



透過中性子によるスピン配列の観測に成功

～従来の回折中性子の測定より装置設計の自由度が増し、未知のスピン配列観測が容易に～

配布日時：平成 29 年 11 月 17 日 14 時

国立研究開発法人物質・材料研究機構（NIMS）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（JAEA）

J-PARC センター

概要

1. NIMS は、JAEA 及び J-PARC センターと共同で、入射した中性子ビームが試料をどれだけ透過したかを測定することで物質の電子スピンの配列を観測することに世界で初めて成功しました。従来は回折中性子を観測していましたが、透過中性子は中性子ビーム源と試料を結ぶ直線上で観測できるため、未知のスピン配列が潜む超高圧・強磁場などの多重極限環境を実現する装置を設置しやすくなり、スピン制御による新材料開発の進展が期待されます。

2. 現在、電子の持つスピンを複雑に配列¹させて利用する新しい機能性材料に注目が集まっていますが、これらの配列の評価は、中性子ビームを入射し、この配列から回折²してくる中性子の強度を計測する手法にほぼ限られていました。しかし、この手法では中性子が入射ビームから配列ごとに特定の角度をとって回折してくるため、様々な機器をその軌道を妨害しないように測定対象の直近に上手く配置することが難しく、このことが、新たなスピン機能性探索のフロンティアである超高圧・強磁場・超高温／低温などの多重極限環境下で発現する未知のスピンの配列を評価・解明するための実験の大きな制約となっていました。

3. 今回、NIMS を中心とする研究チームは、試料に中性子ビームを当てると回折した中性子の分量だけ透過中性子の強度が減少するため、透過中性子を計測してもスピン配列の情報が得られるはずであるという単純な原理に着目しました。実際に、大強度陽子加速器施設 J-PARC で生成されるパルス状の中性子を、あらかじめスピンの配列が分かっているニッケル酸化物に入射し、透過してくる中性子の強度と波長の関係を調べました。その結果、スピンの配列を反映した特定の波長で中性子の透過強度が大きく減少することを見出しました。透過してくる中性子の軌道は必ず入射する中性子ビームと同一直線上になるため、試料の環境を制御する機器は一律にその軸線上からわずかに外すだけでよく、そうした機器の設計の自由度が飛躍的に向上します。

4. 今回、透過中性子の測定がスピン配列の評価に有効であることが明らかとなりましたので、今後はその強みを活かした多重極限環境発生機器の設計を進め、スピンの生み出す新機能の探索範囲の拡大に貢献します。さらに、入射・透過ビームの直進性を活かせば、スピン配列のイメージング像（レントゲン像）を容易に撮影できることから、これまで不可能だった磁気デバイス等の内部のスピン状態を非破壊で観察することで磁気デバイスの高度化にも貢献すると期待されます。

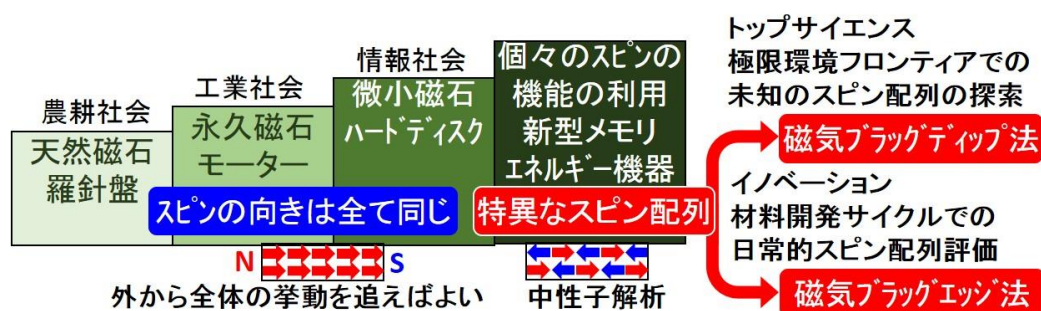
5. 本研究は、国立研究開発法人物質・材料研究機構 先端材料解析研究拠点 中性子散乱グループの間宮 広明主幹研究員等からなるチームと、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 物質科学研究センターの大場洋次郎研究員、同 J-PARC センターの及川健一研究主幹等からなるチームとの共同研究の成果です。本研究の一部は JSPS 科研費 15K13278 の支援を受けて行われました。

