

課題番号：2005B0858

課題名：偏光反転比測定による磁気構造解析手法の開発

実験責任者 氏名：大隅寛幸

所属：(財) 高輝度光科学研究センター

使用ビームライン：BL46XU

1. 研究の目的

磁性体の磁気構造解析に最も有効な手段は中性子磁気回折法であるが、吸収断面積や非干渉性散乱が大きい元素を含む化合物や、試料サイズが小さい薄膜や微小結晶など不得意な分野もある。磁気構造の評価のために大きな試料を作製することは本質から外れる大きな負担であり、新規磁性材料の探索や機能性磁性薄膜デバイスの開発において磁気構造物性的見地からのフィードバックが十分行なわれているとは言い難い。そのような状況において、高輝度放射光を用いたX線磁気回折実験は、微量試料の磁気構造解析を可能にする新たな実験手法として期待されている。本研究では、高輝度・高偏光度といった第3世代放射光源の特徴を有効活用し、X線磁気回折法を新規磁性材料および機能性磁性薄膜デバイス等の開発のための強力な基盤評価技術として確立することを目指す。これにより、磁気構造というマイクロな情報を基にした新規磁性材料・機能性磁性薄膜デバイスのデザインが可能となり、材料開発の進展に大きく寄与する新領域研究の展開が期待される。

2. 課題内容

これまでの研究状況

化学的単位胞と磁氣的単位胞が一致しない反強磁性体に適用するX線磁気回折法の手法開発を行ない実用化した[1]。次期課題として強磁性体に適用するX線磁気回折法の手法開発を設定している。要素技術の一部に関しては既に実証実験を開始している。

測定原理

強磁性体の磁気回折スポットは結晶格子の基本反射と同じ位置に出現するので、莫大なトムソン散乱と微弱な磁気散乱をいかに分離するかが問題となる。そのような場合、反転比を測定するのが定石である。左右円偏光($P_C = \pm 1$)に対する散乱断面積は、

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{\sin^2 2\theta}{2} \frac{\eta\omega}{mc^2} P_C \operatorname{Im} \left[\rho(\mathbf{K}) \{ \mathbf{S}^*(\mathbf{K}) + \mathbf{L}^*(\mathbf{K}) \} \cdot \left(\frac{k}{|\mathbf{k}|} + \frac{k'}{|\mathbf{k}'|} \right) \right] + \text{Const.}$$

と表される。左右円偏光を反転し差分をとることにより、結晶構造因子と磁気構造因子の干渉項だけを測定することができる。結晶構造が既知であれば位相情報を含んだ磁気構造因子が求まるので、磁気構造を容易に解くことが可能である。

実験のレイアウト

アンジュレーターから得られる水平直線偏光ビームを、ダイヤモンド単結晶を用いた透過型移相子により左右円偏光に変換する。ピエゾ素子を用いて左右円偏光間的高速変調を

行ない、偏光反転比信号をロックイン検出することにより高 S/N 比で測定する。六軸回折計を用いて多数の基本反射上で偏光反転比測定を行ない、磁気構造解析用データを収集する。図1に実験のレイアウトを示した。

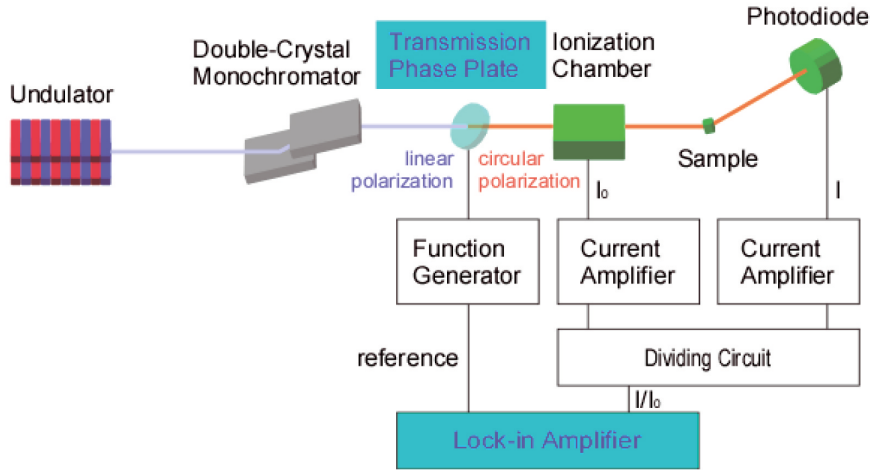


図1 実験のレイアウト

3. 実験結果

左右円偏光の発生 [2]

