

多層膜スーパーミラーを用いた Wolter I 型 中性子磁気顕微鏡の光学設計

Neutron Optics Design of a Neutron Magnetic Microscope
Using Wolter Type I Supermirror

曾山 和彦 林田 洋寿 丸山 龍治 山崎 大
後藤 惟樹 小林 勇輝 荒川 翔平 山本 有悟
須場 健太 山村 和也

Kazuhiko SOYAMA, Hirotochi HAYASHIDA, Ryuji MARUYAMA, Dai YAMAZAKI
Yuiki GOTO, Yuki KOBAYASHI, Shohei ARAKAWA, Yugo YAMAMOTO
Kenta SUBA and Kazuya YAMAMURA

J-PARC センター
物質・生命科学ディビジョン
Materials and Life Science Division
J-PARC Center

October 2024

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Research

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの転載等の著作権利用は許可が必要です。本レポートの入手並びに成果の利用(データを含む)
は、下記までお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト (<https://www.jaea.go.jp>)
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究開発推進部 科学技術情報課
〒319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Reuse and reproduction of this report (including data) is required permission.
Availability and use of the results of this report, please contact
Library, Institutional Repository and INIS Section,
Research and Development Promotion Department,
Japan Atomic Energy Agency.
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

多層膜スーパーミラーを用いた Wolter I 型中性子磁気顕微鏡の光学設計

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

曾山 和彦、林田 洋寿*¹、丸山 龍治、山崎 大
後藤 惟樹*²、小林 勇輝*²、荒川 翔平*²、山本 有悟*²、須場 健太*²、山村 和也*²

(2024 年 5 月 16 日受理)

磁性体中の磁場イメージングを目的として、Wolter I 型光学系に多層膜スーパーミラーを適用した中性子磁気顕微鏡の光学設計を行った。拡大率 12.5 倍の拡大結像光学系について、軌跡シミュレーションコードを用いて、偏極中性子の磁性体試料による depolarization の解析、レプリカ法で作製される Wolter ミラーの形状精度が顕微鏡の空間分解能へ与える影響の検討を行った。その結果、マイクロメートルオーダーの空間分解能を得るために必要な形状精度に関する知見を得た。

**Neutron Optics Design of a Neutron Magnetic Microscope
Using Wolter Type I Supermirror**

Kazuhiko SOYAMA, Hirotoishi HAYASHIDA*¹, Ryuji MARUYAMA, Dai YAMAZAKI,
Yuiki GOTO*², Yuki KOBAYASHI*², Shohei ARAKAWA*²,
Yugo YAMAMOTO*², Kenta SUBA*² and Kazuya YAMAMURA*²

Materials and Life Science Division, J-PARC Center
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 16, 2024)

A neutron optics design has been conducted for a neutron magnetic microscope that utilize a Wolter type I multilayer supermirror for the purpose of magnetic fields imaging in magnetic materials. Ray trace simulation was performed for a magnifying imaging optical system with a magnification rate of 12.5 times. Based on classical model of Larmor precession, depolarization due to magnetic domains was simulated, and the effect of slope errors on the Wolter mirror created by the replica method on the spatial resolution of the microscope was investigated. As a result, reference data about the shape error required to obtain spatial resolution on the order of micrometers was obtained.

Keywords: Neutron Microscope, Supermirror, Polarized Neutron, Wolter Mirror

* 1 Comprehensive Research Organization for Science and Society

* 2 Osaka University

目 次

1. 序論	1
2. 中性子顕微鏡用 Wolter ミラーの基本光学検討	2
3. Wolter スーパーミラーの中性子軌跡シミュレーション	5
4. Wolter スーパーミラーの偏極中性子シミュレーション	7
5. Wolter スーパーミラーの形状誤差と空間分解能シミュレーション	9
6. 入射中性子ビーム発散と偏極度シミュレーション	11
7. 結論	12
謝辞	13
参考文献	13

Contents

1. Introduction	1
2. Optics design of Wolter mirror for a neutron microscope	2
3. Ray trace simulation of Wolter supermirror	5
4. Polarized neutron simulation of Wolter supermirror	7
5. Simulation on the correlation between slope error and spatial resolution	9
6. Incident beam divergence and polarization analysis	11
7. Concluding remarks	12
Acknowledgements	13
References	13

図リスト

Fig. 2.1 Imaging optics of Wolter type I mirror 2

Fig. 2.2 Critical wavelength on the Wolter supermirror with $m = 4$ 3

Fig. 2.3 Wolter supermirror optics with magnification ratio of 12.5 and 27 3

Fig. 2.4 Magnification ratio near the optical axis..... 4

Fig. 2.5 Image point deviation due to shaping error on the Wolter mirror 4

Fig. 3.1 Neutron reflectivity of the supermirror assumed in the simulation 5

Fig. 3.2 Simulation geometry of a neutron microscope with Wolter type I mirror 6

Fig. 3.3 Focusing images of point sources at the detector surface 6

Fig. 3.4 Focusing image of a square source at the detector surface 7

Fig. 4.1 Schematic diagram of neutron spin precession in the magnetic field 8

Fig. 4.2 Magnetic fields in the magnetic domain 8

Fig. 4.3 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with a dimension of $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ 9

Fig. 5.1 Magnetic fields in the magnetic domain 10

Fig. 5.2 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with a dimension of $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ with a slope error of $\sigma = 5.0\text{e-}6$ 10

Fig. 5.3 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with a dimension of $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ with a slope error of $\sigma = 1.0\text{e-}5$ 10

Fig. 6.1 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with an incident beam divergence between $0.063 \text{ rad} \sim 0.126 \text{ rad}$ 11

Fig. 6.2 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with an incident beam divergence between $0.073 \text{ rad} \sim 0.086 \text{ rad}$ --- 12

1. 序論

中性子は、スピンとこれに起因する磁気モーメントを有し、電荷をもたず、透過性が高いことから、物質深部の磁気を探る優れたプローブであり、現状の中性子イメージングの空間分解能を超える中性子顕微鏡の実現は、磁性物理学、磁気工学等の進展に大きく貢献することが期待される。

中性子による磁気イメージングは、1970年代からの中性子回折トポグラフィによる強磁性体、反強磁性の磁区の研究^{1),2)}をはじめとして、近年では偏極度解析を用いた3次元空間磁場イメージング手法の開発³⁾、さらに稼働状態のモーター漏れ磁場の可視化⁴⁾といった工業製品評価への応用などめざましい進展がある。また、測定手法としては、磁気中性子小角散乱に基づくTalbot-Lau干渉計を用いた外場下での磁壁の観測⁵⁾、中性子スピン干渉計によるパーマロイなどの磁性薄膜中の磁気イメージング⁶⁾など様々な偏極中性子による測定手法の開発の例が報告されている⁷⁾。

