

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成25年 5月 24日現在

機関番号：12612

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656045

研究課題名（和文） 中性子ビーム制御のためのホログラフィック中性子光学素子の創成

研究課題名（英文） Holographic neutron optic devices for neutron-beam control

研究代表者

富田 康生 (TOMITA YASUO)

電気通信大学・大学院情報理工学科・教授

研究者番号：50242342

研究成果の概要（和文）：冷中性子波長および極冷中性子波長での中性子干渉計や集光型小角散乱装置のためのホログラフィック中性子光学素子実現のフィージビリティを明らかにすることを目的として、光重合性ナノ微粒子-ポリマーナノコンポジット材料中でのホログラフィック光重合を利用した緑色波長(532 nm)レーザーを用いた体積平面ホログラムの作成とその回折特性を評価し、概体積平面ホログラムの中性子回折特性を明らかにした。そして、極冷中性子波長(4 nm)においてホログラムの自立膜化による90%の回折効率を持つミラー動作、さらに冷中性子波長(1.7 nm)において1:1:1の分配率の3ポートビームスプリッター動作を実証し、光重合性ナノ微粒子-ポリマーナノコンポジット材料のホログラフィック中性子光学素子としてのフィージビリティを実証した。

研究成果の概要（英文）：In quest for the realization of holographic neutron-optical elements for neutron interferometers and focused small angle scattering apparatus at cold and very cold neutron wavelengths, we have clarified the neutron diffraction properties of volume plane-wave holograms recorded in photopolymerizable nanoparticle-polymer composites under holographic exposure at a green (532 nm) wavelength. We have also demonstrated the mirror operation with the 90 % diffraction efficiency at a very cold neutron wavelength of 4.1 nm by use of a free-standing nanoparticle-polymer composite film as well as the three-port-beam-splitter operation at a cold neutron wavelength of 1.7 nm with the 1:1:1 division ratio. As a result, we have shown the feasibility of photopolymerizable nanoparticle-polymer composites as holographic neutron-optical elements.

交付決定額

(金額単位：円)

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|-------|-----------|---------|-----------|
| 交付決定額 | 3,000,000 | 900,000 | 3,900,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用光学・量子光工学

キーワード：光学素子、フォトポリマー、ナノ微粒子、中性子ビーム

1. 研究開始当初の背景

中性子ビームは波動性と粒子性を示す量子ビームとして基礎科学研究（量子力学の基礎や物性研究など）、医療、生命科学、産業などの広い分野への応用が期待されている。しかし、原子炉や加速器施設で発生出来る中性子ビームの輝度はレーザー、X線、ガンマ線などの電磁波ビームに比べて桁違いに低く、

巨額となる中性子源自体の増強の代わりにビームエネルギー利用効率の向上により実効的にビーム輝度の増強と同じ能力を得ることが望まれている。また、従来のマッハツェンダー型中性子干渉計では長さ10 cm程度のシリコン完全単結晶インゴットを高精度に切り出して干渉計を構成し、シリコン完全単結晶からのBragg回折により波長1.445Åの中性子

(熱中性子) ビームの分岐や偏向を行っているが、この場合の測定感度を定める干渉計での位相差は中性子の波長と干渉計の大きさの積に比例する。そのために中性子ビームの波長が長く干渉計が大きいほど測定感度は増大することになる。しかし、

- ・シリコン完全単結晶の格子定数の2倍を超える長波長の中性子(冷中性子・極冷中性子) ビームには使用できない
- ・干渉計の作成が非常に複雑で高価な上にシリコン完全単結晶の大きさに制限される
- ・中性子ビームのコリメーション性と単色性に限界があるため、シリコン完全単結晶を用いる場合にはPendellösung効果により効率50%以上のビーム偏向が得られない

などの欠点がある。そこで、シリコン完全単結晶を用いる際に生じるこれらの問題点を克服でき、他の中性子ビーム用ミラーとして用いられているNi-Tiの多層膜で構成されるsuper mirrorよりも簡便で安価な高効率の中性子光学素子の実現が望まれている。もし、長波長の(極)冷中性子ビームに対して高効率かつ簡便で安価な中性子光学素子が実現できれば、

- ・(極)冷中性子ビームの利用効率と制御性の拡大
- ・高精度の中性子干渉計や集光型小角散乱装置の実現による基礎物理実験、物性研究、高解像中性子イメージング・非破壊検査などの医療、生命科学、産業への応用

