

核ブラッグモノクロメータを用いた Fe/Fe₃O₄ 界面単原子層の 放射光メスバウアー分光測定

Synchrotron-Radiation-Based Mössbauer Spectroscopy on Fe/Fe₃O₄ Interfaces
Using a Nuclear Bragg Monochromator

壬生 攻¹⁾ 柳原 英人²⁾ 鈴木 和也²⁾ 田中 雅章¹⁾ 堀 紫織¹⁾ 村田 敦¹⁾
喜多 英治²⁾ 増田 亮³⁾ 三井 隆也³⁾ 瀬戸 誠^{4,3)}

Ko MIBU Hideto YANAGIHARA Kazuya SUZUKI Masaaki TANAKA Shiori HORI Atsushi MURATA

Eiji KITA Ryo MASUDA Takaya MITSUI Makoto SETO

¹⁾名古屋工業大学 ²⁾筑波大学 ³⁾日本原子力研究開発機構 ⁴⁾京都大学

SPring-8 BL11XU で立ち上げられた、核ブラッグモノクロメータ（核分光器）による超単色化光源を用いた ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を、Fe/Fe₃O₄ 2 層膜界面の局所構造・局所磁性の研究に適用した。界面付近にメスバウアー分光測定に敏感な ⁵⁷Fe 核からなる単原子層を配した 3 つの試料に対し、埋もれた界面の結晶構造や磁性に関する情報を得ることに成功した。

キーワード： 放射光, 核共鳴散乱, 核ブラッグモノクロメータ, Fe, Fe₃O₄, 薄膜, 界面

1. 目的

最近、2 つの強磁性層、Fe 層と Fe₃O₄ 層を積層した 2 層膜において、強磁性層間に強力な反平行磁気結合が発現することが見出され、ハードディスク等の磁気デバイスに使われている非磁性貴金属 Ru を介した強磁性層間磁気結合を用いた磁化反平行結合膜を代替する材料として注目を集めている [1]。反平行磁気結合の発現機構を理論的に解明し、実用に資するよう積層膜作製条件を最適化するためには、金属/酸化物界面の原子配置や磁気構造を知ることが必要であるが、埋れた接合界面の局所構造や局所磁性を実験的に明らかにするのはそれほど容易ではない。原子核によるガンマ線 (X 線) の吸収スペクトルから原子核をとりまく電子の局所状態を調べることができるメスバウアー分光法は、埋れた界面の局所構造や局所磁性を調べる手段としてきわめて有効である。本課題では、SPring-8 ビームライン BL11XU で立ち上げられた、核ブラッグモノクロメータ（核分光器）による超単色化光源を用いた ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を、Fe/Fe₃O₄ 2 層膜に適用し、界面の局所構造や局所磁性に関する情報を得ることを目的とした。

2. 方法

界面第 1 原子層あるいは第 2 原子層にのみメスバウアー分光測定に敏感な ⁵⁷Fe 核からなる単原子層 (Fe 層に対しては ~1.4 Å, Fe₃O₄ 層に対しては ~2.1 Å) を配置し、その他の部分の Fe を ⁵⁶Fe 原子核で構成した Fe/Fe₃O₄ 2 層膜試料を、筑波大学にて反応性蒸着法で作製した。試料をビームラインに持ち込み、核ブラッグモノクロメータによる超単色光を用いて ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を行った。測定セットアップは Fig. 1 (a) に示す通りである [2]。 ⁵⁷Fe 核の共鳴エネルギー (14.4 keV) に合わせたアンジュレータ放射光を超高分解能結晶モノクロメータを用いてバンド幅数 meV 程度に絞った後、核ブラッグモノクロメータに入射した。定位置出射されたバンド幅数 μeV の超単色光を薄膜試料に斜入射させ、薄膜試料によって全反射された散乱フォトン NaI シンチレーションカウンターで計測した。試料を速度トランスデューサーを用いて周期的に振動させ、超単色化されたビームにドップラー・エネルギー変調を加えた。マルチチャンネルアナライザーを用いて散乱されたフォトンカウントをドップラー速度と同期させて積算し、フォトンカウント vs. ドップラー速度 (=フォトンエネルギーに対応) のメスバウアースペクトルを得た。

