

共鳴非弾性X線散乱の磁場中測定システムの開発

Development of the Measurement System for RIXS in Magnetic Field

宮脇 淳^{1,2}、菅 滋正³、藤原秀紀⁴、丹羽秀治^{1,2}、木内久雄⁵、原田慈久^{1,2}

¹東大物性研、²東大放射光機構、³阪大産研、⁴阪大基礎工、⁵東大理工

共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) は X 線で励起し、放出される非弾性散乱 X 線を検出するので完全バルク情報が得られるだけでなく、測定環境の自由度が高く、電場や磁場などの外場中でも測定が可能であり、非常にポテンシャルの高い手法である [1]。しかし、実際には実験ステーションの制約や必要とされる装置上の要請から、磁場中 RIXS の実験結果は極めて少ない。本研究では、磁場中 RIXS のポテンシャルを実証するべく、SPRing-8 BL07LSU 超高分解能発光分光ステーションに磁場印加システム一式（磁気回路、位置調整機構、試料移送機構）を導入し、巨大磁歪を示す $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_2$ の磁場中 RIXS 測定を行った。

図 1 に製作した磁気回路を示す。磁場発生にはネオジム磁石と鉄ヨークを用いており、磁石間（ギャップ 11 mm）の中心部（試料位置）で 2500 G 以上の磁場を発生する。両磁極に開けた 2 mm ϕ の穴に X 線を通すことにより、磁場は入射 X 線に対して平行、反平行、約 45 度に印加することができる。磁石用の試料ステージ、試料移送機構も同時に開発することにより磁石間の狭小スペース内で試料を自由に回転することができ、任意の入射角で測定が可能である。

$Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_2$ は、わずか 2000 G で 2000 ppm もの巨大な磁歪を示し [2]、アクチュエータやセンサとして実用化され、様々な分野への応用が進んでいる。この系における巨大磁歪は、希土類元素の軌道磁気モーメントが磁場方向に並び、結晶場が変化した結果生じる結晶構造の歪みとして理解されている [3]。すなわち、巨大磁歪の微視的な起源は、磁場による希土類元素の結晶場、軌道の重なりの変化が引き起こす局所的な歪みであると考えられており [4]、最近、実際に局所的な歪みが観測され [5]、結晶場による解釈が実証されつつある。本研究では、局所的な歪みを引き起こす結晶場、軌道の重なりの変化そのものを RIXS によって明らかにし、電子構造の観点から磁歪の発現機構を解釈することを目的として $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_2$ の磁場中 RIXS を測定した。

図 2 に磁場を磁化容易軸かつ磁歪方向の $\{111\}$ 方向にかけて測定した X 線吸収分光 (XAS) と RIXS を示す。全電子収量 (TEY) -XAS では表面酸化のために肩構造が観測されたが、部分蛍光収量 (PFY) -XAS では単一のピークとなっており、Fe が金属的であることが示唆された。XAS の磁気円二色性 (MCD) は、表面酸化に由来する肩構造では観測されず、 $h\nu = 708.1$ eV の金属由来の XAS ピークのみで観測され、バルクの Fe が磁場と平行に磁化していることが確認された。図 2(b) に、 $h\nu = 708.1$ eV で測定した RIXS を示す。非弾性成分は観測されず、705.5 eV 付近にほぼ対称なピークが観測された。このスペクトル形状は測定した全励起エネルギーで変化せず、非共鳴で測定した蛍光ピークと一致したことから、 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_2$ の Fe は電子相関の弱い金属的な状態であることが明らかとなった [6]。磁場の有無による RIXS 測定も行ったが、有意な差は観測されなかった。RIXS における MCD は PFY-XAS から予想される程度のみで、いずれの結果も金属的な電子状態を支持するものであった。 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_2$ では Fe が金属的であったため目的の結晶場の変化による RIXS の変異は観測されず、XAS と RIXS の MCD から磁石システムの動作確認をするにとどまったが、ハーフメタルである CrO_2 の実験では RIXS に磁場依存が観測され、磁場中 RIXS の有用性を示す実験結果も得られている。今後は、希土類元素の 4f 電子は局在化していると考えられるので、Tb もしくは Dy の磁場中 RIXS を高分解能で測定できれば結晶場の情報が得られると期待される。

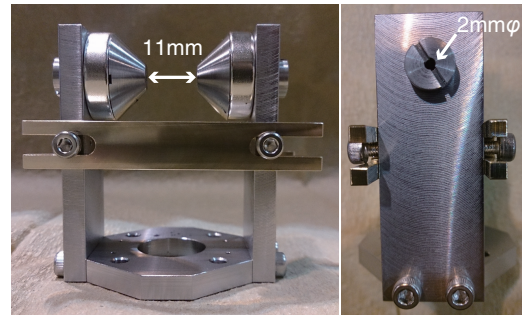


図 1 作製した磁気回路。

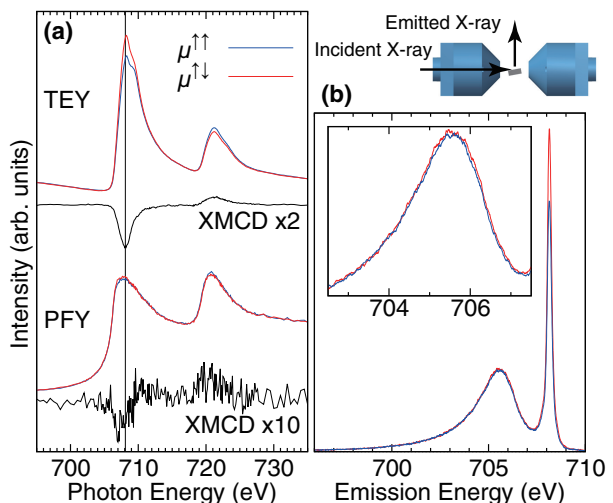


図 2 $Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_2$ の Fe 2p XAS と RIXS の円偏光依存性。(a) TEY と PFY で測定した Fe 2p-3d XAS。(b) Fe 2p-3d-2p RIXS。

- [1] L. J. P. Ament *et al.*, Rev. Mod. Phys. **83**, 705 (2011).
- [2] A. E. Clark and M. Wun-Fogle, Proceedings of SPIE **4699**, 421 (2002).
- [3] E. R. Callen and H. B. Callen, Phys. Rev. **129**, 678 (1963). E. R. Callen and H. B. Callen, Phys. Rev. **139**, A455 (1965).
- [4] J. R. Cullen and A. E. Clark, Phys. Rev. B **15**, 4510 (1977).
- [5] S. Pascarelli *et al.*, Phys. Rev. B **81** 02406(R) (2010).
- [6] W. L. Yang *et al.*, Phys. Rev. B **80** 014508 (2009).