

課題番号 :2021B-E20
利用課題名 (日本語) :スピントロニクスで操る重い電子系化合物 CeRu₂Si₂ の磁性
Program Title (English) :Magnetism of Heavy Fermion CeRu₂Si₂ tailored by spintronics technique
利用者名(日本語) :大河内拓雄^{1),2)}, 保井晃¹⁾, 竹田幸治³⁾, 角田 一樹³⁾, 藤森 伸一³⁾
Username (English) :T. Ohkochi^{1),2)}, A. Yasui¹⁾, Y. Takeda³⁾, K. Sumida³⁾, S. Fujimori³⁾
所属名(日本語) :1)高輝度光科学研究センター, 2)理化学研究所/Spring-8, 3)日本原子力研究開発機構
/Spring-8
Affiliation (English) :1)Japan Synchrotron Radiation Research Institute, 2)RIKEN/Spring-8, 3)Japan
Atomic Energy Agency/Spring-8

キーワード : 4f 電子系化合物、スピントロニクス、X 線磁気円二色性、表面・界面物性

1. 概要 (Summary)

いわゆる「重い電子系」と称される f 電子系化合物に特徴的な物性の多くは、局在磁性を顕在化させようとする Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida(RKKY)相互作用と、伝導電子が局在モーメントを遮蔽しようとする近藤効果との競合に起因し、ヘリカル磁性、メタ磁性、スピン三重項超伝導など魅力的な物性に溢れている。しかし、それらの多くが極低温下において発現されるものであることから、基礎研究の対象に留まっており、実用的な材料として応用を検討される機会がほとんどなかった。本研究は、f 電子系化合物に対してスピントロニクス技術を適用し、人工的・能動的に物性や機能を付与することを目的としている。本課題では最初の試みとして 4f 電子系化合物 CeRu₂Si₂ の表面に強磁性金属である Fe を数 nm 蒸着させて、その表面に誘起される磁気特性を評価した。CeRu₂Si₂ は近藤温度 20-25 K の重い電子系化合物で、常磁性であるものの極低温・高磁場で f 電子のメタ磁性転移を示す。その表面に 3d 系強磁性金属である Fe を蒸着し、界面効果を付与した際に、CeRu₂Si₂ 表面で発現するメタ磁性転移温度の上昇やその他の新規界面物性の発現、また逆に、f 電子の影響を受けた時の超薄 Fe 層の磁気状態の変調(特に、強いスピン-軌道相互作用による新規な磁気異方性の発現)などを、元素選択的な磁気計測手法である軟 X 線磁気円二色性(XMCD)分光を用いて探索した。

2. 実験(目的,方法) (Experimental)

実験は放射光科学研究施設 SPring-8 の軟 X 線ビームライン BL23SU にて行った。当ビームラインに設置されている X 線磁気円二色性(XMCD)測定装置に CeRu₂Si₂ 単結晶試料を導入し、 5×10^{-8} Pa の高真空下

の試料準備槽において劈開し、その清浄表面に、予め設置しておいた小型蒸着装置(EFM3, FOCUS GmbH)にて Fe を 2 nm 程度蒸着した後に測定槽に導入して XMCD 測定を行った。元素ごとに磁気測定を行うため、Fe の L_{2,3}、Ce の M_{4,5}、および Si の K 吸収端のエネルギー帯の放射光を利用した(Ru の M_{2,3} 吸収端も試みたが、有意の大きさの共鳴吸収が観測できなかったため系統測定は割愛した)。具体的な測定方法としては、吸収端のエネルギー帯における X 線吸収(XAS)および XMCD スペクトルの取得、加えて、XMCD シグナルのピークエネルギーに固定した状態での XMCD 強度の磁場依存性(XMCD ヒステリシス)測定を行った。液体ヘリウムフロー型のクライオスタットを利用して約 6.5 K から室温の温度範囲で、また、超伝導マグネットを利用して-10 ~ +10 T の磁場範囲で測定を行った。磁場の印加方向は試料劈開面に対して垂直である

3. 結果と考察 (Results and Discussion)

図 1 に、各元素吸収端と温度条件について得られた、CeRu₂Si₂(001)/Fe(2 nm)における XAS/XMCD スペクトルと、XMCD ヒステリシス曲線をまとめて示している。

まず、Fe の L 吸収端については、全ての測定温度点においてクリアな XMCD スペクトルが観測されており、ピーク大きさは温度にほぼ依存せず同一である(図 1 (b))。また、Fe L₃ ピークエネルギーにおける XMCD ヒステリシスでは、全ての温度において同一の磁化過程を示している(図 1(e))。磁化が飽和に至るまでに必要な磁場はおおよそ 2.5 T と大きいのが、これは Fe 膜面に垂直に磁場を印加しているためであり(通常の 2 nm 厚の Fe 膜は面内に磁気異方性をもつ)、形状異方性を考慮すると、典

