

機関番号：82100

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2008～2010

課題番号：20612018

研究課題名(和文) 多重連結磁石による白色ビーム集光法の開拓

研究課題名(英文) Development of a method to focus a polychromatic neutron beam with a multiple magnet.

研究代表者

鈴木 淳市 (SUZUKI JUNICHI)

独立行政法人 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：40354899

研究成果の概要(和文)：低エネルギー中性子は、物質透過能力、水素等の軽元素識別能力、同位体識別能力、磁気解析能力等の他に無い優れた特徴を持つ物質科学、生命科学における不可欠な構造解析プローブである。この中性子の利用性能をさらに高めるために、六極磁石を多重連結した白色ビームの磁気集光法を開拓し、J-PARC のパルス中性子小中角散乱装置に具体的に応用する環境を整えた。

研究成果の概要(英文)：The low-energy neutron is a valuable probe in research in materials and life science owing to its unique characteristics: it penetrates deeply into a material, it picks up information on light elements, isotopic atoms and magnetic moments. In order to increase the utilization efficiency of neutrons, a multiple magnet to focus a polychromatic neutron beam was developed and its application to the J-PARC was considered.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2009年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010年度	400,000	120,000	520,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：中性子科学

科研費の分科・細目：-・量子ビーム科学

キーワード：中性子光学

## 1. 研究開始当初の背景

低エネルギー中性子は、物質透過能力、水素等の軽元素識別能力、同位体識別能力、磁気解析能力等の他に無い優れた特徴を持つ

物質科学、生命科学における不可欠な構造解析プローブである。しかしながら、利用できる中性子ビームの輝度は、大強度中性子施設といえども放射光施設等に比べて絶対的に

不足しており、このことが中性子の適用範囲（試料サイズ、試料環境、観測スケール、分解能等）に制限を与えている。これは中性子の幅広い科学分野や産業利用分野での利用を展開する上で克服すべき重要な課題である。

中性子の幅広い分野での利用を可能とするためには、中性子ビームを高精度かつ高効率に制御する中性子光学技術が不可欠な要素となる。我々は六極磁場が中性子の高精度かつ高効率な制御に極めて有効であることを研究開始前の研究で見出ししていた。そこで、複数の六極磁石を直列配置した多重連結磁石を構成し、これにより広い波長帯域の白色中性子ビームを高精度かつ高効率に集光する手法を世界に先駆けて開拓することを目指した。

我々は上述のような課題を克服するために、2000年度～2004年度に科学技術振興調整費知的基盤整備推進制度課題「中性子光学素子の開発」（代表者：清水裕彦（理化学研究所）、分担機関代表者：鈴木淳市（日本原子力研究所）、他）を推進し、世界に先駆けて種々の中性子光学素子の開発と応用を行う総合研究に取り組んだ。その成果の一つとして、六極磁石を利用した中性子磁気レンズの開発に成功し、さらにこの磁気レンズを中性子ビームの焦点を検出器面上に結ばせる集光型中性子小角散乱法に応用することで、従来のピンホール型中性子小角散乱法では小角分解能の制限により困難とされてきた約0.5～5ミクロンの微細構造の評価を、従来の手法の約100倍の効率で行うことを可能にした。この開発された手法は、日本原子力研究開発機構の研究用原子炉JRR-3の単色中性子ビームラインに設置された集光型偏極中性子小角散乱装置SANS-J-IIで実用化され、高周波用軟磁性材料の磁気ドメイン構造や高機能鉄鋼材料等の微細組織評価に利用された。この集光型偏極中性子小角散乱装置の開発による観測スケールの拡大により、中性子の特徴を活かした約5ナノメートル～5ミクロンの微細構造の評価は、数10ミリグラムの量を用意できる薄膜や粉末試料に対しては確かに可能となったが、基板上に作成される超伝導ドットのようなメゾスケールの構造やその内部の量子化磁束秩序構造の評価等では、数10ミリグラムという量の試料を用意することは簡単でなく、集光ビームのさらなる高輝度化が求められていた。

## 2. 研究の目的

我々の研究の長期目標は、中性子の特徴を活かしたより効率的な微細構造の評価法を中性子光学技術の開発に基づき確立し、中性子の幅広い分野での利用に貢献することであるが、その目標達成のための集光ビームの