通常の中性子イメージング技術では、中性子線施設で得られる中性子強度及び中性子検出器の空間分解能の制限などから、観測可能な空間分解能は、おおよそ100 μm ～数 μm 程度が限界である。中性子線においても、軟X線における水の窓領域の生体顕微鏡⁸⁾や、磁気円二色性分光顕微鏡⁹⁾等のように、より高空間分解能を目指した顕微鏡の開発が行われており、ゾンプレートを用いた中性子顕微鏡¹⁰⁾、拡大結像光学系であるWolterミラー透過型顕微鏡¹¹⁾、さらには特有の超冷中性子を用いた全反射重力顕微鏡¹²⁾など、特徴的な中性子顕微鏡の開発が行われてきた。これらの内、近年、開口率の大きいWolterミラー透過型顕微鏡は、燃料電池内の水の輸送の観察¹³⁾や、強磁性材料の相転移の観察¹⁴⁾などに応用され始めている。しかし、これらのWolterミラー顕微鏡は、反射ミラーとして、ニッケル等の全反射ミラーを使用しているため、反射可能な中性子波長が限られており、その強度の制限から、顕微鏡の拡大率も4倍程度、空間分解能も100 μm 程度に制限されている^{13),14)}。また、既存の中性子施設における中性子強度は、放射光施設に比べて約5桁も強度が低いことから、中性子顕微鏡を利用してマイクロな構造を十分浮かび上がらせるためには、より一層の性能向上が不可欠である。

本研究では、前述の中性子顕微鏡の最大の課題である中性子強度の不足を克服し、より実用的な顕微鏡を開発するため、高開口率を有するWolter型拡大結像光学系に、幅広い波長の中性子を利用可能とする多層膜スーパーミラーを適用する技術開発を進めている。本中性子磁気顕微鏡が目標とする空間分解能は、マイクロメートルオーダーであり、代表的な観察対象には、高効率モーター用磁性材料の耐熱性向上に向けた磁区評価などが挙げられる。当該材料は、着磁後の高温環境で、マイクロメートル前後のスケールでの逆磁区の発生などによる保持力の低下問題などが指摘されており、中性子を用いた評価技術の高度化による組織制御などの材料開発が期待される。

Wolter型スーパーミラーは、レプリカ法を用いて製作するものとしており、PCVM

(Plasma Chemical Vaporization Machining) を用いた精密形状創成法によって加工した合成石英マンドレル (母材) ¹⁵⁾ に、イオンビームスパッタ法で多層膜スーパーミラー^{16),17)} を成膜し、その上からニッケル電鍍膜をつけ、マンドレルを引き抜くことで、自立型スーパーミラーを構築する。本稿は、Wolter I 型スーパーミラーの拡大結像光学系の基本設計について検討するとともに、3次元軌跡シミュレーションによる Wolter スーパーミラーの集光性能評価、ミラー形状精度と空間分解能の関係について検討を行い、製作したマンドレルの形状評価の検討に資することを目的としている。

2. 中性子顕微鏡用 Wolter ミラーの基本光学設計

Wolter 型光学系 ¹⁹⁾ は、回転楕円面と回転双曲面をタンデムに組み合わせた斜入射光学系で、近似的にアッペの正弦条件を満たしコマ収差を低減したもので、X 線の顕微鏡や望遠鏡などに利用されている。Fig.2.1 は、Wolter I 型の拡大結像光学系を示したもので、試料点 F_2 から出射した光線が、回転双曲面と回転楕円面で 2 回反射し像点に結像される。この光学系の拡大率 M は、試料位置からの出射角 θ_s と結像位置への入射角 θ_i の比で定義される ($M = \theta_s / \theta_i$)。以下、解析的手法にて光学系の設計検討を行った。

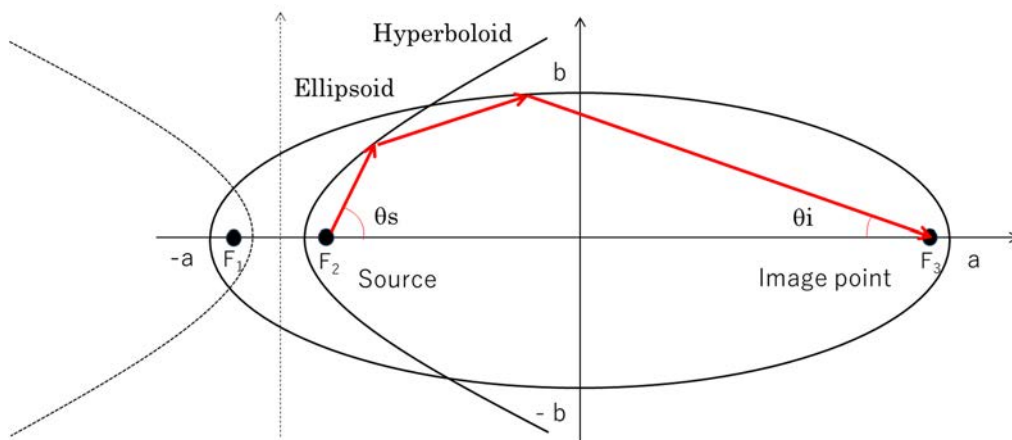
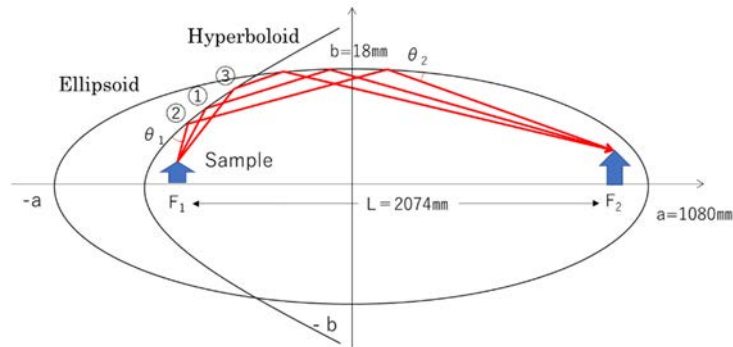


Fig.2.1 Imaging optics of Wolter type I mirror

Fig.2.2 は、拡大率を 12.5 倍とした光学系で、回転楕円面のパラメータを $a = 1080 \text{ mm}$ 、 $b = 18 \text{ mm}$ 、回転双曲面のパラメータを $a = 42.8 \text{ mm}$ 、 $c = 2.53 \text{ mm}$ と定義した。試料点 F_2 から出射した各々の角度の中性子について、回転双曲面と回転楕円面での反射角を示している。中性子で用いるニッケル鏡 ($m = 1$) は、低速中性子に対して 578 \AA/rad の全反射臨界波長を有しており、 1 \AA の中性子は $1.73 \times 10^{-3} \text{ rad}$ (0.1°) の臨界角を有する。ニッケルとチタンの多層膜を積層させたスーパーミラー ($m = 4$) を採用した場合、ニッケル鏡のもつ全反射臨界波長の $1/m$ まで短い波長を反射することができる。また、同じ波長

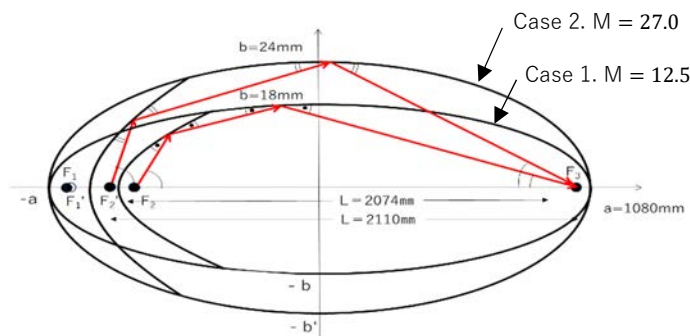
ならば m 倍の臨界角まで反射することが可能となる。中央の軌跡①（反射角 $\theta_1 = \theta_2$ ）ではスーパーミラー（ $m = 4$ ）の場合、 3.3 \AA 以上の中性子を反射することが出来るが、②及び③の反射ではより大きな反射角で反射条件を満足する必要があるため臨界波長は $6 \sim 7.5 \text{ \AA}$ と、利用可能な中性子の波長範囲はより長波長に制限される。



