

湾曲結晶による超高輝度点集光中性子ビームの創成

東北大・金研 平賀 晴弘、大山 研司、山田 和芳、藤原 航三、中嶋 一雄
東北大・院理 岩佐 和晃

1. はじめに

白色中性子ビームの単色化には、結晶のブラッグ反射を利用する結晶法が広く用いられている。中性子ビームは線幅が数 cm ~数十 cm 程度に広がっているため、通常は、cm サイズの平板結晶を二次元的に並べて、大面積のモノクロメータを構成する。しかしながら、平板結晶を用いる限り集光スポットサイズには限界があり、中性子ビームの空間集光は不十分であった。これまで、数 mm 以上の厚みを持った平板結晶を機械的に歪めて張力により曲面を形成する試みも為されてきたが、設計通りに曲面を形成することの困難さ故に、mm サイズの点集光は未だ実現されていない。

以上の事情を鑑み、本研究では、従来の機械的方法に基づく曲面制御の困難という欠点を解消し、mm サイズの点集光を可能とする、これまでにない高輝度中性子ビームの創成を最終目的としている。空間集光の度合いは曲面の湾曲度に依存するが、モノクロメータ実機として利用するには、高い反射率が要求される。今年度は主として、Si 結晶の湾曲化により反射率自体が向上しているかどうか調査した。

2. 研究経過

金研中嶋研において、ホットプレス法により、Si 半導体結晶バルクウェハーへ湾曲加工を施した。日本原子力研究開発機構・東海研の研究用原子炉に設置されている金研三軸型中性子分光器 AKANE (山田研が管理)を用い、ホットプレス前後で Si 湾曲結晶による中性子反射強度の変化を測定した。中嶋研と山田研で度々ミーティングを行い、中性子回折の実験結果をホットプレス条件へフィードバックし、Si 結晶の厚みや湾曲度、ホットプレス条件に対する最適化を目指した。更に、モノクロメータとして良好な反射率を示す湾曲ウェハーを重ね合わせることにより、現在広く普及しているパイロリティックグラフィート (PG) を超える性能を目指した。

3. 研究成果

図 1 に、3mm 厚の Si 結晶に対してホットプレス処理を施した際、その前後 ("Flat"と"Bent")におけるロッキングカーブの変化を示す。ホットプレスによりピーク高さは 40%程度に減少するが、ピーク幅は逆に 8 倍にまで広がることから、積分強度としては 3 倍程度のゲインとなる。Si 結晶 1 枚あたりの厚み依存性を、図 2 に示す。Flat 結晶では厚み 0.3mm と 0.5mm の積分強度に大差なく、Si の完全結晶性に起因する消衰効果を示している。一方、Bent 結晶の積分強度は Flat 結晶に比べて数倍強いだけでなく、Si 結晶 1 枚あたりの厚みに比例していることから、ホットプレスによる消衰効果の除去を確認した。図 3 に、Bent 結晶 6 枚を重ねていった時の、ロッキングカーブの変化を示す。格段の注意を払わずに重ねただけであるが、精度良く、しかも効率的に中性子を反射していく様子が観てとれる。Si 結晶を 6 枚重ね合わせた段階 ($t=2.2$ mm) で、積分強度は PG モノクロメータのそれに匹敵するか、あるいはそれ以上である。注目すべきは、重ね合わせた Si 結晶の厚みにほぼ比例して積分強度が増大し(図 3 の inset)、湾曲度によりピーク幅を制御することで、PG 結晶では到達しない半値幅($>\sim 1^\circ$)を容易に再現性良く実現できることである。なお、これらの特徴は、散乱中性子のエネルギー解析を行う中性子アナライザーに最適である。

4. まとめ

最近開発された Si 湾曲結晶技術を駆使し、中性子実験の心臓部である中性子モノクロメータ及びアナライザーを、新しい視点で開発をスタートした。ホットプレス処理により Si 結晶の反射強度が格段に向上すること、特に中性子アナライザーとしての活用が有望であることを見出した。

