

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 27 年 6 月 10 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24656004

研究課題名(和文) J - P A R C の白色中性子線を用いた多波長原子分解能ホログラフィー法の確立

研究課題名(英文) Multi-Wavelength Atomic Resolution Holography Technique using White Neutron in J-PARC

研究代表者

大山 研司(OHOYAMA, KENJI)

東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・准教授

研究者番号：60241569

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：原子分解能中性子ホログラフィーは、中性子実験としては唯一の核種選択的な局所構造解析技術であり、スピンや水素、ホウ素などを含む機能性材料にとって決定的な役割を果たす。本研究では大強度陽子加速器施設(J-PARC)を利用して、鮮明な水素やホウ素の原子像をえる白色中性子ホログラフィーを世界で初めて実現することを目指した。その結果、J-PARCの大強度白色ビームを用いることで、100個を超えるホログラムを一度に測定でき、シンチレーション材料CaF<sub>2</sub>でのドーパントまわりの原子局所構造の可視化に成功した。これは中性子ホログラムが機能性材料研究に有効であることを証明しており、当初の本課題の目的は達成された。

研究成果の概要(英文)：Atomic resolution neutron holography technique is the unique neutron scattering experiments for local structure investigations, which is important for visualization of local structures around dopants in functional materials. In this projects, we aims at practical application of Atomic resolution neutron holography technique using the high flux white neutron beam in J-PARC. We have succeeded in obtaining more than 100 holograms in J-PARC and visualizing clear local structure around dopant Eu in CaF<sub>2</sub>, which is a typical scintillation crystal. This clearly indicates that neutron holography with white neutron beam is effective for investigations of doped functional materials. In this meaning, we succeeded in achieving the purpose of this project.

研究分野：中性子科学、材料科学 磁性物理学

キーワード：局所構造 ホログラフィー 中性子 J-PARC ドープ系材料 偏極中性子 3Heフィルター

### 1. 研究開始当初の背景

原子分解能ホログラフィーは、特定元素周辺の半径数 nm にわたる三次元原子像の再生がモデルフリーで可能であり、従来法では解析できない「中距離局所構造」研究が可能なツールとして注目されている。X線や電子線では、強力線源により多波長入射ビームを用いて多重にホログラムを記録し、約 0.01Å の位置精度の鮮明な原子像が得られる。さらに中性子は水素、スピンに対する感度が高く、X線・電子線では不可能な水素化合物、磁性体での研究が可能になる。申請者らは単波長での中性子ホログラフィー開発に成功(K. Hayashi et al. *Jpn. J. Appl. Phys.* 47, 2291 (2008).)し、単波長の技術的課題について知見を得ている。しかし、中性子の場合、強度不足から現状では多波長実験は不可能であり、得られる三次元像はX線・電子線に比べ不明瞭であった。この点を克服しなければ材料科学の飛躍はないと考え、本計画を着想した

### 2. 研究の目的

本研究では、J-PARC の世界最強の中性子線ならば高精度中性子ホログラフィーが実現できる可能性があるのをそれに挑戦する。かつ J-PARC では中性子を時間的にくぎることで波長ごとの測定ができ、これが多波長ホログラム測定に対応する。X線では例えば 0.8-1.0Å 範囲で 10 本程のホログラムを測定するが、本計画ではさらに広い波長範囲 (0.6-10 Å) ではるかに多数の波長で中性子ホログラムの測定をめざすので、再生像精度がX線、電子線を上回る可能性もある。

### 3. 研究の方法

大強度陽子加速器施設(J-PARC)のビームライン 10 番(BL10)を用い、中性子ホログラフィー測定用ゴニオメーターを設置して、室温での測定を行った。試料は代表的シンチレーション結晶  $\text{Eu}_{0.01}\text{Ca}_{0.99}\text{F}_2$  およびホウ素ドーブ Si である。試料は単結晶を用い、散乱角  $2\theta$  と結晶軸角  $\omega$  を回転させ、Eu や B からの線を測定することでホログラムを得る。J-PARC のビームは連続に波長かわる白色ビームなので、1 スキャンで多数の波長でのホログラムが得られる。

