

メスバウアー分光法を用いた磁性薄膜の  
キャラクターゼーション

— 放射線源実験と放射光実験 —

壬生 攻

名古屋工業大学 大学院工学研究科  
(JST-CREST)

# 目次

## メスバウアー分光法を用いた磁性薄膜のキャラクタリゼーション － 放射線源実験と放射光実験 －

◎ イン트로ダクション

◎ 磁性薄膜のメスバウアー分光研究

◎ 放射光核共鳴散乱法を用いた磁性薄膜研究

◎ まとめ & 謝辞

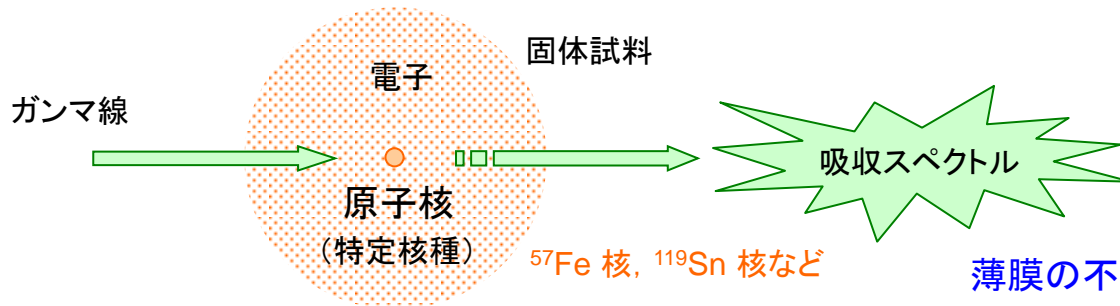
# メスバウアー分光法

特定の原子核によるガンマ線の共鳴吸収スペクトルを測定することによって  
原子核を取り囲む電子 (or フォノン) の状態を探る実験方法

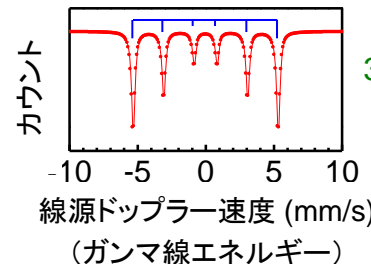
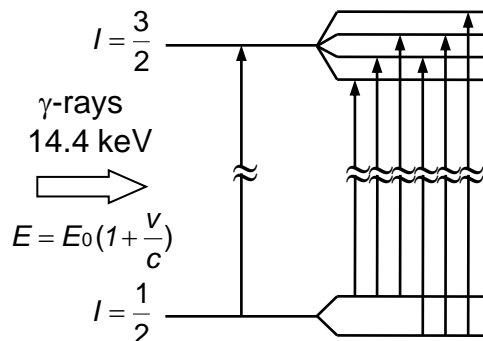
原子核プローブ位置での

- 電子の密度 ⇒ 原子価に関する局所情報
- 電場の勾配 ⇒ 結晶の対称性に関する局所情報
- 有効磁場 ⇒ 磁性に関する局所情報
- 反跳ガンマ線エネルギー ⇒ フォノンに関する局所情報

原子核と電子の超微細相互作用



薄膜の不均一な物性や埋れた界面物性の  
キャラクタリゼーションに威力を発揮！

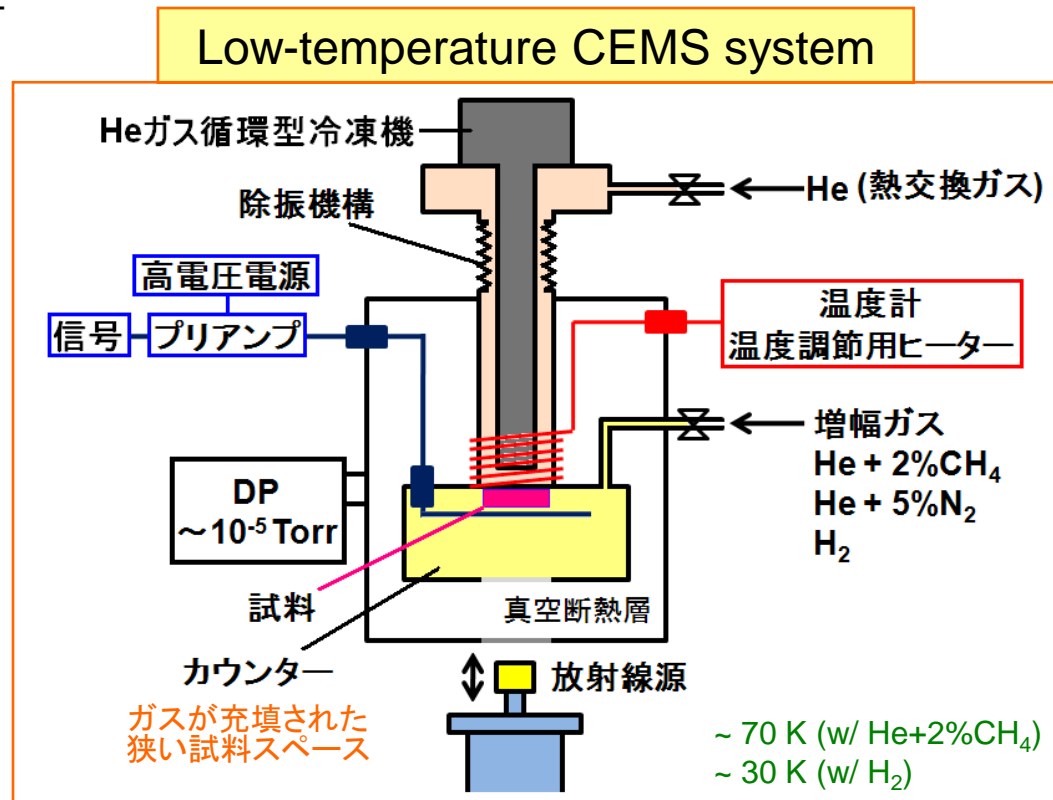
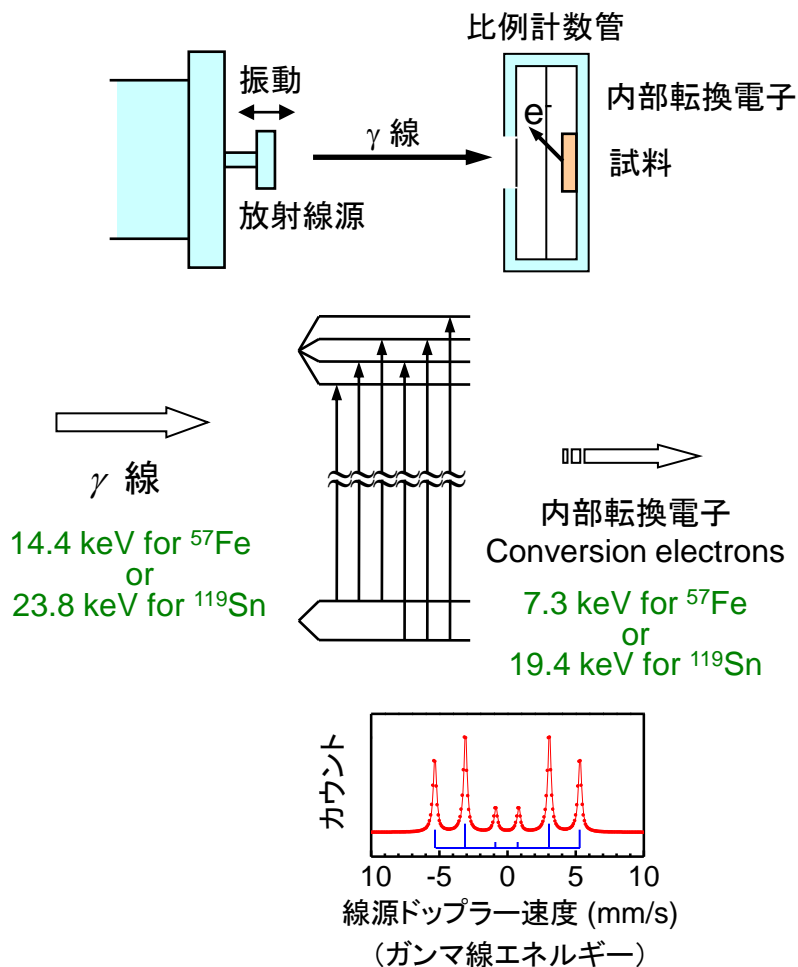


