X線吸収量に比例して試料表面から飛び出してくる光電子^{*6}の量を計測して吸収分光実験を行っています。このとき、光電子の量は、電流に換算すると、約 10 億分の 1 アンペアという極めて微弱な値に相当します。つまり、20 テスラ以上のパルス磁場中で軟X線 MCD の実験を行うためには、雷のようにパルスの発生させる大電流と強磁場の近傍で、約 10 億分の 1 アンペアの電気信号を精度良く測定する必要があります。この課題をクリアするために、パルス磁場発生技術のエキスパートである東北大学金属材料研究所と東京大学物性研究所のグループは、パルス磁場としては長時間の 100 分の 5 秒を実現することで、急激な電流変化や磁場変化によるノイズ発生を低減し、SPring-8 ではこれまでの軟X線 MCD 測定技術で得た経験を活かして信号ケーブルや検出方法の徹底したノイズ対策を行いました。こうして開発した実験装置が図 1 に示したパルス磁場軟X線 MCD 測定装置です。

超強磁場中の軟X線 MCD の開発と実験は、SPring-8 の軟X線ビームラインである BL25SU で実施しました。今回、測定した物質はハードディスクの読みとりヘッド用に用いられている CoFe/MnIr 薄膜^{*7}です。この試料については、これまでに多くの軟X線 MCD 測定の実績があり、測定法の開発を目指した本研究にとって最適の試料です。図 2 は今回得られた最大 21 テスラの磁場中における軟X線 MCD 実験の結果です。CoFe/MnIr 薄膜のうちコバルト(Co)だけの磁性を選択的に取り出すことのできる軟X線エネルギー（780 電子ボルト）にセットして測定を行いました。図 2 の横軸は磁場を発生しはじめてからの経過時間で、黒線で示した磁場強度は 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分かります。図 2 の赤線で示した左回り円偏光軟X線に対する吸収量と、青線で示した右回り円偏光軟X線に対する吸収量は、磁場を発生した後に青線と赤線の挙動に差が生じ、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ます。軟X線 MCD は赤線と青線の差分（緑線）で表されるので、図 2 において明瞭な軟X線 MCD が観測され、測定に成功していることが分かります。磁場の強さに応じて軟X線 MCD の強度が変化していますので、図 2 の結果から横軸を磁場の強さ、縦軸を軟X線 MCD 強度に焼き直すと、図 3 が得られます。図 3 の曲線から、CoFe/MnIr 中の Co 原子が 2 テスラ以上で飽和に達する強磁性であることが確認できました。図 2 とあわせ、図

3の結果も今回開発した実験技術が確かなものであることを証明しています。また、図2と同様の測定を軟X線のエネルギーを変化させながら繰り返し行うことで、軟X線 MCD スペクトルの磁場依存性のグラフ（図4）が得られることも示すことができました。

《今後の展開》

本研究で示した CoFe/MnIr 薄膜はハードディスクの読み取りヘッド素子材料として利用されていますが、MnIr 合金は外部磁場に応答しにくい反強磁性体と呼ばれる磁性を持っています。最近まで、反強磁性体は磁性研究の基礎的な興味対象であっても、材料として利用されることはありませんでした。しかし、現在ではかつて誰も予想もしなかったほど反強磁性体が磁気デバイスの機能に重要な役割を担っています。超強磁場を用いると反強磁性体に有効な変化を与えられるので、今回開発した測定技術は磁気デバイスに用いられる反強磁性体の磁性解明により大きく貢献していくものと考えられます。

また、ハードディスクの読み取りヘッド材料だけでなく、測定に強い磁場が必要とされるレアアース磁石の研究にも新しい切り口を与えることが期待されます。例えば、ハイブリッド自動車用のモーターに使用されるネオジウム磁石には高温環境でも性能を維持できるようにジスプロシウム(Dy)が多量に使用されています。しかし、近年は Dy の価格高騰が社会問題にまで発展し、Dy の使用量を低減することが急務となっています。軟X線 MCD を用いると、Dy が磁石中でどのような磁性を持っているかを詳細に調べることができますので、その情報から、Dy を代替する安価な元素（ユビキタス元素）を見出す研究の進展が期待されます。

《掲載論文》

題名：Soft X-ray Magnetic Circular Dichroism of a CoFe/MnIr Exchange Bias Film under Pulsed High Magnetic Field

日本語訳：CoFe/MnIr 交換結合膜におけるパルス強磁場下の軟X線磁気円二色性

著者：中村哲也¹，鳴海康雄²，広野等子¹，林美咲²，児玉謙司¹，角田匡清³，磯上慎二³，高橋宏和³，木下豊彦¹，金道浩一⁴，野尻浩之²。

著者所属：¹ 高輝度光科学研究センター

² 東北大学金属材料研究所

³ 東北大学大学院工学研究科

⁴ 東京大学物性研究所

ジャーナル名：Applied Physics Express (APEX)

