

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K12647

研究課題名（和文）中性子スピネコー法を用いた多層膜面内磁気構造の実空間における解析手法の探索

研究課題名（英文）Real space analysis of the in-plane magnetic structure of a layered system using neutron spin echo technique

研究代表者

丸山 龍治（Maruyama, Ryuji）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARCセンター・研究主幹

研究者番号：90379008

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、基礎科学のみならず産業応用の面からも重要である多層膜特有の磁性メカニズムの解明を目指し、実空間における空間密度関数の直接的な測定を目指して研究開発を進めた。その結果、それを実現するための中性子スピネコー装置の主要な構成要素である中性子偏極スーパーミラーの偏極波長領域を大きく拡大することに成功した。本成果は、中性子スピネコー装置や当該申請者が所属する大強度陽子加速器実験施設J-PARCの物質・生命科学実験施設MLFに留まらず、世界中の中性子散乱実験施設において偏極中性子利用の高度化に資する成果である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、中性子スピネコー法を用いて実空間での空間密度関数の直接測定を目指し、同装置を構成する中性子スピネ制御デバイスの一つである中性子偏極スーパーミラーの偏極可能波長領域の大幅な拡大を実現した。偏極中性子を用いた物質のマイクロ構造やダイナミクス解析は、基礎科学のみならず産業界でも広く利用されており、本研究により実現した偏極中性子利用の高度化は、J-PARC MLFだけでなく国内・海外を問わず他の中性子科学実験施設にインパクトを与え、学術及び産業界に広く貢献するものと考えられる。

研究成果の概要（英文）：A possibility of the real-space in-plane structure analysis of layered systems was explored by using the neutron spin echo technique. Intensive development of the neutron polarizing supermirror, one of the most important neutron optical elements consisting of the neutron spin echo instrument, resulted in a marked extension in the bandwidth of the neutron-spin polarization, the momentum transfer range where the reflected neutrons are polarized. This can offer a possibility to realize the main target of this study stated above and also give a big impact on the design of the polarized neutron instruments across the world because the capability of the instruments can be highly improved.

研究分野：中性子光学

キーワード：中性子光学

1. 研究開始当初の背景

巨大磁気抵抗に代表されるように、多層膜特有の磁性は基礎科学及び産業応用の観点から幅広く研究開発が進められ、基礎科学面での進展のみならず現代社会を支える基盤的なデバイスへと発展を遂げた。スパッタリング法等で成膜され、微結晶により構成される多層膜の磁性もまたバルクにはない磁性の一例であり、その多層膜特有の磁気特性は、結晶粒や磁気ドメインといった単位構造がナノメートル領域まで減少することに起因する。応用面でも注目されるこれらの磁気特性メカニズムを解明には、磁化の過程における面内磁気構造、特にスピンの向きが揃う領域周辺でのスピンの振る舞いに関する知見が欠かせない。

放射光や中性子等の量子ビーム散乱実験では、波動性を利用し、結晶試料の格子定数や分子サイズの長さスケールを精度よく決定することができる。これは、観測量が試料の空間密度関数を空間に関してフーリエ変換した散乱関数であるので、試料中の原子や分子による同じ構造が繰り返し存在する場合には、その単位構造サイズの決定精度において威力を発揮する。しかし、単位構造の形状を議論する場合には、散乱関数では空間に関するフーリエ変換により形状に関する情報が失われる。通常は空間分布関数をモデル化し、散乱強度分布の比較 (フィッティング) により空間分布関数の形状が議論され、得られる結果は仮定するモデルに大きく依存する。ここに既存の量子ビーム散乱実験の限界が存在する。本研究は、この限界を克服するための研究開発を実施することを意図するものである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、中性子散乱において通常行われる空間密度関数の空間に関するフーリエ変換である散乱関数ではなく、中性子スピンエコー法を用いて試料内の相関距離、即ち空間密度関数を直接観察する可能性を探索することである。スパッタリング法等によって成膜される磁気多層膜は、近年特に微結晶粒化とそれに伴う軟磁性化が進んでおり、バルクのような磁気ドメインの形成と磁壁の移動という概念では磁化過程を説明できず、隣り合うスピン間での交換相互作用による結晶磁気異方性の平均化 (ランダム異方性モデル) によって理解される。このようなバルクとは異なる磁気特性の理解には、面内方向でスピンの揃う領域の大きさだけでなく、その形状や境界領域でのスピンの振る舞いを観察することが重要である。しかし、逆格子空間で測定される既存の量子ビーム散乱実験では、それらの形状や境界領域でのスピン配列に関する情報は失われ、精度の高い議論をすることが難しいのが現状である。

