

平成 21 年 5 月 21 日現在

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2008

課題番号：19560841

研究課題名 (和文) 低磁場駆動高性能中性子偏極ミラーの開発とその磁化特性の精密評価

研究課題名 (英文) Development of polarizing neutron supermirror for lower external magnetic field and estimation of its magnetic property

研究代表者

日野 正裕 (Masahiro Hino)

京都大学・原子炉実験所・准教授

研究者番号:70314292

研究成果の概要：

磁気多層膜は中性子の磁気散乱ポテンシャルを制御することにより、中性子のスピン状態を選別する偏極素子としても使用できる。磁気多層膜を中性子偏極デバイスとして使用するためには、磁性膜が飽和している必要があり、外部磁場が必要となる。この外部磁場を小さくするには磁性的にソフトであることが重要で、最近純鉄(純度 99.99%)を用いてその界面に 0.5nm だけシリコンをスパッタすることで磁化特性が良くなることを発見し、 $m=4.9$ で偏極率 94%以上、反射率 70%以上の磁気多層膜スーパーミラーの開発に成功し、我々の装置の限界 ($\phi 200\text{mm}$) まで再現性良く製作出来る成膜プロセスのレシピを確立した。またビームラインを変更しない透過型偏極ミラーの開発の開発にも着手し、 $m=4$ の透過型偏極スーパーミラーの開発に成功し、そして実際の分光器への適用、特に新しい分光法である MIEZE 分光器のキーパーツの一つとして適用し、実際に製作した偏極ミラーの有用性を示した。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
H19 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
H20 年度	600,000	180,000	780,000
総計	1,600,000	480,000	2,080,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：偏極中性子スーパーミラー、磁気多層膜、イオンビームスパッタ

1. 研究開始当初の背景

中性子散乱は、物質の原子レベルにおける静的・動的構造を研究する有効な方法のひとつとして、X線散乱と並んで認められている。これは、中性子がサイエンスの分野に大きな波及効果をもたらしたとして、1994年に C. G. Shull と B. N. Brockhouser 両博士に中性子の手法を開発した功績でノーベル賞が与えられたことから明らかである。そして現在、世界最高性能を目指したパルス中性子源

がアメリカ (SNS) と日本の茨城県東海村 (JSNS/J-PARC) でほとんど同時に建設中である。J-PARCに限らず、中性子を発生するには原子核反応を用いる必要があり、散乱実験に十分な強度の中性子ビームを得るためには、原子炉や大強度加速器等の大型施設が必要になる。そのため中性子ビームは物質研究において、非常に優れた特長を持つにもかかわらず、利用者数や使用法に限られる大変高価なものとなっている。この貴重な中性子を最大限に活用するために、中性子ビームをより

高い効率で試料まで導いたりビーム特性を向上させるデバイスを開発することは、重要な課題であり、その中性子を制御する手法として、多層膜中性子ミラーは重要な位置を占めている。多層膜中性子ミラーはブラック反射を利用して、モノクロメーターや、膜厚を少しずつ変えながら積層することで広い波長範囲で全反射できるスーパーミラーとして使用できる。さらに磁性体を用いて、中性子の磁気散乱ポテンシャルを制御することにより、↑スピンは周期ポテンシャルを感じ反射するが、↓スピンは低い一つのポテンシャルのみ感じるだけで透過する中性子のスピン状態を選別する偏極素子としても使用できる。近年、偏極素子としては He-3 偏極フィルターの開発がめざましいが、冷中性子以上の波長を使う場合や入射系のようなビーム断面積がそれほど大きくない場合は多層膜磁気ミラーの方が優れている。

我々はイオンビームスパッタ (IBS) 装置を立ち上げ、世界最高性能の $m=6$ NiC/Ti 多層膜中性子スーパーミラーの開発に成功した (Nucl. Inst. Meth. A529 (2004) 54. $m=6$ とは Ni の全反射臨界面に対して 6 倍の入射角で全反射できるのこと)。この中性子ミラー成功後すぐに、磁気多層膜を作成したが、蒸着法はもちろん、マグネトロンスパッタ法と比較しても IBS 作成したミラーは磁性的に非常にハードになった。その後ターゲット材の改良等を経て、鉄薄膜の両面に 0.5nm だけシリコンをスパッタすることで磁化特性が良くなることを発見し、 $m=4.9$ で偏極率 94% 以上、反射率 70% 以上の磁気多層膜スーパーミラーの開発に成功した。

2. 研究の目的

低磁場で機能する高性能中性子偏極デバイスの作成手法を早期に確立するとともに、偏極ミラーの応用範囲を拡大する。そしてより低磁場で機能する仕組みを目指して、偏極中性子反射率法等を用いてミラーの磁化特性の解明を目指す。

