

強磁場中性子回折用クライオスタット

東北大金属材料研究所 野尻浩之 (nojiri@imr.tohoku.ac.jp)
東北大 CINTS 吉居俊輔 (yoshii@imr.tohoku.ac.jp)

1. はじめに

強磁場は電子のスピンや軌道運動に強く結合する外部場であり、今日の物性研究に欠かせない実験環境である。一方で、磁性の研究にとって中性子回折といえば、磁気構造を直接的に決定できる手段として利用されており、これもまた磁性研究の必須の道具の一つである。磁場を研究に用いる興味の第1は、なんとといっても磁場により引き起こされる様々な相転移現象の研究である。重い電子系や強相関酸化物などにおいては、磁場でスピンの偏極を操作すると、遍歴性と局在性の闘いにより、多様な相転移が現れる。特に、様々な相互作用が拮抗し、基底状態が縮退をもつような場合には、磁場のようなエネルギー的には小さな作用がこの縮退を解き、非自明な相転移を引き起こすことがしばしば起こる。そのようなときに、磁気構造を決定する中性子回折が威力を発揮することになる。これらの相転移のうち、量子ゆらぎが本質的な役割を果たすものを量子相転移と呼んでいる。このような現象を観測するには、転移をぼやけさせてしまう熱揺らぎを押さえ込むことが必要であり。そのためには、強磁場中で中性子回折を行うにあたり、いかに極低温環境を実現するかが鍵となる。本技術ノートでは我々が開発したドーナツと呼ばれるパルス強磁場中性子回折用インサートに関して紹介する。

2. 中性子極低温環境

まず中性子用の極低温環境としてどのような手段があるのかを考えてみよう。中性子における低温といえば一番多いのがいわゆるclosed cycleの冷凍機である。最近ではパルスチューブ方式など

により4.2 K以下を実現できるものもある。冷凍機が用いられる理由は、中性子の実験がデータの積算に長時間を有するので、寒剤の補給などを避けたいことと、分解能が限られているので振動などが問題にならないことがある。冷凍機の欠点としては冷凍能力が必ずしも高くないことが上げられる。とりわけ強磁場のように外から熱負荷が発生する場合に、必ずしも所用の温度が得られずもどかしい思いをすることがままある。一方、液だめ式のクライオスタットでは、ILLで開発されたオレンジクライオスタットというものが世界標準となっており、中性子施設で2 Kまでの実験を行うときには必ずお世話になる。それ以下では、3Heや希釈冷凍機もあるが、これらの場合、3Heが中性子と反応が強いこともあり、試料は熱伝導で冷却される。

寒剤の吸収を見てみると4Heはかなり透明であるが窒素は強い吸収を示す。そのため、中性子用の液だめ式クライオスタットでは、窒素槽を中性子が通過する場所には置くことが出来ない。さらに通常のクライオスタットは熱伝導の悪いステンレスやFRPなどで作られるが、中性子はこれらを透過しない。特にFRPは多量の水素を含むので遮蔽として用いられるぐらいである。透過する材料としては、アルミニウムが知られており、このため中性子用のクライオスタットは上部をステンレスで下部をアルミニウムで作製してインジウムシールなどで繋げる構造を取る。

吸収を抑えることは、元々強度の弱い中性子ビームの有効利用のために必要であるが、それに加えて放射化を防ぐ意味もある。中性子に物質をさらすと、一般的に放射化は避けられない。ステン

レス材料ではCoやCrなど微量成分あっても強い中性子を照射すれば、放射化する。半減期が短い核種ならば問題はないが、長い場合はやっかいである。試料でも強い中性子をあてたがゆえに1年間取り出せなかったというような話はしばしばあり、クライオスタットでも避けられない。施設から出さないという対応もあるが、試料取り付けなどを考えると、放射化を低減する賢い材料の選択が必要である。

3. パルス強磁場中性子回折装置

クライオスタットに関して述べる前に、強磁場中性子回折装置に関して紹介する。強磁場といえばまず超伝導磁石が考えられるが、これを用いた中性子回折は10テスラを越える磁場で可能である。その代表例はベルリンのヘルムホルツ研究所である。ここではスプリットペア型の超伝導磁石と希土類の磁束濃縮コアを用いて、17 Tまでの実験が行われている。それ以上の磁場となるとパルス磁場であるが、先駆けとなったのは高エネルギー研のパルス中性子源 KENS における 25 T 繰り返しパルス磁場実験である。しかし、KENS は当時ビーム強度も弱く、一種の実証実験的なものであった[1, 2]。また、この電源はサイズも大きいので、様々な施設で実験を展開するには不向きであった。

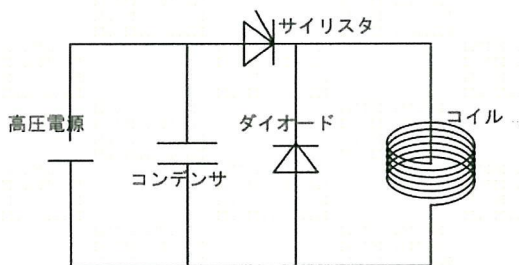


図 1. パルス磁場用電源の概略。コンデンサに充電した電荷をコイルに瞬時的に流して強磁場を生成する。

そこで我々が考えたのが、持ち運び可能なポータブルパルス磁場の利用である。元々ポータブルパルス磁場は、京大熊取実験所にあるコヒーレント放射光を用いた磁気分光のために考え出したものであった。当時所属していた岡山大学から大

阪の南までトラックで運んで実験が出来ることを念頭に作製したものである。その後、放射光実験を行うために転用されてそれなりの成功を収めたが、これも大型の装置は買えないので自作でなんとかするという発想がそもそもである[3, 4]。