33 T ←  $^{57}\text{Fe}$  核のエネルギー準位と  
メスバウアー分光

密封放射線源を用いたメスバウアー分光 = 10 keV オーダーのエネルギー値と neV オーダーのエネルギー幅を  
有する光源を用いた  $\mu\text{eV}$  オーダーの分光

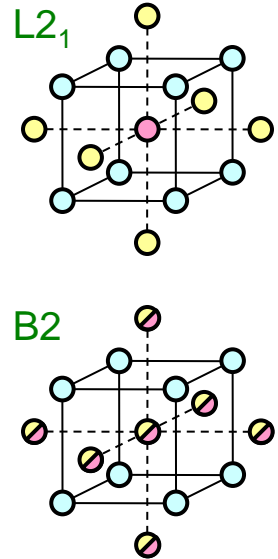
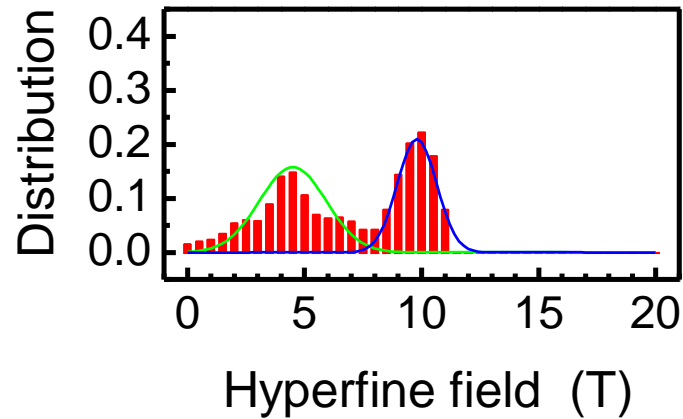
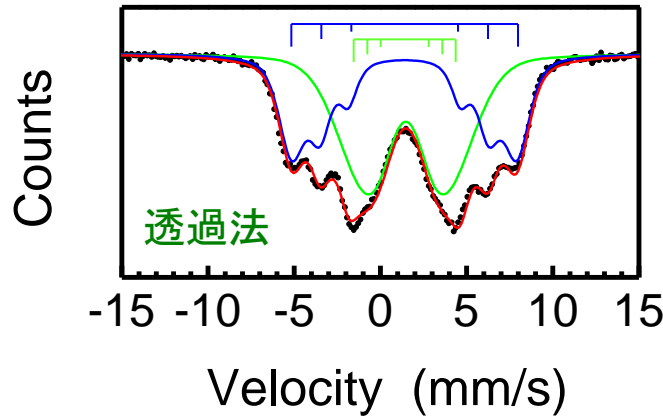
# 密封放射線源を用いたメスバウアー分光法 — 単結晶基板上に作製された薄膜試料用測定セットアップ —