	Incident angle on hyperboloid (Critical wavelength at $m = 4$)	Incident angle on ellipsoid (Critical wavelength at $m = 4$)
①	$\theta_1 = 1.3 \text{ deg. (} 3.3 \text{ \AA)}$	$\theta_2 = 1.3 \text{ deg. (} 3.3 \text{ \AA)}$
②	$\theta_1 = 2.4 \text{ deg. (} 6 \text{ \AA)}$	$\theta_2 = 1.0 \text{ deg. (} 2.5 \text{ \AA)}$
③	$\theta_1 = 1.1 \text{ deg. (} 2.8 \text{ \AA)}$	$\theta_2 = 3.0 \text{ deg. (} 7.5 \text{ \AA)}$

Fig. 2.2 Critical wavelength on the Wolter supermirror with $m = 4$

Fig.2.3 は、拡大率をパラメータとした拡大結像光学系の設計例で、回転楕円面の焦点間の長さをほぼ一定として、拡大率を 12.5 倍、27.0 倍を設定した。各々の倍率の光学系で、両曲面での反射角が等しい軌跡の反射角は、各々 1.3° 、 2.2° となり、反射面にスーパーミラー（ $m = 4$ ）を用いた場合、反射可能な臨界波長は各々 3.3 \AA 、 5.7 \AA となり、拡大率が増加するとともに、利用可能な中性子波長は長波長に制限される。



	Magnification ratio	Reflection angle θ (degree)	Critical wavelength on supermirror with $m = 4$ (\AA)
1	12.5	1.3	3.3
2	27.0	2.2	5.7

Fig. 2.3 Wolter supermirror optics with magnification ratio of 12.5 and 27

Wolter 光学系の理想形状においても、試料点から出射する光線は、光軸から外れるにつれてアッペの正弦条件を満足しなくなる。Fig.2.4 は、拡大率 12.5 倍の光学系において、試料位置において中性子が出射する点の軸から外れた距離をパラメータとして、像点における拡大率のゆがみを示したものである。一定範囲内では、拡大率はほぼ一定となるが、半径 1 mm を超えた領域で、コマ収差が無視できなくなり、急激に拡大率が減少することがわかる。このことから、当該光学系での適切な観察範囲は、直径 2 mm 程度となる。マイクロメートルオーダーで試料を観察するうえで、十分な広さの視野である。

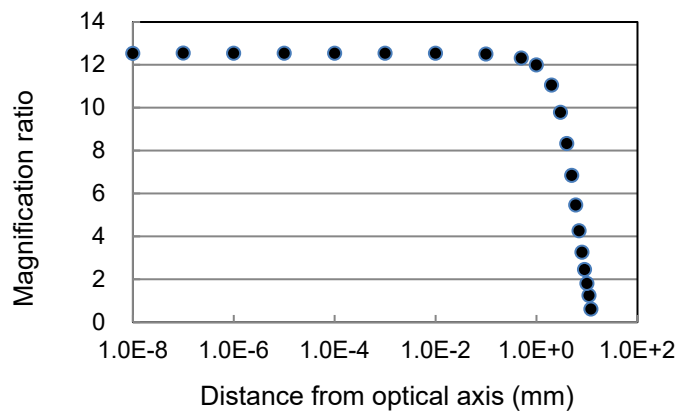


Fig. 2.4 Magnification ratio near the optical axis

製作する中性子顕微鏡用ミラーでは、加工精度に伴う形状誤差が収差の原因となる。Fig.2.5 は、拡大率を 12.5 倍とした光学系において、試料点から出射した中性子が回転双曲面ミラーの 1 点での形状誤差によって、像点に生じる変化を示したものである。Slope 誤差 0.01 mrad (例として 1mm の加工範囲で 10 nm の誤差) によって、8.2 μm の変化となる。

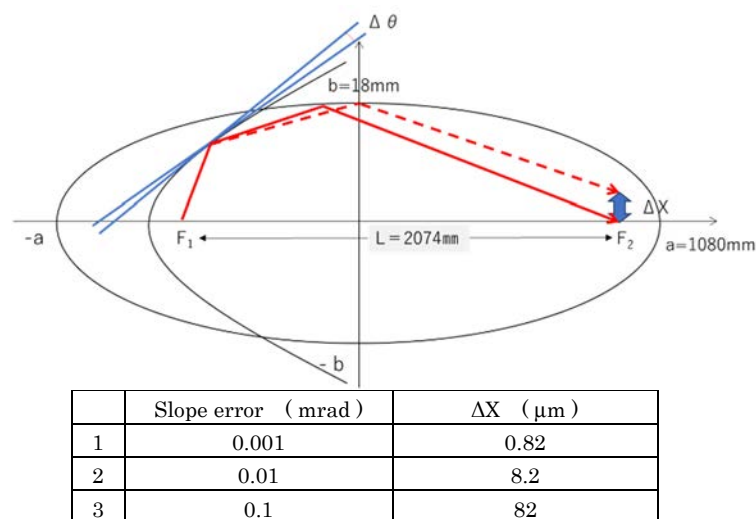


Fig. 2.5 Image point deviation due to shaping error on the Wolter mirror

以上、中性子顕微鏡用 Wolter ミラーにスーパーミラー ($m = 4$) を適用することによって、既存の中性子顕微鏡の拡大倍率を上回る 12.5 倍、27 倍の光学系において、それぞれ冷中性子源で最も高い強度をもつ 3 ~ 4 Å 付近の中性子や、比較的強度の高い 6 Å 前後の中性子を利用できることを示した。また、Wolter ミラーの視野範囲や、マイクロメートルオーダーの空間分解能をもつ観察に必要な合成石英マンドレルの形状精度とのおおまかな関係を得た。

3. Wolter スーパーミラーの中性子軌跡シミュレーション

本章では、Wolter I 型スーパーミラーの 3 次元軌跡シミュレーションコードを Ray Trace 法を用いて作成し、光学系の結像性能確認を行った。中性子の発生源は試料位置直前とし、回転双曲面と回転楕円面をトロイダルに配置し、像点に検出器 (ピクセル寸法 1 μm 角又は 10 μm 角) を配置して結像イメージを記録した。回転双曲面と回転楕円面の反射計算のアルゴリズムには Gauss-Jordan 法を用いた。スーパーミラーの反射率は、Fig.3.1 に示す通り $m = 3$ (ニッケルの全反射臨界波長 578 Å/rad の 1/3) で 90% とした。