5. 発表 (投稿) 論文

該当論文は無い。ただし、特許申請書を作成し、提出する段階である。

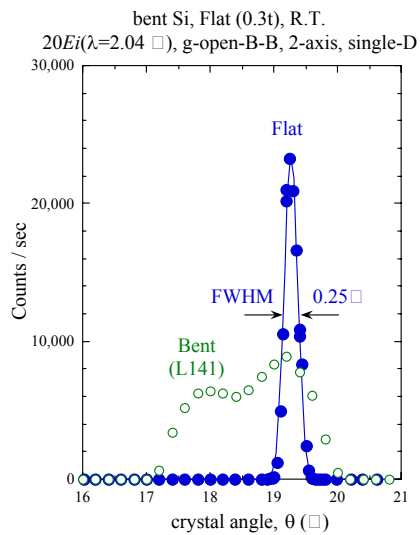


図 1、ホットプレス前後でのロッキングカーブ。

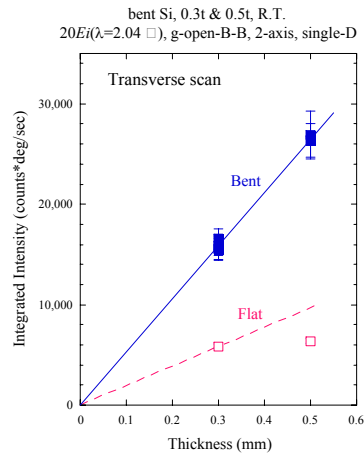


図 2、Si-Flat, Si-Bent に対する積分強度の厚み依存性。

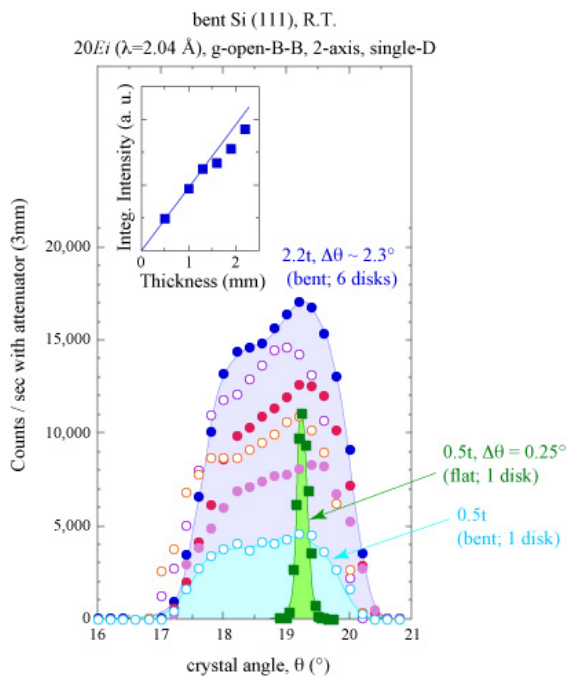


図 3、Bent 結晶による反射スペクトルの枚数依存性。参考までに、Flat 結晶（1 枚）による反射スペクトルを緑色で示す。Inset は、積分強度の厚み依存性。

中性子線を用いた原子分解能ホログラフィー

東北大金研 林 好一、大山研司、折茂慎一、中森裕子 原研 柴田 薫 東北大環境 高橋英志

1. はじめに

X線や電子線ホログラフィーと同様に、近年、中性子線ホログラフィーも注目されてきている。これら原子分解能ホログラフィーは、通常の回折法と異なり散乱波の位相が記録できるために、特定元素周辺の三次元原子配置を直接的に取得できる画期的な手法として、高く評価されてきた。申請代表者 林は、これまで X線ホログラフィーの研究に8年間携わり、特にドーパント周辺の局所構造の解析に関して著しい成果を挙げてきた。しかしながら、X線ホログラフィーの場合、水素などの軽元素を中心元素として選択することや原子像として再生させることが不可能な点や、磁気散乱能が極めて小さいことなどの欠点もあった。このような理由から、申請者らは、二年程前から水素吸蔵材料に対し、JRR3のHERMESを用いて高効率中性子線ホログラム測定技術の開発及び測定パターンの生成メカニズムに関する基礎研究を行い(結果の一部は、JJAPにアクセプトされた)、水素からの非干渉性散乱を検出することによるホログラムパターンには多くの熱散漫散乱が含まれていることを突き止めた。この熱散漫散乱による影響を、うまく取り除くために、ここでは試料の冷却、及び重水素置換を行った試料に対してホログラムの測定を行った。

2. 研究経過

水素核からの非干渉性散乱を利用したホログラフィー技術は、Chalk River 研究所における Rogge 博士らの実験が Nature(B. Sur et al., Nature 414, 525 (2001))に、既に紹介されている。ホログラムは、単結晶の周りに放出される非干渉性散乱の空間(角度)分布を三次元的に計ることによってホログラムを記録できるが、彼らはシングルディテクターの回折装置(N5)で角度をスキャンしながら測定しているために効率が悪かった。この点を申請者らは改善し、HERMESの150本³Heカウンターを用い、効率的にホログラムを測定することに成功した。平成19年度の実験では、150本³Heカウンターの前にスリットを調節することにより、垂直方向の角度分解能の向上を図った。

