

ゼロ磁化強磁性体 (Sm,Gd)Al₂ のヘリシティー反転による Sm L₂₃ 内殻吸収磁気円二色性

木村 昭夫^a, 喬 山^b, 伊折 数幸^a, 宮本 幸治^a, 安達 弘通^c, 圓山 裕^a, 谷口 雅樹^{a,b}

^a 広島大学大学院理学研究科, ^b 広島大学放射光科学研究センター, ^c 物質構造科学研究所

背景

形式的に3価のSm³⁺イオンを含む強磁性体では、4f 電子数が5個になり、フント則を考えると4f 電子のスピン磁気モーメント(M_{spin})がプラス $5\mu_B$ 、軌道磁気モーメント(M_{orb})がマイナス $5\mu_B$ とお互い異符号で、正味の磁気モーメント($M=M_{\text{spin}}+M_{\text{orb}}$)がゼロに近くなる。実際には、磁気モーメントは合成角運動量 $J=5-5/2=5/2\mu_B$ で決定されるのでゼロにはならず M_{orb} が優勢な形となっている。例えば、Sm³⁺イオンだけでなく他の希土類原子をドーピングすることによって磁性を制御し、マクロな磁化をゼロにする試みが安達らによってなされ、最終的にスピン磁気モーメントのみをもつと考えられるGd原子をドーピングしたラーベス相の(SmGd)Al₂が、ある補償温度(以下 T_{comp} と呼ぶ)でマクロな磁化がゼロになる現象を観測した[1]。もし自発磁化がゼロの強磁性体が存在すれば、“表面におけるスピン構造を漏れ磁場によって乱すおそれがない”という理由から、スピン偏極STMの探針や次世代スピントロニクスデバイスへの応用が考えられ非常に重要である。しかしながら、第1段階として、実際にこの物質で M_{spin} と M_{orb} が長距離秩序を保ちながら、お互いに打ち消しあった結果マクロな磁化がゼロになっているのかどうかを確かめることが必要になってくる。そこで、安達らは円偏光放射光を用いて磁気コンプトン散乱(MCS)実験を行い、 $T=T_{\text{comp}}$ の温度で M_{spin} が確かに長距離秩序をもっていることを確かめた[2]。また我々は、安達らとの共同研究として、Sm M_{45} (3d→4f) 内殻吸収領域の磁気円二色性(XMCD)スペクトルを観測することによって M_{spin} と M_{orb} をそれぞれ分離してその温度依存性を実験的に評価すること試みてきた(SPring-8: BL-25SU, 課題番号

2002A0493)。その結果、 M_{spin} だけでなく M_{orb} も $T=T_{\text{comp}}$ で長距離秩序を持っていることを確認した[3]。さらに $T<T_{\text{comp}}$ の温度で試料を磁化した場合と、 $T>T_{\text{comp}}$ の温度で磁化した場合では、XMCDスペクトルは反転しており、まさに補償温度前後でスピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントの大きさが逆転していることを実験的に明らかにした[3]。しかしながら、磁気モーメントとしてはSm4f電子だけではなく、少量のGd4f電子はもちろん、Sm5d電子も全体の磁気モーメントに十分関わってくるので、Sm5d電子の磁気モーメントそのものを定量的に評価する必要があった。また、特に $T=T_{\text{comp}}$ の温度では、正味の磁化はゼロになっているので、外部磁場で磁化反転を行うことが出来ず、入射光円偏光の極性を反転させてXMCD スペクトルを測定する必要がある。そこで我々は、SmL₂₃内殻吸収端を利用してSm5d電子の磁気モーメントを定量的に評価するために、入射円偏光放射光の極性を比較的高速で反転でき、X線高輝度放射光の利用ができるBL-39XUの磁性材料ビームラインでの実験を行った。

実験

実験では試料を粉末状にし、スコッチテープに塗布した。試料の冷却はヘリウム循環型クライオスタットを用いた。試料の磁化は T_{comp} の上約110Kと、 T_{comp} よりも低い温度である40Kで行った。磁化したのち、試料温度を変えずにゆっくりとゼロ磁場まで持っていく、最終的には残留磁化の状態での測定を行っている。

結果および考察

図1に45Kの温度で測定したSmL₃領域およびL₂領域でのXASおよびXMCDスペクトルを示す。L₃領域では $h\nu=6.720\text{keV}$ に吸収端があり、さらにその27eV高エネルギー

