

パルス冷中性子を用いた基礎物理研究

Fundamental Physics using Pulsed Cold Neutrons

清水裕彦

名古屋大学理学研究科

(on behalf of NOP Collaboraiton)

J-PARC/MLF に配備されたスパレーション中性子源は、瞬間最大輝度において世界最高レベルの冷中性子ビームを供給している。この特性を活かして、中性子を用いた素粒子・原子核物理学研究を実施しており、現状を報告する。テーマを列挙すると、(1)中性子平均寿命の測定、(2)中性子の希ガス散乱における散乱中性子の角分布測定による未知相互作用の探索、(3)複合核状態における離散的対称性の破れ、(4)単結晶による中性子回折を利用した中性子電気双極子能率の探索実験、(5)ドップラーシフターを用いた超冷中性子発生、(6)超冷中性子反射光学系の研究、(7)中性子リバンチャー(中性子加減速機を用いた時間収束光学系)の研究、(8) ^3He スピンフィルターの性能評価、(9)高計数率熱外中性子検出器の開発などである。これらはビームの定常的供給が始まったことで、ほぼ同時並行的に進行しており、成果がまとまる前段階に至っている。今回は現状報告となるが、上記(3)については入射中性子の部分波間での干渉機構が解明されつつあり、その進捗状況をまとめて紹介する。個別の成果は別途のポスターによって紹介される予定である。

Magnetic structural analysis of monoclinic MnF₃

Sanghyun Lee, Shuki Torii, Yoshihisa Ishikawa, Masao Yonemura, and Takashi
Kamiyama
KEK-中性子

Correlation of lattice, spin, charge, and orbital degrees of freedom induce interesting physical properties, such as multiferroics, superconductivity, colossal magnetoresistance, and etc, in condensed matter physics. When these degree of freedom is ordered concomitantly with crystal structure inside the solid, the symmetry of Hamiltonian and crystal should be compatible with each other. Also, changed symmetry characterizes the physical properties and phase transitions. Since symmetrical viewpoint gives us the insight with simple and solid descriptions, it is royal way to understand physical mechanism easily in complex system. However, in fact, it is not easy to know precise symmetry since any tiny crystal distortion causes totally different symmetry.

SuperHRPD is time-of-flight powder neutron diffractometer which is installed in BL08, MLF, J-PARC [1, 2]. Since SuperHRPD is world-best high-resolution powder neutron diffractometer with $\Delta d/d=0.035\%$, we can investigate detail symmetry of crystal and magnetic structure simultaneously. For instance, standard antiferromagnet MnO, CoO, and NiO have unsolved problems of detail spin direction and phase transition mechanism for half-century. By employing SuperHRPD beamline, we clarify the issues that different spin directions are responsible for magnetoelastic coupling type and phase transition mechanism [3].

Manganese trifluoride MnF₃ is A-type antiferromagnetic structure determined by earlier neutron diffractometer [4]. Even though real crystal structure is monoclinic, so far, magnetic structure has been described by pseudo-cubic notation due to the poor resolution of usual neutron diffractometer. Here, we will report detail magnetic structure in monoclinic setting.

[1] S. Torii et al., J. Phys. Soc. Jpn. **80**, SB020 (2011)

[2] S. Torii et al., J. Phys. Conf. Ser. **502**, 012052 (2014)

[3] S. Lee et al., Phys. Rev. B **93**, 064429 (2016)

[4] E. O. Wollan et al., Phys. Rev. **112**, 1132 (1958)

全散乱法による水素化物の規則-不規則構造解析 Analysis of ordered/disordered structure in hydrides with total scattering technique

大友季哉^{1,2,3}、池田一貴¹、本田孝志¹、大下英敏¹、鈴谷賢太郎⁴、川北至信⁴、社本真一⁵、樹神克明⁵、福永俊晴⁶、森一広⁶、小野寺陽平⁶、亀田恭男⁷、山口敏男⁸、吉田亨次⁸、丸山健二⁹、榑浩司¹⁰、Hyunjeong Kim¹⁰、中村優美子¹⁰、町田晃彦¹¹、服部高典⁴、伊藤恵司¹²

1 KEK 物構研中性子、2 総研大高工、3 茨城大理工、4 JAEA J-PARC センター、5 JAEA 量子ビーム、6 京大原子炉、7 山形大、8 福岡大、9 新潟大、10 産総研、11 量研機構、12 岡山大

物質中の水素は、生命活動から新規材料まで、様々な物性や機能を誘起する元素である。中性子は水素(プロトン)を高精度で観測しうる量子ビームであり、とくに物質中の水素-水素相関の観測においては唯一のプローブと言える。中性子全散乱法により、液体、非晶質を始めとして結晶における不規則構造の解析が可能である。本研究は、J-PARC 物質・生命科学実験施設・高強度全散乱装置(NOVA)の高度化を行いながら、全散乱法を用いて規則-不規則構造の観測により、水素貯蔵材料における水素貯蔵メカニズムの基盤研究を行うとともに、多彩な物質の物性・機能の構造的な起源を全散乱法により解明することを目指すものである。

