成果報告書

「中性子ビーム利用高度化技術の開発」 (中性子ビーム集光システムおよび偏極中性子散乱実験システムの 評価と応用に関する研究)

平成23年11月 国立大学法人東北大学

本報告書は、文部科学省の科学技術試験研究委託 事業による委託業務として、国立大学法人東北大学 が実施した平成22年度「中性子ビーム利用高度化 技術の開発」(中性子ビーム集光システムおよび偏 極中性子散乱実験システムの評価と応用に関する 研究)の成果を取りまとめたものです。

1. 委託業務の目的

「中性子ビーム利用高度化技術の開発」

(中性子ビーム集光システムおよび偏極中性子散乱実験システムの評価と応用に 関する研究)

中性子偏極・集光・検出及びイメージングなどの中性子ビーム基盤技術研究を発展させ、その基盤技術をJ-PARC及びJRR-3の中性子科学研究施設の高角散乱、小角散乱、イメージングの実験装置に導入し、中性子ビームの高品質化、高輝度化、高精度化を実現することで、これまで出来なかったナノ領域からミクロ領域の階層的な磁性、軽元素、構造歪み、ダイナミックスなどの高精度の中性子計測を可能にすることを目的とする。

このため、独立行政法人日本原子力研究開発機構、国立大学法人北海道大学、国立大学法人東北大学、大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構、国立大学法人東京大学、国立大学法人京都大学と共同で業務を行う。

国立大学法人東北大学では、中性子ビーム集光システムおよび偏極中性子散乱実験システムの評価と応用に関する研究を実施する。

2. 平成22年度の実施内容

2.1 実施計画

① 中性子ビーム集光システムおよび偏極中性子散乱実験システムの評価と応用に関する研究

平成22年度には、次の2点をおこなう。

(a) 中性子ビーム集光:

茨城県東海村のJRR-3の中性子散乱装置用の大型集光モノクロメータを導入し、既存装置でのビームの高輝度化およびその性能評価に着手する。そのためSi,Ge単結晶でのモノクロメータ作成、Cuモノクロメータ作成のためのCu単結晶作成を進める。

(b)偏極中性子散乱実験:

高性能の偏極中性子散乱実験システムの構築には、その心臓部である³He偏極フィルターの磁気シールドを始めとする磁場環境の整備が重要である。磁気シールド、スピンフリッパーなどのスピンコントロールデバイスについてこれまでに行った計算・性能評価をもとに、JRR-3での単色定常中性子ビームに導入し、中性子ビームの偏極化に着手する。そのためにスピンフリッパーやコイルなどスピンコントロールデバイスの実機を作成する。

2.2 実施内容(成果)

① 中性子ビーム集光システムおよび偏極中性子散乱実験システムの評価と応用に関する研究

(a) 中性子ビーム集光

³He偏極フィルターを利用する偏極中性子散乱実験では、中性子ビーム集光により試料位置でのビームの輝度を十分に高めることが重要である。また、偏極実験に限らず、あらゆる先端研究において、高輝度ビームは必要不可欠であるため、中性子ビーム集光システムの開発が重要である。

(1) 平成21年度に製作したGe結晶モノクロメータ実機2台を、東北大学金属材料研究所(金研)が所有し、JRR-3に設置してある2つの中性子散乱装置AKANEとHERMESにそれぞれ導入した。中性子ビームによる性能評価を行い、二波長中性子のビームサイズと強度比が設計通りであること(図1)、以前のGeモノクロメータに比べて、角度発散を変えずに+60%の強度ゲインを確認した(図2)。その後、全国大学共同利用実験に提供している。

新・二波長抽出型Ge単結晶モノクロメータ 入射中性子ビーム ($\lambda=2.0~\text{Å}$ と1.3~Å)の空間分布

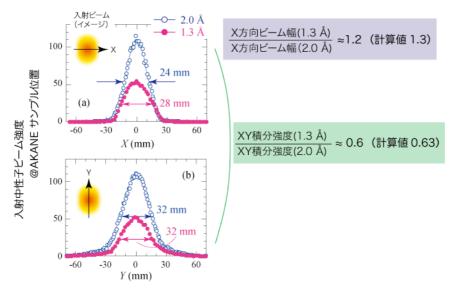


図1 新たにインストールした二波長抽出型Ge単結晶モノクロメータに関する性能評価の一例:サンプル位置における、二種類の単色ビーム(中性子波長 λ = 2.0 Åと1.3 Å)の空間分布。なお、インストール先の実験装置は、東北大学金属材料研究所が管理・運営する三軸型中性子分光器AKANEである。(a)サンプル位置での水平(X)方向ビームプロファイル、(b)鉛直(Y)方向ビームプロファイル。図中の数値は、ガウス関数でフィットした際のビーム半値全幅。実験から決めたX方向ビーム幅及び二次元XY積分強度の比は、二種類のビームの間でそれぞれ 2 1.2及び 2 0.6。これらの実験値は、Ge単結晶変数とX0.6。これらの実験値は、X1.2及数から計算される値とほぼ一致する。