巻・ページ・発行年：4巻・066602 ページ・2011年

掲載日：平成23年5月24日

《参考資料》

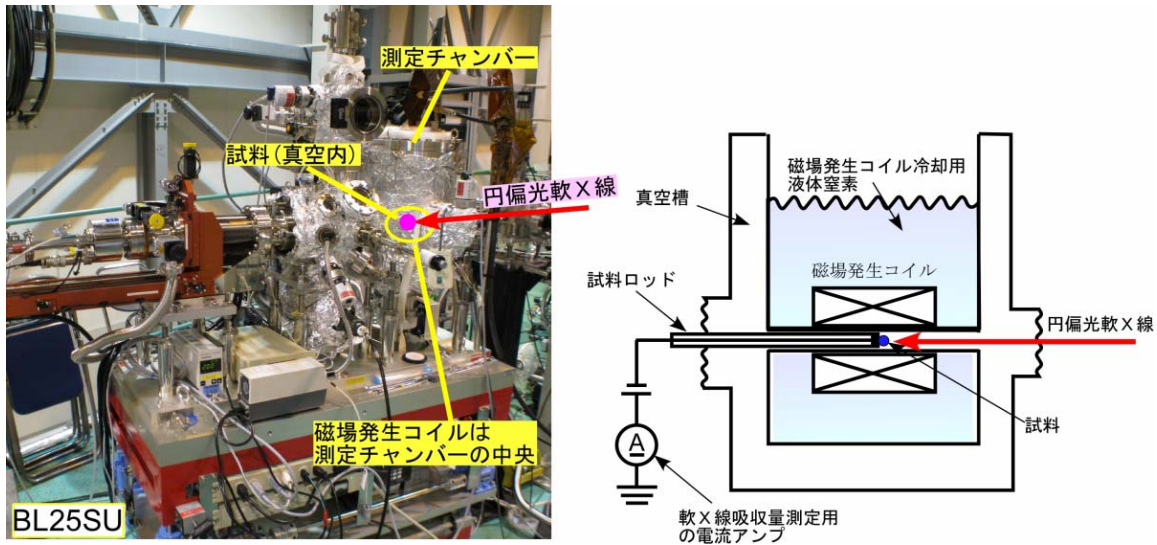


図1 パルス強磁場発生装置を備えた軟X線 MCD 測定装置（左）と、測定チャンバーの断面模式図（右）。

磁場発生時にコイルが熱をもつため、常に液体窒素で冷却している。試料は磁場発生コイルを貫く真空パイプのなかにセットされており、軟X線の吸収量に比例して放出される光電子と同じ電荷に相当する電流が、電流アンプを通過して補充される。すなわち、電流アンプを通過した電流量が軟X線吸収量に比例する。

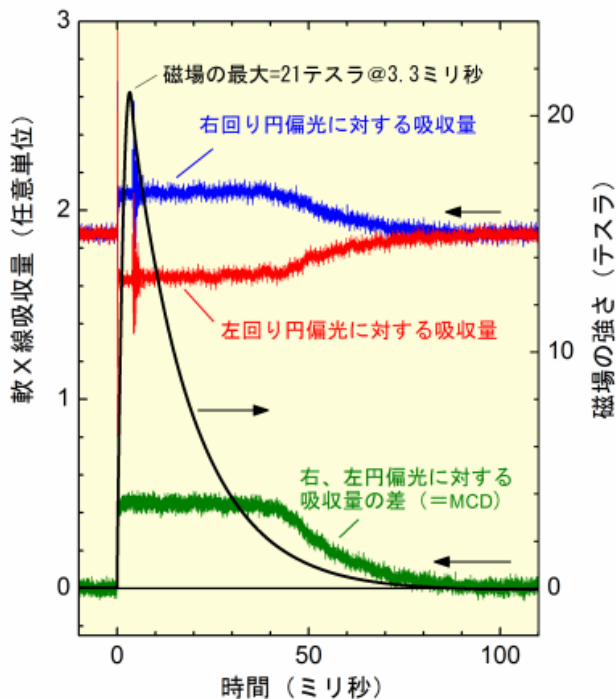


図2 CoFe/MnIr 薄膜の Co L_3 吸収端 (780 電子ボルト) における軟X線 MCD 測定結果。説明は本文参照。

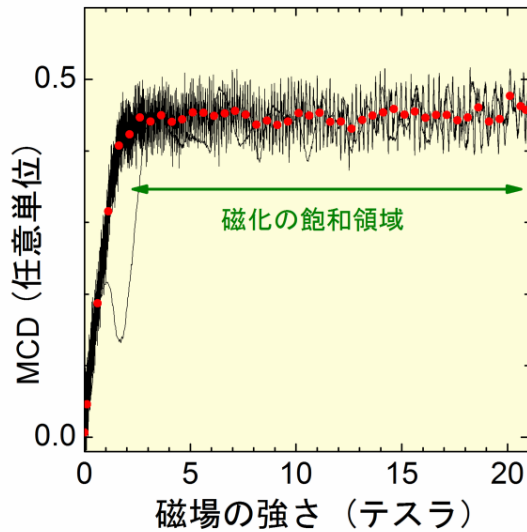


図3 図2のMCD測定結果から得たコバルト(Co)だけの磁化曲線。
 黒線は測定データを直接プロットしたもので、赤丸は精度を上げるために0.25テスラごとに生データを平均化した値のプロット。