などが期待できるために基礎科学や工学的応用への多大な寄与が得られその意義は非常に大きい。

2. 研究の目的

(1) 中性子ビーム輸送技術と利用効率の大幅な向上ならびに中性子干渉計や集光型小角散乱装置における測定感度向上を目指し、

(極)冷中性子波長における高効率のホログラフィック中性子光学素子のフィージビリティを実証する。

(2) そのために、研究代表者が材料選択自由度の高い体積ホログラフィックナノコンポジット記録材料として世界に先駆けて提案して可視光波長域においてその優れたホログラフィック記録特性を実証しているナノ微粒子をフォトポリマーに分散した光重合性ナノ微粒子-ポリマーコンポジット(NPC)を用いて、可視レーザー光によるホログラフィック光重合により高コントラストのナノ微粒子の空間密度分布の形成(すなわち、高屈折率変調の体積ホログラム)を実現する。

(3) ナノ微粒子の空間密度分布による中性子ビームのコヒーレント弾性散乱とBragg回折現象を利用して、この体積ホログラムからの(極)冷中性子ビームの高効率の回折(反射)、ハーフミラー動作、多分岐ビームスプリッター動作などの中性子ビーム制御を高効率で実現する。

(3) 光および中性子波長域における体積ホログラムからのBragg回折特性についてこれまで提案されている種々の理論から予測される結果と実験結果を比較して、これらの理論の妥当性ならびに適用範囲について明らかにする。

3. 研究の方法

(1) 緑色波長(532 nm)の連続光発振レーザー光による光重合性NPCへの二光束干渉露光によりNPC中にナノ微粒子密度の周期的変調パターンを形成することでセンチメートルオーダーのサイズの透過型平面波体積ホログラムをNPC中に記録して、そのホログラフィック記録特性を詳細に評価する。その結果、種々の(極)冷中性子ビーム回折実験のための最適化された体積ホログラム実験試料を設計して作成する。(研究代表者が担当)

(2) 欧州の中性子ビームライン[極冷中性子実験: Laue-Langevin研究所実験原子炉施設(フランス); 冷中性子実験: Paul Scherrer研究所加速器施設(スイス)]において、体積ホログラム実験試料の基礎特性(透過率、回折効率、Bragg角離調特性、time-of-flight測定など)を詳細に評価して、中性子干渉計や集光型小角散乱装置に組み込むためのホログラフィック中性子光学素子としてのフィージビリティを検証する。[主に海外共同研究者のFally教授(オーストリア ウィーン大学)の研究グループが担当。]

4. 研究成果

(1) 中性子ビーム回折実験のためにホログラフィック散乱を極小化するように記録光学系を工夫して、緑色(532 nm)レーザーを用いた二光束露光によりSiO₂ナノ微粒子を分散した光重合性NPC中へ膜厚100μmで格子間隔0.5μmおよび1.0μmの透過型平面波体積ホログラムを記録した。回折効率測定から屈折率変調(Δn)の定常値が0.01程度の高コントラストの屈折率格子を実現し、記録したホログラム中でのナノ微粒子密度の十分な空間的変調を得た。また、記録された体積ホログラムのBragg離調特性からホログラフィック散乱が十分抑圧された平面波体積ホログラムの記録が実現出来た(図1参照)。

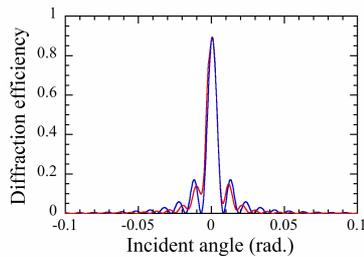


図1 体積ホログラムのBragg離調特性。赤線は測定値、青線は理論式によるフィッティング曲線。

(2) 中性子ビーム回折実験においてミラー動作を実現するために、回折効率のさらなる増大が必要であった。そのために、格子間隔 $0.5\mu\text{m}$ の体積ホログラム実験試料を作成し、その水平軸を中心として ζ 方向に回転させて (図2参照) 実効的なホログラム膜厚を増

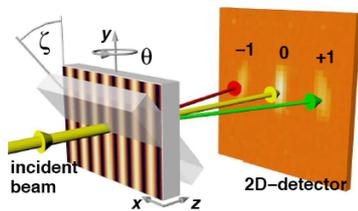


図2 実験試料の配置。[発表論文(7) Fig. 1からの抜粋]

加させてPendellösung効果の利用による回折効率の増大を試みた。その結果、極冷中性子波長 3.76 nm において $\zeta=64^\circ$ で回折効率を83%まで増大することに成功した (図3参照)。しかし、i)用いた透過型平面波体積ホログラムはガラス基板で両面から挟まれているためにガラス基板中での中性子ビームの損失が回折効率増大のためには無視出来ないこと、ii)ホログラムサイズが 1cm 程度のためホログラムを ζ 方向に傾ける角度に限界が生じる、ということが問題として残された。