さらなる高輝度化に関する基礎研究として、複数の六極磁石を直列配置した多重連結磁石を構成し、これを利用した白色中性子ビーム集光法の開拓に取り組んだ。これまでに開発の六極磁石を利用した磁気レンズは、六極磁場中で局所磁場に平行なスピン成分を持つ中性子が六極磁石の中心軸に垂直な内向きの力を受けて中心軸周りに集まり、反平行なスピン成分を持つ中性子が逆に外向きの力を受けて中心軸から離れる性質のうち、前者の性質を平行なスピン成分のみを持つ偏極中性子入射ビームの集光に利用するものであるが、この磁気レンズではビーム経路上に散乱体や吸収体を全く有しないので、正確な集光が実現できるという利点がある。実際、我々はこれまでに永久磁石や超伝導コイルを利用した六極磁石を開発し、これらの六極磁石が磁気レンズとして優れた集光特性を示すことを明らかにした。ところが、中性子は六極磁石の中心軸に沿ったビーム進行方向には力を受けずに等速運動を行うので、これらの磁気レンズは色収差を持つことが分かった。つまり、磁気レンズは速度の遅い長波長中性子近くに、速度の速い短波長中性子を遠くに集光させる。このように、これまでに開発した磁気レンズでは、単色中性子を高精度に集光できるが、白色中性子を同一の焦点に集光できないという課題が残った。色収差を克服する白色中性子磁気レンズの開発のポイントは、中性子の波長に応じて磁気レンズの集光力を変えることにある。我々は、パルス中性子を利用すれば、飛行時間法によりある波長を持った中性子が磁気レンズをどの時刻に通過するかを予測することができるので、白色中性子磁気レンズにはパルス中性子と同期させて集光条件を時間的に素早く変化させられる機能があれば良いという着想を得た。集光条件を時間的に変化させるアイデアは、パルス六極電磁石の利用等、幾つか生まれたが、本研究課題では、これまでに開発した複数の六極磁石間に磁場接続コイルと中性子スピン反転器を挟み込んだ多重連結磁石を構成し、中性子スピン反転器の状態を時間的に切換えることで六極磁石の実効長を時間的に変化させる手法の開拓を行うことを目的とした。

## 3. 研究の方法

本研究課題では、多重連結磁石を利用した白色中性子ビーム集光法の開拓として、(1)六極磁石間に挟まれる磁場接続コイルと中性子スピン反転器のコンパクト化、(2)広い波長帯域で99%以上の中性子スピン反転効率を実現する中性子スピン反転器の開発、(3)複数台の中性子スピン反転器の状態をパルス中性子と同期させて高速で切換える中性子スピン反転高速切換器の開発、そして、完

成後のシステムを利用した、(4)約 4.5~9.5A の波長帯域の集光特性評価を行い、そして、実用型システムの開発とメゾスケールの構造評価への応用に関する計画を具体的に立案し、本研究課題をまとめることとした。

スピン反転器には約 70kHz の共鳴周波数を与える RF コイルと約 2.5mT の定常磁場を発生する DC コイルから構成される RF グラジエントスピン反転器を採用した。このスピン反転器を長時間安定かつ安全に駆動するためにコイルの発熱を抑えるための水冷システムやインターロックを装備した。

パルス中性子の同期駆動試験並びに集光評価実験を研究用原子炉 JRR-3 の NOP ビームラインおよび SANS-J-II ビームラインを利用した。長波長側の集光評価実験には NOP ビームラインを、短波長側の集光評価実験には SANS-J-II ビームラインを利用した。

また、メゾスケールの構造評価への応用を目的とした実用型システムの開発計画の立案では、大強度陽子加速器施設 J-PARC の中性子小中角散乱装置「大観 (TAIKAN)」へ搭載するシステムの開発を想定した。

#### 4. 研究成果

六極磁石間に挟む磁場接続コイルと中性子スピン反転器 (約 70kHz の共鳴周波数を与える RF コイルと約 2.5mT の定常磁場を発生する DC コイルから構成される RF グラジエントスピン反転器) を開発し、日本原子力研究開発機構の研究用原子炉 JRR-3 の NOP ビームラインにおいてディスクチョッパーを用いてパルス化した中性子ビームを用いた集光特性評価を行った。6A 以上の長波長帯域での 99% 以上のスピン反転効率の確認を行うことができた。また、これらの機器を用いて 3 重連結システムを構成し、パルス中性子との動機駆動を行いながら図 1 のように 7.4~9.8A の約 2.5A の波長幅の中性子の集光特性の評価を行うことができた。