新・旧Ge単結晶モノクロメータ サンプルからの散乱中性子ピーム @AKANE, λ = 2.0 Å

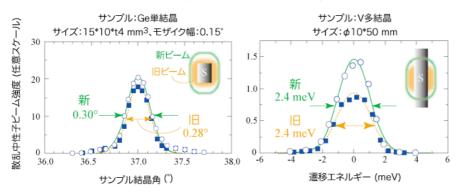


図 2 新・旧 Ge 単結晶モノクロメータの性能評価の一例:サンプルから散乱された中性子ビームの比較。図中の数値は、ガウス関数でフィットした際のビーム半値全幅。なお、サンプル位置でのビームサイズは、新・旧 Ge モノクロメータでそれぞれ $24 \times 32 \text{ mm}^2$ (緑色)と $20 \times 20 \text{ mm}^2$ (オレンジ色)。(a) 新旧のビームサイズよりもサンプルが小さく、単結晶サンプルのモザイク幅が小さい(結晶性が良い)場合。この時、ビーム幅は装置の角度分解能に相当する。散乱ビームの強度と角度分布に大きな違いはなく、空間的なビーム輝度に変化が無いこと、角度分解能が同程度であることを示している。(b) 新・旧の縦ビームサイズよりもサンプルが大きく、多結晶サンプルからの非干渉性成分(散乱角度に依存しない)をエネルギー変数に対して測定する場合。この時、ピーク幅は装置のエネルギー分解能に相当する。新 Ge モノクロメータを使って大きなサンプルを測定すれば、エネルギー分解能を落とさずに、散乱ビームの強度を最大 60%増すことが確認できた。

- (2)上述したようにモノクロメータ用Ge結晶片を安定供給できる状況となったことから、3台目の集光Geモノクロメータ製作に新たに着手した。金研が現在建設中の中性子散乱装置HERMES-Eのモノクロメータとして、これを利用する計画である。
- (3) 平成21年度に製作・導入したCu結晶モノクロメータ実機1台を使って、エネルギー 遷移30meVまでの非弾性散乱測定に成功した(図3)。現在は、更に高品質のCu結晶片作成 に取り組んでいる。

Cu モノクロメータ 高エネルギーフォノン測定 サンプル: 銅単結晶

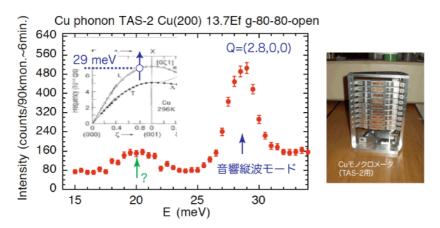


図3 Cuモノクロメータ (写真) を使った高エネルギー非弾性散乱測定の一例。日本原子力研究開発機構の三軸型中性子分光器TAS-2にインストールし、銅単結晶のフォノンスペクトルを測定。約30 meVのフォノン励起を数分で測定できることが分かる。

(4) Si、Ge単結晶ウェーハの湾曲化を行い、それぞれの中性子ブラッグ散乱角度積分強度を比較した。その結果、Geウェーハ湾曲単結晶は、Siウェーハ湾曲単結晶よりも反射強度が $4\sim5$ 倍に到達する結果を得た(図 4)。反射強度が高かったGeウェーハ湾曲単結晶についてはさらに、北海道大学のライナック中性子施設にて白色中性子を使った評価を行い、設計通りの空間集光が実現していることを確認した(図 5、6)。なお、これは鬼柳・古坂グループとの共同研究として遂行した。

塑性変形湾曲 Ge ウェーハ, 曲率 600 mm, 厚さ 0.5mm*n 枚重ね

単色中性子回折(@AKANE, 波長 λ = 2.0 Å)