### 4. 研究成果

J-PARC の大強度白色ビームを用いることで、100 個を超えるホログラムを一度に測定できることを立証した。かつ、実験後に必要な統計をみながらホログラムの数を調整することができることも示した。BL10 での実験では Eu1%ドーブ  $\text{CaF}_2$  で明瞭な Ca 像、Eu 像、F 像を三次元的に得ることに成功した。一方、同じ試料を用いて XAFS 測定を行った結果、ドーブされた Eu が三価で存在していることを確認した。これは、電気的中性を維持するため、過剰フッ素が Eu 周りであることを意味

しており、実際、ホログラムから再生された原子像では、過剰フッ素が見いだされている。これらの結果は、中性子ホログラムが機能性材料の局所構造研究に有効であることを証明しており、当初の本課題の目的は達成された。この結果は報告書執筆段階で論文にまとめているところである。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 14 件)

- Neutron holography and diffuse scattering of palladium hydride  
K. Hayashi, K. Ohoyama, S. Orimo, H. Takahashi, and K. Shibata, *Phys. Rev. B* 91 (2015) 024102(1)-(7). (査読あり)
- Development and demonstration of in-situ SEOP  $^3\text{He}$  spin filter system for neutron spin analyzer on the SHARAKU polarized neutron reflectometer at J-PARC  
H. Hayashida, T. Oku, H. Kira, K. Sakai, M. Takeda, Y. Sakaguchi, T. Ino, T. Shinohara, K. Ohoyama, J. Suzuki, K. Kakurai, M. Mizusawa, N. Miyata, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, M. Arai, *J. Phys: Conf. Ser.*, 528, (2014) 012020(1)-(7). (査読あり)
- Novel Magnetic Chiral Structures and Unusual Temperature Hysteresis in the Metallic Helimagnet MnP  
T. Yamazaki, Y. Tabata, T. Waki, T. J Sato, M. Matsuura, K. Ohoyama, M. Yokoyama, H. Nakamura, *J. Phys. Soc. Jpn* 83 (2014) 054711(1)-(8). (査読あり)
- Polarized-neutron-diffraction study of the microscopic magnetic structure in  $\alpha\text{-Fe}_{16}\text{N}_2$  nanoparticles  
H. Hiraka, K. Ohoyama, Y. Ogata, T. Ogawa, R. Gallage, N. Kobayashi, M. Takahashi, B. Gillon, A. Gukasov, and K. Yamada, *Phys. Rev. B* 90 (2014) 134427(1)-(5). (査読あり)
- Concepts of Neutron Polarisation Analysis Devices for a New Neutron Chopper Spectrometer, POLANO, in J-PARC  
K. Ohoyama, T. Yokoo, S. Itoh, T. Ino, M. Ohkawara, T. Oku, S. Tasaki, K. Iwasa, T. J. Sato, S. Ishimoto, K. Taketani, H. Kira, Y. Sakaguchi, M. Nanbu, H. Hiraka, H. M. Shimizu, M. Takeda, M. Hino, K. Hayashi, U. Fliges and P. Hautle, *J. Phys.: Conf. Ser.* 502 (2014) 012051-1-4. (査読あり)
- Diffusion Path and Conduction Mechanism

