

超単色放射光源を用いた Fe/Fe₃O₄ 界面単原子層のメスバウアー分光測定

Mössbauer Spectroscopic Study on Fe/Fe₃O₄ Interfaces Using Synchrotron Radiation with Extremely Narrow Energy Width

壬生 攻¹⁾ 柳原 英人²⁾ 新関 智彦²⁾ 鈴木 和也²⁾ 喜多 英治²⁾ 村田 敦¹⁾

中川 浩次¹⁾ 前崎 大輔¹⁾ 三井 隆也³⁾ 増田 亮⁴⁾ 瀬戸 誠^{4, 3)}

Ko MIBU Hideto YANAGIHARA Tomohiko NIIZEKI Kazuya SUZUKI Eiji KITA Atsushi MURATA

Koji NAKAGAWA Daisuke MAEZAKI Takaya MITSUI Ryo MASUDA 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）による超単色化放射光源を用いた ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を、Fe/Fe₃O₄ 積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、その他の部分の Fe を ⁵⁶Fe 核で構成した 4 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 つの磁性層 Fe と Fe₃O₄ を積層した 2 層膜において、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]。現在、強い反平行磁気結合の発現機構を探るべく、実験・理論の両面から研究が進められている。理論構築のためには、金属/酸化物界面における原子配置や磁性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。本研究では、2011B 期に引き続き、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）による超単色光源を用いた ⁵⁷Fe メスバウアー分光測定を Fe/Fe₃O₄ 積層膜に適用し、界面の局所構造や局所磁性を調べ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を配置し、その他の部分の Fe を ⁵⁶Fe 原子核で構成した Fe/Fe₃O₄ 積層膜試料 4 つを、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 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 neV 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. 結果および考察

Fig. 2 に示すように、4つの積層膜試料に対して、各々20時間前後の測定時間で、大雑把な局所情報を引き出せるだけのS/N比のメスバウアースペクトルが得られた。局所状況の詳しい解析には今後さらなるS/N比の向上が望まれるが、2011B期の実験と合わせて以下のような知見が得られている。すなわち、(1) 界面付近にはバルクのFeあるいはFe₃O₄における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においても再現されている、(3) 界面は原子層レベルで急峻とは言えず、界面主成分は酸素に部分的に配位されたFeからなっている、(4) この主成分界面FeはバルクのFeおよびFe₃O₄が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持っている、(5) Fe₃O₄側界面付近にはバルクFe₃O₄のAサイトと同様のFeの環境はみられない、(6) Fe側界面のFeの磁気モーメントは増大している。以上のように、限られた放射光ビームタイムの中で、大学実験室で実施可能な密封線源を用いた実験より一歩進んだ界面情報を得ることに成功した。

4. 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.

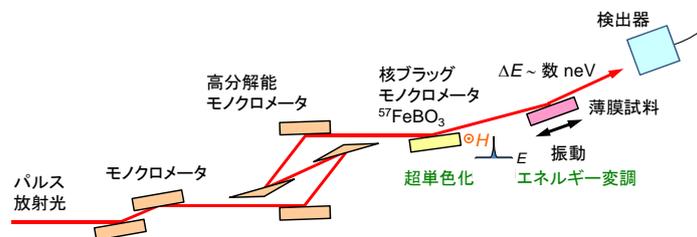


Fig. 1 核モノクロメータを用いた放射光メスバウアー分光測定セットアップ (薄膜測定用配置).

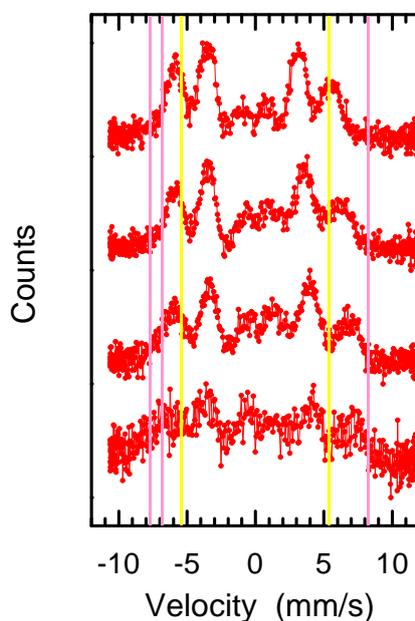


Fig. 2 得られた⁵⁷Feメスバウアースペクトル。上から、Fe側界面第2原子層、Fe側界面第1原子層、Fe₃O₄側界面第1原子層、Fe₃O₄側界面第2原子層。(黄色線、桃色線はそれぞれバルクFe、バルクFe₃O₄のピーク位置。(外側のピークのみ表示。))