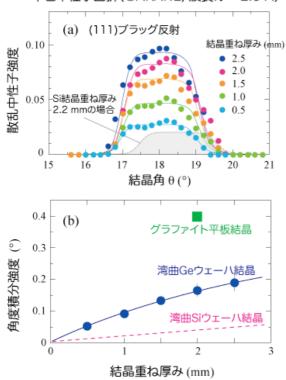


図4 ある一定波長の単色中性子ビームを使った、散乱実験による湾曲Geウェーハ結晶の評価。(a) ウェーハ結晶を重ねていった時の、Ge(111)ブラッグ反射角度スペクトルの変化。同じ曲率を持つSiウェーハ結晶(重ね厚み2.2 mm)の参照データを薄い灰色で示す。Siに比べて、Geの反射強度の大きいことが分かる。(b) 上図(a)の角度積分強度を、結晶重ね厚みに対してプロット。Siに比べて、Geのそれが4~5倍強いことが分かる。現在中性子モノクロメータとして広く普及しているグラファイト平板結晶に比べ、湾曲Geウェーハはその40%の積分強度にまで到達していることが分かる。

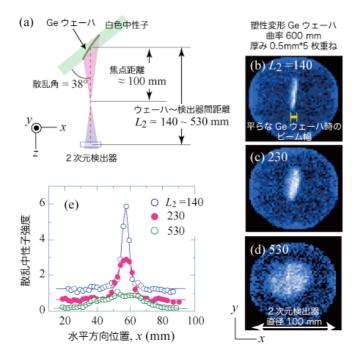


図5 (a) 北大 LINAC パルス中性子施設における、連続波長の白色中性子を使った水平集光実験の装置・サンプル(Ge ウェーハ)配置図。Ge ウェーハから 2 次元検出器までの距離 L_2 は、 $140\sim530$ mm の範囲で可変。なお、ウェーハの曲率(設計値)から、水平集光の焦点距離は 100 mm と計算される。(b-d) L_2 = 140, 230, 530 mm 時の反射ビーム 2 次元画像。焦点から外れるに従って水平方向の幅が広がり、ウェーハが確かに湾曲していることを示している。なお、(b)の黄色い横棒は平らな Ge ウェーハを使った時のビーム幅。(e)上記(b-d)を水平方向に射影した時の中性子強度。曲線は、ガウス分布関数でフィットした結果。

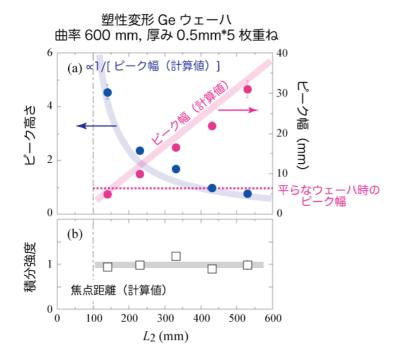


図 6 前掲図 5 (e)のフィッティング変数を L_2 に対してプロット: (a) ピーク高さとピーク幅、(b) 積分強度。積分強度一定のため、ピーク幅が狭くなればピークが高くなり、ピーク幅が広がればピークが低くなる。計算上の焦点距離に L_2 が近づくにつれ、ピーク幅が狭まり、ピーク高さが大きくなる。ウェーハ結晶の湾曲率・結晶内部の乱れ・厚みを考慮したピーク幅の計算値(赤線)と実測値(赤丸)が定量的に一致していることから、湾曲整形が設計通り為されていることが分かる。また、焦点に近い L_2 では集光前よりビーム幅が絞られており、集光による輝度上昇が実現したと考えられる。

(b) 偏極中性子散乱実験

中性子偏極システムを JRR-3 での単色定常中性子ビームラインに導入し、中性子ビームの偏極化に着手するのが平成 22 年度の目的である。そのために必要なスピンフリッパーやヘルムホルツコイルなどスピン制御デバイスの実機を、平成 21 年度の成果を踏まえて作成した。以下に示すように、十分な性能をもつスピン制御デバイスを作成しており、平成 22 年度中に安定した偏極ビーム発生に成功している。

平成21年度にドラブキン型スピンフリッパーの試作機を作成し、中性子を利用してその性能評価と問題点の洗い出しを行った。その磁場シミュレーションや磁場測定結果を元に、平成22年度に本プロジェクト対応のドラブキン型スピンフリッパーの実機を完成させた(図7)。全長が約35cmとコンパクトであり、かつ本研究の要である³He スピンフィルターへの磁場擾乱を最小限にするように設計されたフリッパーである。