本研究におけるNOVAの高度化として、測定基盤技術の高度化、PDF解析法による物質中水素の構造解析、結晶 PDF 解析の高度化、構造モデリング高度化等を進めている。

平成 28 年の主な成果

- 測定基盤技術の高度化
 - 高圧水素ガス実験用試料容器の開発、温度調整可能試料交換機、室温 40 試料交換機、トップローディング型クライオスタットなどの試料環境整備
- PDF 解析法による物質中水素の構造解析
 - NaAlH(D)₄ における水素吸蔵放出反応プロセスの構造的理解 (2015MP003)
 - バナジウム系合金の劣化メカニズムの解明
- 構造モデリング高度化による非晶質・液体の構造解析
 - 超イオン伝導体(ガラス、結晶)のイオン伝導経路の解明
 - ⁶Li/⁷Li 同位体置換試料を用いた溶液の精密構造解析技術の開発

**J-PARC/MLF BL06 中性子共鳴スピンエコー分光器群
(VIN ROSE)のための回転楕円体集光ミラー開発
Development of ellipsoidal neutron focusing
supermirror for neutron resonance spin echo
spectrometers (VIN ROSE) at BL06 at J-PARC/MLF**

日野正裕¹、小田達郎¹、遠藤仁²、山田悟史²、瀬戸秀紀²、
細畠拓也³、山形豊³、武田晋³、吉永尚生¹、川端祐司¹
¹京大, ²KEK, ³理研

中性子はナノ構造の時間—空間領域の両方をプローブ出来る希有な粒子であるが、中性子強度によって測定が制限されている。中性子スピンエコー法は中性子スピンという自由度を導入し、スピンの位相を精密制御することで、入射中性子のエネルギー分解能によって測定可能なエネルギー分解能が制限されることなく、高エネルギー分解能かつ高中性子強度を同時に実現する。J-PARC/MLF BL06 で開発中の中性子共鳴スピンエコー装置群:VIN ROSE(The Village of Neutron ResOnance Spin Echo spectrometers)は MIEZE 型と集光型 NRSE 型の 2 台のスピンエコー分光器からなる。

MIEZE は強磁場を含む、従来のスピンエコー装置では難しい試料環境での測定を可能とし、特に京大炉で定式化した TOF-MIEZE 分光法は定常炉での困難を大幅に緩和する[1]。しかし高エネルギー分解能測定には原理的に限界がある。そのため、高分解能測定は NRSE で行うが、その達成には、試料による微少な散乱角の変化によるスピンの位相を補正するための位相補正デバイスを確立する必要がある。ここで位相補正デバイスに回転楕円体スーパーミラーを用いることで試料での集光も行える。しかし曲率の大きく長さも1m近い回転楕円体集光スーパーミラーの成功例は未だ無い。我々は金属母材を用いてこの問題に挑戦している。

金属を母材することで、機械加工用の NC 加工機での製作が可能となり、劇的な製作期間短縮とコスト削減が可能となる。また耐放射線にも優れ、分割して組み合わせ、構造材、例えばミラー自体を遮蔽等構造材としても利用でき、今までの低速中性子輸送を根本的に変えられる可能性がある。我々は無電解ニッケルメッキを用いることで中性子スーパーミラーに必要な表面粗さ 0.3nm を実現した。そして世界で初めて金属基板の回転楕円体中性子スーパーミラーの開発に成功し、BL06 ビームラインで、ベヘン酸銀の中性子小角散乱の明瞭なピークの観測に成功した。当日は、この小角散乱実験や集光ミラー開発の現状を述べる。

[1] T.Oda, M.Hino, M.Kitaguchi, P.Geltenbort, Y.Kawabata, Review of Scientific Instruments 87(2016) 105124.