3. 研究の方法

中性子反射ミラーはシリコン基板上に京大炉のイオンビームスパッタ装置を用いて作成する。まず最初に 20nm 程度の単層膜を作成し、スパッタ条件 (ガス種類、ガス圧、加速電圧、ターゲット材料、ターゲットと試料の幾何学的配置等) の最適化を行った。ターゲット材には、鉄、シリコン、炭素、チタン、ゲルマニウム、パーマロイ合金等を検討した。この中で純度の高い (99.99%) Fe が一番磁化特性が良かった。そして次に偏極スーパーミラーに使われるような様々な厚み

($d=3\sim 30\text{nm}$) の Fe/Si, Fe/Ge (Si: 厚さ=0.1~5nm) 多層膜 (100 対層程度) 等を作成、X 線反射率計・回折計による層構造の構造評価及び VSM (振動磁場磁束計) による磁化特性の評価を行う。そこで良い磁化特性の多層膜に関しては、層数を増やし、再度 X 線反射率計による層構造及び VSM による磁化特性のチェックを行った後、外部磁場 30mT での日本原子力研究開発機構の MINE ポートで偏極中性子反射率測定を行う。また Fe 層と Ge 層の間に挿入する Si の膜厚をはじめ、膜厚構造についての評価も行った。偏極中性子反射率による評価は、透過型の偏極スーパーミラーの評価と強くリンクしているため、高性能透過型偏極スーパーミラー開発もあわせて行った。

4. 研究成果

反射型の偏極ミラーを導入する場合、当たり前であるが反射によってビームラインが変わる。新設するものはあまり問題無いが、既設の装置へ反射型偏極ミラーを導入する場合、このビームラインの変更が問題となることがある。そのため、より分光器へ利用してもらうにはビームラインを変更しない透過型も重要である。ここでパルス中性子源では TOF を用いて広い波長幅を扱うため、モノクロメーターではなくスーパーミラーである必要がある。

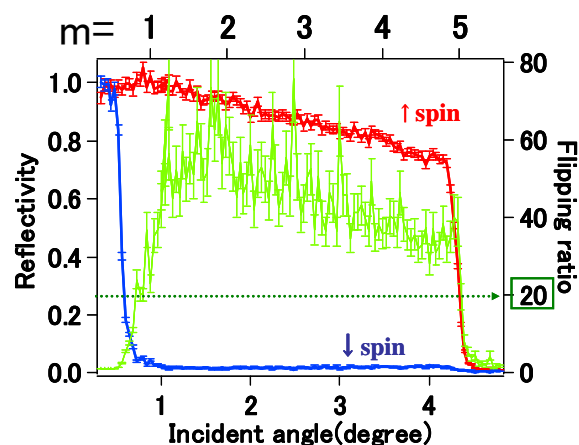


図1 $m=5$ Fe/SiGe₃(Si)多層膜スーパーミラーの↑(赤線 R_{\uparrow}) ↓(青線 R_{\downarrow})スピン中性子の反射率(中間層の Si は 0.5nm。)磁場に対して平行を↑スピン。反平行を↓スピンと定義する。緑線はその比であるフリッピング率 ($R_{\uparrow}/R_{\downarrow}$)。総層数は 6000 層(Si 層を含む)。外部磁場は 45mT。

しかし透過型偏極ミラーの偏極率は反射率と密接にカップルしている。つまり反射し

た↑スピンの偏極率が 100%としてもその反射率自体が R ならば、その透過型における偏極率は $R/(2-R)$ で記述される。

このため $m>3$ の多層膜偏極スーパーミラーの場合、偏極率の大部分は↑スピン中性子の反射率で決まると言うて良い。我々は世界最高性能の反射率 0.7 をもつ $m=5$ 偏極スーパーミラーの開発に成功した(図 1) が、これを透過型で使用すると偏極率 50%強程度ということになり、残念ながらとても使えたものではない。↑スピンの反射率を求めたい偏極率(ここでは 0.95 程度を考えている)以上に上げることは、磁気膜を構成する原子の中性子の非干渉性散乱や吸収断面積、さらに界面や基板のラフネスの関係から、完璧な膜厚コントロールをする積層技術ももってしても非常に難しい。そこで透過型の偏極スーパーミラーでは↑スピン中性子の反射率を上げるというよりも、↑透過率を小さくすることを考える。↑透過率を上げるならば、とにかく何度も反射させれば良い。実際、透過型では 2 重、つまり基板の両面に磁気多層膜スーパーミラーを作成する。ここで中性子を透過させるため基板は薄いものが必要であるが、薄い基板に多層膜を積層させると膜の応力で基板が歪んでミラーとして使用できなくなるが、その応力のバランスをとるためにも両面に積層させることは重要である。しかし、 $m=4$ の偏極スーパーミラーではこの 2 重の積層では $m=4$ の臨界角近傍、つまり薄い膜の領域で特に偏極率が悪くなった。