6. 本研究成果は、Springer Nature が発行する学術雑誌 Scientific Reports 誌にて 2017 年 11 月 14 日にオンライン掲載されました。

研究の背景

電子の持つ小さな磁石としての性質（スピン）は、古代より永久磁石として羅針盤に、産業革命以降は発電機やモーターに用いられ、さらに近年ではハードディスクの中で情報を保持する媒体などとしても使われてきました。これらは、全てのスピンのN/Sの向きが同じ方向に揃うという単純な状態を利用したもので、内部のスピンの並び方に関心を払う必要はありませんでした。ところが、最近、反強磁性状態などの特殊なスピンの向きの配列状態を上手く利用して、新しいメモリ³などの電子デバイスや水素社会を担う磁気冷凍素子⁴などの環境エネルギー機器の革新を目指した研究が急展開しています（第1図）。このような動きを受け、超高圧・強磁場・超高温／低温などの多重極限環境の未踏のフロンティアに、全く新たなスピン配列とその機能を探索する研究が盛んに行われつつあります。従来、こうしたスピンの配列の評価は、中性子ビームを入射し、この配列から回折してくる中性子の強度を計測する手法にほぼ限られていました。しかし、このような手法では中性子が入射ビームから配列ごとに特定の角度をとって回折してくるため、様々な周辺機器をその軌道を妨害しないよう測定対象の周りに上手く配置することは困難でした（第2図）。このことが、試料に近接して高圧セル、超電導磁石、冷凍機や高温炉等を同時に配置しなければならない多重極限環境下における中性子回折実験の大きな課題となっていました。

また、こうした特殊なスピン配列状態の機能の将来性が知られるにつれ、関連する研究の裾野も広がっています。これまでの磁石中のスピンが全て一方向に揃った状態はマクロな磁化の大きさを外部から測るだけで評価できたのに対して、特殊なスピン配列の評価には上記のように中性子の利用が必要不可欠となりました。このため小型中性子発生源⁵を開発し、実験室スケールのスピン配列評価システムを整備し、この材料開発の現場からの日常的需要に応えようとする流れが加速しています。しかしながら、普及システムとして必要な検出性能をいかに低コストでコンパクトにまとめていくかという点に注目したとき、トップサイエンスで威力を発揮した全立体角に多くの検出器を配置してスピン配列状態の情報を高精度で取得する手法（第2図）が適当であるかどうかの検討はほとんど進んでいません。