中性子反射率計 SOFIA における集光ミラー・検出器開発 2 Development of Focusing Mirror and Detector for Neutron Reflectometer SOFIA (2)

山田悟史¹, 細畠拓也², 日野正裕³, 藤原健⁴,
堀耕一郎¹, 佐藤節夫¹, 山形豊²
¹KEK, ²理研, ³京大, ⁴産総研

中性子反射率法は物質の界面で反射された中性子を計測し、その干渉を利用することによって数 nm～数百 nm スケールにおける深さ方向に対する散乱振幅密度の分布を観察する手法である。中性子は物質透過性が著しく高く、物質に内在する「埋もれた界面」を容易に評価することが可能な上、重水素化ラベル法を用いることによって特定の部位にコントラストを付けて観測できるというメリットがある。

J-PARC MLF の BL16 に設置された試料水平型中性子反射率計 SOFIA は大強度パルス中性子ビームを生かした短時間測定と低いバックグラウンドを特徴とする装置である。また、2次元検出器を利用した入射角分布の補正や非鏡面反射測定やダブルフレームモードを利用した時分割測定における wide-Q 領域測定、測定プログラムにおける入射ビーム強度に対する最適化や試料アライメントの自動化などを実装しており、高いスループットと利便性を兼ね備えている。一方、光学系や検出器についてはそれぞれダブルスリットコリメーションと ⁶LiF/ZnS シンチレーターを採用したコンサバティブなもので、改良の余地が残されている。これに対し、我々は現在集光ミラーによる光学系、および ¹⁰B コンバーターと GEM を組み合わせた検出器の開発を行っている。

集光ミラーによる光学系は一次元楕円ミラーを用いて試料集光を行うことにより、小さな面積の試料に対して大きな発散のビームを利用することを目的とする。これは、ビームサイズと同時にビーム発散も同時に小さくする必要のあるダブルスリットコリメーションに対する大きなアドバンテージで、固液界面など試料の一部にしかビームを照射できないような測定において測定効率の向上が期待できる。我々は、集光ミラーの素材として NiP めっきを施したアルミ材を採用し、最新版のミラーで半値全幅 0.17 mm のビームサイズを達成することに成功した。検出器については ¹⁰B が中性子をキャプチャーする際に生じる荷電粒子を GEM で検出する、ピクセル読み出し型の 1次元検出器を開発中である。この際、中性子の吸収率を上げるためにコンバーターの厚みを増やしすぎると、荷電粒子が自己吸収されてしまうという問題が生じる。これに対し我々は、ピュアな B 薄膜に Ti をコートしたコンバーターに中性子を斜入射することで B 密度と実効的な厚みを増やし、検出効率を向上させることに成功した。

詳細は当日の講演で発表する予定である。

KENS S1 型課題活動報告 2014S09

Activity Report on KENS 2014S09 Project

横尾哲也^{1,2}、藤田全基³、伊藤晋一^{1,2}

1KEK-物構研、2J-PARC センター、3 東北大-金研

物質構造科学研究所中性子科学研究施設の S1 型課題のひとつ 2014S09 は「偏極中性子散乱装置 POLANO による静的・動的スピン構造物性の研究」と題した、偏極中性子散乱装置の新規建設とそれを用いたパルス中性子における偏極中性子散乱法の確立、および偏極度解析を利用した物性研究を目的としている。平成 24 年度より開始された建設は平成 26 年度に入って本格化し、今年度平成 28 年度の工事で主要部分の製作・設置工事を終了した。放射線変更申請を受審、合格しいよいよ中性子ビーム受け入れの準備が整った段階である。現在、ビームコンポーネント機器の最終調整を行っており、今後コミッションングを経て、学術研究に向けたビーム利用を進めてゆく。

一方で、パルス(TOF)中性子散乱における偏極中性子技術は世界的に見ても現在発展途上にあり、多くの重要な技術開発が必要である。我々は本 S1 型課題を通して、それら関連する技術開発にも注力する。特にチョッパ技術、SEOP や DNP といったスピン偏極技術、スピントリッパーなど磁場環境技術を中心にして開発を推進してゆく。このように偏極基盤技術を高めることによって国際競争に対抗できる装置を目指し、偏極中性子の拓くサイエンスを展開する。

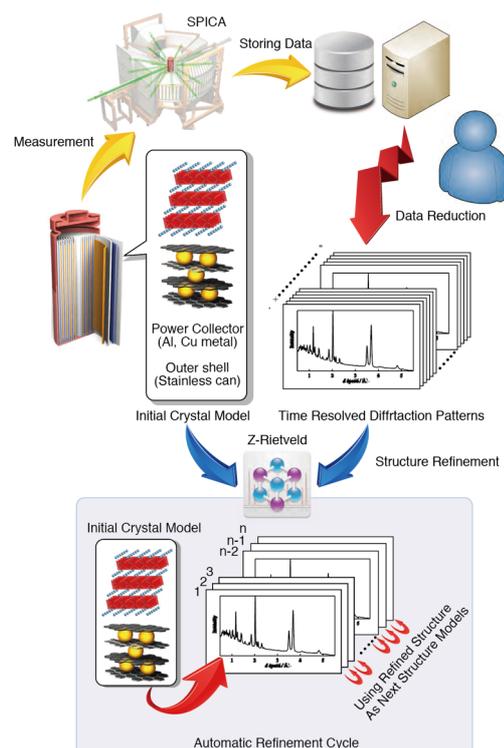
2014S09 プロジェクトは物質構造科学研究所と東北大金研との大学共同利用を基盤とした密接な大学連携で推進しており、発足当初の 2009S09 課題から継続した共同プロジェクトである。