## 散乱配置測定 (内部転換電子メスバウアー分光 (CEMS) 法)

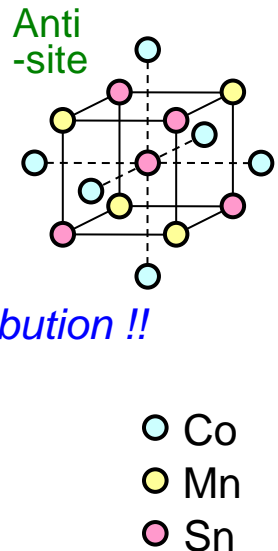
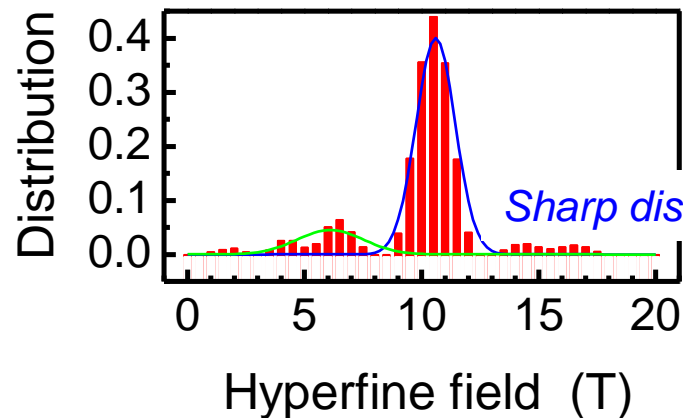
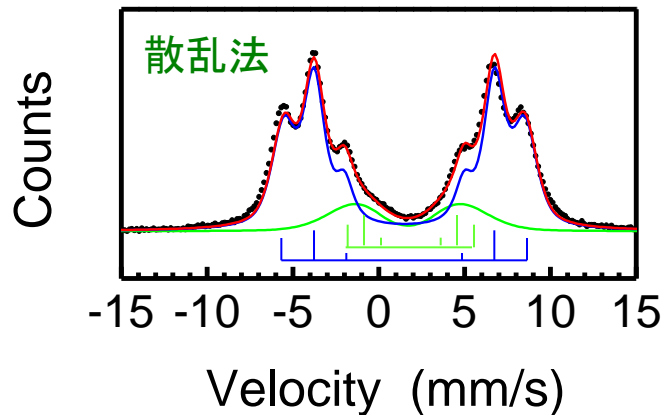


# Co<sub>2</sub>MnSn バルク合金および原子層制御薄膜のメスバウアースペクトル

Co<sub>2</sub>MnSn バルク合金 (アーク溶解法で作製)  
 (L<sub>2</sub><sub>1</sub> 長距離秩序度 = 0.9)



Co<sub>2</sub>MnSn(40.2 nm) 薄膜 (原子層制御交互蒸着法で作製)  
 (T<sub>sub</sub> = 500°C)



☞ Co<sub>2</sub>MnSn 合金の磁氣的界面効果やサイズ効果の探査が可能に !!

## 薄膜試料に対する放射光利用の利点と課題

—放射線源とガス比例計数管を用いた内部転換電子メスバウアー分光法(CEMS法)と比較して—

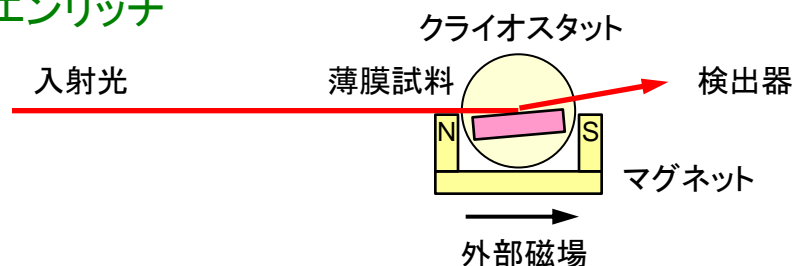
### <利点>

1. 低温測定, 磁場中測定, 電場中測定など, さまざまな環境下での測定が容易
2. 偏光特性を用いて面内の磁気異方性(内部磁場方向)の測定が可能
3. 密封放射線源の維持が不要で, 原理的にすべてのメスバウアー核に対して測定可能