典型的な Fe 薄膜と同じ磁気特性を有しており、室温から低温にわたる領域で安定な強磁性を示していることが確かめられた。次に、Ce の M 吸収端における XMCD スペクトルを見ると(図 1(a))、こちらは温度に依存して大きさが系統的に変化しており、必ずしも Fe の磁気特性に追随している訳ではないことが示唆される。Ce $M_{4,5}$ ピークでの磁化過程に着目すると(図 1(d))、約 6 K の低温においては常磁性を思わせる直線的な磁化挙動が支配的であり、その特性の上に、わずかに強磁性的な磁化の屈曲が乗っているように見られる。ただし、この屈曲は Fe を蒸着しない $CeRu_2Si_2$ でも類似の形状が確認されており、これはメタ磁性転移温度に近い温度における $CeRu_2Si_2$ 自身の磁気特定である可能性もある。従って、Fe に誘起された強磁性的成分に由来するものかどうかは現時点でははっきりとは分からないが、メタ磁性転移温度よりも十分に高い 20K、150K、および 250 K でも同様な構造が確認されているのは注目に値する。一方、リガンドである Si の K 吸収端においては、低温において小さいものの有意な XMCD スペクトルが確認された(図 1(c))。しかし、ヒステリシスを見てみると、温度に依存したほぼ完全な常磁性的挙動を示

している(図 1(f))。

一般に、強磁性体に接した非磁性金属薄膜(Cu や Au、Pt など)では、原子層レベルの領域では、小さいが強磁性的な磁化曲線を有する磁気分極が誘起されるが、この結果は、その前例に反し、Ce、Si サイトともに強磁性 Fe とは異なる磁化特性を示している点が興味深い。特に Ce の f 電子については、もともと $CeRu_2Si_2$ 単体としてもともと有していた磁気特性から全く変化がないのか、もしくは Fe からの誘起強磁性成分が発現しているのか、その誘起磁性はもとの近藤一重項的な磁性とは独立に誘起されているのか、それとも何かしらの相互作用が生じているのかといった点はさらに検証の余地があり、リガンドの Si においても、Fe サイトから、典型的な誘起磁性的な磁気特性が観測されていない事実と合わせて興味深い。さらに、物性の異なる Ce 系化合物(遍歴-局在性など)を系統的に調べ、その相違点を明らかにすることも重要なテーマである。

まずは次に行うべき検証実験として、Fe を蒸着しない $CeRu_2Si_2$ において今回と全く同一の測定条件で実験を行い、磁気特性の比較を進めたい。

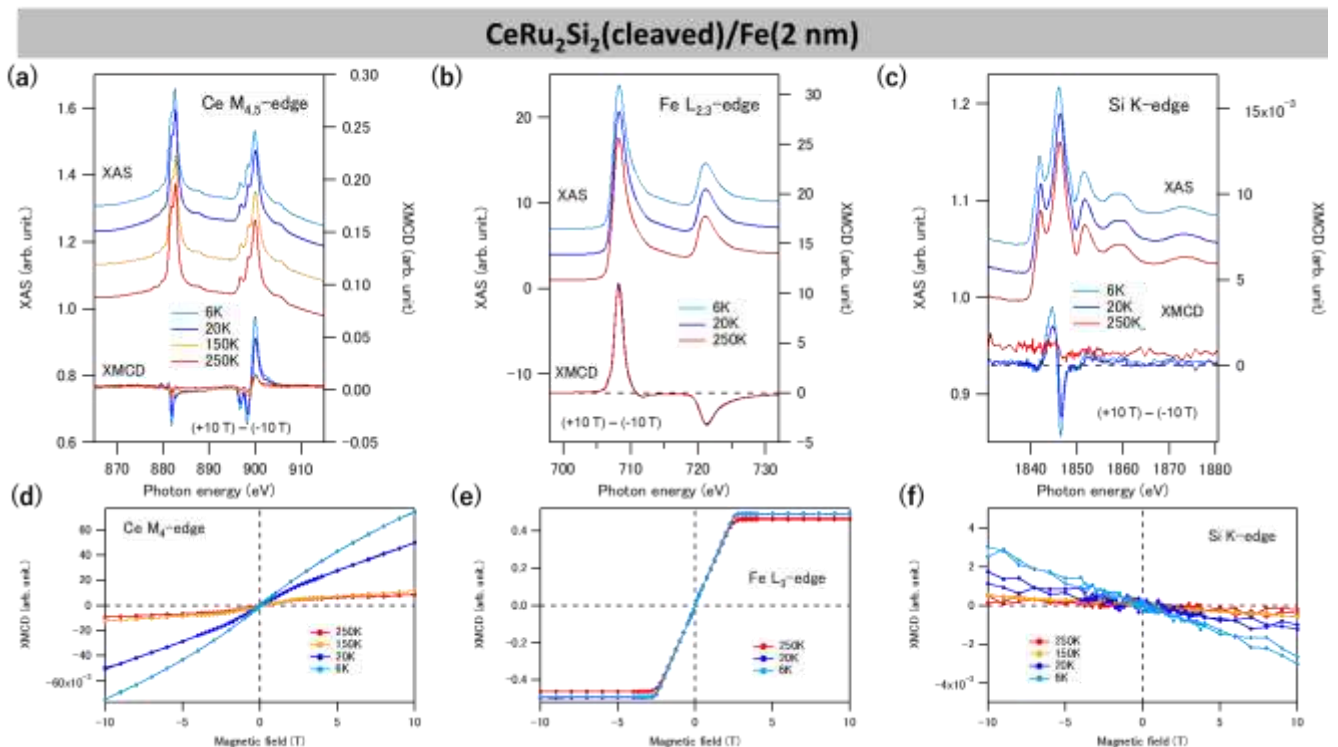


図1. $CeRu_2Si_2(001)$ 劈開面にFeを2 nm蒸着した試料の、各構成元素の吸収端におけるXMCDスペクトルおよびXMCDヒステリシス曲線の温度依存性

4. 謝辞 (Acknowledgements)

本ビームタイムの利用料および研究に必要な費用の一部は、科研費 基盤研究(A) (課題番号:21H04656) によって支援された。