第1図 電子の持つスピン機能の用途の発展と今回の研究の位置付け

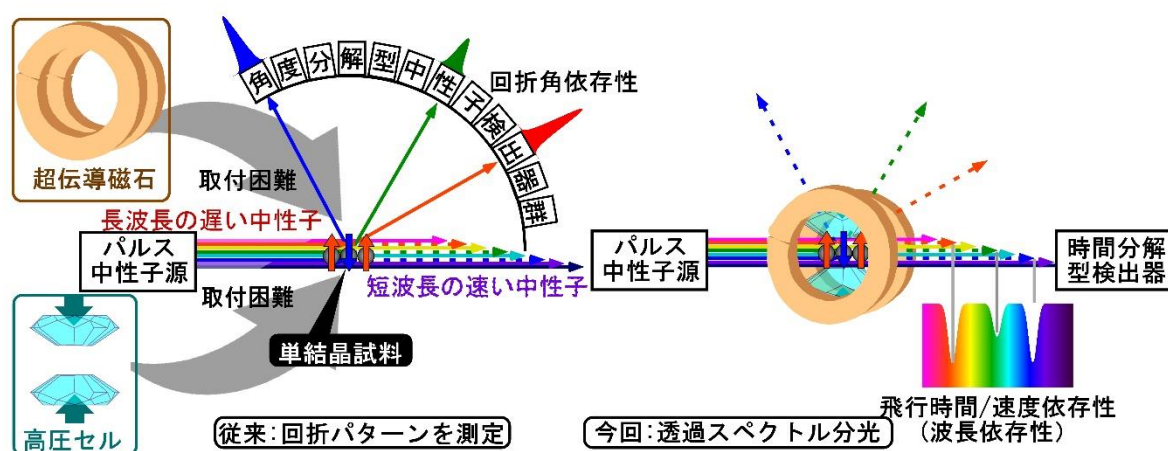
研究内容と成果

今回、我々の研究チームは、透過してくる中性子の軌道が入射ビームのそれと同一直線上にあるため、透過中性子を計測する場合、周辺機器はその軸線上からわずかに外すだけでよく、試料環境機器の設計の自由度が飛躍的に増すことに着目しました。入射ビームの一部がスピン配列で回折すれば、その回折された中性子の分量に対応して透過中性子の強度が減少するため、透過中性子を観測しても原理的にはその配列の情報が得られるはずです（第2図）。これまで、核散乱による透過ブラッグエッジイメージング法⁶に注目が集まっていることとは対照的に、実際にこのことを確認した報告例はありませんでした。

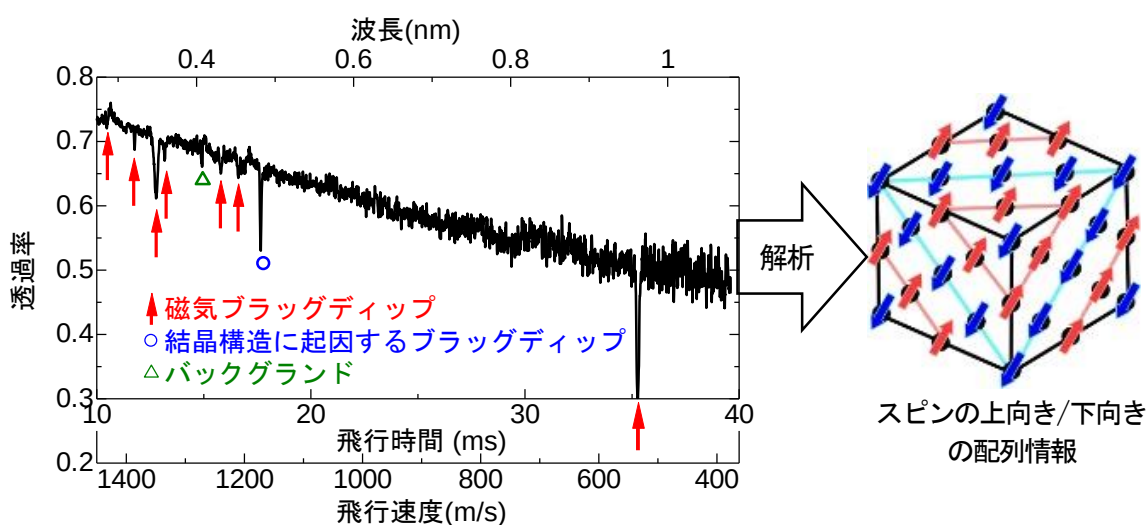
そこで、我々は、大強度陽子加速器施設 J-PARC でパルス状に生成される中性子ビームを試料に入射し、透過してくる中性子数をパルス生成から検出器到達までの飛行時間（中性子の速度に相当）毎にカウントできるように高計数率の時間分解型中性子検出器を中性子源特性試験装置（NOBORU）に設置しました。そして、実際に、典型的なスピン超格子配列¹を持つニッケル酸化物を用いて透過中性子の強度と飛行時間との関係を調べました。その結果、ニッケル酸化物単結晶の場合、いくつかの特定の飛行時間でディップ（窪み）状に透過強度が大きく減少することを見出しました（第3図）。物質の波でもある中性子の速度は波長と反比例の関係がありますので、これは、ある波長の中性子が選択的に透過しない／回折していることを示しています。そこで、その位置関係を調べると、ニッケル酸化物に期待通りのスピン超格子配列が存在し、かつ磁気ブラッグ回折が起きていると仮定しないと説明できないディップ、すなわち「磁気ブラッグディ