完全結晶のブラッグ回折条件近傍では、複屈折により透過光の σ 偏光と π 偏光成分の間に位相差が生じる。このことを利用すると、ダイヤモンド単結晶をX線移相子として機能させることができる。本実験では12.62 keVのX線に対して厚さ2.7mmの移相子を使用した。図2に σ 偏光強度と π 偏光強度と透過X線強度の(220)ブラッグ条件からのオフセット角 $\Delta\theta_{XPR}$ 依存性を示した。 σ 偏光強度と π 偏光強度から簡便に見積もった直線偏光度 P_L を図3に示した。図中には偏光解析装置を用いた正式な測定の結果も合わせて示してある。全ての測定結果は、シミュレーション(図中実線)とよく一致しており期待通りにX線の偏光が変換されていることが確認された。 $P_L = 0$ となる $\Delta\theta_{XPR} = \pm 40.32''$ 付近で、円偏光度 P_C が最も高くなる。

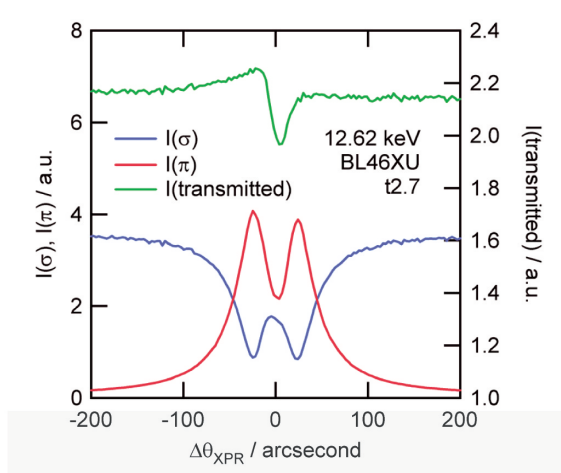


図2 透過X線強度の $\Delta\theta_{XPR}$ 依存性.

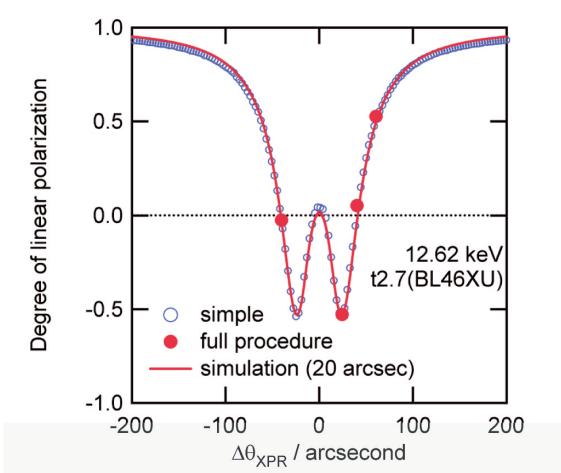


図3 直線偏光度 P_L の $\Delta\theta_{XPR}$ 依存性.

円偏光変調 [2]

左右円偏光の切り替えは、移相子を 100° 程度回転させることで実現される。移相子結晶振動台をピエゾ圧電素子駆動することにより数十 Hz で周期的に切り替わる円偏光を発生し、ロックインアンプを用いて円偏光変調の周波数に同期した信号のみを検出するのが新規手法の核心である。本計測法の計測分解能を評価するために、Ni フェライト(222)反射の円偏光反転比の時定数依存性を調べた。図4はロックインアンプの同相出力の経時変化を示したもので、時定数が長くなるにつれて安定性が改善する様子がわかる。同相出力の標準偏差を時定数の関数として評価した結果を図5にまとめた。今回初めて評価を行なったが、数秒の時定数で必要な計測分解能が概ね達成できると期待され、現実的な測定時間の磁気構造解析も十分可能との見通しがたった。

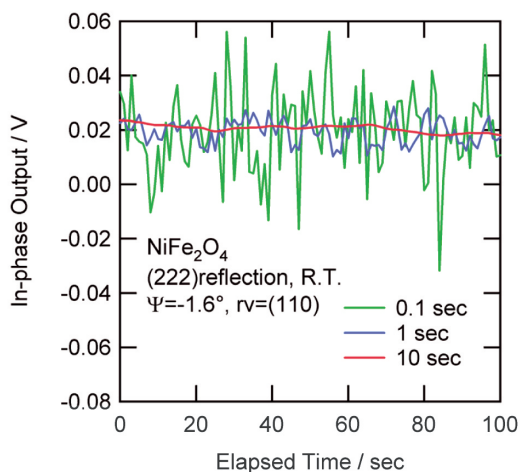


図4 同相出力の経時変化.

