

核共鳴散乱法を用いた Cr 系ナノ薄膜における局所電子 スピン分極の検出

Detection of Local Electron-Spin Polarization in Cr-Based Metallic Thin Films using Nuclear Resonant Scattering

壬生 攻^{1,2}、大塚祐平^{3,1}、増田 亮^{4,3}、北尾真司^{4,2}、瀬戸 誠^{4,2,5}、三井隆也^{5,2}

*K. Mibu^{1,2}, Y. Otsuka^{3,1}, R. Masuda^{4,3}, S. Kitao^{4,2}, M. Seto^{4,2,5}, T. Mitsui^{5,2}

¹名古屋工業大学大学院工学研究科、²CREST-JST、³京都大学大学院理学研究科、
⁴京都大学原子炉実験所、⁵日本原子力研究開発機構量子ビーム応用研究部門

¹Graduate School of Engineering, Nagoya Institute of Technology, ²CREST-JST,

³Graduate School of Science, Kyoto University, ⁴Research Reactor Institute, Kyoto University,

⁵Quantum Beam Science Directorate, Japan Atomic Energy Agency

金属ナノ薄膜における局所電子スピン分極や局所磁性の測定を目的に、¹¹⁹Sn および ⁵⁷Fe 核共鳴散乱実験を行った。電子スピン分極のプロブとなる ¹¹⁹Sn あるいは ⁵⁷Fe 核を含む薄膜試料に、プロブ核のメスバウアー遷移エネルギーにあわせた単色放射光 X 線を入射し、核によって共鳴散乱された X 線の時間スペクトルを測定した。現時点までの実験条件の最適化の結果、90% up ¹¹⁹Sn に関しては 6 原子層程度、90% up ⁵⁷Fe に関しては 1 原子層程度の厚さがあれば、半日から 1 日の測定で S/N 比の良いスペクトルが得られることが確認された。厚さ 10.0 nm の Cr 層の上に 0.2 nm の ⁵⁷Fe 単原子プロブ層を配した試料においては、Cr 層の下地に 1.0 nm の強磁性 ⁵⁶Fe 層を敷いた場合と敷かない場合で核共鳴時間スペクトルに明確な違いがみられ、下地の強磁性 ⁵⁶Fe 層の影響を受けて Cr 層の磁気構造が変化し、⁵⁷Fe プロブ層の局所磁性に影響を及ぼしていることを示唆する結果が得られた。

In order to study local electron spin-polarization and local magnetism in metallic thin films and nanostructures, ¹¹⁹Sn and ⁵⁷Fe nuclear resonant scattering measurements were performed at BL11XU. X-ray beams corresponding to the Mössbauer transition energy of ¹¹⁹Sn or ⁵⁷Fe were monochromatized into a width of several meV and injected to samples containing a ¹¹⁹Sn (90% up) or ⁵⁷Fe (90% up) layer as a probe layer. The time spectra of X-rays resonantly scattered from the probing nuclei were successfully obtained for an ⁵⁷Fe (0.2 nm) layer deposited on a Cr (10.0 nm) layer. It was found that the beat patterns of these spectra are different between the samples with and without an ⁵⁶Fe (1.0 nm) underlayer, suggesting that the magnetic structure of the Cr layer is changed by the existence of the underlaid ferromagnetic ⁵⁶Fe layer.

背景と研究目的

ナノメートルサイズの磁性薄膜や磁性構造体における局所電子スピン分極や局所磁性に関する実験データは、磁性体ナノテクノロジーやスピントロニクス発展のために重要な情報となる。メスバウアー分光法など原子核をプローブとした実験法は、このような局所磁性の測定手段として極めて有効である。本課題実験責任者の研究グループでは、非磁性元素である Sn の単原子層をドーピングした金属薄膜に ^{119}Sn メスバウアー分光法（線源実験）を適用し、試料内に誘起された電子スピン分極を探る研究を進めてきた[1,2]。Sn 原子核をとりまく電子系にスピン分極が生じれば、超微細相互作用を通じて原子核位置に内部磁場（hyperfine field）が誘起され、核エネルギー準位が分裂する。分裂の程度は原子核によるガンマ線吸収スペクトル（メスバウアー分光法）に反映されるので、スペクトルを解析することによって、スピン分極に関する局所的な情報が与えられる。

メスバウアー分光法を単結晶基板上に作製したナノ薄膜やナノ構造体に適用するに当たっては、いわゆる反射配置での測定が不可欠であるが、通常の線源実験で用られる内部転換電子検出法では実験環境に対する制約が多く、低温における測定、磁場・電場中での測定、低プローブ濃度試料の測定などが困難になる。これらの欠点を補う測定手段として、放射光核共鳴散乱法（放射光メスバウアー分光法）が有望である。

当研究グループでは、2004A 期より特殊環境下や非平衡状態でのナノ構造体の局所スピン分極や局所磁性を探究していくための手段として放射光核共鳴散乱法の利用を計画し、