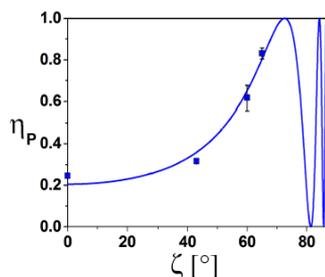


図3 回折効率の倒れ角 ζ 依存性。実線は理論曲線。[発表論文(7) Fig. 3(b)からの抜粋]

3) そこで、格子間隔 $0.5\mu\text{m}$ の透過型平面波体積ホログラムを両方のガラス基板から剥離することにより、体積ホログラム自立膜 (free standing film) を作成した (図4参照)。この自

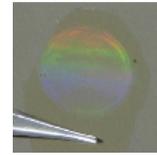


図4 体積ホログラム自立膜。

立膜構造が可能になった理由は、用いた体積ホログラムが有機-無機ナノコンポジット構造であるために従来の有機材料から構成される体積ホログラムに比べて機械的強度が格段に高いためである。この体積ホログラム自立膜を用いて、time-of-flight測定により極冷中性子波長 (4.1 nm) において $\zeta=70^\circ$ で回折効率を90%まで増大することに成功し、全反射ミラー動作を実証した。

(4) 量子力学の基礎実験のための (極) 冷中性子Zernike干渉計の実現を念頭に、多分岐ビームスプリッター動作 (ビーム強度分配比が1:1:1) の実現を試みた。透過型平面波体積ホログラムに垂直に ($\theta=0$) 波長 1.7 nm の冷中性子ビームを入射させて、その透過ビーム (0次) および2つの回折ビーム (± 1 次) のビーム強度分配比が1:1:1になる角度 ζ の条件を求めた (図5参照)。その結果、 $\zeta=56^\circ$ において3分岐ビームスプリッター動作の条件を満足する中性子回折が得られることがわかった。この結果から、光重合性NPCを用いたミラーと3分岐ビームスプリッターを用いてZernike干渉計を実現することが可能であることが示された。

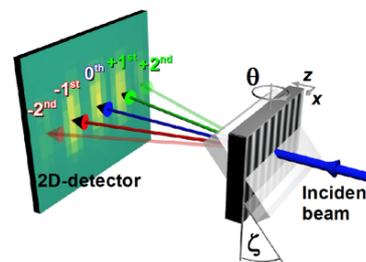


図5 実験系の配置。[発表論文(4) Fig. 1からの抜粋]

(5) 光および中性子波長の透過型体積ホログラムからの Bragg 回折特性 (特に、Bragg 離調角での回折ビームの方向と回折効率) について、二光波結合理論に基づく Kogelnik に

よる K ベクトル closure 法を用いた理論 (Kogelnik 理論) から予測される結果と光重合性 NPC による透過型平面波体積ホログラムを用いた実験結果を比較した。その結果、倒れ角 ζ が 0° でない場合と $\zeta = 0^\circ$ の場合でも Bragg 離調角が大きい時には Kogelnik 理論は実験結果を説明することが出来ず、これらの実験条件において実験結果を説明するためには二光波結合理論に基づく内田による β value 法を用いた理論 (内田理論) および結合モード理論 (動的回折理論) を用いる必要があることを明らかにした。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 7 件)

- (1) Matej Prijatelj, Jürgen Klepp, Yasuo Tomita, and Martin Fally, "Far off-Bragg reply of volume holographic gratings: a comparison of experiment and theories," *Physical Review A* (2013), in press. 査読有
- (2) Jürgen Klepp, Christian Pruner, Yasuo Tomita, Peter Geltenbort, Irena Drevensek-Olenik, Saso Gyergyek, Joachim Kohlbrecher, and Martin Fally, "Holographic gratings for slow- neutron optics," *Materials* **5**, 2788-2815 (2012). 査読有
DOI: 10.3390/ma5122788
- (3) Martin Fally, Jürgen Klepp, and Yasuo Tomita, "An experimental study on the validity of diffraction theories for off-Bragg replay of volume holographic gratings," *Applied Physics B* **108**, 89-96 (2012). 査読有
DOI: 10.1007/s00340-012-5090-x
- (4) Jürgen Klepp, Yasuo Tomita, Christian Pruner, Joachim Kohlbrecher, and Martin Fally, "Three-port beam splitter for cold neutrons using holographic nanoparticle-polymer composite diffraction gratings," *Applied Physics Letters* **101**, 154104-1-3 (2012). 査読有
DOI: 10.1063/1.4758686
- (5) Jürgen Klepp, Christian Pruner, Yasuo Tomita, Ken Mitsube, Peter Geltenbort, and Martin Fally, "Mirrors for slow neutrons from holographic nanoparticle-polymer free-standing film-gratings," *Applied Physics Letters* **100**, 214104-1-3 (2012). 査読有
DOI: 10.1063/1.4720511
- (6) Jürgen Klepp, Christian Pruner, Mostafa A. Ellabban, Yasuo Tomita, Hartmut Lemmel,