👉 物性研究, 物質研究からの潜在的ニーズ大

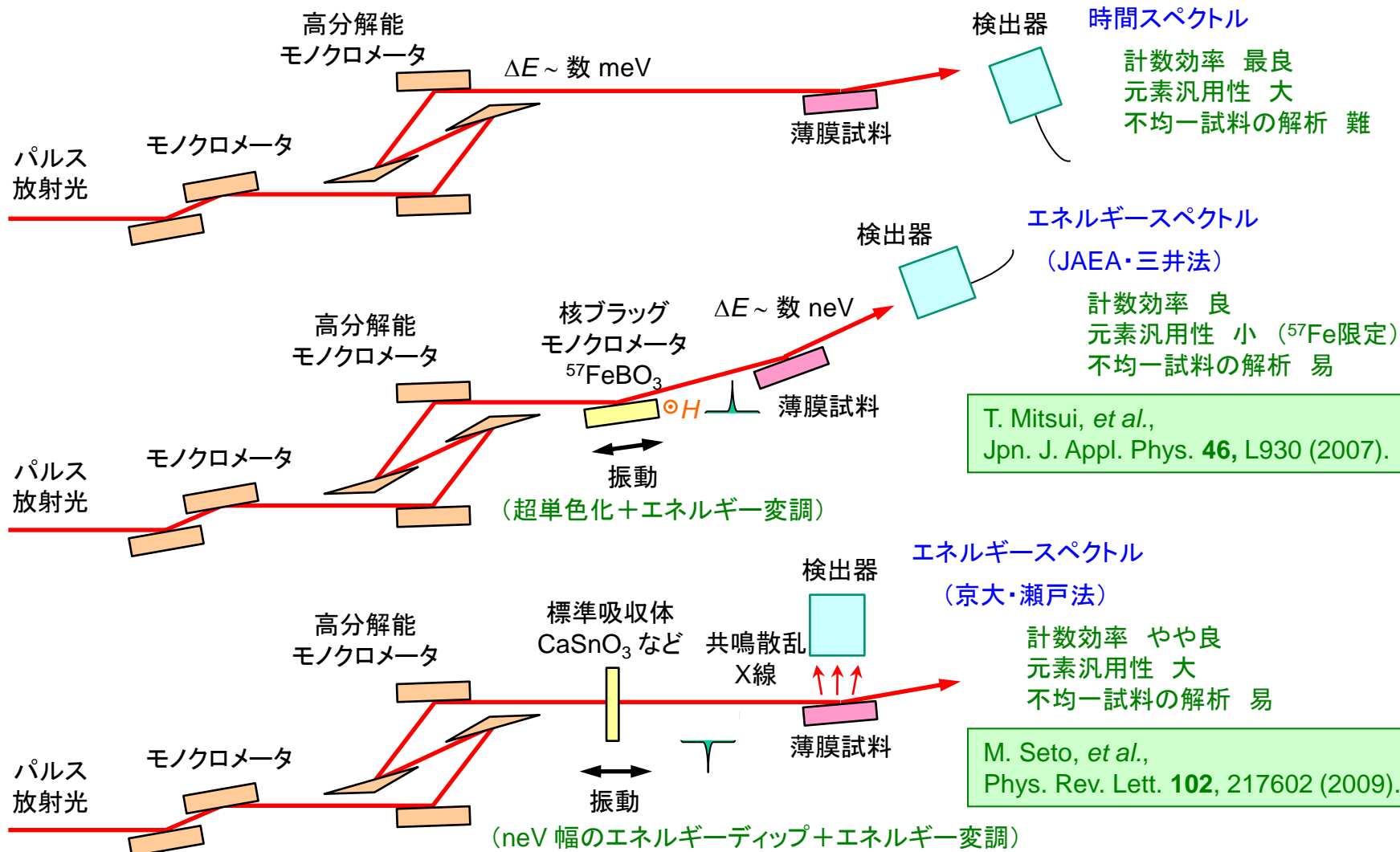
### <課題>

1. 入射光の広いエネルギーバンド幅(通常の結晶モノクロメータ利用では 1 meV 以上)  
→ 3つの測定法で対応(後述)
2. 粉末試料・バルク単結晶試料と比較して, 放射光の狭いビームパス内に十分な量のプローブ核を確保するのがムズカシイ  
→ 斜入射配置(全反射配置)での測定  
→ 必要に応じた試料内プローブ核のエンリッチ



# 薄膜・ナノ構造体試料測定用の放射光メスバウアー分光セットアップ例

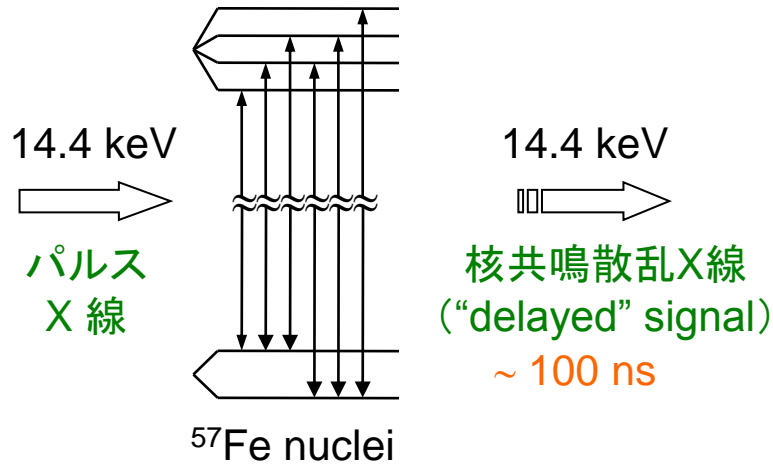
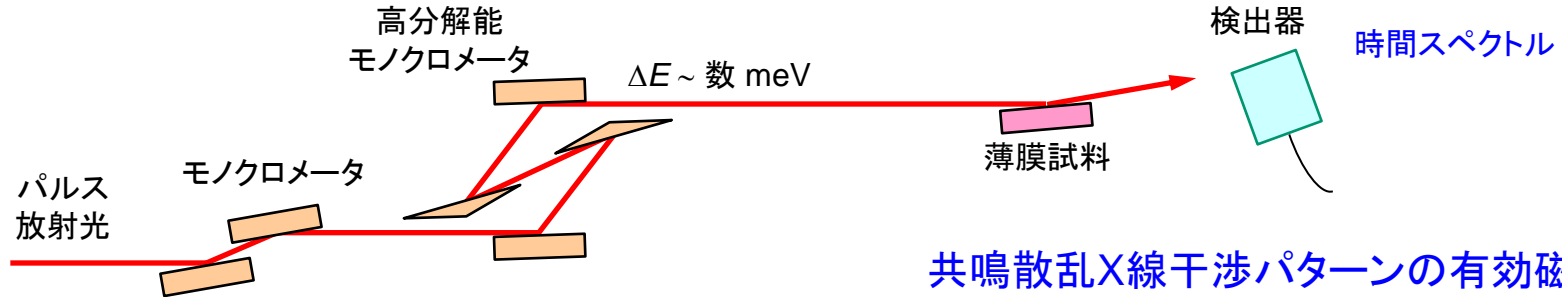
— 時間スペクトルからエネルギースペクトルへ —



T. Mitsui, *et al.*,  
 Jpn. J. Appl. Phys. **46**, L930 (2007).

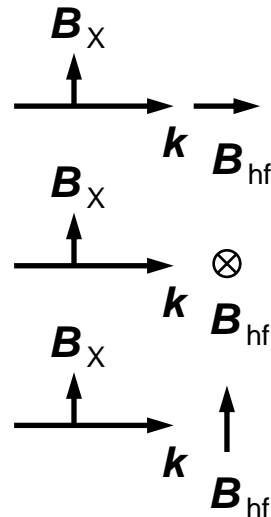
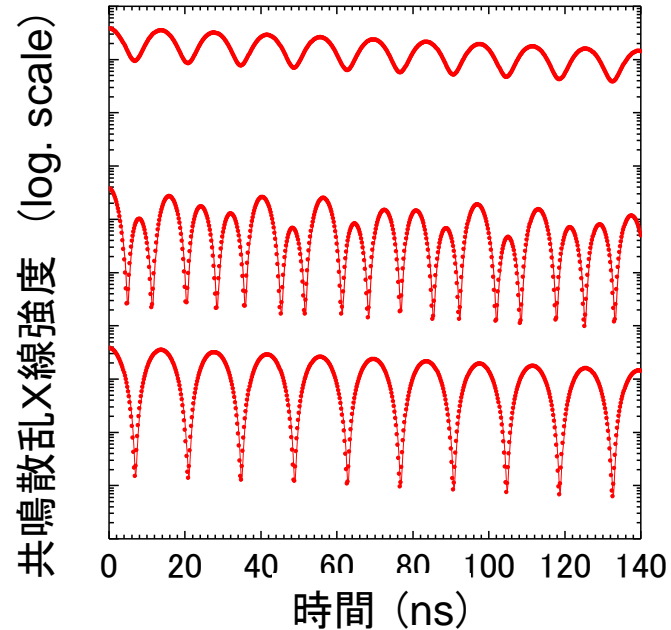
M. Seto, *et al.*,  
 Phys. Rev. Lett. **102**, 217602 (2009).