試料には、10mmφ×5mmtのPd単結晶に水素を吸蔵させた試料PdHと重水素を吸蔵させた試料PdDの二種類を用意した。水素化処理直後に表面を銅メッキにより、水素が抜けないようにした。スキャンした角度範囲は、試料の回転角に対して $0^\circ \leq \phi \leq 360^\circ$ ($\Delta\phi=1.0^\circ$)であり、 $7^\circ \leq \theta \leq 157^\circ$ ($\Delta\theta=1.0^\circ$)の範囲で試料から放出される散乱を測定した。測定時間は、各 ϕ に対して480秒であり、合計で2日間ほど必要とした。1ピクセルあたりに観測された中性子のカウント数は、約500カウントである。試料は、Oxford製の試料吹き付け装置を用いて、100Kまで冷やした。

3. 研究成果

図1(a), (b)は、試料温度が室温及び100Kの場合のPdH試料周りに発せられる中性子線強度の二次元分布である。室温のデータは、平成18年度の実験で測定したものである。データは、統計精度を上げるために、試料の対象性を利用して4回対称操作を行い、そして、ノイズを抑えるためにローパスフィルター処理を行った。熱散漫散乱によるパターンは、室温のデータである図1(a)において最も強く観測される。特に目立つパターンとして、 $\theta=80^\circ$ 及び $\theta=50^\circ$ 付近において、それぞれ4つのスポットが観測される。一方、試料を100Kまで冷却した場合、 $\theta=80^\circ$ 付近のスポットの強度が減少していることが分かる。このことは、このスポットが熱散漫散乱に強く起因していることを示している。図2は、図1(a)及び(b)のパターンにおける、 $\theta=80^\circ$ での ϕ 方向の強度変化をプロットしたものである。100Kにまで冷却することにより、その振幅が半分以下になり、試料冷却が熱散漫散乱を抑えるのに、効果的であることが分かる。

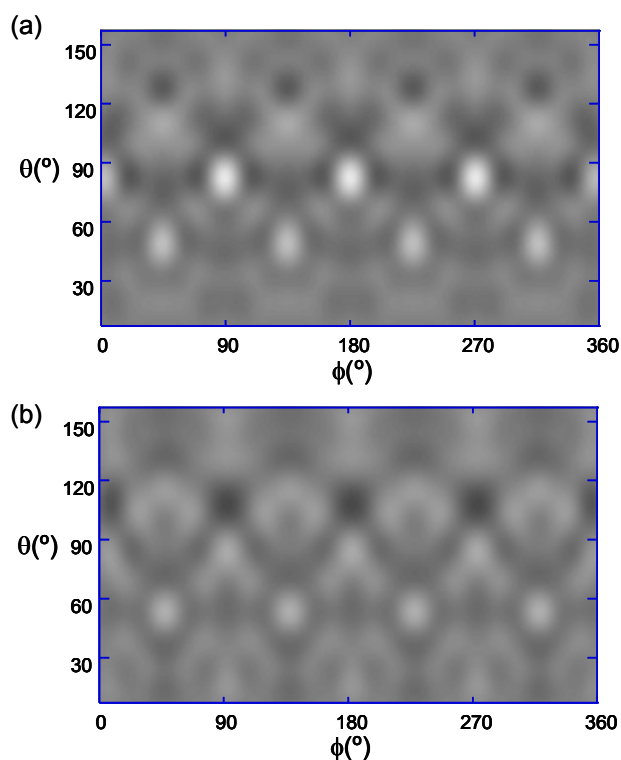


図1 PdH 周りの中性子線強度の二次元分布。(a):室温。(b):100K

次に、図 3 は、試料温度 100K における PdH 及び PdD からの中性子線強度の二次元分布である。図 3(a)、(b)は、それぞれ PdD 及び PdH からのものであるが、そのパターンは全く異なることが分かる。重水素 D においては、非干渉性散乱断面積は小さいために、PdD のパターンは殆ど熱散漫散乱に起因する。一方で、PdH のパターンは、水素 H の非干渉性散乱断面積が極めて大きいため、熱散漫散乱に起因するものと、ホログラムパターンに起因するものが重なっている。両者のパターンで大きく異なるのは、PdH においては明瞭に観測される $\theta=50^\circ$ 付近のスポットが、PdD の方では全く観測されないことである。このため、多少振幅が大きいことは気になるが、 $\theta=50^\circ$ 付近のスポットはホログラムに起因する可能性が高いと考えられる。

