

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24561049

研究課題名(和文)中性子斜入射小角散乱法のための高性能中性子多層膜ミラーに関する研究

研究課題名(英文)A high-performance multilayer mirror for grazing incidence small angle neutron scattering technique

研究代表者

丸山 龍治 (MARUYAMA, RYUJI)

独立行政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・研究副主幹

研究者番号：90379008

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,100,000円

研究成果の概要(和文)：中性子斜入射小角散乱法の実験手法としての確立のために、入射中性子強度を稼ぐための中性子集光ミラーの開発及び斜入射小角散乱データ解析のためのシミュレーションコードの開発を行った。その結果、集光ミラーの高反射率化とともに特に後者に関して、歪曲波ボルン近似に基づいて計算されたシミュレーションの結果と測定データとの比較により、多層膜の面内磁気構造、即ちスピンの揃う領域のサイズが面内磁気散乱相関長として評価され、上記散乱法の有効性が示された。

研究成果の概要(英文)：Grazing incidence small angle neutron scattering (GISANS) is a unique and powerful technique to study the in-plane structure of layered systems. GISANS is not considered as an established technique because of the insufficient incident flux and the difficulty in the data analysis due to multiple scattering. To solve these problems, a high-performance neutron multilayer mirror and simulation code describing the scattering process in the GISANS are needed. This study demonstrated an increase in X-ray reflectivity of the multilayer with the technique oxidizing the Ni layer. As for the GISANS data analysis, a simulation code has been developed based on the distorted wave Born approximation. Compared with the measured data, the in-plane magnetic structure of a layered system has been successfully obtained.

研究分野：中性子光学

キーワード：原子力学

1. 研究開始当初の背景

既存の中性子反射率測定法では測定できない薄膜試料の面内方向及び薄膜内部の構造解析には中性子斜入射小角散乱法が有効であるが、次に述べる理由により面内構造の評価方法としての確立には至っていない。これを確立させるためには、1) 入射中性子強度を稼ぐための高性能中性子集光ミラーの開発、2) 斜入射であることに起因する多重散乱が含まれる複雑な散乱データの解析、の2つが重要である。

本研究では、これらの課題を解決し中性子を用いた斜入射小角散乱法を薄膜試料の面内構造の評価手法として確立させるための基礎研究を実施する。

2. 研究の目的

中性子斜入射小角散乱法のための中性子集光ミラーにおいては、集光ミラーからの散漫散乱強度を小さく抑えることが重要である。当該申請者は、面内の相関長が小さく、面間の相関長の大きい多層膜により散漫散乱強度を鏡面反射ピークに対して 10^{-5} 以下に抑えられることを実証した。本研究ではこれをさらに発展させ、様々な界面構造の制御法に対して多層膜の界面構造を評価し、上記斜入射小角散乱法の確立を目指す。

また、中性子斜入射小角散乱で得られる複雑な散乱プロセスの結果である測定データの解析に対しても、歪曲波ボルン近似を用いた散乱断面積の導出及び解析に用いることの可能なシミュレーションコードの開発を進める。以上のような異なる側面からのアプローチにより、中性子斜入射小角散乱法の確立に資する。

3. 研究の方法

(1) 上記1)については中性子スーパーミラーの成膜を行う際に成膜真空槽内の雰囲気モニターするための質量分析器を導入する。成膜前だけでなくプロセス中のガス分析も可能な仕様のもを導入し、中性子スーパーミラーの性能とプロセス中における様々な成膜条件との間の相関に関する研究を進める。

(2) 上記2)については、中性子束および実験装置の性能の面から斜入射小角散乱測定において有効なシグナルが得られる可能性の高いフランスのラウエ・ランジュバン研究所の中性子小角散乱装置D33を用いて磁気多層膜の面内磁気構造を対象として実験を行う。斜入射小角散乱における散乱プロセスを記述する散乱断面積を導出し解析のためのシミュレーションコードを開発する。シミュレーションによる計算結果と測定データとの比較により、コードの更なる高度化を進める。

4. 研究成果

(1) 斜入射中性子小角散乱法のジオメトリを図1に示す。集光ミラーによる中性子ビームの集光系の焦点は検出器上となる。集光ミラーからの散漫散乱は焦点付近でバックグラウンドとなり、試料からのシグナルと重なる。従って、斜入射小角散乱法のための集光ミラーでは、散漫散乱強度を小さく抑えることが必要である。