# 核共鳴散乱時間スペクトル測定法



- \* 干渉ビートの周期  
→ 有効磁場の大きさの逆数に比例
- \* 干渉ビートのパターン  
→ 有効磁場の方向に依存 (← 選択則)

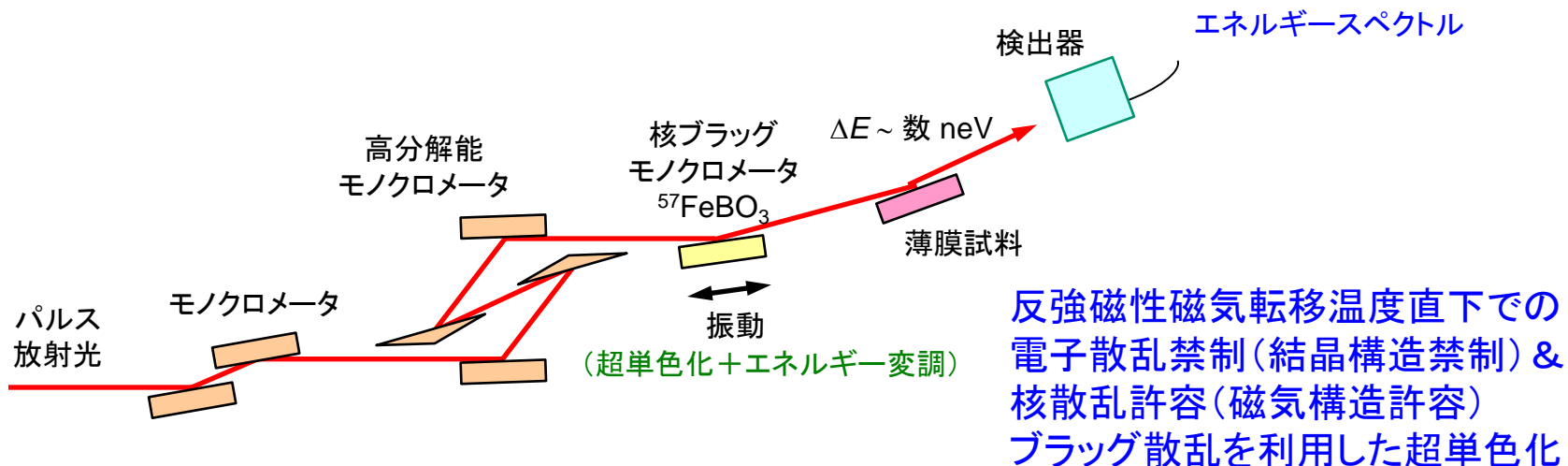
共鳴散乱 X 線干渉パターン  
の有効磁場方向依存性 (vs. ビーム偏光方向)



薄膜の内部磁場の方向 (磁気異方性) を探る手段としてはきわめて有効 !!



# 核ブラッグモノクロメータを用いたエネルギースペクトル測定法の 薄膜試料への応用



- G. V. Smirnov *et al.*, JETP Lett. **43**, 352(1986)
- A. I. Chumakov *et al.*, Phys. Rev. B **41**, 9545(1990)
- G. V. Smirnov *et al.*, Phys. Rev. B **55**, 5811(1997)
- G. V. Smirnov, Hyperfine Interactions **125**, 91(2000)

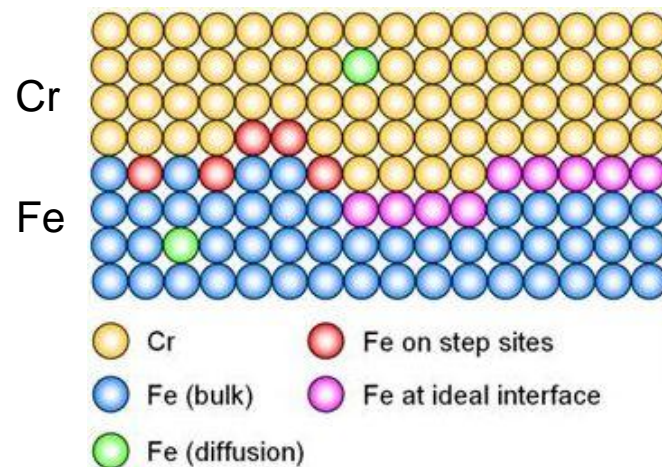
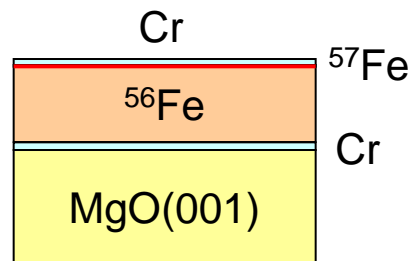
## Key techniques:

1. 結晶完全性の高い $^{57}\text{FeBO}_3$  単結晶の育成による高輝度超単色光の実現
2. 定位置・定角度での安定したエネルギー時間変調ビームの実現

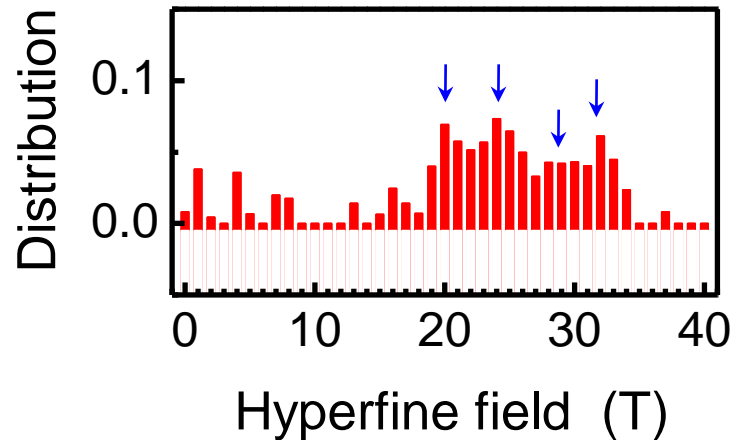
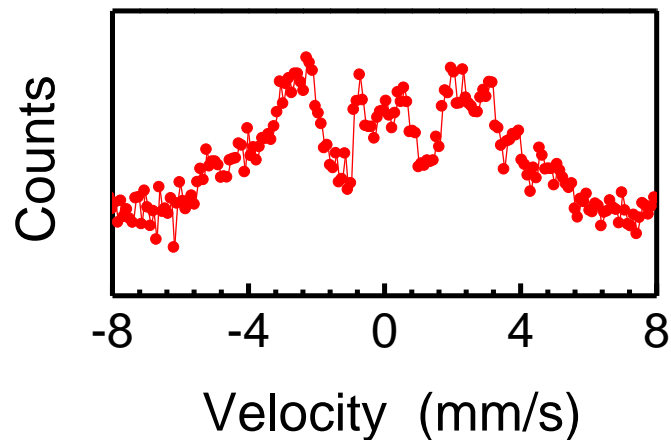
・ T. Mitsui, M. Seto, R. Masuda, Jpn. J. Appl. Phys. **46**, L930 (2007).

