

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年5月23日現在

機関番号：12612

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K19072

研究課題名(和文)磁性ナノコンポジット材料を用いたホログラフィック中性子スピン偏極制御

研究課題名(英文)Holographic spin control of slow neutrons by magnetic nanocomposites

研究代表者

富田 康生(Tomita, Yasuo)

電気通信大学・大学院情報理工学研究科・教授

研究者番号：50242342

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：冷・極冷中性子ビームスピン偏極制御をホログラフィックに高効率で実現することを目的とし、表面処理超常磁性Fe₃O₄ナノ微粒子をアクリルモノマーブレンド中に9.3vol.%まで一様分散した光重合性磁性ナノ微粒子分散コンポジット(NPC)フィルムの作成を実現した。緑色レーザー(532nm)の二光束干渉露光による概NPCフィルムへの透過型体積ホログラフィック記録を実証し、無スピン偏極冷中性子(波長4.5nm)ビーム回折実験から最大回折効率6%が得られることを実証した。加えて、超伝導量子干渉計により一様硬化した磁性ナノ微粒子分散コンポジットフィルムの磁気特性を測定して超磁性特性を有することを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果により光重合性磁性ナノ微粒子-ポリマーコンポジット中に緑色レーザーで記録した磁性体積ホログラムから極冷中性子ビームの回折が効率的に行われることを世界に先駆けて実証した。この成果はスピン偏極冷・極冷中性子ビームによる高回折効率でコンパクトなスピン偏極制御機能の可能性を示したという意味で学術的意義は非常に大きい。また、本研究成果により冷・極冷中性子のスピン干渉現象を利用した量子力学や場の量子論などの基礎物理学、高分解能分光、物性・高分子研究、生命科学・医療、中性子イメージング、磁気材料開発など基礎科学分野や工学応用分野への多大な寄与が期待できるという意味で社会的意義も大きい。

研究成果の概要(英文)：In quest for the realization of slow-neutron beam spin control by holographic means we could successfully fabricate photopolymerizable magnetic nanoparticle-polymer composite (NPC) films by use of surface-treated Fe₃O₄ magnetic nanoparticles dispersed in an acrylate monomer blend at their concentrations as high as 9.3 vol.%. We could also demonstrate volume holographic recording of a transmission plane-wave volume magnetic holographic grating in the NPC film and evaluate its diffraction properties at optical wavelengths. Furthermore, we could demonstrate slow-neutron diffraction as high as 6% by a non-spin polarized very cold neutron beam at a wavelength of 4.5 nm. In addition, we confirmed the superparamagnetic behavior of a uniformly cured NPC film by use of a superconducting quantum interference device.

研究分野：光・量子エレクトロニクス

キーワード：応用光学・量子光工学 磁性ナノ材料 ナノコンポジット材料 ホログラフィック格子 中性子光学

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

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決める干渉計での位相差は中性子の波長と干渉計での相互作用長の積に比例する。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、1)シリコン完全単結晶の格子定数(5.43Å)の2倍を超える長波長の低速中性子(冷中性子・極冷中性子)ビームには使用できない、2)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、3)中性子ビームのコリメーション性と単色性に限界があり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、などの欠点があった。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、低速中性子ビーム用ミラーとして用いられているNi-Ti多層膜で構成されるsuper mirrorよりも簡便で安価な高効率の低速中性子光学素子の実現が望まれていた。もし、長波長の低速中性子ビームに対して高効率かつ簡便で安価な低速中性子光学素子が実現できれば、低速中性子ビームの利用率と制御性の拡大や高精度の低速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、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と考えられる。特に、低速中性子ビームのスピンの偏極制御による低速中性子スピン干渉計を簡便かつコンパクトに実現することができれば、中性子寿命・β崩壊に関する原子物理学実験の高精度化、低速中性子のスピン干渉現象を利用した高精度のスピン量子回転の精密位相測定、エンタングルメント状態での量子力学的非局所性(contextuality)など基礎物理学、超伝導材料や磁性薄膜の物性研究や材料開発、中性子イメージング、パーキンソン病やアルツハイマー病の原因となるタンパク質の線維化(異常凝集過程)の詳細な解析による創薬と新しい診断法の開発などの生命科学や医療分野などのさまざまな分野への多大な寄与が期待できる。