図 7 平成 22 年度に作成した Drabkin 型スピンフリッパー。全長約 35 c mのコンパクト な構造である。

平成 22 年度に開発したドラブキン型スピンフリッパーを JRR-3 の HERMES での単色定常中性子ビームラインに導入し、中性子ビームの偏極化に着手した。図 8 は HERMES での偏極ビーム発生実験のレイアウトと写真で、図 7 のドラブキン型スピンフリッパーを実際に用いている。この実験では偏極子として ³He スピンフィルターを用いている。³He スピンフィルターは、本プロジェクトメンバーである猪野氏(KEK)により、KEK の SEOP ステーションで偏極されたのち、HERMES に移送され、偏極ビーム発生実験に使用した。実験の際に ³He スピンフィルターへの磁場の擾乱を防ぐため、パーマロイ鋼による磁気シールドボックスを作成し、その中に ³He スピンフィルターをセットしている。また、平成 22 年度には偏極ビームのスピンを維持しつつ輸送するためのガイド磁場マグネットを作成しており、この

実験に用いた。ドラブキンフリッパー、ガイド磁場、³He スピンフィルター用磁気シールドをコンパクトに作成したので、HERMES での限られた実験スペースに全デバイスをセットすることができた。また、平成 21 年度に購入した試料用電磁石に加え、平成 22 年度予算でヘルムホルツコイル(図 9)を購入した。平成 21 年度に購入した電磁石は散乱面に垂直にのみ磁場を発生するのに対し、ヘルムホルツコイルで発生する磁力は 30mT 程度と弱いが磁場を三次元的に自在に印加することができるのが特徴であり、実際の物性実験には欠かせないスピンデバイスである。磁場テストを行った結果、偏極中性子散乱実験のシステムに最適な磁場を三次元的に発生できることを確認した。これで主要なスピンコントロールデバイスはそろったことになる。

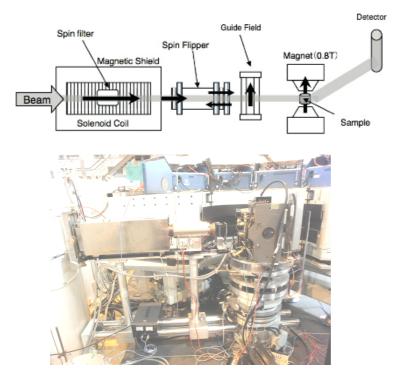


図8 HERMES での偏極ビーム発生実験。 3 He スピンフィルターを実際に用いている。 3 He スピンフィルターは、本プロジェクトの猪野氏(KEK)により、KEK の SEOP ステーションで偏極されたのち、HERMES に移送した。試料用 0.8T 電磁石は平成 21 年度に購入したものである。

図8のシステムを用い、平成22年度には5回の偏極中性子発生実験を行った。図10は、それぞれの実験での実効的中性子偏極率の変化である。当初は偏極率30%程度であったが、問題点を着実に解決でき、最終的に中性子偏極率約65%を安定して得られるようになった。また³He偏極率としては最高67%が得られており、KEKのSEOPステーションでの標準的³He

偏極率が約70%であることを考えると、KEK から HERMES への移動方式が実用上まったく問題ないことがわかった。現状での³He スピン偏極率(~70%)できまる中性子偏極率の上限は76%であることから、図8のシステムで最高70%の中性子偏極率が得られたことは、ドラブキンフリッパー、磁気シールド、ガイド磁場マグネットなど、平成22年度に作成したスピン制御デバイスが満足行く性能であることを示している。



図 9 平成 22 年度予算で購入した試料位置での磁場 3 次元制御用ヘルムホルツコイル。

また、off-beam 法を用いたことから、偏極率は時間とともに減衰する。図11は平成22年6月以降の実験での中性子偏極率の時間変化である。まず、4回の実験でほぼ同程度の減衰スピードであることがわかる。減衰の早さは磁場環境の目安となるので、これは図8のシステムで再現性の高い磁場環境が構築できていることを示している。³He 偏極率の時定数は平均で約120時間と、実際の実験時間10時間に比べ十分長い。したがって、平成22年度に構築した偏極ビーム発生システム(図8)は、実際の物性研究に十分対応可能であることが確認できた。