# 放射線源 & CEMS 法を用いた $^{57}\text{Fe}$ 単原子層のスペクトル測定

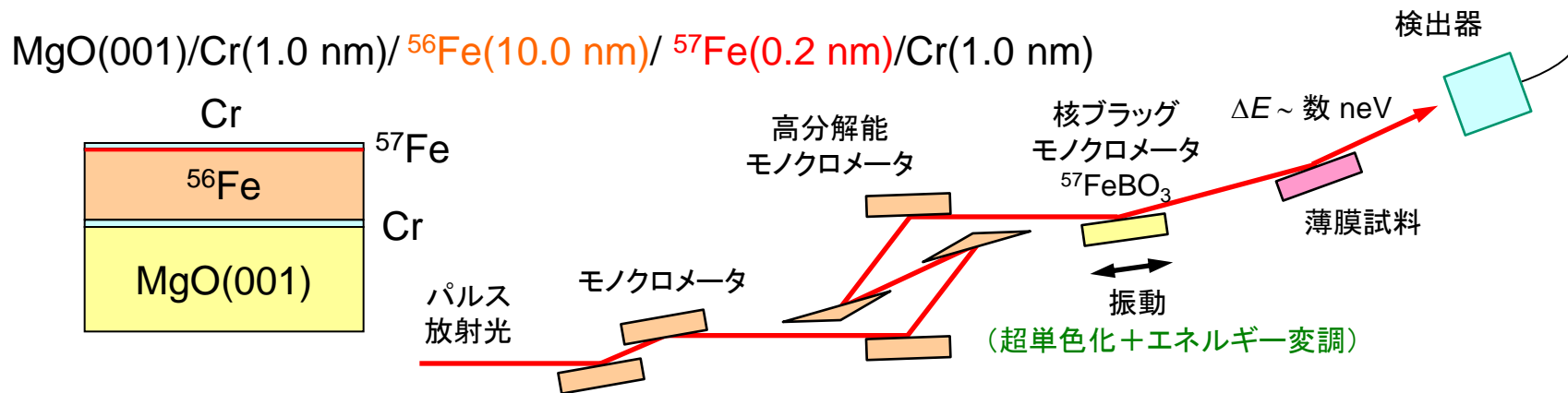
MgO(001)/Cr(1.0 nm)/ $^{56}\text{Fe}$ (10.0 nm)/ $^{57}\text{Fe}$ (0.2 nm)/Cr(1.0 nm)



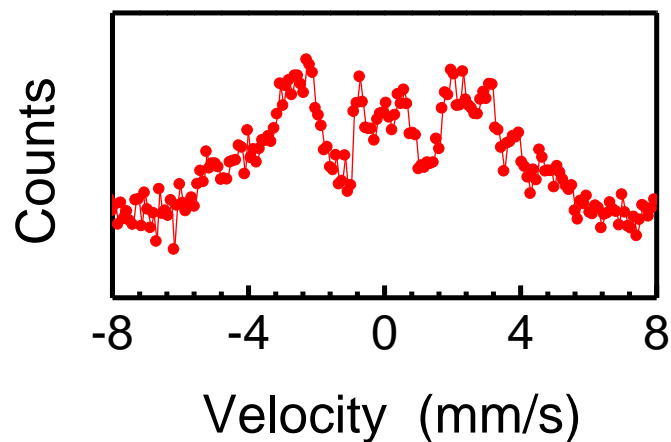
放射線源 + CEMS 法  
(46 mCi (1.7 GBq), 測定 7日, @RT)  
計数効率 = 0.36%



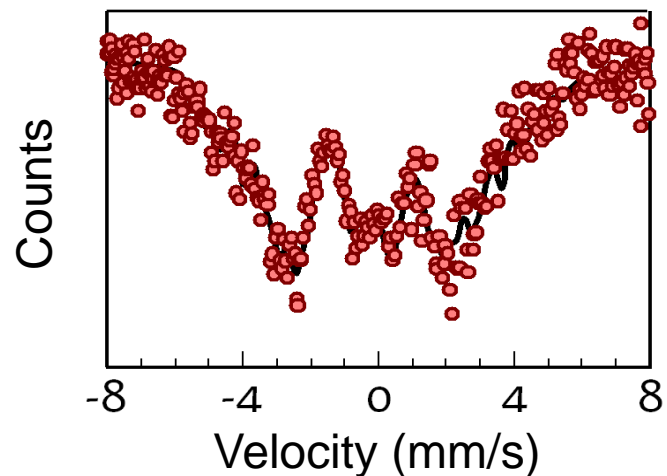
# 放射光 & 核ブラッグモノクロメータを用いた $^{57}\text{Fe}$ 単原子層のスペクトル測定



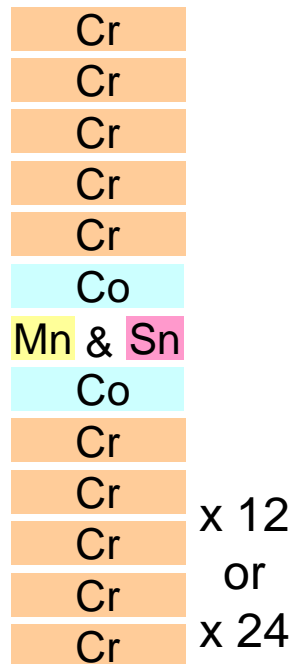
放射線源 + CEMS 法  
 (46 mCi (1.7 GBq), 測定 7日, @RT)  
 計数効率 = 0.36%