2. 研究の目的

低速中性子ビームのスピンの偏極制御を光重合性ナノコンポジット(NPC)材料に記録したホログラフィック体積ホログラムにより高効率で柔軟に実現する手法の原理確認とフィージビリティを検証する。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NPC記録材料として世界に先駆けて提案し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光重合性NPCにおいて、ナノ微粒子として磁性ナノ微粒子をフォトポリマーに分散した新しい光重合性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磁性ナノ微粒子の周期的密度分布の形成(すなわち、高屈折率変調の磁性体積NPCホログラム)を実現する。さらに、この磁性ナノ微粒子分散NPC材料の磁気特性、特に超常磁性が発現しているかどうかについて究明する。さらに、ホログラフィック露光による磁性体積NPCホログラム中の磁気ナノ微粒子の空間密度分布による低速中性子ビームのコヒーレント弾性散乱から生じる低速中性子Bragg回折特性およびその外部印加磁場依存性について究明する。これらの結果は高効率な低速中性子ビームのスピンの偏極分離・反射・分岐・干渉・変調が可能なホログラフィック低速中性子スピン制御と低速中性子スピン干渉計の実現に向けた基礎研究として重要な意味を持つ。

3. 研究の方法

(1)表面修飾を行った磁性ナノ微粒子の水分散あるいは有機溶媒分散ゾルを用いた光重合性モノマーへの一様分散方法、特に、有機溶媒分散ゾルによるモノマーへの直接分散方法について検討する。次に、作成した磁性ナノ微粒子分散NPCへの緑色波長(532 nm)の連続光発振レーザー光による二光束干渉露光によりホログラフィック露光によりNPC中に磁性体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サイズの透過型平面波体積NPCホログラムを記録して、可視光波長におけるホログラフィック記録特性ならびに磁性ナノ微粒子の空間密度変調度について詳細に評価する。その結果、低速中性子ビーム回折実験のための最適化された磁性体積NPCホログラム実験試料を設計する。(研究代表者と研究協力者の磯が担当)

(2)一様に光重合した磁性ナノ微粒子分散NPCの磁気特性を超伝導量子干渉デバイス(SQUID)を用いて測定する。(研究代表者と研究協力者の磯が担当)

(3)低速中性子ビームライン施設[Lae-Langevin研究所実験原子炉施設(フランス)]において、磁性体積NPCホログラムの基礎特性(透過率、回折効率、Bragg角離調特性、外部印加磁場

依存性など)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低速中性子光学素子としてのフィジビリティを検証する。[主に海外研究協力者のFully教授(オーストリア ウィーン大学)の研究グループらが担当。]

4. 研究成果

(1) 外部磁場中の磁性体積 NPC ホログラムの中性子屈折率変調振幅(Δn_{neu})の外部磁場依存性と外部磁場印加によるスピン偏極ビーム偏向の条件について理論的に究明した。外部磁場中の Δn_{neu} は次式で書ける。

$$\Delta n_{neu} = -\frac{\lambda_{neu}^2 \Delta f (b_n + b_{nm}) \rho_n}{2\pi}$$

ここで、 λ_{neu} は中性子波長、 Δf は磁性ナノ微粒子密度体積分率変調振幅、 $b_p(b_{nm})$ はホストポリマー(磁性ナノ微粒子)の平均コヒーレント散乱長、 $\rho_p(\rho_n)$ はホストモノマー(磁性ナノ微粒子)の原子数密度であり、 b_{nm} は外部磁場 B 、中性子磁気モーメント μ 、中性子静止質量 m_{neu} を用いて

$$b_{nm} = -\frac{m_{neu}}{2\pi\hbar^2\rho_n}\mu\cdot B$$

次式で与えられる。上式から $m_{neu}\cdot B < 0$ で Δn_{neu} が0となる条件は $b_n = |b_{nm}|$ であり、 Fe_3O_4 (マグネタイト)磁性体では $b_n\rho_n = 6.97 \times 10^{-6} (\text{\AA}^2)$ 、 $B = 0.0513(\text{T})$ で $b_{nm}\rho_n = 1.46 \times 10^{-6} (\text{\AA}^2)$ なので、その条件は $B = 0.25(\text{T})$ となり、磁性体積 NPC ホログラムによるスピン偏極中性子ビームの制御が原理的に実現可能であることが分かった。