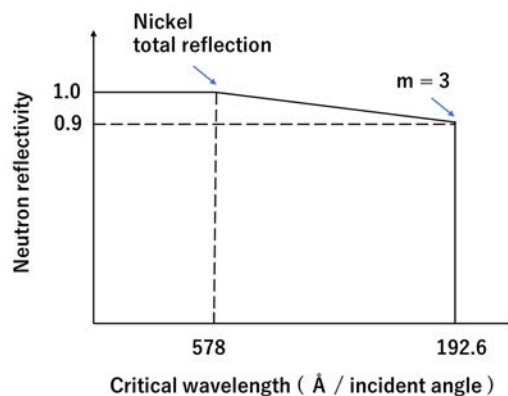


Fig. 3.1 Neutron reflectivity of the supermirror assumed in the simulation

Wolter ミラーの形状誤差は、正規分布 (平均値 0) からの偏差として乱数を発生させる。例として標準偏差 $\sigma = 1 \text{ e-}5$ (形状誤差が $\pm 1 \text{ e-}5 \text{ rad}$ 以内である確率が 68%) と設定した。作図には Python の Matplotlib ライブラリを使用した。

Fig.3.2 は、拡大率 12.5 倍の光学系で、回転楕円面と回転双曲面のパラメータは、2 章と同様で、回転楕円のパラメータを $a = 1080 \text{ mm}$ 、 $b = 18 \text{ mm}$ 、回転双曲面のパラメータを $a = 42.8 \text{ mm}$ 、 $c = 2.53 \text{ mm}$ と定義した。検出器位置にピクセル寸法縦横 1 μm 角又は 10 μm 角の検出器を配置している。

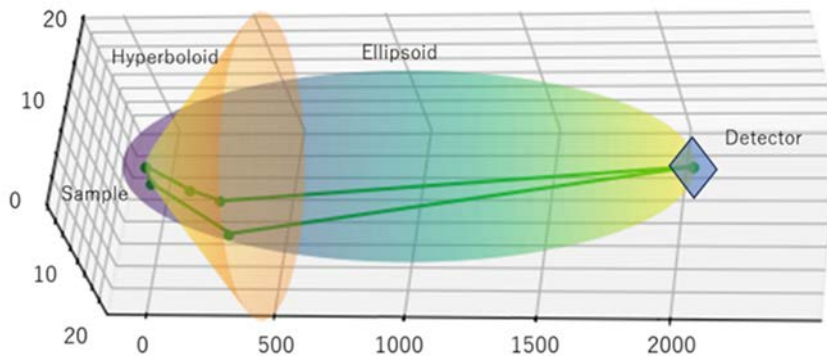


Fig. 3.2 Simulation geometry of a neutron microscope with Wolter type I mirror

Fig.3.3 に、Wolter 光学系の結像性能の確認を目的とした 3 次元軌跡シミュレーションの結果を示す。この際、試料位置の Y-Z 象限の一つに、縦横 $10\ \mu\text{m}$ で、 $1\ \mu\text{m}$ 間隔の線源ポイントを設定し、中性子（波長 $8\ \text{\AA}$ ）を発生させ、回転楕円面と回転双曲面の反射面では、スーパーミラー（ $m = 3$ 、90%）の反射率を用い、ミラーの形状誤差を無しにした場合に、像点（検出器位置）に結像した 2 次元中性子分布を示している。検出器のピクセル幅は縦横 $1\ \mu\text{m}$ であり、Y、Z 軸の目盛り 20 は $20\ \mu\text{m}$ にあたる。 $10\ \mu\text{m}$ 幅の試料は、12.5 倍の拡大光学系によって、 $125\ \mu\text{m}$ に拡大されている。Wolter 光学系では近似的にアッペの正弦条件を満たしコマ収差を低減しており、中心部分ではコマ収差が見られないが、軸から外れた周辺部では、わずかにコマ収差が表れている。また、当該範囲内で、結像倍率は等しくなっている。

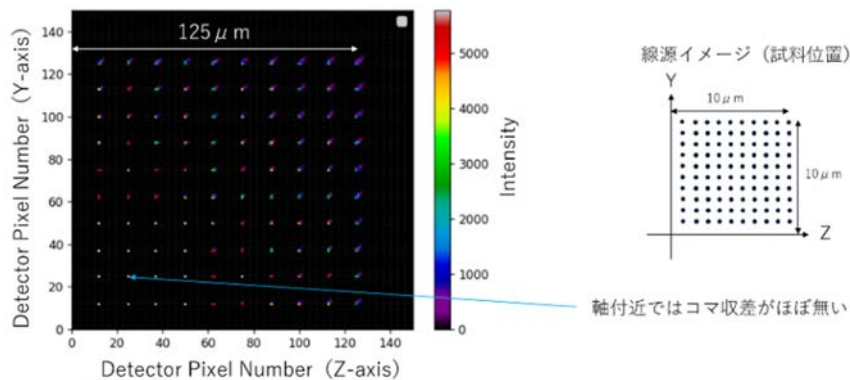


Fig. 3.3 Focusing images of point sources at the detector surface

次に、試料（ $50\ \mu\text{m}$ 角）を想定し、回転楕円面と回転双曲面の反射面に、スーパーミラー（ $m = 3$ 、臨界角の反射率 0.90）を設定した光学系について、拡大率 12.5 倍の軌跡シミュレーションを行った。試料位置（ $50\ \mu\text{m}$ 角）から発生する中性子線（波長 $8\ \text{\AA}$ ）の座標は疑似乱数により設定し、合計 $4 \times 10^{+8}$ 個を発生させた。この中性子数は、 $1\ \text{cm}^2$ 当たり約 $1.6 \times 10^{+13}$ 個に相当し、 $2 \times 10^{+8} / \text{cm}^2 / \text{sec}$ の中性子強度を有するビームポートで 80,000 秒

の照射時間に相当する。検出器（ピクセル 10 μm 角）位置での拡大イメージの 2 次元分布図及び Z 軸方向に積算して Y 軸方向の 1 次元に投影した図を Fig.3.4 に示す。試料位置での 50 μm 角の試料イメージ（線源）が Y 軸、Z 軸方向に 625 μm 角に拡大されている。

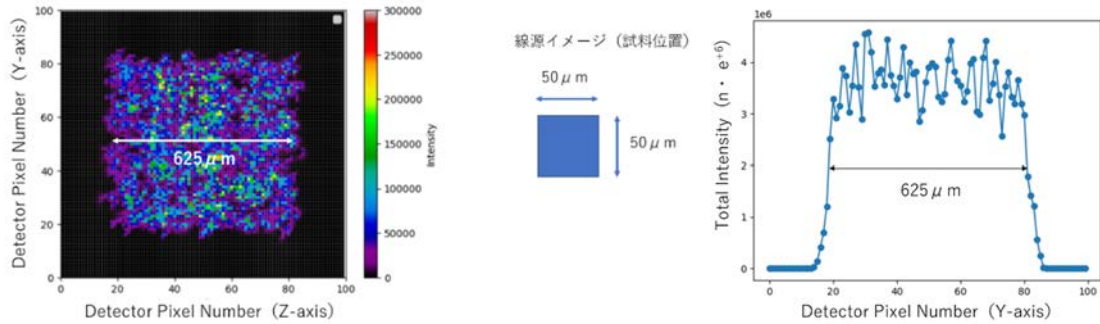


Fig. 3.4 Focusing image of a square source at the detector surface

以上、作成した 3 次元軌跡シミュレーションコードの結果、スーパーミラー (m = 3) を用いた波長 8 Å の中性子の拡大結像光学系について、基本的な結像性能であるコマ収差や拡大率の確認を行うとともに、実際に測定で得られる中性子強度の評価を行った。