3. 研究の方法

中性子スピンエコー法とは、本来は非弾性・準弾性散乱測定のための実験手法であり、中性子スピンの歳差回転数の違いにより散乱前後の中性子のエネルギー差を neV 領域の分解能で測定できる。古典力学的な中性子スピンの歳差回転数は、量子力学的には up と down のスピン状態に分波された中性子波の時間差、即ち試料中で対象とする構造の時間差 δt の相関を測定していると解釈できる。図 1 (a) のように、相関時間 δt をパラメータとして測定することにより、逆格子 q とエネルギー遷移 ω で記述される散乱関数 $I(q, \omega)$ の ω に関するフーリエ変換である中間散乱関数 $I(q, t)$ が得られる。ここで、試料では全て弾性散乱であるとする。図 1 (b) のように歳差回転領域の境界をビーム軸に対して斜めにし、up と down 各々のスピン成分で異なる屈折を起こすと、試料位置では同じ中性子軌道上で時間差 δt が生じる代わりに、ビーム軸と垂直な方向に距離 δr のギャップが生じる。距離 δr をパラメータとする観測量は、 $I(q)$ の q に関するフーリエ変換である空間密度関数 $I(r)$ であり、

モデルによらない直接的な議論が可能となる。これは近年になり原理実証が進んだ内容であり、これを実際の物理量の測定が可能なる装置を完成させ低次元系の磁性研究に応用することはチャレンジングな内容である。この

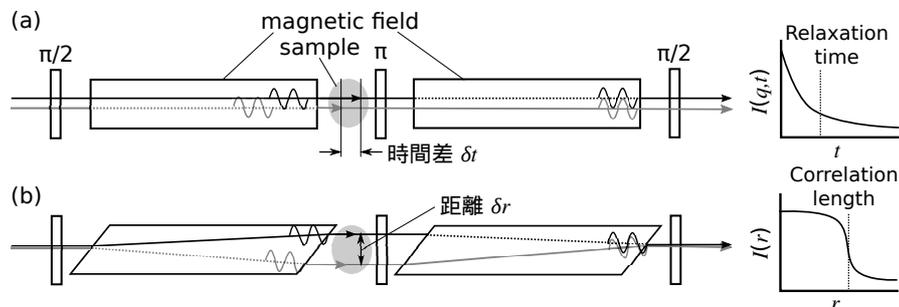


図 1 : 中性子スピンエコー法の概念図。(a) 中間散乱関数を測定するための配置。up と down 状態に分波された中性子波は磁場中では速さが異なるため、試料位置では時間差 δt を生じる。試料の下流では両状態を入れ替え、同じ磁場領域を通過すると時間差が取り返され、位相の残差は散乱における速さの変化に対応する。(b) 本研究で空間密度関数を測定するための配置。磁場領域の境界で両状態を逆方向に屈折させ試料位置で両スピン状態の間に距離 δr を生じさせることにより空間密度関数が得られる。

達成に向けて、次の2つの項目について重点的に研究・検討を進めることとした。

(1) 中性子スピネコー装置の設計を行い、上記目的を達成するための測定の実現性を精査する。具体的には、既存の中性子スピン制御デバイスで得られる性能から空間密度関数の測定のための中性子スピネコー装置の性能を評価し、測定可能な空間領域を導出する。想定する磁気多層膜試料の面内磁気構造の長さスケールとのマッチングを含め、実際に測定が可能かどうかを見極める。

(2) 中性子スピネコー装置を構成する中性子スピン制御デバイスの高性能化に関する研究開発を進め、中性子スピネコー装置の性能向上を目指す。中性子スピネコー装置の性能(面内磁気構造の測定感度や空間密度関数の測定精度)は、装置に用いられる中性子偏極スーパーミラーや中性子スピンフリップパーの性能に著しく依存するので、これらの性能向上により(1)の実現可能性の向上に資する。