Helmut Rauch, and Martin Fally, "Neutron-optical gratings from nanoparticle-polymer composites,"

Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **634**, S59-S62 (2011). 査読有
DOI: 10.1016/j.nima.2010.06.360

(7) Jürgen Klepp, Christian Pruner, Yasuo Tomita, C. Plonka-Spehr, S. Ivanov, Peter Geltenbort, Joachim Kohlbrecher, Mostafa A. Ellabban, and Martin Fally, "Neutron diffraction by holographic gratings recorded in SiO₂ nanoparticle-polymer composites,"

Physical Review A **84**, 013621-1 – 7 (2011).

査読有

DOI: 10.1103/PhysRevA.84.013621

[学会発表] (計 1 1 件)

(1) Yasuo Tomita, "Photopolymerizable nanocomposite materials and their applications," **invited talk**, to be presented at The 11th International Conference "Correlation Optics," September 19 (18 – 21), 2013, Chernivtsi, Ukraine.

(2) Yasuo Tomita, "Photopolymerizable nanocomposite materials for photonic applications," **invited talk**, to be presented at Collaborative Conference on Materials Research (CCMR) 2013, June 26 (24 – 28), 2013, Jeju, South Korea.

(3) 富田康生, 三部兼, Jürgen Klepp, Christian Pruner, Peter Galtenport, and Martin Fally, 「冷中性子ビーム用ホログラフィック中性子光学ミラーのためのナノ微粒子—ポリマーコンポジット自立膜」、第 6 0 回応用物理学春季学術講演会, 2013年 03月30日 (27日~30日)、湘南工科大学、神奈川。

(4) 富田康生, 「光重合性ナノ微粒子—ポリマーコンポジット」、招待講演、日本光学会平成 2 5 年 第 1 回ホログラフィック・ディスプレイ研究会、2013年03月08日、東京工業大学大岡山キャンパス、東京。

(5) 富田康生, 「ナノコンポジットマテリアルの光学と応用」、招待講演、日本光学会 第37回光学シンポジウム、2012年06月27日 (27日~28日)、東京大学生産技術研究所、東京。

(6) 富田康生, 「光重合性ナノコンポジットポリマーを用いた非線形光学と中性子光学」、招待講演、

レーザー学会第32回年次大会、2012年1月30日（1月30日～2月01日）、TKP仙台カンファレンスセンター、仙台。

(7) 富田康生、「光重合性ナノコンポジットポリマー –その特性とホログラフィー、非線形光学、中性子光学への応用–」、招待講演、第72回応用物理学学術講演会、2011年8月30日（8月29日～9月02日）、山形大学、山形。

(8) Martin Fally, Jürgen Klepp, Christian Pruner, Yasuo Tomita, Saso Gyergyek, Irena Drevensek-Olenik, Joachim Kohlbrecher, and Peter Geltenbort, “Polymer nanocomposite diffraction gratings for neutrons,” **invited talk**, SLONANO 2011, October 26 (26-28), 2011 Ljubljana, Slovenia.

(9) W. Schranz, Jürgen Klepp, Christian Pruner, Martin Fally, Yasuo Tomita, Irena Drevensek-Olenik, and Saso Gyergyek, “Application of holographic gratings recorded in nanoparticle-polymer composites as cold-neutron diffractive elements,” 8th Liquid Matter Conference, September 6 (6-10), 2011, Vienna, Austria.

(10) Jürgen Klepp, Martin Fally, Christian Pruner, Yasuo Tomita, Irena Drevensek-Olenik, and Saso Gyergyek, “Neutron-diffraction by holographic gratings recorded in nanoparticle-polymer composites,” Joint Annual Meeting of the Swiss Physical Society with Swiss and Austrian Societies for Astronomy and Astrophysics, June 17 (15-17), 2011 Lausanne, Switzerland.

(11) Martin Fally, Jürgen Klepp, Christian Pruner, Yasuo Tomita, Helmut Eckerlebe, Joachim Kohlbrecher, and Romano A. Rupp, “Holographic gratings for cold neutrons optics,” **invited talk**, ICO international conference on Information Photonics 2011, May 20 (18-20), 2011 Ottawa, Canada.

〔その他〕

ホームページ等

<http://talbot.es.uec.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

富田 康生 (TOMITA YASUO)

電気通信大学・大学院情報理工学科・教授
研究者番号：50242342

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者
なし