

科学研究費助成事業（基盤研究（S））公表用資料  
〔研究進捗評価用〕

平成24年度採択分  
平成27年3月6日現在

同位体特定による局所状態解明のための  
先進的メスバウアー分光法開発

Development of Advanced Mössbauer Spectroscopy for  
Isotope Specific Analysis of Local State



課題番号：24221005

瀬戸 誠 (SETO MAKOTO)

京都大学・原子炉実験所・教授

研究の概要

元素（同位体）を特定した局所的な電子状態の測定を可能とするメスバウアー効果測定を多元素で実現し、放射光の高い輝度を活かして、斜入射測定や極限条件下での測定を可能とする先進的な分光法を開発・確立する。そして、開発した分光法および同位体置換法を用いて、応用研究領域拡大を指向した物質科学研究を実施する。

研究分野：量子ビーム科学

キーワード：メスバウアー分光法、原子核プローブ、放射光、同位体特定

1. 研究開始当初の背景

メスバウアー分光法は原子核の共鳴励起過程を用いるため、物質を構成する元素の中でも、特定の元素（同位体）だけの性質（電子構造、磁性）を調べることが可能であり、電子系を用いた方法では区別不可能な状態の測定が可能となる。また、高輝度放射光を線源として利用することによって、これまで困難であった全反射法による表面測定やイメージング測定、さらには元素を特定したフォノン測定などの先進的な測定が可能となる。このような測定を、競争力のある分光法へと進化させるためには、分光法を確立し、その有効性を示すような先導的な研究を展開していく必要があった。

2. 研究の目的

本研究では、多元素でのメスバウアー効果測定を実現し、放射光の高い輝度を活かした先進的な分光法を開発・確立する。そして、同位体置換法を用いることで、これまでには困難であった特定部分だけの微視的測定を可能とするなどといった応用研究領域の拡大を指向した先導的な物質科学研究を実施することを目的とする。

さらに、放射光を利用することで、斜入射測定やX線集光によるマイクロビーム利用が出来るため、超低温・強磁場・超高压などの極限条件下での測定も可能となることより、地球科学分野などといった分野での積極的

活用も行う。

3. 研究の方法

線源として高輝度放射光の利用を行うものとするが、多元素でのメスバウアー分光測定を実現するために研究用原子炉等を利用した放射性同位体（RI）線源の作製も行う。また、超高真空蒸着装置などを使用して共鳴同位体を置換した薄膜試料などを作成する。

4. これまでの成果

(1) 電子検出による放射光吸収メスバウアー分光法の開発研究

放射光吸収メスバウアー分光法の高効率測定を実現するために、これまでには困難であったために実現されていなかった、共鳴脱励起時に散乱される内部転換電子の検出を可能とする新手法の開発研究を実施し、 $^{174}\text{Yb}$ メスバウアースペクトル測定において、これまでと比較して5倍の測定効率向上に成功した。このシステムの有効性は $^{174}\text{Yb}$ だけに限られるものではなく、他の核種においても高効率測定が可能となっている。さらに、この方法では放射光のパルスタイミングに同期した測定を行っているため、脱励起後の散乱を検出する時間範囲を選択することで、実効線幅を抑制することが可能であり、今回の測定で実効線幅が自然幅の70%程度までに抑制されていることが示された。

## (2) . メスバウアー $\gamma$ 線の線質制御技術の開発と応用

偏光状態を制御した放射光メスバウアー $\gamma$ 線を生成可能なダイヤモンド移相子と核モノクロメーターから成る核共鳴光学系を考案し、磁性体に含まれる鉄原子の内部磁場の大きさと向きを局所解析できる放射光偏光メスバウアー分光装置を開発した。本装置により、多彩な偏光状態(直線、円偏光、無偏光)でのメスバウアー分光測定が実現された。これを用いた研究として、液体水素を充填させたダイヤモンドアンビルセルによる超高压下の偏光メスバウアー分光測定を行った。その結果、超高压水素下でC15ラーベス合金(GaFe<sub>2</sub>:フェリ磁性体)の水素吸蔵量が2段階で増加し、これに伴う逐次的な圧力誘起磁気転移(強磁性-常磁性-強磁性)が起きることなどを明らかにした。更に、ナノ材料研究分野での応用展開を視野に入れた $\gamma$ 線の全反射現象を利用した金属磁性薄膜の局所電子スピン構造解析法も実用化した。さらに、新しい局所解析法として、平面波放射光メスバウアー $\gamma$ 線とSi結晶の角度アナライザーを用い、秒程度の高い角度分解能のメスバウアー小角散乱スペクトルの測定に成功した。