図 3(b)及び図 3(a)のパターンの差分を求めることにより、原理的には純粋なホログラムパターンを求めることができる筈である。図 3(c)は、その差分であるが、このパターンを見ると、 $\theta=90^\circ$ を境にして上下に対照的なパターンが見えることが分かる。ホログラムは、完全に結晶の対象性を反映したパターンを持つために、この差分操作により、純粋なホログラムパターンが抽出できた可能性がある。

今後は、理論計算を用いたホログラムパターンの検討と、原子像の再生を行い、この実験結果の妥当性を評価していく必要がある。

4. まとめ

平成 18 年度の実験では、東海村にある原研改三号炉に設置されている金研中性子回折装置 HERMES を用いて、効率よく中性子線ホログラムを測定することを試みた。しかしながら、散漫散乱が強く測定され、その除去に理論計算による手助けを求めた。平成 19 年度の実験では、いかに、この熱散漫散乱の影響を抑えるかということ念頭におき、試料冷却と重水素置換というファクターを、中性子線ホログラフィーの研究に導入した。試料冷却によっては、熱散漫散乱の影響が効果的に抑えられることが分かった。また、重水素置換した試料からのパターンと、そうでない試料からのパターンの差分を取ることにより、純粋なホログラムパターンと思われるデータを抽出することができた。

5. 発表（投稿）論文

“Neutron Holography Measurement Using Multi Array Detector”, Kouichi Hayashi, Kenji Ohoyama, Shinichi Orimo, Yuko Nakamori, Hideyuki Takahashi¹ and Kaoru Shibata, Japanese Journal of Applied Physics (2007) in press.

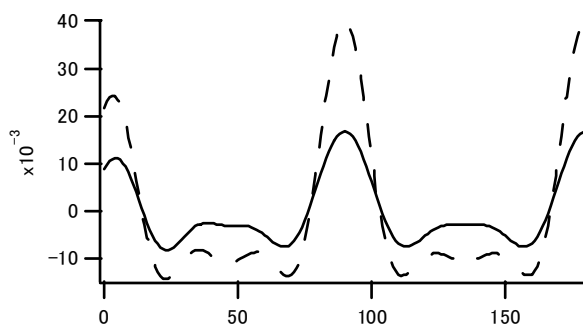


図 2 $\theta=80^\circ$ での ϕ 方向の強度変化。破線：室温。実線：100K

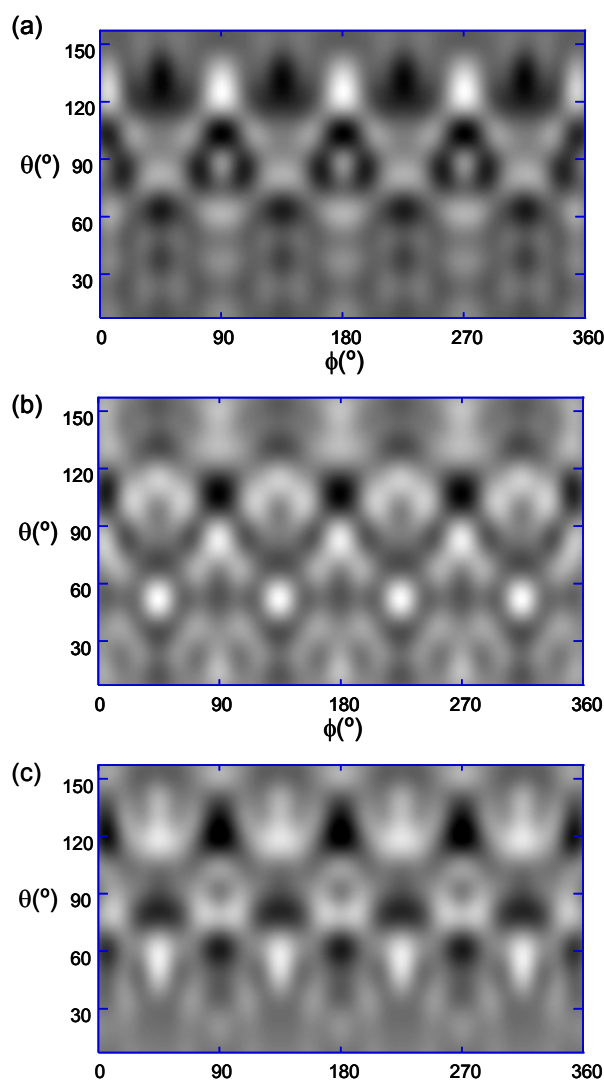


図 3 PdH (a) 及び PdD (b) の中性子線強度パターン。(c) は (a) と (b) の差分。