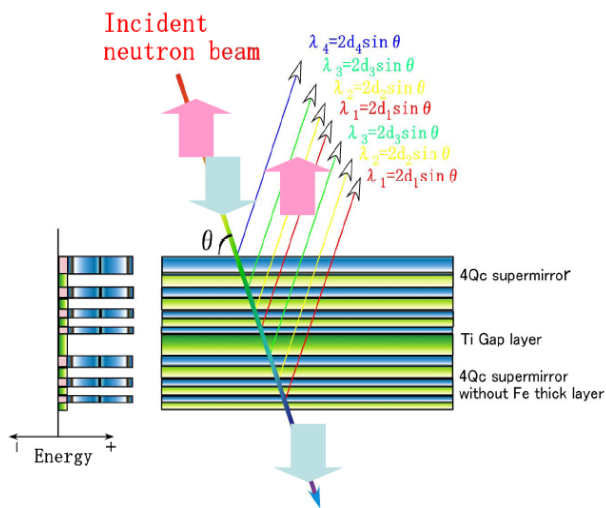


図 2 $m=4$ Fe/SiGe₃(Si)多層膜スーパーミラーの膜厚分布の概念図。磁場によって↑↓スピンの量子化され、スーパーミラーによって↑スピンは周期ポテンシャルを感じて反射、↓スピン中性子のみが透過する。

これは薄い膜の領域はそれだけ反射率を上げることが難しいためである。そこで図 2 に

示すように薄い膜の領域は基板の両面で全 4 重となるように Fe/SiGe₃(Si)多層膜スーパーミラーを積層した。

ここではラフネスの成長を抑えるため、基板に近い部分のスーパーミラーのうち反射率の充分足りている厚い膜の領域は取り除き、また位相相関を無くすために、Ti の Gap 層を 200nm 程度間に挟んだ。基板側の下側のスーパーミラーの層数は 2400 層、上側の層数は 2500 層を積層し、両面の総層数は 9802 層積層した。

偏極反射率測定は実際の使用を考え、MIEZE 型スピンエコー分光器を設置している日本原子力研究開発機構の改造 3 号炉の C3-1-2-3(MINE1)ビームポートで行った。

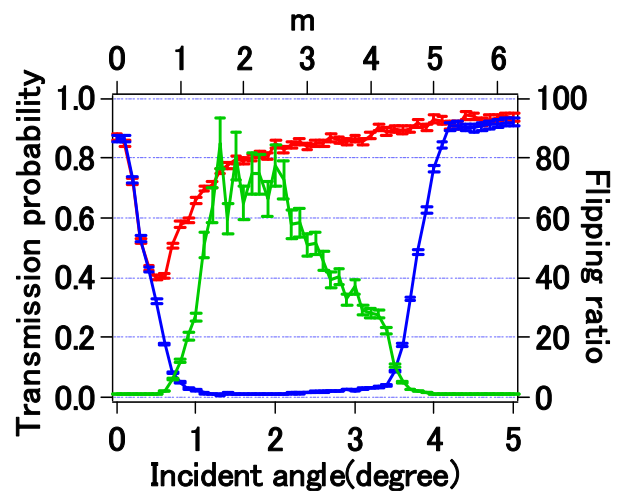


図 3 $m=4$ 透過型 Fe/SiGe₃(Si)多層膜スーパーミラーの ↓(赤線 T↓)↑(青線 T↑)スピン中性子の透過率。緑線はその比であるフリップ率 (T↓/T↑)。総層数は 9802 層(Ti Gap 層や Si 層を含む)。

MINE1 ビームラインの入射中性子波長は 0.81nm、波長分解能 17.4%(FWHM)であり、ビーム発散角は 1.9mrad で実験をした。図 3 に偏極透過率測定の結果を示す。これより $1.2<m<4.1$ の領域でフリップ率 20(偏極率で 0.以上)が得られ、 $1.4<m<2.6$ の領域では 70 以上が得られており、 $m=4$ でおおよそ実用可能な透過型偏極スーパーミラーの開発に成功した。しかし $m=3$ 近傍からフリップ率の減少が見られる。これは↑スピンの混入が増加していると考えられる。

そこで C3-1-2-3(MINE2)ポートの冷中性子スピン干渉計の入射偏極モノクロメーターミラーの高度化を行い、 $\lambda=0.88$ nm、波長分解能 2.7%という単色ではあるが、偏極率 99%まで達成した。この偏極解析システムを用いて、作成した偏極スーパーミラーの偏極