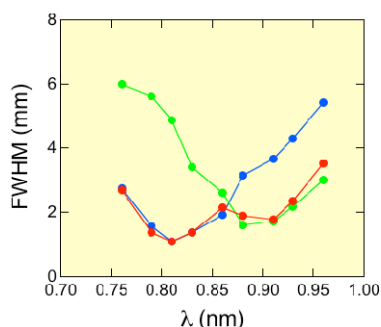


図 1. 四極磁石 (偏極素子、600mm 長) と 2 つの六極磁石 (2,400mm 長と 600mm 長) を組み合わせた多重連結システムでの集光特性の中性子波長依存性。六極磁石間に設置したスピン反転器 (400mm 長) を OFF (青)、ON (緑)、OFF→ON (赤) と状態を変えて、集光ビーム

の幅 (縦軸 FWHM) を比較した。中性子波長に応じてスピン反転器の状態を切替えることで、広い波長範囲の中性子を集光できることが示された。

この手法が長波長中性子だけでなく、より短波長の中性子に対しても適用できることを実証するために、JRR-3 の SANS-J-II ビームラインにおいて中性子ビームの波長を速度選別機により変化させながら集光特性評価を行った。図 2 のように SANS-J-II の試料ステージの上に六極磁石 (600mm 長) を設置し、上流のコリメータ槽に設置された四極磁石 (600mm 長) および六極磁石 (1,200mm 長) と組み合わせて 3 重連結システムを構成し、3.5~7A の約 3.5A の波長幅の中性子の集光特性の評価を行った。

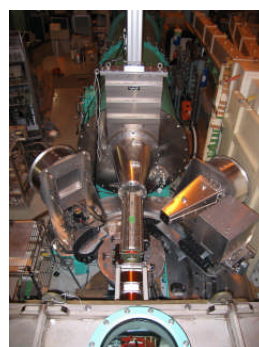


図 2. 中性子小角散乱装置 SANS-J-II に設置された 3 重連結システム (部分)。写真上方が中性子ビームの進行方向である。

六極磁石のボーア出口から 7m 下流に設置された高分解能検出器 (真空散乱槽内) を用いて集光ビームの 2 次元強度分布を観測した。

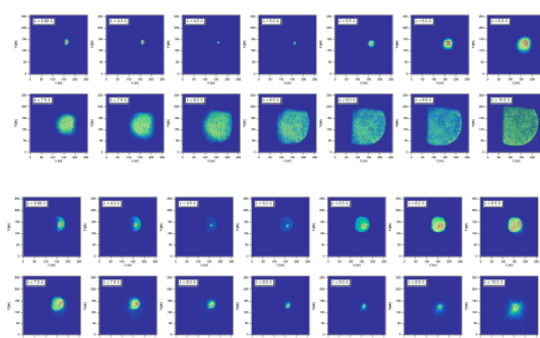


図 3. 高分解能検出器で観測した中性子 2 次元強度分布。スピン反転器を OFF (上半分の 14 枚の図)、ON (下半分の 14 枚の図) と状態を変えて集光特性を比較した。1 枚目 (1 段目最左) の図の波長は 3.69A である。波長が徐々に長くなるように右に並び、2 段目に移る。14 枚目 (2 段目最右) の図の波長は 10.0A である。3 枚目の図の波長 4.5A 辺りで 2 次元