4. 研究成果

(1) に関し、空間密度関数を測定するための中性子スピネコー装置の検討を行った。大強度陽子加速器実験施設 J-PARC の物質・生命科学実験施設 MLF において想定される中性子飛行距離や波長域を用いて、測定可能な相関距離 δr を評価した。その結果、2つの中性子スピン状態に異なる屈折角を与える中性子スピンフリップパーに関しては、既存のもので最高の性能(磁場の強さ、磁場境界とビーム軸の角度)を仮定した場合でも、中性子波長が 0.22 nm (MLF で得られる中性子スペクトルのピーク波長)では δr が 36 nm 程度と見積もられた。相関距離 δr は中性子波長の2乗に比例することから、波長 0.8 nm の中性子では δr は 480 nm と評価される。試料として想定するランダム異方性モデルに従う磁気多層膜の面内でスピンの揃う領域のサイズは、1 μm 程度以上であることが知られており、中性子スピネコー装置の測定可能レンジもこの値より大きいことが望まれる。この評価結果から、本研究の目的を達するには、中性子偏極スーパーミラー及び中性子スピンフリップパーを高性能化し、相関距離をより大きくすることが必要であることがわかった。相関距離は中性子スピンフリップパー内部の磁場の強さ及び磁場境界とビーム軸の角度の正接に比例し、中性子波長の2乗に比例する。従って、相関距離の拡大にはより長波長領域まで利用する中性子波長域を広げることが有効であるので、(2)では特に、中性子のスピンを偏極する中性子偏極スーパーミラーの偏極可能な中性子波長領域を拡大するための研究開発を進めた。

中性子偏極スーパーミラーは、強磁性体と非磁性体を交互に積層した磁気多層膜であり、幅広い波長域を持つビームの中性子スピンを偏極するため、層厚を変えながら成膜される。偏極可能な中性子波長領域を広くするには、最も層厚の小さい部分を1対層当たり 6 nm 以下とすることが必要である。しかし、スパッタリングによって成膜された磁気多層膜は、このような層厚の小さい領域ではキュリー温度の減少により自発磁化が消失するので、中性子スピンを偏極することができなくなる。本研究課題に着手した当時は、この問題により、中性子偏極スーパーミラーの偏極可能領域は Ni の全反射臨界運動量遷移の5倍程度に制限されていた。本研究では、中性子偏極スーパーミラーに用いられる Fe/Ge 多層膜に対し、MLF の偏極中性子反射率計 BL17 において非鏡面偏極中性子散乱測定を行った結果、図2のように Ge 層厚が 2 nm より小さい領域では隣り合う Fe 層の間で強磁性的な層間交換結合が形成されることを明らかにした。これを利用すると1対層の層厚が 6 nm 以下であってもバルクと同等の磁化を維持できることに着目し、トータル 10436 層、全層厚約 32 μm の中性子偏極スーパーミラーを成膜した。BL17 において偏極中性子反射率を測定したところ、図3のように Ni の6倍以上の臨界運動量遷移という 2023 年 5 月現在で世界最高の偏極可能域を達成した。

本研究では、実空間における空間密度関数の直接的な測定を目指して研究開発を進めた。その結果、それを実現するための中性子スピネコー装置の主要な構成要素である中性子偏極スーパーミラーの偏極波長領域を大きく拡大することに成功した。本成果は中性子スピネコー装置や J-PARC MLF

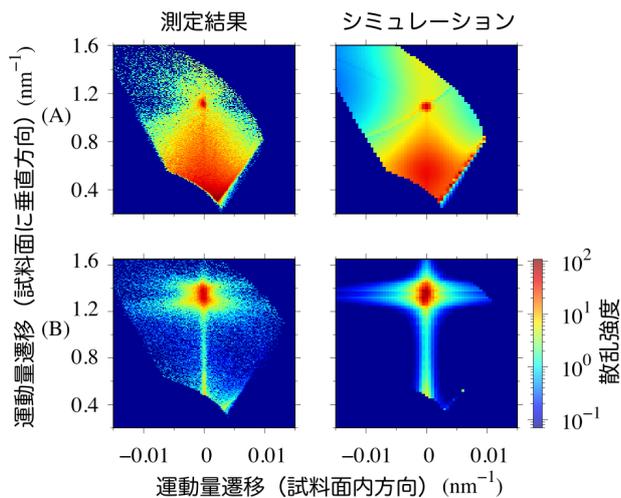


図2: Fe/Ge 多層膜の非鏡面偏極中性子散乱測定とシミュレーションによる散乱強度分布。試料(A) Fe3.5 nm、Ge2.2 nm、試料(B) Fe:3.5 nm、Ge1.2 nm、共に 50 周期。Ge 層厚が 2 nm 以下になると隣り合う Fe 層間に強磁性的層間交換結合が生じ、散乱が Fe 層の周期に対応する運動量遷移に局所化する。