## (3) . 同位体置換による局所状態研究

希少金属Ruを用いない反平行磁気結合積層膜として注目されているFe/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>積層膜界面の局所磁性の測定を行った。この系でみられる強い反平行磁気結合は、平坦な界面を想定した理論計算では再現できず、ヘテロ界面がどのような原子配列・磁気配列を持つのか、実験的な情報が待たれていたものである。本研究で開発を行った方法は、異なる結晶サイトにある同一元素の磁気モーメントの方向が印加磁場に対してどの方向に向いているのかを埋もれた界面に対して明らかにすることができる。測定の結果、界面の複数のFeサイトの磁気モーメントの印加磁場に対する方向をサイト毎に決定することができた。

また、非磁性金属細線に電流を流したときに細線の上下左右界面に電子スピンの蓄積される現象であるスピンホール効果の検証を、放射光メスバウアー分光法を用いて試み、非平衡定常状態における測定が可能であることを示すことができた。

以上の研究の他に、核共鳴準弾性・非弾性散乱法の高度化研究および原子炉等を用いて生成したRI線源による高効率メスバウアー分光装置の開発およびこれらを用いた物質科学研究も実施した。

## 5. 今後の計画

開発を行ってきた電子線検出による放射光吸収メスバウアー分光法については、散乱体試料の冷却効率改善などのシステムとし

ての更なる改良および高度化を実施する。また、2重ガスフロー型比例計数管検出器を用いたメスバウアーイメージング分光法の開発研究を実施する。核共鳴準弾性・非弾性散乱法についても高度化研究および先導的な研究を行う。

これらの開発および同位体置換を積極的に用いた研究に加えて、開発を行った装置の有効性を活かして、物質科学、生命科学、地球科学といった多くの分野での研究展開を目指す。

## 6. これまでの発表論文等(受賞等も含む)

- [1]. <sup>57</sup>Fe polarization-dependent synchrotron Mössbauer spectroscopy using a diamond phase plate and an iron borate nuclear Bragg monochromator”, T. Mitsui, Y. Imai, R. Masuda, M. Seto and K. Mibu, J. Synchrotron Rad., **22**, 427 – 435 (2015), Accepted.
- [2]. “Attempt to Measure Magnetic Hyperfine Fields in Metallic Thin Wires under Spin Hall Conditions Using Synchrotron Radiation Mossbauer Spectroscopy”, K. Mibu, T. Mitsui, M. A. Tanaka, R. Masuda, S. Kitao, Y. Kobayashi, Y. Yoda, M. Seto, J. Appl. Phys., Accepted.
- [3]. “Interface Magnetism of Co<sub>2</sub>FeGe Heusler Alloy Layers and Magnetoresistance of Co<sub>2</sub>FeGe/MgO/Fe Magnetic Tunnel Junctions”, M. A. Tanaka, D. Maezaki, T. Ishii, A. Okubo, R. Hiramatsu, T. Ono, and K. Mibu, J. Appl. Phys., **116**, 163902-1 – 163902-5, (2014).
- [4]. “Synchrotron radiation-based Mössbauer spectra of <sup>174</sup>Yb measured with internal conversion electrons”, R. Masuda, Y. Kobayashi, S. Kitao, M. Kurokuzu, M. Saito, Y. Yoda, T. Mitsui, F. Iga and M. Seto, Applied Physics Letters, **104**, 082411 – 082411-5, (2014).
- [5]. “In-situ synchrotron <sup>57</sup>Fe Mössbauer spectroscopy of RFe<sub>2</sub> (R=Y, Gd) hydrides synthesized under ultra-high hydrogen pressure”, T. Mitsui, R. Masuda, M. Seto, N. Hirao, T. Matsuoka, Y. Nakamura and K. Sakaki, Journal of Alloys and Compounds, **580**, S264 – S267, (2013).

ホームページ等

<http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/NRP/index.htm>