率の精密測定を行い、全体としては偏極率が95%程度のミラーにおいても、それぞれの膜厚で最高の偏極率が異なり、膜厚依存性が明確にあることを確かめた。いずれにしてもこの透過型偏極スーパーミラーはMIEZE分光器の第2アナライザーとして使用され、ナノ磁性粒子のダイナミックスの測定手法開発に貢献した(MIEZE型分光器はJST先端機器開発議場の支援を受けて開発している新しい原理に基づいたスピンエコー分光法である。なお、この分光器開発と本研究課題が密接な関係があることは既に申請時に述べている)。またこの成膜レシピを活かしてC2ガイド管に新設された偏極反射率計SUIRENの偏極ポーラライザー・アナライザーを作成したり、各装置のキーパーツの一つとして適用され、有用性を示した。

また非偏極の中性子スーパーミラーを用いて層構造とラフネス(σ nm)との関係を整理し、の反射率の限界について検討を行った。ここでは $m=2.9$ NiC/Ti スーパーを $\sigma=0.4$ nm程度の通常のシリコン基板上に製作し、反射率90%以上が達成している(図4)。特に、 $m < 2.8$ では94%以上の反射率であり、これは物質の吸収を考慮した場合の完全に平滑な($\sigma=0$)理論的限界反射率に限りなく近い。

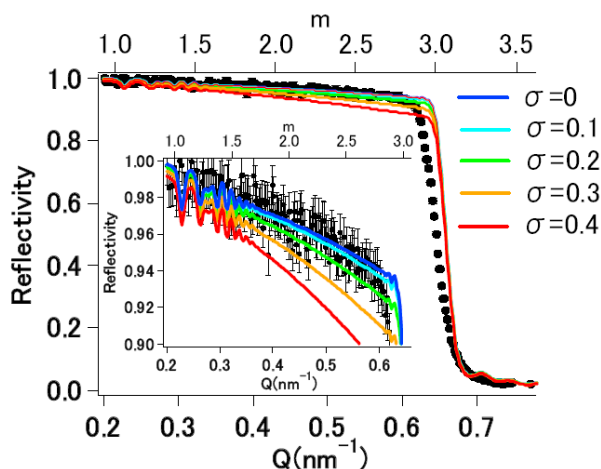


図4 $m=2.9$ NiC/Ti スーパーミラー(650層)の反射率。

これらの検討により、透過型偏極スーパーミラーの性能もさらに向上可能であることも示唆された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計3件) (すべて査読有り)

1. H. Hayashida, M. Hino, M. Kitaguchi, N. Achiwa, Y. Kawabata, *A new MIEZE*

technique for investigating relaxation of magnetic nanoparticles, Nucl. Inst. Meth. A **600** (2009) 56- 59.

2. M. Hino, M. Kitaguchi, H. Hayashida, S. Tasaki, T. Ebisawa, R. Maruyama, N. Achiwa, Y. Kawabata, *A study on reflectivity limit of neutron supermirror*, Nucl. Inst. Meth. A **600** (2009) 207- 209.
3. H. Hayashida, M. Hino, M. Kitaguchi, Y. Kawabata, N. Achiwa, *A study of resolution function on MIEZE spectrometer*, Meas. Sci. Technol. **19** (2008) 034006 (6pages).

[学会発表] (計9件)

代表的なもの3件を記す

1. M. Hino, M. Kitaguchi, N. Achiwa, Y. Kawabata, S. Tasaki, H. Hayashida, T. Ebisawa, *TOF-MIEZE spectroscopy for pulsed neutron source*, PNCMI2008, Tokai, September 1-5 2008.
2. 日野正裕、北口雅暁、Markus Bleuel、川端祐司、阿知波紀郎、林田洋寿、海老澤徹、山崎大、丸山龍治、田崎誠司、MIEZE型共鳴スピンエコー分光器の進展、日本原子力学会 2009年春の年会、東京工業大学、2009年3月
3. 日野正裕、北口雅暁、川端祐司、林田洋寿、田崎誠司、透過型偏極スーパーミラーの開発、日本原子力学会 2008年春の年会、大阪大学、2008年3月

[その他]

第42回京都大学原子炉実験所学術講演会報告文集、透過型多層膜偏極デバイスの開発 日野正裕、北口雅暁、川端祐司、林田洋寿、田崎誠司、阿知波紀郎

ホームページ

<http://www.rri.kyoto-u.ac.jp/neutron/optics/index.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

日野正裕 (HINO MASAHIRO) 京都大学原子炉実験所・准教授
研究者番号：70314292

(2) 研究分担者

北口雅暁 (KITAGUCHI MASA AKI) 京都大学原子炉実験所・助教
研究者番号：90397571