に留まらず、世界中の中性子散乱実験施設において偏極中性子利用の高度化に資する成果である。しかし、本研究で得られた偏極可能波長領域を以ってしても、(1) で検討した中性子スピネコー装置で測定可能な相関距離は $1\ \mu\text{m}$ に満たない。また、J-PARC MLF で得られる中性子スペクトルをフルにカバーするには十分でない。熱及び光応答の磁気層間交換結合が期待されることから長年にわたり数々の研究が実施されてきたにも拘らず、未だメカニズムが解明されていない半導体スペーサを介する磁気層間交換結合等に関する基礎研究を進める一方、今なお興味深いテーマである空間密度関数の直接測定する手法の開発について今後も研究開発を継続して実施する予定である。

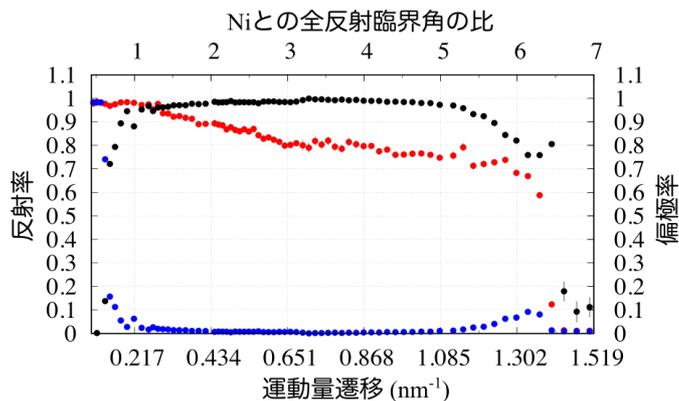


図3:本研究で成膜した中性子偏極スーパーミラーの偏極中性子反射率測定結果。磁場に平行(赤)及び反平行(青)なスピンの中性子反射率。スーパーミラーからの反射ビームの偏極率を黒でプロット。スーパーミラーからの反射ビームは、Niの6倍以上の全反射臨界運動量遷移まで偏極されている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Maruyama R., Yamazaki D., Aoki H., Akutsu-Suyama K., Hanashima T., Miyata N., Soyama K., Bigault T., Saerbeck T., Courtois P.	4. 巻 130
2. 論文標題 Improved performance of wide bandwidth neutron-spin polarizer due to ferromagnetic interlayer exchange coupling	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 083904 ~ 083904
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0062072	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Maruyama Ryuji, Yamazaki Dai, Akutsu-Suyama Kazuhiro, Hanashima Takayasu, Miyata Noboru, Aoki Hiroyuki, Soyama Kazuhiko	4. 巻 33
2. 論文標題 Improvement in Sputtering Rate Uniformity over Large Deposition Area of Large-Scale Ion Beam Sputtering System	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 011092-(1-6)
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSCP.33.011092	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Maruyama Ryuji, Bigault Thierry, Saerbeck Thomas, Honecker Dirk, Soyama Kazuhiko, Courtois Pierre	4. 巻 9
2. 論文標題 Coherent Magnetization Rotation of a Layered System Observed by Polarized Neutron Scattering under Grazing Incidence Geometry	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 383 ~ 383
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/cryst9080383	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 R. Maruyama, D. Yamazaki, H. Aoki, K. Akutsu-Suyama, T. Hanashima, N. Miyata, K. Soyama, T. Bigault, T. Saerbeck, P. Courtois
2. 発表標題 Wide bandwidth neutron polarizing supermirror due to ferromagnetic interlayer exchange coupling
3. 学会等名 14th International Conference on Polarized Neutrons for Condensed Matter Investigations (PNCFI 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 丸山龍治
2. 発表標題 強磁性層間交換結合を利用した広バンド幅偏極スーパーミラー
3. 学会等名 日本中性子科学会第22回年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 R. Maruyama
2. 発表標題 Wide Bandwidth Neutron-Spin Polarizer Due to Ferromagnetic Interlayer Exchange Coupling
3. 学会等名 The International Conference on Physics of X-Ray and Neutron Multilayer Structures (PXRNMS) 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 R. Maruyama
2. 発表標題 Recent Progress in the Development of Neutron Polarizing Supermirror at J-PARC
3. 学会等名 J-PARC Symposium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
フランス	Institut Laue Langevin			