中性子集光ミラーの高性能化に関しては、平成25年度に成膜を行う際に真空槽内のガス雰囲気をモニターするための質量分析器を導入した。既に知られているように、Ni成膜時に少量の酸素(分圧約 1×10^{-3} Pa)を導入する界面酸化法により、界面近傍層が酸化され界面拡散が抑えられ、 2.5 nm^{-1} 以上の運動量遷移の大きい領域において多層膜からのX線反射率が上昇することが確認された。

この結果は、多層膜の界面粗さが減少していることを示唆しており、中性子斜入射小角散乱のための集光スーパーミラーとして重要である散漫散乱強度の抑制にも直結する。しかし、反射率の向上とともに層厚制御の精度に悪影響を与えることも明らかになった。運動量遷移の大きい領域において反射率が向上することは、斜入射小角散乱のみならず短波長中性子ビームの輸送及び集光への応用が期待されるものの、この領域ではより高い層厚の精度(0.1 nm 程度以下)が必要となる。今後は、これらの課題を含めてさらなる検討及び開発を進めることが必要である。

(2) 中性子斜入射小角散乱のデータ解析に関しては、磁気多層膜試料からの磁気散乱をターゲットとし、有効な斜入射小角散乱シグナルを得るためにフランスのラウエ・ランジュバン研究所の中性子小角散乱装置D33に対して課題申請を行い、査読を経て課題採択された。ビームタイムは平成25年度に割り当てられ、Fe/Si磁気多層膜(1対層の層厚6、10、20 nm)からの偏極中性子斜入射小角散乱実験を行った。その結果は以下のようにまとめられる。

測定及びシミュレーションの結果の例を

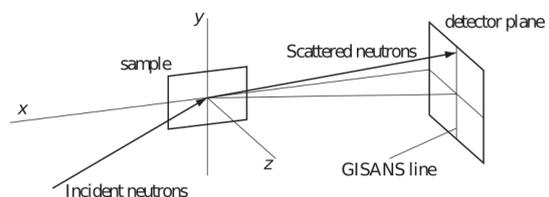


図1：斜入射小角中性子散乱法のジオメトリ。試料の面内構造を反映した散乱がy軸に沿って現れる。集光ミラーからの散漫散乱は検出器上焦点付近でのバックグラウンドとなるので、これを低減することが必要である。

図2に示す。入射中性子の偏極が印加磁場と平行であるものを+スピン、反平行なものを-とする。試料位置の下流では偏極解析をしていないので、図2の I_+ には+スピンの入射し、散乱により-スピンに反転された中性子（スピンフリップ散乱）と+スピンのままの中性子（ノンスピンフリップ散乱）が含まれる。 I_- ではこの逆で、-スピンから+スピンへのスピンフリップ散乱と-スピンのままのノンスピンフリップ散乱の和となる。スピンフリップ散乱は試料の面内磁気構造を反映した磁気散乱によるものであり、図2では I_+ 、 I_- の両方で散乱角 α_f の幅広い領域にわたり分布している。一方、ノンスピンフリップ散乱には特に++散乱で界面粗さによる散乱が多く含まれ、 I_+ において試料のBragg条件に一致する $\alpha_f = 4.2^\circ$ 付近に局在している。このように、入射角や散乱角等の幾何学的な実験条件を選ぶことにより、試料下流で偏極解析を行うことなく界面粗さによる散乱と面内磁気構造による散乱、即ち異なる面内構造による散乱を分離することができ、各々の構造パラメータの決定が容易になる。

このような測定データを解析するために、当該申請者らは歪曲波ボルン近似に基づいて散乱断面積を導出し、散乱強度を計算するシミュレーションコードを作成した。一般的に、散乱断面積は試料の散乱ポテンシャルと散乱前後の波動関数を用いて表される。試料の密度が十分低く散乱体同士の相関が無視できるとき、散乱ポテンシャルはその大きさと散乱体の形状を表す形状因子によって記述され、散乱前後の波動関数には平面波が用いられる。散乱後の波動関数は通常未知であるので、散乱断面積を求める際にはこの部分