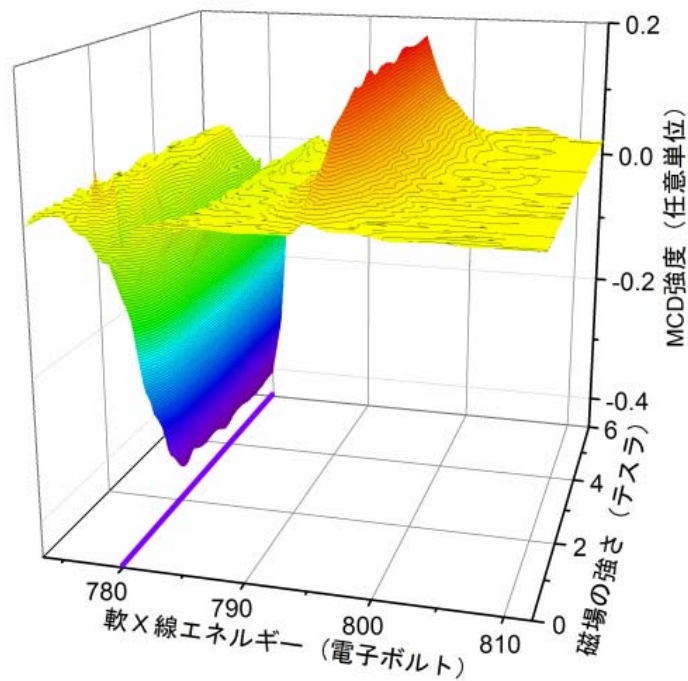


図4 図2と同様の測定を軟X線のエネルギーを変化させながら繰り返し行うことで得た軟X線MCDスペクトルの磁場依存性。

《用語解説》

※1：大型放射光施設 SPring-8

兵庫県の播磨科学公園都市にある世界最高の放射光を生み出す理化学研究所の施設で、高輝度光科学研究センターが運転管理を行っています。放射光とは、光速に近い速度で加速した電子の進行方向を電磁石で変えたときに発生する、強力な電磁波（X線）のこと。SPring-8の名前は **Super Photon ring-8GeV** に由来します。SPring-8では、この放射光を用いて、ナノテクノロジー、バイオテクノロジーや産業利用まで幅広い研究が行われています。

※2：軟X線／硬X線

軟X線と硬X線の区別に明確な定義はありませんが、本研究では軟X線は約 800 電子ボルト（波長で約 1 ナノメートル）程度のX線、硬X線は軟X線に比べてエネルギーが 10 倍程度のX線としています。

※3：磁気円二色性（MCD）

磁性体に円偏光したX線を照射すると円偏光の向きが右回りか左回りかによって吸収される軟X線の量が変化します。この変化量はその物質の磁氣的性質を反映することから、軟X線を用いた磁気測定法として利用されています。軟X線のエネルギーを特定の値に調整することで調べたい元素毎に軟X線磁気円二色性が得られますので、元素を特定した分析が可能です。MCDは **Magnetic Circular Dichroism** の略称。

※4：磁気モーメント

原子がもつ磁石としての強さと向き（S極からN極に向かう方向）を表すベクトル量。

※5：不対電子

電子は電子軌道に入るときに通常は上向きスピンと下向きスピンのペアを形成します。しかし、鉄(Fe)の3d電子軌道などではペアをつくらない電子が存在します。このペアになっていない電子を不対電子と呼び、これが磁性の起源となります。

※6：光電子

原子や分子に属する電子が、X線などの光から十分なエネルギーを得ると電子軌道の束縛から解放され原子や分子の外部に放出されます（光電効果）。この電子を光電子と呼びます。

※7：CoFe/MnIr 薄膜

コバルト(Co)と鉄(Fe)の合金薄膜層が、マンガン(Mn)とイリジウム(Ir)の合金薄膜層の上に積層された2層構造の薄膜。実際の試料では、酸化シリコン(SiO₂)の基板の上に数種類の純金属（タンタル(Ta)やルテニウム(Ru)など)とともに蒸着された多層構造を形成しています。CoFe合金は強磁性、MnIr合金は反強磁性の性質を持ち、2つの異なる性質の磁性体を積層することで、ハードディスクの読み取りヘッドに必要な磁性を持たせています。

《問い合わせ先》

<研究内容について>

中村 哲也 (なかむら てつや)

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

TEL : 0791-58-0802 (内線 3244) FAX : 0791-58-1812

E-mail : naka@spring8.or.jp

鳴海 康雄 (なるみ やすお)

東北大学金属材料研究所 准教授

TEL : 022-215-2017 FAX : 022-215-2016

E-mail : narumi@imr.tohoku.ac.jp

<報道担当>

財団法人高輝度光科学研究センター 広報室

TEL : 0791-58-2785 FAX : 0791-58-2786

E-mail : kouhou@spring8.or.jp

東北大学金属材料研究所 総務課庶務係

TEL : 022-215-2181

E-mail : imr-som@imr.tohoku.ac.jp