2004B・2005A 期には、それまで世界で報告例がなかった薄膜・ナノ構造試料の ^{119}Sn 核共鳴散乱時間スペクトルの測定に成功した。しかしながら、半日から 1 日の測定で S/N 比の良いスペクトルを得るためには、数原子層の比較的厚い ^{119}Sn (90% up) が必要になっており、実験方法の改善あるいは再検討が課題となっている。今回、第 4 期目の実験を行うにあたって、 ^{119}Sn 核共鳴散乱実験におけるモノクロメータの構成、X 線入射角、試料の構成、検出器などに関してさらなる最適化を検討すると同時に、これまでに国内外で高度に最適化が進められている ^{57}Fe 核共鳴散乱法を ^{57}Fe プロブ層を含む薄膜試料に適用し、測定に必要な厚さの限界を見積るとともに、これらの方法を用いて Cr 系ナノ薄膜の局所磁性の研究を進めた。

実験

^{119}Sn あるいは ^{57}Fe 核のメスバウアー共鳴エネルギー（23.9 keV、14.4 keV）に合わせたアンジュレーター放射光を、高分解能モノクロメータを用いてバンド幅数 meV 程度に絞ったのち試料に入射し、試料による核共鳴散乱時間スペクトルをアバランシェ・フォトダイオード (APD) 検出器を用いて測定した。試料最表面にわずかに数原子層程度蒸着されたプローブ核によって入射 X 線を効率的に共鳴散乱させるために、薄膜面すれすれ入射の全反射配置での測定を試みた。X 線パルス入射直後から次のパルスが入射される直前まで（今回の運転モードではバンチ間隔 114 ns）の散乱強度を時間に対して積算することによって、プローブ核に共鳴散乱された X 線の時間スペクトルを測定し、そこから核が有効

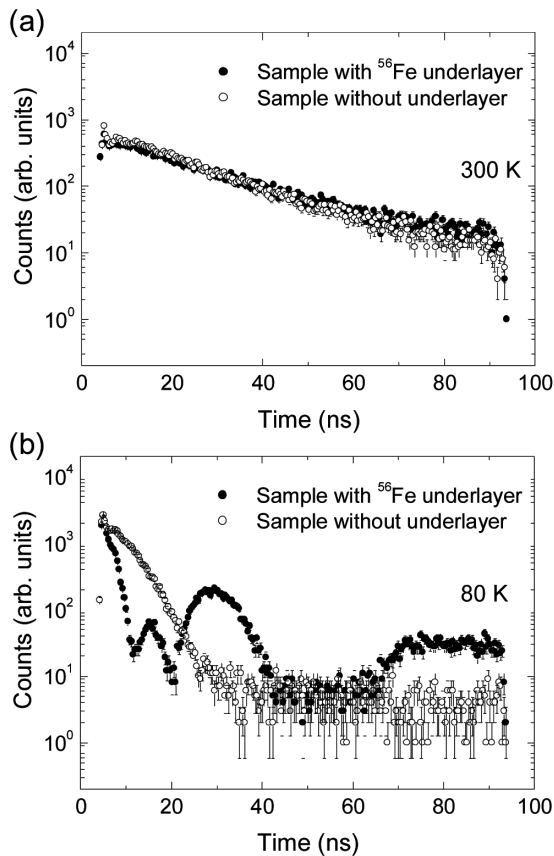


Fig.1 Nuclear resonant time spectra for an ^{57}Fe (0.2 nm) layer deposited on a Cr(10.0 nm) layer with and without an ^{56}Fe (1.0 nm) underlayer at (a) 300 K and (b) 80K.

に感じている内部磁場を求め、核サイトにおける局所電子スピン分極や局所磁性に関する情報を得ることを目指した。液体窒素フロー型小型クライオスタット中に試料をセットし、約 300 K および 80 K で測定を行った。

結果および今後の課題

実験条件の最適化の結果、現時点で ^{119}Sn 90% up の Sn 薄膜においては 6 原子層程度、 ^{57}Fe 90% up の Fe 薄膜においては 1 原子層程度の厚さがあれば、半日から 1 日の測定で S/N 比の良いスペクトルが得られることが確認された。一方物性面では、強磁性層/反強磁性層における界面効果が反強磁性 Cr 層の磁氣的オーダーに及ぼす影響に関するデータが得られた。Cr 層上に蒸着したメスbauer

プローブ層に誘起される内部磁場を核共鳴散乱時間スペクトルを通じて測定し、Cr 層の下地に強磁性層が存在する試料と存在しない試料の内部磁場の違いを調べた。Fig. 1 に厚さ 10.0 nm の Cr 層上に蒸着した ^{57}Fe 単原子層 (0.2 nm) をプローブとして測定した核共鳴散乱時間スペクトルを示す。Cr 層の下地に 1.0 nm の ^{56}Fe 強磁性層がある場合とない場合で 80 K におけるスペクトルに明らかな違いがみられ、 $^{56}\text{Fe}/\text{Cr}$ 界面効果の影響を受けて Cr 層の磁性が変化し、 ^{57}Fe 核プローブが感じる内部磁場の違いとして現れていることが示唆されている。

今後、さらに実験条件の最適化を進め、必要となるプローブ層の厚さや測定時間の低減を進めると共に、時間スペクトルの温度依存性や Cr 層厚依存性に関する系統的なデータを蓄積し、Cr 系ナノ薄膜の局所磁性を明らかにしていくことが課題となっている。

参考文献

- [1] Mibu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **84** (2000) 2243.
- [2] Mibu *et al.*, Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 287202.