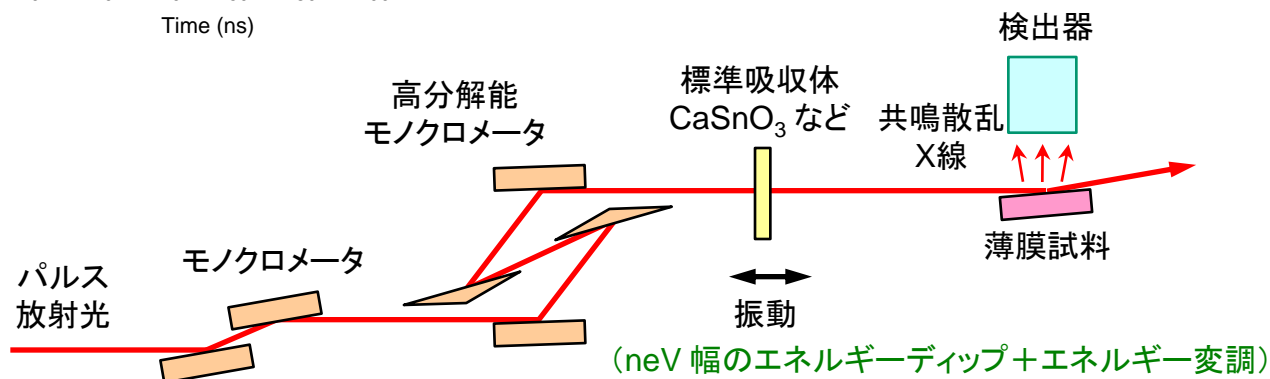
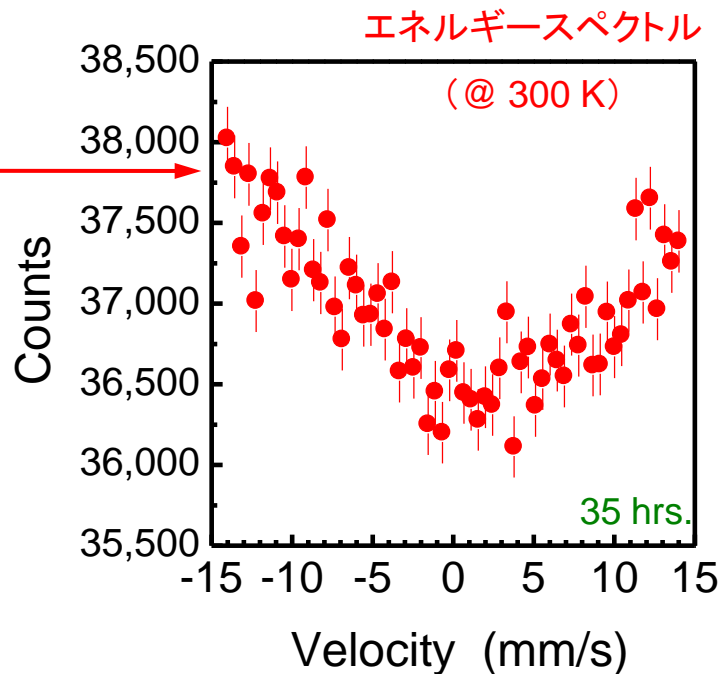
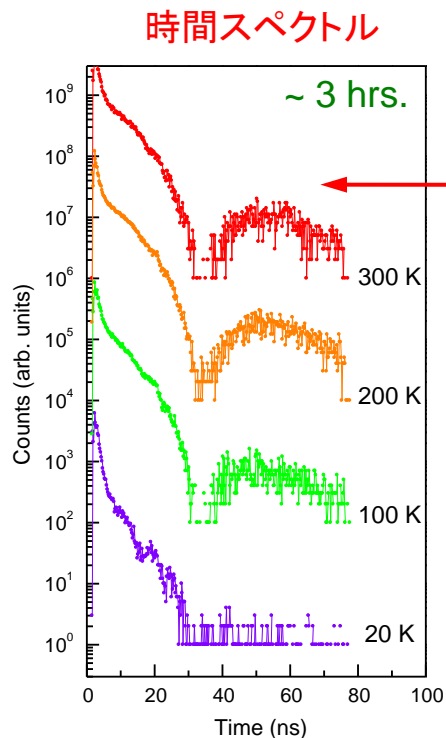
放射光 + 核ブラッグモノクロメータ  
 (入射角  $\sim 1.6^\circ$ , 測定時間  $\sim 3$  時間)



# 新しいエネルギースペクトル測定法を用いた $\text{Co}_2\text{MnSn}$ 超薄膜の測定

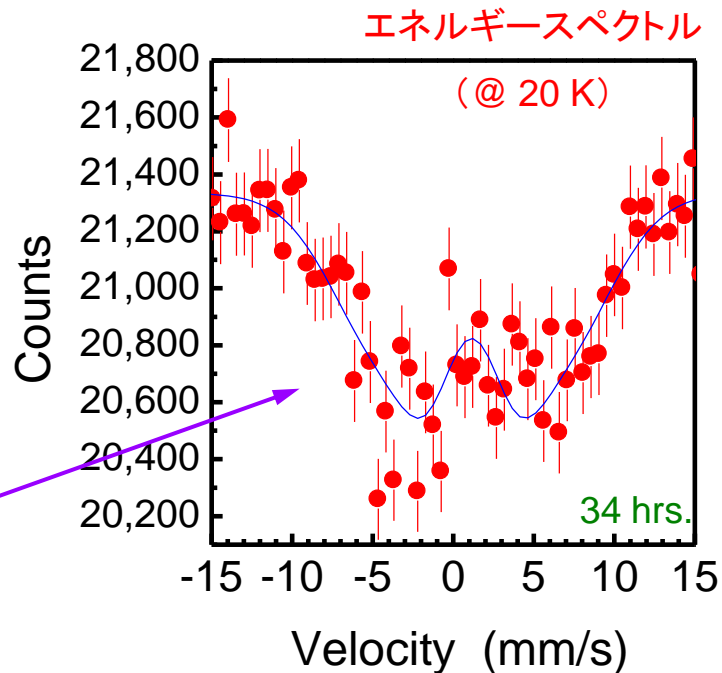
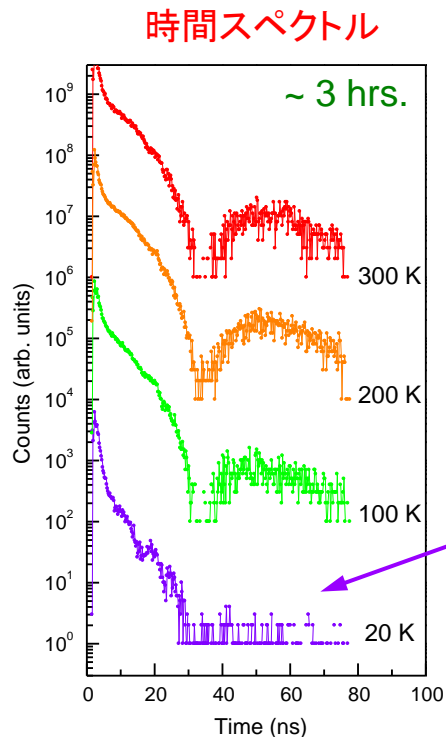
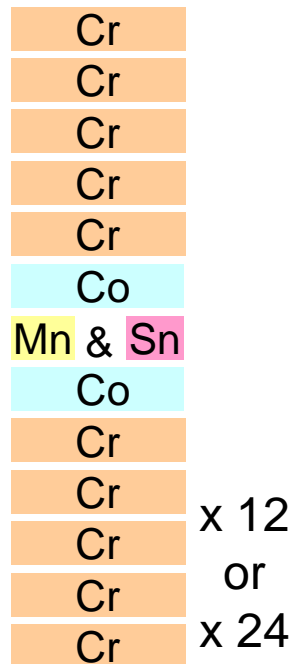