特殊環境中性子回折計 SPICA による 電池反応の構造学的研究 Structural Study of Battery Reaction Using *Operando* Technique on SPICA

米村雅雄^{1,2}, 石川喜久¹, 鳥居周輝¹, 神山崇^{1,2}, 森一広³, 福永俊晴³,
小野寺陽平³, 中貴弘⁴, 森島慎⁴, 塩谷真也⁴, Dyah Sulistyantyas⁴,
松永利之⁴, 右京良雄⁴, 荒井創⁴, 木野幸一⁵, 田港聡⁶, 平山雅章⁶,
菅野了次⁶, 北村尚斗⁷, 石田直哉⁷, 井手本康⁷, 内本喜晴⁸, 小久見善八⁴
KEK¹、総研大²、京大炉³、京大産連⁴、産総研⁵,
東工大院総理工⁶、東理大理工⁷、京大人環⁸

蓄電池の分野では既存の電池を高容量化、高出力化、劣化抑制等により電池特性を向上させながら、平行して革新電池と呼ばれる安価で高容量の新しい蓄電池の開発研究が進んでいる。J-PARC MLF BL09・SPICA では、非破壊かつ動作環境下で行う *operando* 測定により、充放電条件を変化させた場合に起こる電池反応の違いを、電極材料の構造変化として観測することができる。さらに電極材料の構造を定性定量に分析する技術を開発することで、次世代蓄電池開発研究の推進に貢献している。

operando 測定では、多くの時分割回折データが得られ、Rietveld 解析により電極材料の構造と組成を決定するには膨大な時間が必要である。一方で電池研究では、その構造解析結果を基に、電池反応を理解することが極めて重要である。そのため、大量の回折データを短時間で構造解析することは、電池研究推進ために欠かせない。そこで、本研究では Rietveld 解析の自動化技術を開発した。自動解析には J-PARC で開発している Z-Rietveld を用いた。実際の *operando* 測定によるリアルタイム測定データから蓄電池の電極材料の構造変化を解析することに成功した。この技術は、今後電池研究を前進の役立つと期待される。本発表では、解析手法に加え、SPICA での最近の蓄電池研究の進捗を報告する。



HRC の 2016 年度装置整備 Improvement of HRC in FY2016

伊藤晋一¹、横尾哲也¹、益田隆嗣²、吉沢英樹²、左右田稔²、吉田雅洋²、
羽合孝文¹、川名大地²、浅見俊夫²、杉浦良介²、篠崎知子²、川村義久²、
井畑良明³

1 KEK 中性子、2 東大物性研、3 J-PARC センター

高分解能でかつ高エネルギーの中性子を用いて凝集系のダイナミクスの研究をすすめるために、J-PARC・MLF の BL12 に高分解能チョッパー分光器 (HRC) を建設し、建設以来、性能向上のための様々な整備を行っている。2016 年度は次のような装置整備を行った。中性子ブリルアン散乱実験の成功を受けて、小角検出器の購入及び小角部フランジの改造が認められた。散乱中性子を前後 2 列で計測できるように検出器を配置した。これにより計数率が 1.4 倍に増大した。小角検出器は 0.6-5° の散乱角に設置した(10° まで設置可能)。フェルミチョッパーがうまく同期しない場合があり、これまで磁気軸受等調整では改善できなかった。制御ソフトの問題の可能性について製造元と議論して問題点の存在を認識した。この議論に基づいて、制御ソフトの改善を行っている。また、電源が喪失したときにフェルミチョッパーを安全に減速させるために無停電電源の機能を強化することとした。フェルミチョッパーの構造問題の検討、計算機更新、データストレージ設置、真空排気系保守等も合わせてすすめている。³He 循環型冷凍機に圧力セルを取り付けて実験するために、安全審査を通して、実験を行った。超伝導磁石を整備し、HRC で 10T までの励磁に成功したが、液体ヘリウム槽から真空断熱槽へのリークが起き、修理を行った。鉄材の多い HRC で励磁したためにリークが生じた可能性が強く、今後、この電磁石を用いた実験は HRC では実施しないこととした。