強度分布が最もシャープになる。

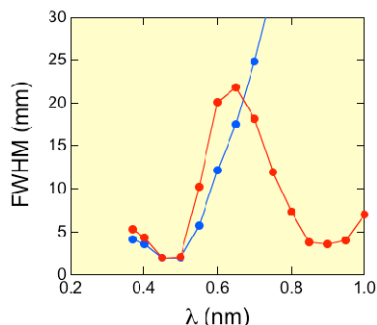


図4. 図3で得られた2次元強度分布の幅(縦軸 FWHM)の中性子波長依存性。スピン反転器がOFF (青)、ON (赤) の場合の比較。

これらの結果から、より短波長の 4.5 Å の中性子に対しても多重連結磁石による集光が可能であることを示すことができた。

これらの結果を元に、J-PARC の大強度パルス中性子源への多重連結磁石を用いた集光システム的应用を目指して、中性子小中角散乱装置「大観」に搭載するための設計と性能評価(数値計算)を行った。装置の  $q$  分解能の向上には波長が約 8 Å の中子の集光が有効であることを見積もり、3 重連結磁石を用いることで 7.8~8.2 Å の中子を、試料の約 5.6 m 下流に設置する高分解能検出器に集光できることを明らかにした。これらの設定により、中性子小中角散乱装置の  $q_{min}$  分解能をパルス中性子源における装置としてはこれまでにない約  $5 \times 10^{-4} \text{Å}^{-1}$  まで向上できることを確認し中性子小中角散乱装置の光学系の設計、建設に反映させることができた。また、同概念を定常中性子源において応用した集光型中性子小角散乱装置で鉄鋼材料の構造解析を行い、そこで見出された必要  $q$  分解能も J-PARC の中性子小中角散乱装置の光学系の設計に反映させた。図5にこれらの設計を反映させて製作し、J-PARC 物質・生命科学実験施設 (MLF) の BL15 ポートに設置した光学計の写真を示す。中性子ビーム方向は、写真右側が下流方向になる。3 つの真空槽に左から順に四極磁石 (1,000mm 長)、六極磁石 (260mm 長)、六極磁石 (800mm 長) がそれぞれ設置される。真空槽間には中性子パルスを整形するディスクチョッパーと高エネルギーの中子やガンマ線を遮蔽する遮蔽体が設置される。遮蔽体の幅は第1真空槽-第2真空槽間で 400mm、第2真空槽-第3真空槽間で 440mm である。スピン反転器はこの幅内に設置されるが、本研究課題で開発、評価した型の機器を用いることができる。

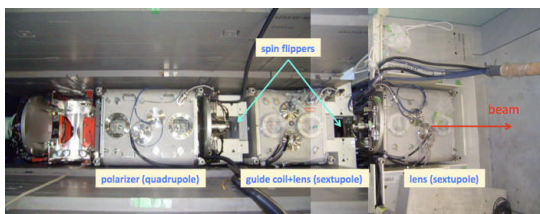


図5. J-PARC 中性子小中角散乱装置「大観」の光学機器の写真。

本研究課題により多重連結磁石を白色中性子ビームの集光に適用できることを、低エネルギー中子に対して示すことができた。このような集光システムの開発および応用は国内外で初めての試みである。しかし、J-PARC の中性子小中角散乱装置への応用の具体的な検討では、研究開始当初には想定していなかったディスクチョッパーや遮蔽体との空間的取り合いに十分配慮する必要が生じた。そのため現実的な設計を行うことができた。今後 J-PARC の中性子小中角散乱装置へ搭載するシステムの最適化と物質科学および生命科学への有効な利用を図りたい。

### 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2件)

- ① K. Ikeda, M. Ojima, Y. Tomota, J. Suzuki, Effects of nitrogen concentration and plastic deformation on small angle neutron scattering for austenitic stainless steels, *Tetsu-to-Hagane*, 査読有, 96, 2010, 70-75.
- ② 鈴木淳市, 高田慎一, 篠原武尚, 奥隆之, 吉良弘, 鈴木賢太郎, 相澤一也, 新井正敏, 大友季哉, 杉山正明, パルス中子小中角散乱装置「大観」の開発, *日本中子科学会誌「波紋」*, 査読無, 20, 2010, 54-57.

[学会発表] (計12件)

- ① J. Suzuki, S. Takata, T. Shinohara, T. Oku, H. Kira, T. Nakatani, Y. Inamura, T. Ito, K. Suzuya, K. Aizawa, M. Arai, T. Otomo, M. Sugiyama, The development of the small-angle neutron scattering instrument TAIKAN of J-PARC, 20th MRS-Japan Academic Symposium, Dec. 21th, 2010, Yokohama.
- ② J. Suzuki, S. Takata, T. Shinohara, T. Oku, H. Kira, T. Nakatani, Y. Inamura, T. Ito, K. Suzuya, K. Aizawa, M. Arai, T. Otomo, M. Sugiyama, The development of the small-angle neutron scattering instrument TAIKAN of J-PARC, The 6th Internal Symposium on the Characterization of Metals and Nanostructured Materials by Neutron and X-Ray Scattering, Nov. 4th, 2010, Changwon, KOREA (招待講演).
- ③ J. Suzuki, S. Takata, T. Shinohara, T. Oku,