4. Wolter スーパーミラーの偏極中性子シミュレーション

本章では、偏極中性子が、磁性体内部の磁区等を通る際に、磁場によって偏極度が変化する状態をシミュレーションし可視化する。偏極中性子が、強磁性体の磁場中を通る時、古典的には Larmor 歳差運動 ($\omega = -2\mu B/\hbar$) を行い、偏極度が変化する (Fig.4.1)。O. Halpern ら²⁰⁾ は、磁性体の個々のドメインの磁場中の Larmor 歳差運動による偏極度の変化を 1 次元で定式化した。さらに、M.T. Recvelt はこれを 3 次元に拡張し、(3×3) の Depolarization Matrix **D** を用いて定式化した²¹⁾。偏極中性子は、以下の式の通り平均スピ成分 $\langle \mu \rangle$ のプリセッションに従っており、**B** は磁性体内の磁場として扱われる。

$$\frac{d}{dt} \langle \mu \rangle = \gamma \langle \mu \rangle \times \mathbf{B} \quad \dots \dots \dots (4.1)$$

Z 方向の一様な磁場 **B** のもとで、 $\langle \mu_x(t) \rangle$ と $\langle \mu_y(t) \rangle$ は、Larmor 歳差運動しているが、 $\langle \mu_z(t) \rangle$ は、一定値を保つことから、 $\langle \mu(t) \rangle$ は、z 軸と一定の角をなして、Z 軸の周りで次式のように歳差運動をしている。

$$\langle \mu_x(t) \rangle = \frac{\gamma \hbar}{2} \sin \theta \cos(\delta - \omega t) \quad \dots \dots \dots (4.2)$$

$$\langle \mu_y(t) \rangle = \frac{\gamma \hbar}{2} \sin \theta \sin(\delta - \omega t) \quad \dots \dots \dots (4.3)$$

$$\langle \mu_z(t) \rangle = \frac{\gamma \hbar}{2} \cos \theta \quad \dots \dots \dots (4.4)$$

δ は、波動関数の規格化条件と、 $\langle \mu(t) \rangle$ と z 軸の間の角度 θ で表される²²⁾。本シミュレーションでは、磁性体試料以外の空間では、無磁場を仮定する。

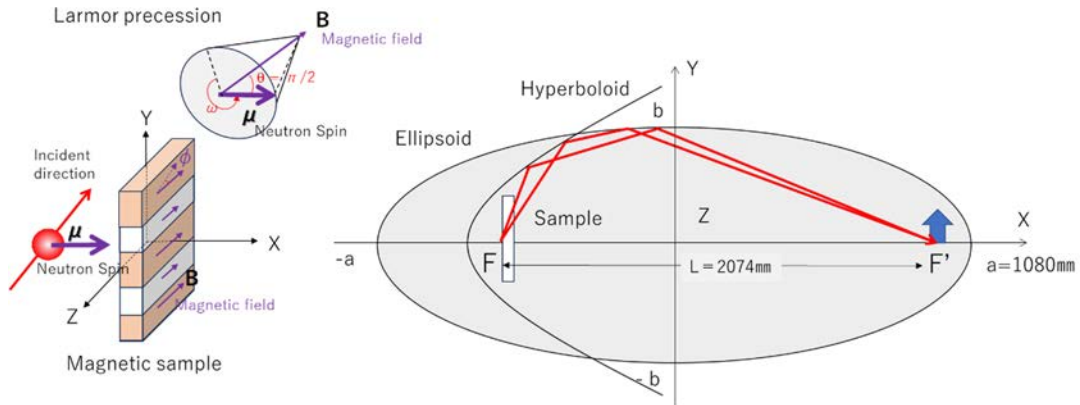


Fig. 4.1 Schematic diagram of neutron spin precession in the magnetic field

まず、磁性薄膜（縦 $50 \mu\text{m}$ × 横 $50 \mu\text{m}$ 、厚さ $1 \mu\text{m}$ ）を試料位置 F に設置し、試料内に 1 T 及び 0.1 T の一様な磁場を有する磁区が $10 \mu\text{m}$ 間隔で面内に並んでいる場合（Fig.4.1 及び Fig.4.2）に、偏極中性子が試料膜厚方向を透過しながら、depolarize する様子をシミュレートした結果を Fig. 4.3 に示す。偏極中性子は、ドメイン内の磁場 B 中で、プリセッションを行う。Wolter ミラー光学系では、入射中性子が光軸に対してある角度範囲を持って入射するため、磁性体を透過する厚さには分布が生じる。偏極度の変化は、この有効ドメイン長と中性子速度 v から算出される。中性子スピンの、試料面内方向の磁場に垂直 ($\theta = \pi/2$) に入射し、面内に並ぶ磁気モーメントの角度を $\phi = 0$ 、中性子波長が 8 \AA （速度 494.5 m/sec ）の時、 1 T の磁性体内（厚さ $1 \mu\text{m}$ ）を通過する場合、 10.5° のプリセッションを行うことになり、偏極度は 0.9830 に低下する。一方、 0.1 T の場合、偏極度は 0.9998 となる。尚、本シミュレーションでは、スーパーミラー ($m = 3$ 、臨界角の反射率 0.90) を使い、中性子（波長 8 \AA ）を 4.0×10^8 個を発生させ、検出器のピクセルは $10 \mu\text{m}$ 角としている。ミラーの形状誤差は $\sigma = 1.0 \times 10^{-5}$ とした。拡大された磁区の境界の偏極度は、偏極度の異なる中性子が同一ピクセルに混入することで、中間の偏極度を示している。

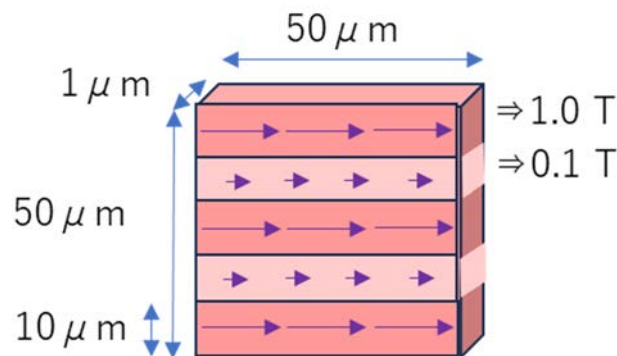


Fig. 4.2 Magnetic fields in the magnetic domain

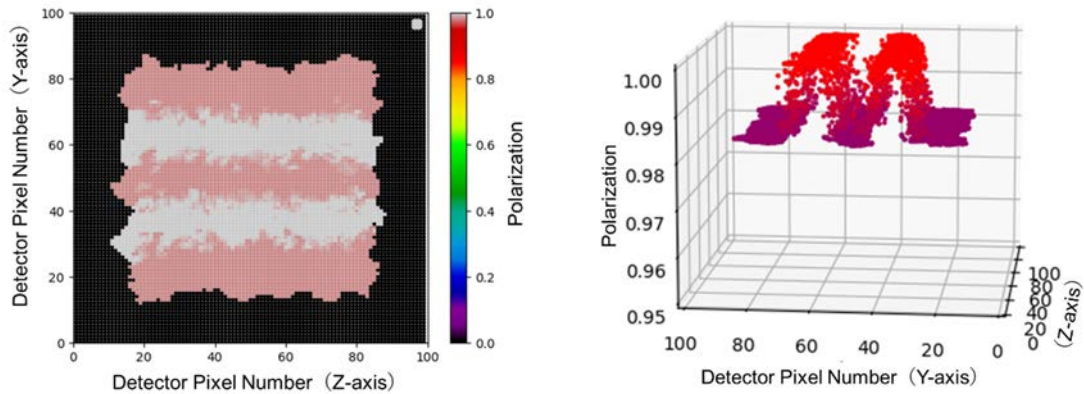


Fig.4.3 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with a dimension of $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$