(2) 実験では磁性ナノ微粒子表面へのリガンドとしてオレイン酸を用いた表面修飾 Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子(平均コア径5nm)を用いた。トルエンに分散した有機溶媒分散ゾル(図1参照)の一官能アクリルモノマー(Isostearyl acrylate, ISTA)と三官能アクリルモノマー(Trimethylolpropane triacrylate, TMPTA)からなるアクリルモノマーブレンドへの Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子濃度9.34vol.%までの一様分散(トルエン除去後)に成功した(図2と図3参照)。この



図1 Fe_3O_4 磁性ナノ微粒子ゾル



図2 トルエン除去前



図3 トルエン除去後

結果を得て、 Fe_3O_4 磁性ナノ微粒子分散 NPC 溶液をスプレーを装荷したガラス基板へ滴下し、他のガラス基板で挟むことで光重合性 Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子分散 NPC フィルムを作成し、緑色波長(532 nm)の連続光発振レーザー光による二光束干渉露光により透過型平面波体積 NPC ホログラム(格子間隔 $1\mu\text{m}$)を記録した。 Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子分散濃度3.82vol.%でのプローブ波長(633nm)における回折効率記録動特性、Bragg角離調特性、屈折率変調振幅(Δn)動特性をそれぞれ図4a、図4b、および図4cに示す。図4bでのKogelnikの理論式とのフィッティングから得られた実効膜厚 $12.5\mu\text{m}$ を用いて図4aから得られた光波長領域における屈折率変調振幅(Δn)飽和値の動特性を図4cに示す。この結果から Δn の飽和値として0.005に近い値が得られることが分かった。

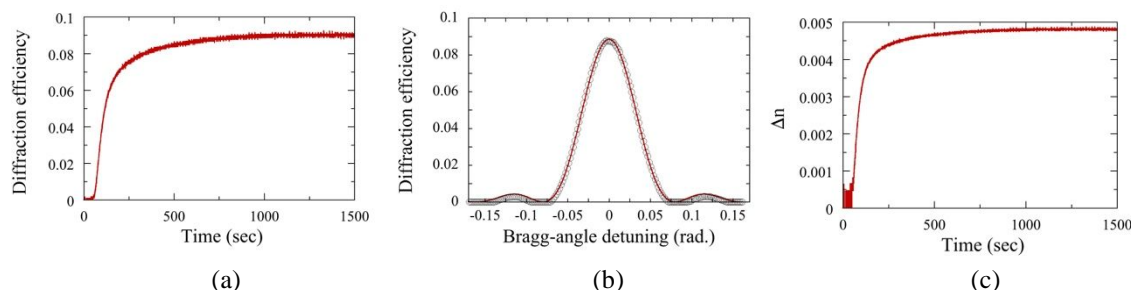


図4 (a) 回折効率動特性、(b) Bragg角離調特性、(c) Δn 動特性

図5に記録した透過型磁性体積 NPC ホログラムの写真を示す。図6に磁性体積 NPC ホログラム中の Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子密度分布を透過型電子顕微鏡(TEM)により得た結果をそれぞれ示す。duty比ほぼ1の矩形の Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子密度分布であることがわかる。これらの結果から、ホログラフィック光重合で得られる Δn と Fe_3O_4 磁性ナノ微粒子の Δf との関係は

$$\Delta n = \frac{2\Delta f(n_n - n_p)}{\pi}$$

で与えられるので(ここで、 n_n はナノ微粒子屈折率、 n_p はホストポリマーの屈折率)、図 4c の結果から $\Delta n=0.0048$ としてこの式から $\Delta f=0.09$ が得られ、 Fe_3O_4 磁性ナノ微粒子密度変動度としてほぼ 100%の値が得られていることが分かった。