ップ」であることが判明しました。逆に、そのことからスピンの配列する向きや周期を第3図の右図のように決定することができました。こうして世界で初めて観測した「磁気ブラッグディップ」から、スピン配列に関する十分な情報を引き出すことができることを実証できました。さらに、強度等の解析の結果、こうした磁気ブラッグディップの測定によって、多重極限環境発生装置で用いられるような1/1000 cc程度の体積の単結晶試料からでも容易にスピン配列のわずかな変化を捉えられることがわかりました。

一方、応用上よく用いられるような多結晶形態でニッケル酸化物試料を測定した場合には、ある飛行時間よりも短くなると中性子の透過強度がエッジ状に何度か減少する振舞を観測しました。これらのなかにスピン超格子配列の磁気ブラッグ回折由来のエッジ構造を確認できました。この飛行時間依存性は、中性子の速度と飛行した距離だけで決まり、試料への入射角には依存しません。このため、飛行距離が一定となる中性子集光用回転楕円ミラー⁷を使えば、従来の回折法に比べて発生源から放射される中性子を原理的には10000倍広い立体角からただ一つの時間分解型検出器に集めて使うことが可能となります。この特質を勘案し今回の「磁気ブラッグエッジ」を解析すると、大型の施設と比べて1/10000以下の強度しか期待できないとされる実験室スケールの小型中性子源でも十分にスピン配列の情報を引き出す実験ができることがわかりました。



第2図 従来のスピン超格子で回折した中性子の回折角度依存性を多くの検出器群を用いて測定する手法（左図）と、今回の透過した中性子の飛行時間依存性を測定する方法（右図）の比較図。前者では、回折中性子の軌道に当たらないように各種の周辺機器を配置することは容易ではありません。



第3図 実際にニッケル酸化物単結晶で計測した中性子透過率の飛行時間、飛行速度、波長依存性。矢印で示した磁気ブラッグディップの解析から右図のようなスピン配置を推定することができます。

今後の展開

今回、磁気ブラッグディップを分析することで微小な単結晶中のスピン配列に関する十分な知見が得られることが明らかとなりましたので、透過スペクトル分光の強みを活かした周辺機器設計を進め、多重極限環境下で中性子実験というスピン配列解析の切り札を使ってスピン新機能探索範囲の拡大を目指します。また、今回の磁気ブラッグエッジを用いたスピン配列の決定法は、中性子発生強度が弱い場合でも有効な手法となりうることが明らかとなりましたので、今後、平滑度に優れた中性子スーパーミラーと組み合わせた試験等を通じて、その実効的な課題を明らかとし、その解決法を探ります。そうした技術的課題が解決されれば、近い将来普及が見込まれる小型中性子源を用いた実験室ベースの装置において本手法は大きな役割を果たすと考えられます。そこでは、新物質のスピン配列に関する日常的な評価解析が可能になることから、特異な配列の振舞を活かした新規磁性材料の開発サイクルが大きく短縮されるに違いありません。さらに、今回の研究では直接の対象としませんでしたが、入射・透過ビームは直進しますので、回折した中性子と異なり、飛行時間スペクトルの変化は進路にあったスピン配列にのみ起因します。このため、検出器を透過側に2次元に並べて配置すれば、これまで不可能だった磁気デバイス等の内部のスピン状態を非破壊でイメージング像（レントゲン像）として容易に撮影できることになり、表面からの漏れ磁場の計測値を頼りに内部の出来具合を判断していた磁気デバイス設計の検証を直接的に行うことができるようになると考えられます。これにより、より精緻なデザインによる磁気デバイスの性能の大幅な向上が期待できます。

掲載論文

題目：Magnetic Bragg dip and Bragg edge in neutron transmission spectra of typical spin superstructure

著者：Hiroaki Mamiya¹, Yojiro Oba², Noriki Terada¹, Norimichi Watanabe¹, Kosuke Hiroi², Takenao Shinohara², Kenichi Oikawa², ¹National Institute for Materials Science, ²Japan Atomic Energy Agency,