3. 研究成果

Fe 層側界面第 1 原子層, Fe₃O₄ 層側界面第 1 原子層, Fe 側界面第 2 原子層に ⁵⁷Fe を配した 3 つの薄膜試料に対して, 大雑把な局所情報が得られるだけの S/N 比のメスバウアースペクトルを得ることに成功した. 測定に要した時間は 1 試料あたり平均 19 時間であった. 代表例として, Fe 層側界面第 1 原子層にのみ ⁵⁷Fe を配した試料の構成と対応するスペクトルを Fig. 1 (b), (c) に示す. 大学実験室での密封放射線源と内部転換電子検出法を用いた測定では, 同レベルの S/N 比のスペクトルを得るのに数週間程度かかると予想され, 線源実験よりも格段に短い測定時間で界面付近の局所環境が判るデータを獲得することができた. なお, 限られたビームタイムの中で, Fe₃O₄ 側界面第 2 原子層試料の実験は実施できなかった.

4. 結論・考察

界面の局所的状況の詳しい解析には, 今後のさらなる S/N 比の向上が望まれるが, 本実験で得られた主な知見は以下のとおりである. (1) 界面付近には Fe 層, Fe₃O₄ 層内部の Fe の局所環境とは大きく異なる複数の Fe の局所環境が存在している, (2) 複雑な局所環境自体は作製日が異なる試料間で再現されている, (3) Fe 側界面の Fe の磁気モーメントは増大しており, さらに界面には Fe と Fe₃O₄ が本来持っている磁気モーメントの値の中間の大きさの磁気モーメントをもつ Fe が存在している, (4) Fe₃O₄ 層側終端面の原子は A サイトの Fe ではなく B サイトの Fe であることが示唆されている. 限られた放射光ビームタイムの中で, これまでの線源実験より一歩進んだ情報を得ることに成功した. より詳細な解析に向けて, 次年度以降の継続的な研究に期待がもたれる結果となっている.

5. 引用(参照)文献等

[1] H. Yanagihara *et al.*, Appl. Phys. Express **1** (2008) 111303.

[2] T. Mitsui *et al.*, J. Synchrotron Radiation **19** (2012) 198.

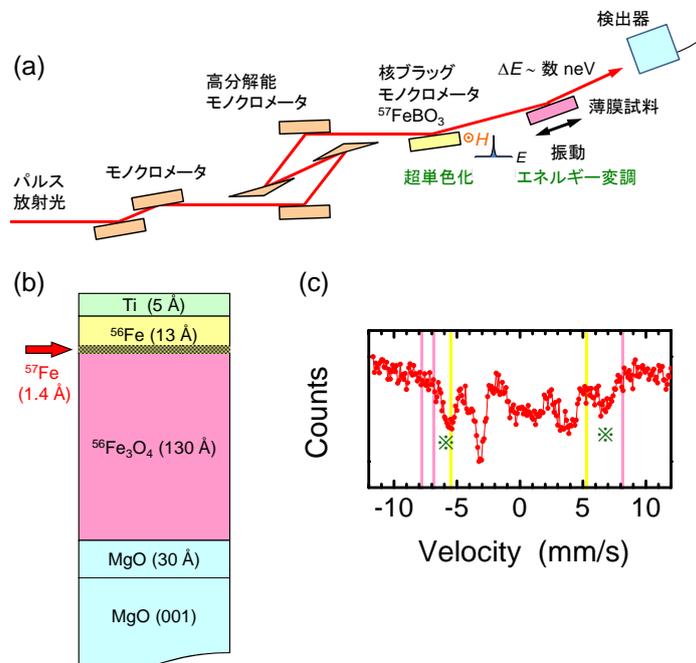


Fig. 1 (a) 核モノクロメータを用いた放射光メスバウアースペクトル測定セットアップ (薄膜測定用配置) の例.
 (b) Fe/Fe₃O₄ 2 層膜試料の構成例 (Fe 層側界面第 1 原子層にのみ ⁵⁷Fe を配した試料).
 (c) 対応する ⁵⁷Fe メスバウアースペクトル. (黄色線, 桃色線はそれぞれ α -Fe, Fe₃O₄ 本来のピーク位置 (外側のピークのみ表示), ※ は界面特有の成分を示す.)