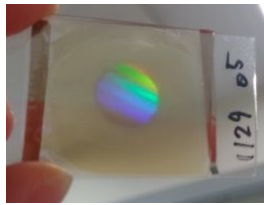


図 5 記録した磁性体積 NPC ホログラム

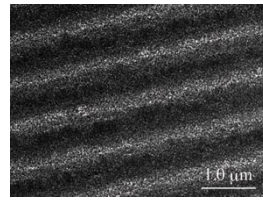


図 6 記録した磁性体積 NPC ホログラムの TEM 像

(3) 上記の組成により作成した Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子分散 NPC フィルムを緑色波長(532 nm)の LED で一様に光重合した硬化フィルムを細かく粉碎したものを測定試料として、超伝導量子干渉デバイス(SQUID)(MPMS-XL7, Quantum Design Corp.)を用いてその磁気特性を測定した。得られた結果を図 6 に示す。この結果から、ヒステリシス特性が見られないため磁性ナノ微粒子分散溶液で観測されるような超常磁性を示す磁気特性が硬化した Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子分散 NPC フィルムにおいても生じていることがわかった。

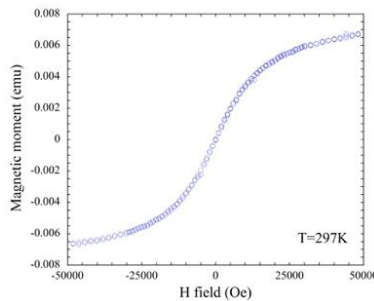


図 7 一様に硬化した Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子分散 NPC フィルムの磁化曲線

(4) 上記の組成により作成した Fe_3O_4 磁性体ナノ微粒子分散体積 NPC ホログラム(実効膜厚 $26\mu\text{m}$)を用いて、波長 4.5nm の極冷中性子ビームによる中性子回折実験を Laue-Langevin 研究所実験原子炉施設(フランス)で行った。その実験配置を図 8 に示す。測定では、磁性体積 NPC ホログラムの倒れ角 ζ は 0° に設定して、回折効率の Bragg 角($\sim 0.2^\circ$)付近の離調特性を透過ビームと ± 1 次回折ビームについて評価した。図 9 にその結果を示す。Bragg 角において最大約 6%の回折効率を得られることを実証した。さらに、外部から最大 0.32T の直流磁場を印加して、回折効率の外部磁場依存性も測定した。しかし、実験に用いた極冷中性子ビームはスピン偏極されていないものであったため回折効率の外部磁場依存性の有意な結果は得られなかった。(スピン偏極した極冷中性子ビームを用いた中性子回折実験は 2019 年 9 月に予定している。)

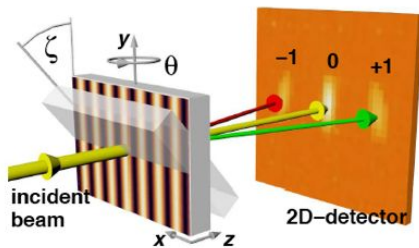


図 8 測定試料の配置

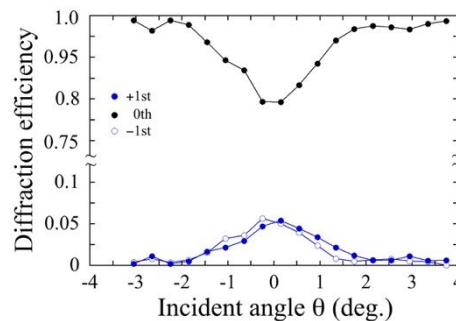


図 9 回折効率の入射角依存性

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

(1) M. Blaicker, B. Demirel, I. Drevensek-Olenik, M. Fally, P. Flauger, P. Geltenbort, Y. Hasegawa, R. Kurinjimala, M. Licen, C. Pruner, S. Sponar, Y. Tomita, and J. Klepp, "Monte-Carlo simulation of neutron transmission through nanocomposite materials for neutron-optics applications," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **916**, 154-157 (2019). 査読有
DOI: 10.1016/j.nima.2018.11.074

〔学会発表〕(計 9 件)

(1) Yasuo Tomita, "Properties and applications of photopolymerizable nanocomposite materials," **Invited talk**, to be presented at Collaborative Conference on Materials Science and Technology (CCMST) 2019, October 14-18, 2019, Shanghai, China.