一側 ($h\nu=6.747\text{keV}$) でももう一つ吸収構造が現れている。一方 XMCD スペクトルについては、 L_3 吸収のメインピークのエネルギー位置で、正の符号を示す XMCD スペクトルが観測されているのがわかる。さらに、吸収端よりも低い励起エネルギーのところでは、大きく正に分極した XMCD スペクトルが観測されているのも特徴的である。一方 L_2 吸収メインピークは $h\nu=7.315\text{keV}$ に位置し、 L_3 吸収領域の場合と同様にメインピークの 27eV 高エネルギー側にも 2 つめの構造が観測されている。XMCD については、 L_2 メインピークのところで大きく負に分極したシグナルが得られた。エネルギーが大きくなると、負の分極は正に符号を変え、さらに高エネルギー側の 2 番目の吸収構造があるエネルギーよりもやや低エネルギー側で比較的小さく負に分極した XMCD シグナルが観測された。

まず、 L_3 領域および L_2 領域の吸収のメインピークで現れる XMCD シグナルは、基本的に $2p \rightarrow 5d$ 電気双極子遷移で説明できる。Fukui や Asakura らの計算によると、このようなメインピークでの XMCD スペクトルは $\text{Sm}4f\text{-}5d$ 交換分裂から生じた $5d$ 電子のスピンの分極から生じるものであると解釈されている[4,5]。一方、 L_3 吸収端の低エネルギー側に観測された、顕著な XMCD 構造は、 $\text{Sm}2p \rightarrow 4f$ 四重極遷移に対応するものであることが分かっている[4-7]。このように、スペクトルの定性的な説明はすでに理論計算の助けを借りてなされているが、四重極遷移の寄与も大きいことから、単純に磁気総和則 (Sum Rule) を用いて、 $5d$ 電子の磁気モーメントを定量的に求めることは、現在のところ難しそうである。

次に、安達らの磁気コンプトン散乱の実験や、我々の行ってきた $\text{Sm}M_{45}$ 吸収端での XMCD 実験と同様に $T > T_{\text{comp}}$ で試料を磁化した場合と、 $T < T_{\text{comp}}$ で磁化した場合とでは、XMCD スペクトルの符号が逆転していることをここでも確認が出来た。さらに $\text{Sm}L_{23}$ XAS および XMCD スペクトルに関して、その温度依存性についても調べた (図は割愛する)。測定は $T=45\text{K}$, 60K , 83K , 95K , 110K で行っている。XAS スペクトルについ

ては、その温度による強度の変化や、スペクトル形状の変化は見られなかった。XMCD スペクトルについては、そのスペクトル形状に変化は見られなかったものの、強度については、温度低下とともに強度が増加していく様子が観測された。

先ほども述べたように、 $\text{Sm}L_{23}$ 吸収端での XMCD スペクトルの定性的な理解は進んでいるものの、未だ定量的な磁気モーメントの導出が行えるところまでは進んでいない。しかしながら、今回の実験から、 $\text{Sm}5d$ 電子の磁気モーメントの寄与は無視できず、その温度依存性も顕著なことから、この物質の磁化がゼロになる現象を理解するためには十分必要な要素であることははっきりした。

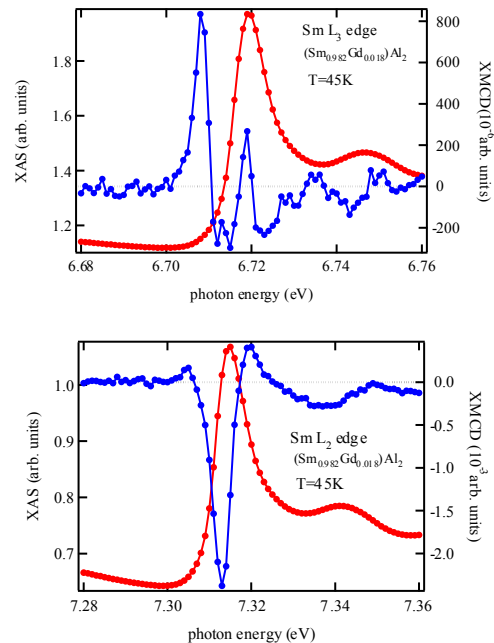


図 1: (a) $\text{Sm}L_3$ and (b) L_2 XAS and XMCD spectra.

参考文献

- 1) H. Adachi and H. Ino, Nature **401** (1999) 148.
- 2) H. Adachi et. al., Phys. Rev. Lett. **87** (2001) 127202.
- 3) S. Qiao et al., in preparation.
- 4) K. Fukui et al., Phys. Rev. B **64** (2001) 104405.
- 5) K. Asakura et al., J. Phys. Soc. Jpn. **71** (2002) 2771.
- 6) F. Bartolome et al., Phys. Rev. Lett. **79** (1997) 3775.
- 7) F. Bartolome et al., Phys. Rev. B **60** (1999) 13497.