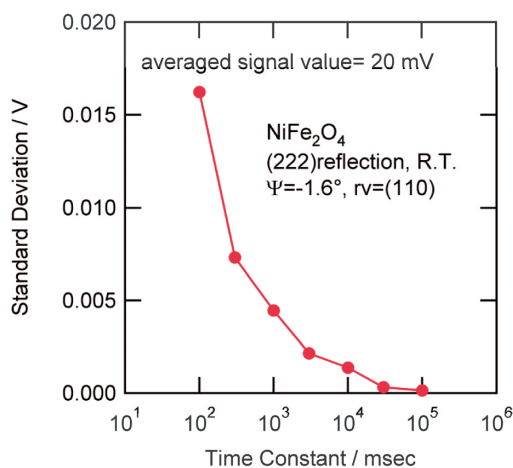


図5 同相出力標準偏差の時定数依存性.

偏光反転比測定

微量試料でも磁気信号が検出可能なことを実証するために、キュリー温度が 38 K の 2 次元フェリ磁性体において偏光反転比測定を行なった。試料には断面が $0.5\text{mm} \times 0.2\text{mm}$ 程度の針状結晶を使用し、冷却にはヘリウム循環型冷凍機を使用した。この測定では時定数を 1 秒としたが、キュリー温度における変化が有意であることを示すのに十分な計測分解能を達成している。時定数を大きくすれば更に測定精度を向上させることも可能である。常磁性領域で反転比が零にならないのは、完全な円偏光になっていないためである。円偏光度を向上させるためには、移相子を厚くするか X 線のエネルギーを低くすればよい。

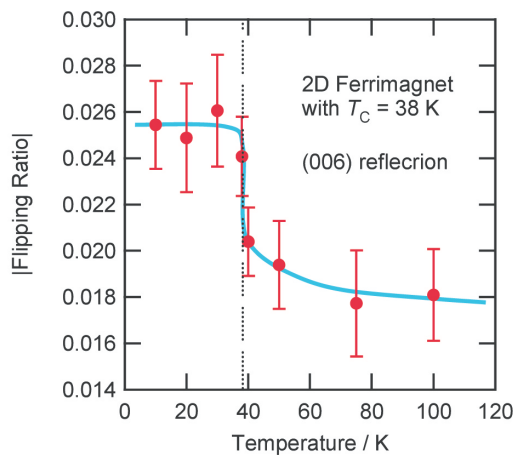


図6 偏光反転比の温度依存性.

4. 得られた知見

本課題の実施により得られた知見を述べる。はじめに、偏光反転比測定のために用意した移相子結晶・ピエゾ圧電素子駆動移相子結晶振動台などの光学機器、アナログ演算器・ロックインアンプなどの計測機器は期待通りに動作していることが確認できた。現状のBL46XUでも辛うじて、磁気構造解析のための偏光反転比収集を行なうことが可能と判断される。より短時間で高精度の測定を可能とするためには、**モノクロメータの安定性を向上させる**が必要でありまたその余地もある。更に、円偏光純度の向上のためには、**現状よりも長波長なX線の使用**を検討する必要がある。

X線の強度に関しては既に十分なレベルに達成していると思われる。ロックイン計測の特性を考慮すれば、モノクロメータの安定性の向上が至上命題である。今回は少数の反射の測定しか行なわなかったが、磁気構造解析のためには多数の反射で偏光反転比測定を行なう必要があり、**検出器出力アンプのゲイン調整が頻繁となるので対策を検討**しなくてはならない。同時に測定ルーチンの自動化を推し進める必要がある。

ヘリウム循環型冷凍機の振動がロックイン計測に少なくない影響を与えると予想していたが、今回実施した測定ではその振動は全く気にならなかった。試料の磁区を揃えるための外部磁場は常伝導コイルを巻いて発生させたが、この方式では数十ガウスが限界であり**早急に超伝導磁石を導入**すべきである。

5. 結論

X線磁気回折法を新規磁性材料および機能性磁性薄膜デバイス等の開発に資する基盤評価技術として確立することを目指し、強磁性体に適用する新規手法の開発を行なった。本ビームタイムでは、これまで個別に開発していた要素技術を組み合わせ、偏光反転比測定により2次元フェリ磁性体の秩序変数が実際に測定できることを示した。今回の実証実験を通して、本手法が現在抱えている問題点が明らかとなり今後の研究の指針が得られた。効率的な磁性材料開発には磁気構造物性的見地からのフィードバックが有効であるので、X線磁気構造解析の早期実用化が期待される。

参考文献

- [1] 大隅寛幸, 高田昌樹: 放射光 **17**, 338 (2004).
- [2] 鈴木基寛: 放射光 **13**, 12 (2000).