以上、作成した 3 次元軌跡シミュレーションコードを用いて、スーパーミラーを用いた Wolter I 型拡大光学系における磁性体による偏極中性子の depolarization のシミュレーションとその可視化を行った。合成石英マンドレルの形状精度を写し取った Wolter ミラーの形状誤差により、顕微鏡で観察される磁性体試料の磁場の拡大像において、像の境界のボケが偏極度の変化として表されることを示した。

5. Wolter スーパーミラーの形状誤差と空間分解能シミュレーション

本研究では、レプリカ法を用いて合成石英ガラス製の母型（マンドレル）から Wolter ミラーを作製することから、ミラーの形状誤差が顕微鏡の空間分解能に影響を与える。このため形状誤差と空間分解能の関係について検討を行った。

試料として、磁性薄膜（縦 $50 \mu\text{m}$ ×横 $50 \mu\text{m}$ 、厚さ $1 \mu\text{m}$ ）内に、 1 T 及び 0.1 T の一様な磁場を有する磁区が $2 \mu\text{m}$ 間隔で面内に並んでいるとした場合（Fig.5.1）に、中性子スピンの試料面に対して垂直方向に入射して、depolarize する様子をシミュレーションした結果を Fig.5.2 に示す。この際、シミュレーションにおけるミラーの形状誤差について、Slope の誤差を正規分布として与え、標準偏差 $\sigma = 5.0\text{e-}6 \text{ rad}$ とした。尚、本シミュレーションでは、スーパーミラー（ $m = 3$ 、臨界角の反射率 0.90 ）を用い、中性子（波長 8 \AA ）を $4.0\text{e}+8$ 個を発生させ、検出器のピクセルは $10 \mu\text{m}$ 角としている。その結果、 12.5 倍の拡大率を有した顕微鏡において、検出器位置では、 $2 \mu\text{m}$ 間隔の磁区は偏極度の違いを十分に判別できることがわかる。偏極度は 4 章と同様で、 1 T の場合、 0.9830 に、 0.1 T の場合、 0.9998 に低下している。拡大された磁区の境界の偏極度は、偏極度の異なる中性子が同一ピクセルに混入することで、中間の偏極度を示している。

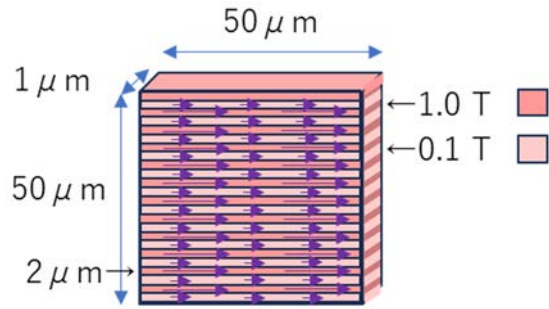


Fig. 5.1 Magnetic fields in the magnetic domain

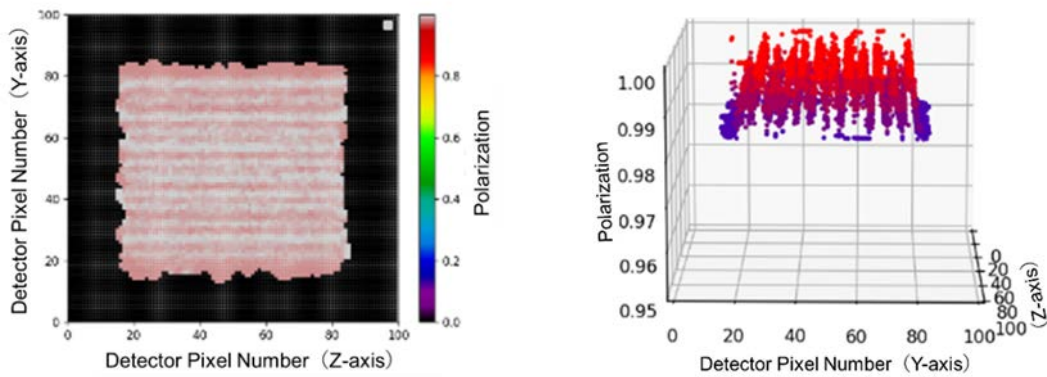


Fig. 5.2 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with a dimension of $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ with a slope error of $\sigma = 5.0\text{e-}6$

一方、形状誤差として、標準偏差 σ を $1.0\text{e-}5 \text{ rad}$ とした場合のシミュレーション結果を Fig.5.3 に示す。形状誤差による影響により、検出器位置では、1 T と 0.1 T の $2 \mu\text{m}$ 間隔の磁区を通過した偏極中性子の偏極度の違いは明確には判別できない。

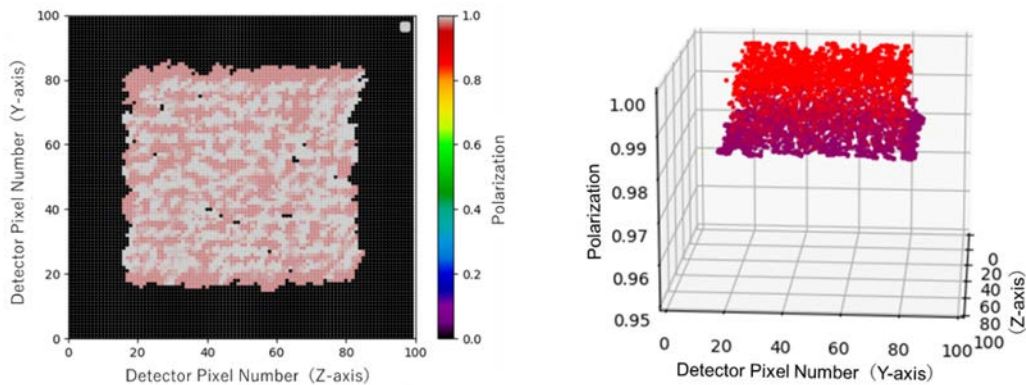


Fig. 5.3 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with a dimension of $50 \mu\text{m} \times 50 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$ with a slope error of $\sigma = 1.0\text{e-}5$

6. 入射中性子ビーム発散と偏極度シミュレーション

Wolter ミラー光学系では、入射中性子が光軸に対してある範囲の発散角度を持って入射するため (Fig.4.1 参照)、試料である磁性薄膜を透過する有効距離は中性子の入射角度により変化する。このため、入射中性子ビームの発散角が大きくなると、一様な磁場をもつ磁性薄膜を透過しても、偏極度の測定値にばらつきが発生する可能性がある。