(2) 富田康生, 磯由布子, 影山明久, J. Klepp, C. Pruner, M. Fally, 「超常磁性 Fe_3O_4 ナノ微粒子-ポリマーコンポジット格子からの低速中性子ビーム回折の観測」, 講演予定、第 80 回応用物理学秋季学術講演会, 2019 年 10 月 18 日 ~ 21 日、北海道大学 札幌キャンパス、北海道.

(3) Yasuo Tomita, Akihisa Kageyama, Yuko Iso, Koichi Umemoto, Jürgen Klepp, Christian Pruner, and Martin Fally, "Light and neutron diffraction properties of holographic nanodiamond composite gratings," to be presented at CLEO/Europe-EQEC 2019, June 23-27, 2019, Munich, Germany.

(4) Yasuo Tomita, Akihisa Kageyama, Yuko Iso, Koichi Umemoto, Jürgen Klepp, Christian Pruner, and Martin Fally, "Photopolymerizable nanocomposite materials: toward holographic manipulation of slow-neutron beams and their spin states," to be presented at Photorefractive Photonics and Beyond 2019, June 18-21, 2019, Gérardmer, France.

(5) Yasuo Tomita, Akihisa Kageyama, Toshi Aoi, Yuko Iso, Koichi Umemoto, Jürgen Klepp, Christian Pruner, and Martin Fally, "Photopolymerizable nanocomposite gratings for holographic control of slow neutron beams," The 1st International Conference on Optics, Photonics and Lasers (OPAL2018), May 10 (09-11), 2018, Barcelona, Spain.

(6) 富田康生, 影山明久, 磯由布子, 青井紀, J. Klepp, C. Pruner, M. Fally, 「超常磁性ナノ微粒子-ポリマーコンポジット格子」, 第 65 回応用物理学春季学術講演会, 2018 年 03 月 17 日 (17 日 ~ 20 日)、早稲田大学 西早稲田キャンパス、東京、講演予稿集 17p-B203-1.

(7) Yasuo Tomita, Kohta Nagaya, Toshi Aoi, Yuko Iso, Akihisa Kageyama, Naoya Nishimura, Keisuke Odoi, Koichi Umemoto, Jürgen Klepp, Christian Pruner, and Martin Fally, "Photopolymerizable nanoparticle-polymer composite materials for light and neutron beam manipulation," Special Session in Advanced Optical Materials, Sensors, and Devices (AOMatSens 2018), PHOTOPTICS 2018, January 25 (25-27), 2018, Madeira, Portugal, Proceedings, pp. 313-322 (2018).

(8) Yasuo Tomita, "Photopolymerizable nanocomposite materials for holographic applications," **invited talk**, III International Symposium on Nanoparticles/Nanomaterials Applications (3rd ISN²A-2018), January 24 (22-25), 2018, Caprica, Lisbon, Portugal, Proceedings Book O 24B, pp. 162-163 (2018).

(9) Yasuo Tomita, Eiji Hata, Toshihiro Nakamura, Keisuke Momose, Xiangming Liu, Shunsuke Matsushima, Jürgen Klepp, Christian Pruner, and Martin Fally, "Nanocomposite holographic gratings for light and neutron optics," **keynote talk**, The 12th Japan-Finland Joint Symposium on Optics in Engineering (OIE'17), September 12 (11-15), 2017, Sado, Japan, Proceedings S1 (2017).

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

出願年 :

国内外の別 :

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年：
国内外の別：

〔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

研究代表者氏名：富田 康生
ローマ字氏名：TOMITA YASUO
所属研究機関名：電気通信大学
部局名：大学院情報理工学研究科
職名：教授
研究者番号(8桁)：50242342

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：磯 由布子
ローマ字氏名：Yuko Iso
研究協力者氏名：影山 明久
ローマ字氏名：Akihisa Kageyama
研究協力者氏名：マーティン ファリー
ローマ字氏名：Martin Fally
研究協力者氏名：ユージェン クレップ
ローマ字氏名：Jürgen Klepp
研究協力者氏名：クリスチャン プルナー
ローマ字氏名：Christian Pruner

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。