- of Protons in Hydroxyapatite  
M. Yashima, N. Kubo, K. Omoto, H. Fujimori, K. Fujii, K. Ohoyama, J. Phys. Chem. C, 2014, 118, 5180–5187. (査読あり)
7. Construction of Polarized Inelastic Neutron Spectrometer in J-PARC  
T. Yokoo, K. Ohoyama, S. Itoh, J. Suzuki, K. Iwasa, T. J. Sato, H. Kira, Y. Sakaguchi, T. Ino, T. Oku, K. Tomiyasu, M. Matsuura, H. Hiraka, M. Fujita, H. Kimura, T. Sato, J. Suzuki, M. Takeda, K. Kaneko, M. Hino, S. Muto, J. Phys.: Conf. Ser. 502 (2014) 012046-1-5. (査読あり)
  8. Metallic glass grating for X-ray grating interferometer fabricated by an imprinting technique  
W. Yashiro, D. Noda, T. Hattori, K. Hayashi, A. Momose, and H. Kato, Applied Physics Express 032501, 7 (2014). (査読あり)
  9. Basic Concepts of Polarisation Analysis of Neutron Chopper Spectrometer, POLANO, at J-PARC  
K. Ohoyama, T. Yokoo, S. Itoh, J. Suzuki, K. Iwasa, T.J. Sato, H. Kira, Y. Sakaguchi, T. Ino, T. Oku, K. Tomiyasu, M. Matsuura, H. Hiraka, M. Fujita, H. Kimura, T. Sato, J. Suzuki, H.M. Shimizu, T. Arima, M. Takeda, K. Kaneko, M. Hino, S. Muto, H. Nojiri, C.H. Lee, J.G. Park, S. Choi, J. Phys. Soc. Jpn. 82 (2013) SA036(1)-(6). (査読あり)
  10. Physical Properties of Double Perovskite-type Barium Neodymium Osmate  $Ba_2NdOsO_6$ .  
M. Wakeshima, Y. Hinatsu, and K. Ohoyama, J. Solid State Chem., 197,(2013) 236–241. (査読あり)
  11. Extent and feature of lattice distortions around Ga impurity atoms in InSb single crystal  
S. Hosokawa, N. Happo, T. Ozaki, H. Ikemoto, T. Shishido, and K. Hayashi, Physical Review B 87, 094104 (2013). (査読あり)
  12. Pd-based metallic glass with a low glass transition temperature,  
T. Yamamoto, K. Hayashi, I. Seki, K. Suzuki, and M. Ito, Journal of Non-crystalline solids 359 (2013) 46-50. (査読あり)
  13. Evaluation of local lattice distortion by X-ray fluorescence holography  
K. Hayashi, N. Happo, S. Hosokawa, J. Jpn. Soc. Synchrotron Radiation Research, 26 (2013) 195-205. (査読あり)
  14. Spatial resolution of a  $\mu$ PIC-based neutron imaging detector  
J. D. Parker, M. Harada, K. Hattori, S. Iwaki, S. Kabuki, Y. Kishimoto, H. Kubo, S. Kurosawa, Y. Matsuoka, K. Miuchi, T. Mizumoto, H. Nishimura, T. Oku, T. Sawano, T. Shinohara, J. Suzuki, A. Takada, T. Tanimori, K. Ueno, NIM-A, 726 (2013) 155-161. (査読あり)
- [学会発表](計 16 件)
1. 原子分解能 X 線ホログラフィー  
林好一、日本顕微鏡学会 58 回シンポジウム (招待講演)  
2014 年 11 月 16 日-17 日 福岡市
  2. 蛍光 X 線、中性子線ホログラフィーが拓く新しい 3 次元イメージング  
林好一、日本結晶学会シンポジウム (招待講演)  
2014 年 11 月 1 日-13 日, 東京
  3. 偏極中性子散乱装置 POLANO での磁場環境評価  
大山研司, 南部光江, 横尾哲也, 大河原学, 猪野隆, 伊藤晋一, 岩佐和晃, 奥隆之, 吉良弘  
日本中性子科学会第 14 回年会  
2014 年 12 月 11 日~12 日, 北海道立道民活動センター
  4. Polarisation Analysis Neutron Spectrometer, POLANO, at J-PARC - Concept and Magnetic Field Optimisation  
K. Ohoyama  
PNCMI 2014 – Polarized Neutrons for Condensed Matter Investigations 2014  
16-Sep-18-Sep, シドニー大学 オーストラリア (招待講演)
  5. Current status and perspectives in the development of an in-situ spin-exchange optical pumping  $^3\text{He}$  neutron spin filter at J-PARC  
T. Oku, H. Kira, H. Hayashida, K. Sakai, K. Hiroi, T. Shinohara, Y. Sakaguchi, T. Ino, K. Ohoyama, M. Nakamura, J. Suzuki, K. Aizawa, M. Arai, Y. Endoh, K. Kakurai  
PNCMI 2014 – Polarized Neutrons for Condensed Matter Investigations 2014  
16-Sep-18-Sep, シドニー大学 オーストラリア
  6. Demonstration Study of Small-Angle Polarised Neutron Scattering using Polarised  $^3\text{He}$  Neutron Spin Filter  
H. Kira, H. Hayashida, H. Iwase, K. Ohishi, J. Suzuki, T. Oku, K. Sakai, K. Hiroi, S. Takata, T. Ino, K. Ohoyama, M. Ohkawara, T. Shinohara, K. Kakurai, K. Aizawa,