本章では、磁性薄膜 (縦 $50 \mu\text{m}$ × 横 $50 \mu\text{m}$ 、厚さ $1 \mu\text{m}$) 内に、 1 T 及び 0.1 T の一様な磁場を有する磁区が $10 \mu\text{m}$ 間隔で面内に存在している場合において、中性子ビームの発散角 $0.063 \text{ rad} \sim 0.126 \text{ rad}$ が入射した場合と、中性子ビームの発散角を $0.073 \text{ rad} \sim 0.086 \text{ rad}$ に絞った場合の偏極度を比較した。

Fig.4.1 のとおり、波長 8 \AA (494.5 m/sec)、偏極度 100% の中性子が、偏極方向に垂直な磁場 (1 T) を持つ厚さ $1 \mu\text{m}$ の磁性薄膜を通過するものとする。この際、中性子の光軸に対する角度が 0.063 rad と 0.126 rad の場合、磁性薄膜の通過距離は 0.6% 増加し、中性子の偏極度 $\cos(9.110617\text{E}+7 * \text{通過時間} * \text{磁場})$ は、 0.983009 に対して 0.982805 となりその変化は、 0.02% の減少となる。同様に、中性子の光軸に対する角度が 0.073 rad と 0.086 rad の場合、磁性薄膜の通過距離の変化は 0.1% の増加で、中性子の偏極度 $\cos(9.110617\text{e}+7 * \text{通過時間}(\text{s}) * \text{磁場}(\text{T}))$ は、 0.982986 に対して 0.982951 となりその変化は、 0.004% の減少となる。

両方の発散角の場合について 3 次元軌跡シミュレーションを行った結果を Fig.6.1 及び Fig.6.2 に示す。本シミュレーションでは、中性子の発生数は $2.0\text{e}+6$ 、検出器のピクセルは $10 \mu\text{m}$ 角とした。その結果、前述の計算結果の通り、解析された偏極度の値にばらつきはほとんど無く、入射する中性子の角度発散の増減による有効距離の変化は、偏極度にはほとんど影響を与えない。また、当該シミュレーションでは、Wolter ミラーの形状精度 σ を $1.0\text{e}-6$ と非常に小さくしており、 1 T と 0.1 T の磁区の境界は、より明確に可視化されている。

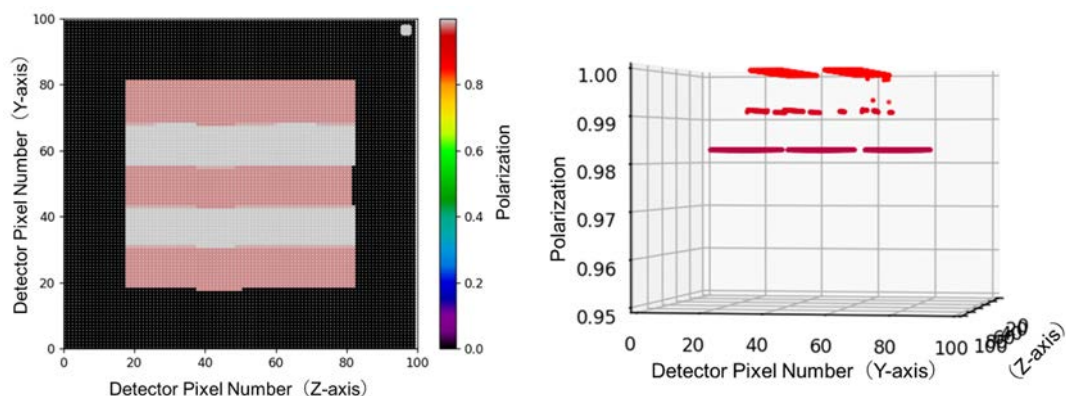


Fig. 6.1 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with an incident beam divergence between $0.063 \text{ rad} \sim 0.126 \text{ rad}$

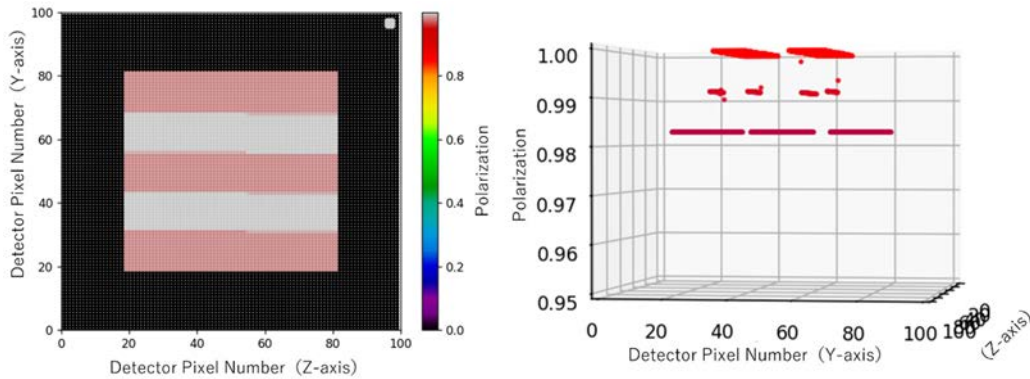


Fig. 6.2 Neutron depolarization image simulated on the Wolter supermirror for the stripe magnetic domain with an incident beam divergence between 0.073 rad ~ 0.086 rad

7. 結論

本稿では、多層膜スーパーミラーを応用した **Wolter I** 型拡大結像光学系に基づく中性子磁気顕微鏡について、解析的な手法を用いた基本設計と、作成した 3 次元軌跡シミュレーションコードによる詳細設計を行った。

本顕微鏡の基本仕様としては、多層膜スーパーミラー ($m = 4$) を応用することによって、多くの冷中性子源施設において最も強度の高い中性子として利用されている 3 Å 付近の中性子を利用することを可能とし、かつ、12.5 倍の拡大率と、視野直径 2 mm の光学系を構築した。

3 次元軌跡シミュレーションコードによる詳細設計では、**Wolter I** 型拡大光学系の結像性能の確認のため、試料位置に多数のポイント線源を配置し、検出器位置での拡大結像性能を確認した。その結果、**Wolter** ミラー光軸付近ではアッペの正弦条件を満たし、コマ収差の無い極めて優れた結像性能を示すことを確認した。また、 $m = 3$ スーパーミラーを応用した場合で、かつ実際の中性子源強度を想定した場合の拡大イメージのシミュレーションを行い、可視化像のイメージを得た。

次に、偏極中性子が磁性体内で、古典的な Larmor 歳差運動を行うことを想定して、3 次元軌跡シミュレーションコードを用い、磁性薄膜 (縦 50 μm × 横 50 μm 、厚さ 1 μm) 内に、1 T 及び 0.1 T のような磁場を有する磁区が 10 μm 又は 2 μm 幅でストライプ状に存在する状態で、偏極中性子が depolarization する拡大イメージングのシミュレーションを行い、可視化像のイメージを得た。

3 次元軌跡シミュレーションコードによる詳細計算の結果、以下の 2 点を明らかにした。レプリカ法で作製される **Wolter** ミラーマンドレルの形状誤差が顕微鏡の空間分解能へ与え

る影響を検討するため、中性子反射の際の Slope 誤差を正規分布に基づく疑似乱数として発生させその影響を検討した。その結果、2 μm 幅の磁区を観察するためには、形状誤差として $\sigma < 5.0\text{e-}6$ 程度を満足する必要があることがわかった。