雑誌：Scientific Reports

掲載日時：2017年11月14日

用語解説

- (1) スピンの配列、スピン超格子：電子は小さな磁石としての性質（スピン）を持っていますが、電子自身が原子内部にあるため、原子の配列格子に合わせてスピンも配列します。ただし、磁石なのでN極が上になる場合とその逆の場合があり、その上下の向きの並び方で違いが生じます。すべて上向き（または下向き）に揃っていれば全体も磁石のように振舞います（永久磁石がこの例）。上向き／下向き／上向き／下向きのように特殊なパターンに配列することにより、原子の格子より長周期の構造（スピン超格子）を示す場合もあります。
- (2) 回折、ブラッグ回折：中性子のような物質であっても波としても性質を持つ場合、日常の波と同様、障害物の背後まで回り込む現象（回折）がみられます。この障害物が格子状に存在する場合、ある方向のみ波が高くなる干渉縞ができますが、この干渉縞を解析すると格子の配列情報を引き出せます。この周期的に配列した障害物が原子核である場合はブラッグ回折、スピンである場合は磁気ブラッグ回折と呼ばれます。
- (3) 新しいメモリ：最近、反強磁性状態などの特殊なスピンの配列状態の特徴的な振る舞いを上手く利用した新しいメモリの提案(ex. <http://www.jst.go.jp/pr/announce/20151029-2/>, [ibid /20170601/](#)) が相次いでいます。
- (4) 磁気冷凍素子：最近、反強磁性状態などの特殊なスピンの向きの配列状態の特徴的な振る舞いを上手く利用した新しい磁気冷凍方式(ex. <http://www.nims.go.jp/news/press/2014/03/p201403100.html>) が提案されています。
- (5) 小型中性子発生源：実験室で日常的に利用可能なX線装置と比較して、中性子の発生源は研究用原子炉や大型加速器であるため、その利用機会は限られていました。そのため、中性子の産業利用の進展とともに、高輝度でコンパクトな中性子線源の開発と、その利用技術の高度化が急ピッチで進められています (https://www.jst.go.jp/a-step/kadai/h27-2s1/h27_sangyo01.html)。
- (6) 核散乱による透過ブラッグエッジイメージング法：中性子と原子核との相互作用による回折現象（核散乱）によって生じる特定の波長域での透過率の低減を原子核の配列と関連付け、その変化をマッピ

ングする方法です。最近、歴史的な刀剣などを非破壊で評価できる手法として注目されています。

- (7) 中性子集光用回転楕円ミラー：多層膜によるブラッグ反射を用いた中性子の反射鏡です。回転楕円体形状に鏡面を作ること、2つの焦点に光源と検出器を置けばその間の飛行距離は反射経路に依らず一定になります。

本件に関するお問い合わせ先

(研究内容に関すること)

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 先端材料解析研究拠点 中性子散乱グループ

主幹研究員 間宮広明 (まみやひろあき)

E-mail: MAMIYA.Hiroaki@nims.go.jp

TEL: 029-859-2755

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 物質科学研究センター 中性子材料解析研究ディビジョン

研究員 大場洋次郎 (おおばようじろう)

E-mail: ohba.yojiro@jaea.go.jp

TEL: 029-284-3908

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 物質・生命科学ディビジョン

研究主幹 及川健一 (おいかわけんいち)

E-mail: kenichi.oikawa@j-parc.jp

TEL: 029-284-3211

(報道・広報に関すること)

国立研究開発法人 物質・材料研究機構 経営企画部門 広報室

〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

TEL: 029-859-2026, FAX: 029-859-2017

E-mail: pressrelease@ml.nims.go.jp

国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 広報部報道課長 佐藤 仁昭 (さとうよしあき)

TEL: 02-3592-2346, FAX: 03-5157-1950

J-PARC センター 広報セクション 岡田小枝子 (おかだ さえこ)

TEL: 029-284-4578, FAX: 029-284-4571

E-mail: sokada@post.kek.jp