偏極実験計画報告のまとめとして、以下のことが言える。平成22年度で偏極実験に必要なスピン制御デバイスの主要部の準備がほぼ完了した。それらを用いて中性子の偏極化に着手し、十分満足のいく性能が得られた。これらの結果は、平成22年度に構築したシステムを用いて、物性研究が可能なレベルでの偏極ビーム発生に成功していることを示している。

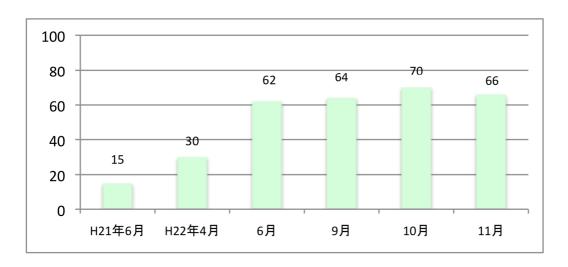


図10 平成22年度の偏極ビーム実験での実効的中性子偏極率の変化。着実に改善され約65%を安定して得られるようになった。現条件での理想値76%に十分近づいている。

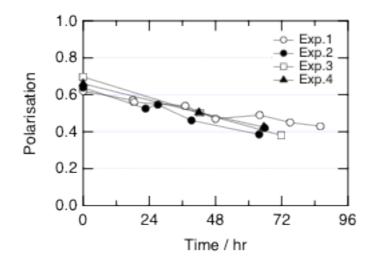


図11 中性子偏極率の時間変化。平成22年度6月以降の4回の実験結果を表示。平均の減衰時定数は120時間程度で、実際の測定時間10時間より十分に長い。

2.3 成果の外部への発表

1. 学会等における口頭・ポスター発表

| 発表した成果(発表 題目、口頭・ポスタ 一発表の別) | 発表者氏名 | 発表した場所(学会 等名) | 発表した時期 | 国 内・外 の別 |
|--|--|--|---------------|----------------|
| 東北大装置での偏極 中性子実験装置開発 と応用実験の現状 (口頭発表) | 大山研司,堤 健之,平賀 晴弘,猪野 隆,吉良 弘, 坂口佳史,奥 隆之,有本 靖,武田全康,鈴木淳市, 堀金和正,岩佐和晃,F. Wu,窪田崇秀,水上成美, 宮崎照宣,山田和芳,加倉 井和久 | 日本物理学会秋季 大会(大阪) | 2010年 9月 | 国内 |
| AKANE と HERMES における装置改修計画と現状(ロ頭発表) | 平賀晴弘、大山研司、山口 泰男、山田和芳 | 日本物理学会秋季 大会(大阪) | 2010. 9 | 国内 |
| J-PARC 偏極度解析分 光器計画の現状(ポ スター) | 大山研司,岩佐和晃,伊藤晋一,横尾哲也,平賀晴弘,藤田全基,松浦直人,佐藤豊人,堀金和正,佐藤卓,富安啓輔,有馬孝尚,猪野隆,吉良弘,坂口佳史,奥隆之,有本靖,给木淳市,清水裕彦,武田全康,金子耕士,日野正裕,武藤豪,野尻浩之 | 第 10 回中性子科学 会年会(仙台) | 2010年 12月 | 国内 |
| Project of Polarized Neutron Chopper Spectrometer in J-PARC (口頭発表) | K. Ohoyama | ICC-IMR International Workshop on Novel Material Science using Polarized Neutron (仙台) | 2011 年 1 月 | 国内 |
| Polarisation Diffraction Experiments of Ferromagnetic Metallic Glasses on HERMES with a 3He Spin Filter(ポスタ 一発表) | K. Ohoyama, K. Tsutsumi, H. Hiraka, T. Ino, H. Kira K. Sakaguchi, T. Oku, Y. Arimoto, T. Kubota, W. Zhang, H. Kimura, A. Makino, M. Takeda, J. Suzuki, K. Yamada, K. Kakurai | The International Workshop on Neutron Applications on Strongly Correlated Electron Systems 2011 (東海) | 2011 年 2月 | 国内 |