また、その際、Wolter ミラー光学系では、入射中性子が光軸に対してある範囲の発散角度を持って入射するため、磁性薄膜を透過する有効厚さが角度により変化する。この影響について、入射する中性子ビームの発散と偏極度の関係について 3 次元軌跡シミュレーションコードを用いて検討を行った。その結果、ビームの発散角は中性子の偏極度にほとんど影響しないことを確認した。

本研究では、Wolter スーパーミラーと、高分解能 2 次元検出器と組み合わせた顕微鏡システムを構築し、この拡大光学系で動作する偏極中性子を用いた磁気顕微鏡の開発を進めている。Wolter スーパーミラーは、レプリカ法を用いて製作するものとしており、プラズマ CVM 法によって製作された高形状精度のマンドレルについて、本シミュレーション結果を用いて、顕微鏡の性能評価を行う計画である。

これにより、マイクロメートルオーダーの空間分解能を持つ中性子顕微鏡を構築し、電動モーターや変圧器に用いられる電磁鋼や、様々な工業磁性材料を対象とした、中性子による磁性評価技術の開発を進め、磁気工学等の進展に貢献する。

謝辞

中村龍也中性子基盤セクションリーダーには、研究全般への助言と研究環境整備への多くの助力を頂いた。

本研究は JSPS 科学研究費基盤研究 B (JP20H04457) の助成を受けて実施された。

参考文献

- 1) Ando, M. and Hosoya, S., Q-Switch and Polarization Domains in Antiferromagnetic Chromium Observed with Neutron-Diffraction Topography, Phys. Rev. Lett., vol. 29, no. 5, pp.281–285 (1972).
- 2) Schlenkert, M. and Shull, C. G., Polarized neutron techniques for the observation of ferromagnetic domains, J. Appl. Phys., vol.44, no.9, pp.4181–4184 (1973).
- 3) Kardjilov, N., Manke, I., Strobl, M., Hilger, A., Treimer, W., Meissner, M., Krist, T. and

- Banhart, J., Three-dimensional imaging of magnetic fields with polarized neutrons, *Nat. Phys.*, vol.4, no.5, pp.399–403 (2008).
- 4) Hiroi, K., Shinohara, T., Hayashida, H., Parker, J. D., Oikawa, K., Harada, M., Su, Y. and Kai, T., Magnetic field imaging of a model electric motor using polarized pulsed neutrons at J-PARC/MLF, *J. Phys.: Conf. Ser.* vol.862, 012008 (2017).
- 5) Grünzweig, C., David, C., Bunk, O., Dierolf, M., Frei, G., Kühne, G., Kohlbrecher, J., Schäfer, R., Lejcek, P., Rønnow, H. M. R., and Pfeiffer, F., Neutron decoherence imaging for visualizing bulk magnetic domain structures, *Phys. Rev. Lett.*, vol.101, 025504 (2008).
- 6) Hayashida, H. et al., Demonstration of magnetic field imaging in a permalloy film with neutron spin phase contrast imaging, *Nucl. Instr. and Meth. A*, vol.634, no.1, Suppl.1, pp. S90–S93 (2011).
- 7) Strobl, M., Heimonen, H., Schmidt, S., Sales, M., Kardjilov, N., Hilger, A., Manke, I., Shinohara, T., and Valsecchi, J., Polarization measurements in neutron imaging, *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 52 (2019) 123001.
- 8) Schmahl, G., Rudolph, D., Guttman, P., Schneider, G., Thieme, J., Niemann, B. and Wilhelm, T., Phase contrast X-ray microscopy, *Synchrotron Radiation News*, vol.7, no.4, pp.19–22 (1994).
- 9) Thole, B. T., Carra, P., Sette, F., and G. van der Laan, X-ray circular dichroism as a probe of orbital magnetization, *Phys. Rev. Lett.*, vol.68, no.12, pp.1943–1946 (1992).
- 10) Kearney, P. D., Klein, A. G., Opat, G. I. & Gähler R., Imaging and focusing of neutrons by a zone plate, *Nature*, vol.287, pp.313–314 (1980).
- 11) Liu, D., Hussey, D., Gubarev, M. V., Ramsey, B. D., Jacobson, D., Arif, M., Moncton, D. E., Khaykovich, B., Demonstration of achromatic cold-neutron microscope utilizing axisymmetric focusing mirrors, *Appl. Phys. Lett.*, vol.102, 183508 (2013).
- 12) Herrmann, P., Steinhauser, K. A., Gähler, R., Steyerl, A., and Mampe, W., Neutron Microscope, *Phys. Rev. Lett.*, vol.54, pp.1969–1972 (1985).
- 13) Hussey, D., Cyrus Daugherty M., Kim, Y., LaManna, J. M. and Jacobson, D., Fuel Cell Imaging with a Wolter Optics Neutron Microscope, *ECS Meeting Abstracts*, (2022) DOI:10.1149/MA2022-02391449mtgabs
- 14) Liu, D., Hussey, D., Gubarev, M. V., Ramsey, B. D., Jacobson, D., Arif, M., Moncton, D. E., Khaykovich, B., Demonstration of achromatic cold-neutron microscope utilizing axisymmetric focusing mirrors, *Appl. Phys. Lett.*, vol.102, 183508 (2013).
- 15) Jorba, P., Schulz, M., Hussey, D. S., Abir, M., Seifert, M., Tsurkan, V., Loidl, A., Pfleiderer, C., Khaykovich, B., High-resolution neutron depolarization microscopy of the ferromagnetic transitions in Ni_3Al and HgCr_2Se_4 under pressure, *J. Magn. and Magn. Mater.*, vol.475, pp.176–183, (2019).

- 16) 須場健太, 山本有悟, 川合健太郎, 有馬健太, 山村和也, 他, 中性子集光用高精度 Wolter ミラーマンドレルの作製 (第 13 報) –PCVM 加工後の表面粗さ悪化要因の究明とその対策–, 2022 年度精密工学会春季大会精密工学会学術講演会講演論文集, pp.117–118 (2023).
- 17) Maruyama, R., Yamazaki, D., Ebisawa, T., Hino, M., Soyama, K., Development of neutron supermirrors with large critical angle, *Thin Solid Films*, vol.515, no.14, pp. 5704–5706 (2007).
- 18) Yamazaki, D., Maruyama, R., Soyama, K., Takai, H., Nagano, M. and Yamamura, K., Neutron beam focusing using large-m supermirrors coated on precisely-figured aspheric surfaces, *J. Phys.: Conf. Ser.*, 251 012076 (2010).
- 19) Wolter, H., Glancing Incidence Mirror Systems as Imaging Optics for X-rays, *Annalen der Physik*, vol.445, nos.1-2, pp.94–114 (1952).
- 20) Halpern, O. and Holstein, T., On the Passage of Neutrons Through Ferromagnets *Physical Review*, vol.59, no.12, pp.960–981 (1941).
- 21) Rekveldt, M. Th., Study of ferromagnetic bulk domains by neutron depolarization in three dimensions, *Z. Physik*, vol.259, pp.391–410 (1973).
- 22) 金沢秀夫, 小出昭一郎, 量子力学演習, 朝倉物理学講座 14, 朝倉書店, 201p. (1966).

This is a blank page.