- and M. Arai, J-PARC Symposium 2014  
2014年7月12日-15日 つくば市
7. Development Status of the NMR System for the Polarized  $^3\text{He}$  Neutron Spin Filter (NSF) in the MLF at J-PARC  
K. Sakai, T. Oku, H. Hayashida, H. Kira, K. Hiroi, T. Ino, K. Ohoyama, M. Ohkawara, K. Kakurai, T. Shinohara, K. Oikawa, M. Harada, K. Aizawa, M. Arai, Y. Sakaguchi, and J. Suzuki  
J-PARC Symposium 2014  
2014年7月12日-15日 つくば市
  8. Development and demonstration of in-situ SEOP  $^3\text{He}$  spin filter system for neutron spin analyzer on the SHARAKU polarized neutron reflectometer at J-PARC  
H. Hayashida, T. Oku, H. Kira, K. Sakai, M. Takeda, Y. Sakaguchi, T. Ino, T. Shinohara, K. Ohoyama, J. Suzuki, K. Kakurai, M. Mizusawa, N. Miyata, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Soyama, M. Arai, J-PARC Symposium  
2014年7月12日-15日 つくば市
  9. Neutron Holography and diffuse scattering of palladium hydride  
K. Hayashi  
International Conference on Neutron Scattering, ICNS2013  
2013年7月8日-12日, エジンバラ、英国
  10. 偏極中性子散乱装置 POLANO のビーム輸送シミュレーション  
大山研司、南部光江、横尾哲也、岩佐和晃、伊藤晋一、佐藤卓、大河原学  
日本中性子科学会第13回年会(柏市)2013年12月12-13日
  11. ドーパント直接観測のためのパルス中性子ホログラフィー法  
大山研司、林好一、細川伸也、八方直久、原田正英、稲村泰弘、南部光江、穴戸統悦、湯蓋邦夫  
日本中性子科学会第13回年会  
2013年12月12-13日, 柏市
  12. オンビーム SEOP 型  $^3\text{He}$  中性子偏極フィルターの開発と応用  
奥隆之、林田洋寿、酒井健二、篠原武尚、中村充孝、相澤一也、新井正敏、遠藤康夫、加倉井和久、吉良弘、坂口佳史、鈴木淳市、猪野隆、平賀晴弘、清水裕彦、大河原学、大山研司  
日本中性子科学会第13回年会  
2013年12月12-13日, 柏市
  13. Development and Application of an in-situ SEOP  $^3\text{He}$  Neutron Spin Filter at J-PARC  
奥隆之、吉良弘、林田洋寿、酒

- 井健二、篠原武尚、坂口佳史、猪野隆、有本靖、大山研司、平賀晴弘、L.J. Chang、中村充孝、相澤一也、新井正敏、遠藤康夫、鈴木淳市、清水裕彦、新井正敏、遠藤康夫、加倉井和久、International Workshop on Neutron Optics and Detectors (NOP&D2013) (Ismaning、独)  
2013年7月2日-5日
14. 偏極中性子散乱装置 POLANO での偏極デバイス評価  
大山研司、横尾哲也、伊藤晋一、岩佐和晃、大河原学、南部光江、猪野隆、田崎誠司、奥隆之、吉良弘、武田全康、竹谷薫、石元茂  
MLF シンポ 2013  
2014年3月18-19日、つくば市
  15. 軽元素ドーパント直接観測のための中性子ホログラフィー法  
大山研司、林好一、細川伸也、八方直久、原田正英、稲村泰弘、南部光江、穴戸統悦、湯蓋邦夫  
MLF シンポ 2013  
2014年3月18-19日、つくば市
  16. Investigations of 3D Local Structure by Neutron Atomic Resolution Holography  
K. Ohoyama, K. Hayashi, et al.  
13th Japan-Korea Meeting on Neutron Science  
2014年3月16日-18日, 扶余、韓国

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕  
出願状況(計 0件)

取得状況(計 0件)

〔その他〕  
ホームページ等：なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

大山研司 (Kenji Ohoyama)  
東北大学・原子分子材料科学高等研究機構・准教授  
研究者番号：60241569

### (2) 研究分担者

林好一 (Kouichi Hayashi)  
東北大学・金属材料研究所・准教授  
研究者番号：20283632

奥隆之 (Takayuki Oku)  
日本原子力研究開発機構・J-PARC センター・研究主幹  
研究者番号：10301748