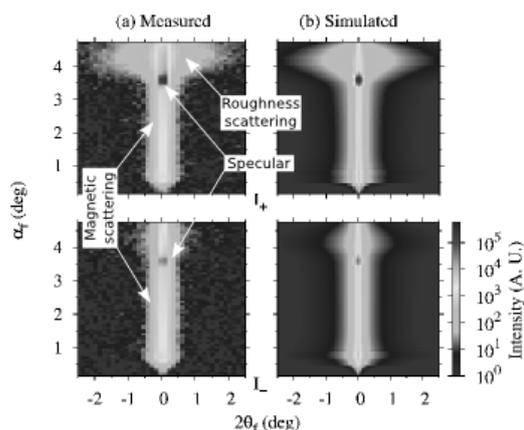


図2：ラウエ・ランジュバン研究所のD33において測定された磁気多層膜からの偏極中性子射入射小角散乱測定 (a) とそのシミュレーション (b) の例。シミュレーションとの比較により、試料の界面粗さのカットオフ長や磁化が揃う領域の面内方向の平均サイズが得られる。

において近似を行う。散乱後の波動関数を平面波で近似したものはボルン近似と呼ばれ、その近似の第1項のみの部分は特に第1次ボルン近似と呼ばれ、散乱断面積を計算する際に非常によく用いられる近似である。さらに、試料内部における微細構造等による散乱を議論する場合には、試料内部における波動関数を計算し、散乱前後の波動関数としてこれを用いて近似し散乱断面積を求める方法があり、歪曲波ボルン近似と呼ばれる。これはSinhaらによってガラス等の表面粗さによる中性子及びX線の非鏡面散乱に応用されて以来、多層膜の表面、界面構造や磁気多層膜の磁気ドメイン等の面内磁気構造等に関する様々なサイエンスに応用されている。本研究では、非鏡面散乱だけでなく斜入射小角散乱にも適応可能な形での拡張及び一般化を行った。具体的な内容は次の項目にまとめられる。

- 多層膜の面内に直方体形状で存在する散乱体（本研究では磁気ドメインを想定）の構造因子が、非鏡面反射だけでなく斜入射小角散乱においてもローレンツ関数によって記述可能であることを導出した。
- 偏極中性子では一般的に、試料の磁化と中性子の運動量遷移の方向が垂直の時のみ磁気散乱が測定可能である。非鏡面反射の際にはこの条件がほぼ満たされているが、斜入射小角散乱を含む他の方法ではこれを考慮に入れることが必要である。上記のような磁化と運動量遷移の方向の関係を記述するHalpern-Johnson vectorを詳細に計算しこれを散乱断面積計算に取り込むことにより、目的とする磁気散乱を記述する散乱断面積が導出された。

本シミュレーションでは、これらの散乱の $2\theta_f$ （図1におけるy方向の散乱角）方向の強度分布の幅が面内構造の大きさに依存する。測定データとシミュレーションの結果を比較することにより、磁化の向きが揃う領域の面内方向の平均サイズに相当する磁気散乱の面内相関長が250 nm、同一界面の高さ相関が保たれる距離に相当するカットオフ長が10 nm、のようにそれぞれ得られる。

以上のように、入射強度を稼ぐための集光ミラーの開発とデータ解析のためのシミュレーションコード開発を行った結果、薄膜試料の界面構造や磁気構造等の面内構造の評価方法としての中性子斜入射小角散乱法の有効性を示すことができた。今後、シャープ入射小角散乱のデータ解析のために開発したシミュレーションコードに関しては試料の面内構造の適応範囲等に関する更なる検討を進め、投稿論文として発表することを予定している。

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0件)

[学会発表] (計1件)

① 丸山 龍治、山崎 大、曾山 和彦、T. Bigault, A. Wildes, C. D. Dewhurst, P. Courtois、斜入射偏極中性子散乱を用いた多層膜面内磁気構造に関する研究、第6回MLFシンポジウム(招待講演)、つくば国際会議場(茨城県つくば市)、2015年3月

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

○取得状況 (計0件)

[その他]

6. 研究組織

(1) 研究代表者

丸山 龍治 (MARUYAMA, Ryuji)
独立行政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・研究副主幹
研究者番号：90379008

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

曾山 和彦 (SOYAMA, Kazuhiko)
独立行政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・セクションリーダー
研究者番号：90343912

山崎 大 (YAMAZAKI, Dai)
独立行政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・研究副主幹
研究者番号：80391259

林田 洋寿 (Hayashida, Hirotochi)
一般財団法人総合科学研究機構・東海事業センター・研究員