$^{119}\text{Sn}$  total  
~1.2 nm  
(6 原子層)  
or  
~2.4 nm  
(12 原子層)

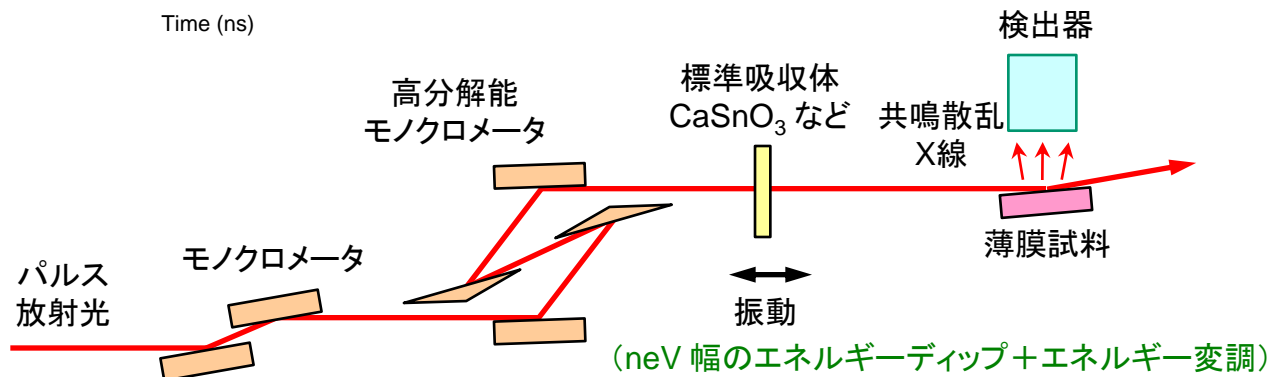


※薄膜試料に対しては、要さらなる最適化

# 新しいエネルギースペクトル測定法を用いた $\text{Co}_2\text{MnSn}$ 超薄膜の測定



$^{119}\text{Sn}$  total  
~1.2 nm  
(6 原子層)  
or  
~2.4 nm  
(12 原子層)



※薄膜試料に対しては、要さらなる最適化

## XMCD・中性子散乱との比較

測定法	メスバウアー分光法	XMCD 法	中性子散乱法
磁性測定原理	・内部磁場 (Hyperfine field) 測定	・左右円偏光 吸収(散乱)差 測定	・磁気双極子散乱 測定
磁気モーメント(サイズ) 導出法	・内部磁場値からの (経験的)概算 ( $\sim 15 \text{ T}/\mu_B$ for $\alpha\text{-Fe}$ )	・エッジ・ジャンプ補正 ・サム・ルールの適用 (軌道&スピン 磁気モーメントの分離)	・磁気双極子 散乱振幅 からの直接導出
磁気モーメント方向 導出基準	・対 偏光方向 (核準位間遷移選択則)	・対 入射方向	・対 散乱ベクトル (垂直)方向
深さ分布測定	・プローブ核の $\delta$ ドープ (単原子層分解能)	・厚さ依存性からの類推 ・電子脱出深さ選別 ・ $k$ 空間測定(回折法)	・ $k$ 空間測定
面内分布測定	・入射光集光 ( $10 \mu\text{m}$ 以下)	・PEEM(光電子顕微鏡) との組み合わせ ( $10 \text{ nm}$ 以下)	—
測定可能元素の 条件	[・親核線源の存在] ・核励起エネルギー (数 $10 \text{ keV}$ ) ・核励起寿命 (数 $10 \sim$ 数 $100 \text{ ns}$ )	・硬 X 線領域の吸収端 or 軟 X 線領域の吸収端	・中性子吸収断面積 が大きい
試料サイズ&厚さ	・中&薄	・小&極薄	・大&厚

## まとめ

メスバウアー分光法を用いた磁性薄膜のキャラクタリゼーション

薄膜の不均一な物性や埋れた界面物性のキャラクタリゼーションに威力を発揮！

放射光利用も、手法開発フェーズから物性・物質研究応用フェーズへ！！

## 謝辞（共同研究者）

放射光核共鳴散乱（CREST 瀬戸チーム）

瀬戸誠氏・小林康浩氏・北尾真司氏（京大）、依田芳卓氏（JASRI）  
三井隆也氏・増田亮氏（JAEA）

スピントロニクス関連諸薄膜

田中雅章氏（名工大）、浜屋宏平氏（九大）、喜多英治氏・柳原英人氏（筑波大）  
高梨弘毅氏・水口将輝氏（東北大）、角田匡清氏（東北大）、など

*Thank you  
for  
your attention!*