- H. Kira, T. Nakatani, Y. Inamura, T. Ito, K. Suzuya, K. Aizawa, M. Arai, T. Otomo, M. Sugiyama, Small-angle neutron scattering instrument for nanostructure analysis, The 15th Anniversary HANARO Symposium, Nov. 1st, 2010, Daejeon, KOREA (招待講演).
- ④ 鈴木淳市, 高田慎一, 篠原武尚, 奥隆之, 吉良弘, 中谷健, 稲村泰弘, 伊藤崇芳, 鈴谷賢太郎, 相澤一也, 新井正敏, 大友季哉, 杉山正明, J-PARC 中性子小中角散乱装置「大観」の開発と鉄鋼材料評価への応用, 日本鉄鋼協会第 160 回秋季講演大会, 2010 年 9 月 27 日, 札幌.
- ⑤ 鈴木淳市, 高田慎一, 篠原武尚, 奥隆之, 吉良弘, 中谷健, 稲村泰弘, 伊藤崇芳, 鈴谷賢太郎, 相澤一也, 新井正敏, 大友季哉, 杉山正明, 大強度型パルス中性子小中角散乱装置「大観」の開発 III, 日本物理学会 2010 年秋季大会, 2010 年 9 月 24 日, 大阪.
- ⑥ 鈴木淳市, 高田慎一, 篠原武尚, 奥隆之, 吉良弘, 鈴谷賢太郎, 相澤一也, 新井正敏, 大友季哉, 杉山正明, 大強度型パルス中性子小中角散乱装置「大観」の開発 II, 日本物理学会 2009 年秋季大会, 2009 年 9 月 27 日, 熊本.
- ⑦ J. Suzuki, Y. Kinjo, H. Nishijima, Y. Oba, M. Ohnuma, H. Kira, T. Shinohara, T. Oku, Y. Tomota, Small-angle neutron scattering analysis of phase transformation in low-temperature bainite, XIV International Conference on Small-Angle Scattering, Sep. 16th, 2009, Oxford, UK.
- ⑧ J. Suzuki, Magnetic focusing of a pulsed neutron beam for a focusing-geometry smaller-angle neutron scattering instrument, Long-Pulse Instrumentation Workshop, Aug. 26th-28th, 2009, Frascati, Italy.
- ⑨ 鈴木淳市, 鉄鋼のナノ構造評価に有効な中性子小角散乱・反射率測定法, 日本鉄鋼協会第 157 回春季講演大会, 2009 年 3 月 30 日, 大岡山.
- ⑩ 鈴木淳市, 高田慎一, 篠原武尚, 奥隆之, 吉良弘, 鈴谷賢太郎, 相澤一也, 新井正敏, 大友季哉, 杉山正明, 大強度型パルス中性子小中角散乱装置「大観」の開発, 日本物理学会第 64 回年次大会, 2009 年 3 月 30 日, 西池袋.
- ⑪ J. Suzuki, Smaller-angle neutron scattering instrument of J-PARC with polarizing and magnetic focusing optics, JCNS Workshop 2008 "Modern Trends in Neutron Scattering Instrumentation", Oct. 16th, 2008, Bernried, Germany.
- ⑫ J. Suzuki, S. Takata, T. Shinohara, T. Oku, H. Kira, T. Nakatani, Y. Inamura, T. Ito, K. Suzuya, K. Aizawa, M. Arai, T. Otomo, M. Sugiyama, Smaller-angle polarized neutron scattering instrument of J-PARC, The 7th International Workshop on Polarized Neutrons in Condensed Matter Investigations, Sep. 4th, 2008, Tokai.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

鈴木 淳市 (SUZUKI JUNICHI)

独立行政法人 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：40354899

### (2) 研究分担者

奥 隆之 (OKU TAKAYUKI)

独立行政法人 日本原子力研究開発機構・

J-PARC センター・研究副主幹

研究者番号：10301748

篠原 武尚 (SHINOHARA TAKENAO)

独立行政法人 日本原子力研究開発機構・

J-PARC センター・研究員

研究者番号：90425629

### (3) 連携研究者

清水 裕彦 (SHIMIZU HIROHIKO)

大学共同利用機関法人 高エネルギー加速

器研究機構・物質構造科学研究所・教授

研究者番号：50249900