| 中性子線モノクロメ ータ(口頭発表) | 平賀晴弘、山田和芳、藤原航三、森下浩平、中嶋一雄 | 日本学術振興会結 晶成長の科学と技 術「高温高圧加工法 を用いた革新的な 結晶レンズの開発 研究」(京都) | 2010年 5月 | 国内 |
|--|---|--|---------------|----|
| 金研中性子散乱装置 AKANE と HERMES の装 置高度化(ポスター 発表) | 平賀晴弘、大山研司、大河 原学、村上直樹、山口泰男、 山田和芳 | 日本中性子科学会 第10回年会(東北 大学片平キャンパ ス) | 2010年 12月 | 国内 |
| 中性子 Polarimetry による四極子秩序物 質 RB2C2 での奇妙な 磁気散漫散乱の解明 | 大山研司、金子耕士、脇本 秀一、武田全康、山内宏樹、 長壁豊隆)、松岡英一 | JRR-3 改造20周年 記念シンポジウム (日本科学未来館) | 2011 年 2月 | 国内 |
| 金属強磁性体 CoS2 に おける常磁性磁気相 関の偏極中性子散乱 研究(ポスター発表) | 平賀晴弘、脇本秀一、武田 全康、加倉井和久 | JRR-3 改造 2 0 周年 記念シンポジウム (日本科学未来館) | 2011 年 2月 | 国内 |
| 塑性変形した Ge 半導 体結晶ウェーハの中 性子反射率(口頭発 表) | 平賀晴弘、山田和芳、森下 浩平、中嶋一雄 | 日本物理学会第 66 回年次大会(新潟 大) | 2011 年 3 月 | 国内 |

2. 学会誌・雑誌等における論文掲載

| 掲載した論文(発表題 目) | 発表者氏名 | 発表した場所(学会 誌・雑誌等名) | 発表した時期 | 国 内·外 の別 |
|---|--|---|--------------|----------------|
| Magnetic field effect on Fe-induced short-range magnetic correlation and electrical conductivity in Bi1.75Pb0.35Sr1.90Cu0 .91Fe0.0906+y. | S. Wakimoto, H. Hiraka, K. Kudo, D. Okamoto, T. Nishizaki, K. Kakurai, T. Hong, A. Zheludev, J. M. Tranquada, N. Kobayashi, K. Yamada | Phys. Rev. B 82, 064507 1-7 (2010) | 2010年 4月 | 国外 |
| Fe-doping effects on magnetism in hole-type superconductors of (Bi, Pb) 2Sr2Cu06. | H. Hiraka, S. Wakimoto, M. Takeda, K. Kakurai, D. Matsumura, Y. Nishihata, J. Mizuki, K. Yamada | J. Phys. Conference Series 200, 012059 1-4(2010) | 2010年 2月 | 国外 |
| Hot pressing of Ge crystals toward a reflection-plane-sele ctive neutron monochromator. | Y. Miyake, H. Hiraka, K. Ohoyama, Y. Yamaguchi, K. Yamada | J. Phys. Conference Series 200, 112006 (2010) | 2010年 2月 | 国外 |
| 中性子科学における学 生教育. | 平賀晴弘,岩佐和晃,大 山研司 | 日本中性子科学会 誌「波紋」vol.21, 37-41 (2011) | 2011 年 2月 | 国内 |

特許状況

該当なし

2.4 活動 (運営委員会等の活動等)

該当なし

2.5 研究実施体制

| 業務項目 | 担当機関等 | 研究担当者 |
|---|----------------------|---------|
| 1. 中性子ビーム集光システムおよび偏極中性子散乱実験システムの評価と応用に関する研究 | 東北大学 原子分子材料科 学高等研究機構 | ◎○山田 和芳 |
| (a) 中性子ビーム集光 | 東北大学 原子分子材料科 学高等研究機構 | ◎○山田 和芳 |
| | 東北大学 金属材料研究所 | 大山 研司 |
| | JJ | 平賀 晴弘 |
| | JJ | 藤田 全基 |
| | II . | 山口 泰男 |
| | II . | 松浦 直人 |
| | " | 村上 直樹 |
| | 東北大学 原子分子材料科 学高等研究機構 | 堀金 和正 |
| | <i>II</i> | 佐藤 豊人 |
| | 東北大学大学院 理学研究 科 | 富安啓輔 |
| (b)偏極中性子散乱実験 | 東北大学 原子分子材料科 学高等研究機構 | ◎○山田 和芳 |
| | 東北大学 金属材料研究所 | 大山 研司 |
| | " | 平賀 晴弘 |
| | " | 藤田 全基 |
| | II. | 松浦 直人 |
| | JJ | 山口 泰男 |
| | JJ | 村上 直樹 |
| | 東北大学 原子分子材料科 学高等研究機構 | 堀金 和正 |
| | <i>II</i> | 佐藤 豊人 |
| | 東北大学大学院 理学研究 | 富安 啓輔 |