磁場発生の原理は通常のパルス磁場コンデンサバンクと同様である。パルス磁場は、図1のようにコンデンサに蓄えた電荷をコイルに瞬時的に放電することにより、半サイン波形の磁場を発生する。原研の3号炉で用いる電源のスペックは、エネルギー24.3 kJ(容量5.4 mF、充電圧3 kV)で、自作したものである。大きさは、 $0.7 \times 0.7 \times 1.4 \text{ m}^3$ で、ユニット式となっており、分割して自家用車で運搬できる設計である[5]。



図 2. 原研におけるパルス磁場中性子回折装置の写真。左手奥の脚立の向こうがオレンジクライオスタット。手前の灰色の箱はコンデンサ電源。

さて、この電源と組み合わせるコイルも、通常の実験室で用いるものよりコンパクトなものとなっている。線材としては、断面積 $1-1.5 \text{ mm}^2$ の銀銅線を用い、10層程度の小型コイルで、周囲に補強はない。これはコイルを小さくするのが主な理由であるが、繰り返しを早くするために冷却効率を稼ぐこと、30 T程度であれば補強なしでも十分なことも考慮した結果である。インダクタンスとしては200 mH程度で、上記の電源と組み合わせると2-3 msecのパルス幅が実現できる。コイル内径12 mm、長さは16 mmであり、磁場均一度を犠牲にすることで散乱角 2θ として30度確保した。小型コイルのメリットとしては、装置の小型化と移

動可能となることがある一方で、細い導体でコイルを巻くために電気抵抗が大きいコイルとなり、磁場発生時の発熱が大きいのは弱点である。この発熱が発生磁場の上限を決めることになる。

4. ドーナツ式クライオスタット

これまで紹介してきたパルス磁場装置で中性子回折を行うためには、試料を冷却するクライオスタットを開発する必要がある。一般の中性子用クライオスタットではアルミの容器を用いて液体窒素を中性子のパスに置かない。これに対して一般的なパルス磁場用クライオスタットでは、渦電流の影響を考慮してステンレス容器を用いて液体窒素でコイルを冷却し、その中に先細の断熱容

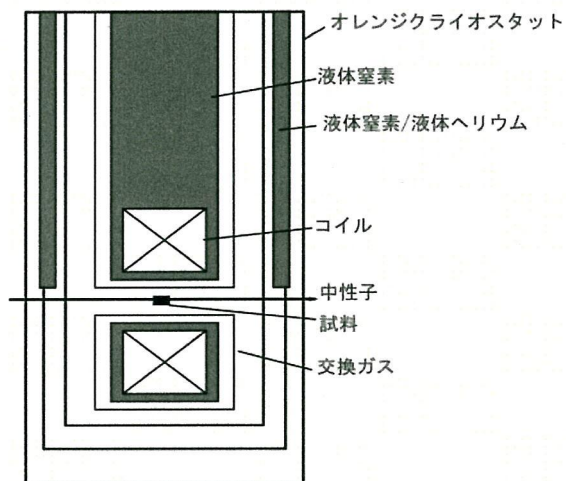


図3. ドーナツ型クライオスタットの模式図。オレンジクライオスタットのヘリウム槽に窒素だめのあるインサートを挿入して用いる。

器を差し込んでヘリウムを溜める。これらの2つの方式は互いに排他的であり、その両者を満たすことはなかなか困難に思える。

例えば繰り返しパルス磁場の場合は、クライオスタットとして石英ガラスを用いて、横磁場のソレノイドではガスフロー、縦磁場のスプリットコイルでは窒素槽を薄くしたクライオスタットを作製して用いている。石英ガラスは薄ければ中性子が透過し、渦電流も問題ない。しかし、横磁場では最低温度が4.2 K程度に留まり、実験上の制約となる。そこで我々は、矛盾する要求を新しい発想で満たすことを考えたが、それが図2に示す

逆転型のドーナツ式クライオスタットである。

ドーナツは穴が空いたお菓子であるが、我々のクライオスタットにおけるドーナツ穴は、試料を置き中性子を通る穴である。発想のポイントは窒素槽とヘリウム槽を入れ替える点にある。元々小型パルス磁場では、コイルの内径を絞ることで磁場発生に必要な電源を小型化し、それによって可動性を得ている。従って、その小さな穴の中にさらにヘリウムクライオスタットを差し込もうとすれば、いきおいコイルが大型になり元のもくあみである。さらにこの時、クライオスタットの壁が中性子を遮るので、それを避けるためには、構造が複雑になり、サイズがさらに大きくなる。この難点を避けるには、液体窒素槽の中にヘリウム槽を入れるのではなく、液体ヘリウム槽の中に液体窒素槽を入れる逆転の発想が必要である。

この方式の場合、コイルの中に断熱真空を設けなければならないことは変わらないが、中性子を遮る壁がなくなり、吸収や放射化の問題が避けられる。構造も単純になり、製作も容易であり、試料の取り付けもアクセスが簡単である。それでは、試料はどのように冷やすのかというと、中性子で標準として用いられているオレンジクライオスタットを用いる。すなわち高価なクライオスタット全体を作製するのではなく、パルス磁場用のコイルと試料の取り付けという強磁場実験に特別な部分の要求を満たすインサートを作製して、試料の冷却自身はオレンジクライオスタットの機能を利用するわけである。この方式は、中性子という実験のあり方に上手く合致している。すなわち、中性子では試料をもって世界の施設を渡り歩くことは珍しいことではない。したがって、このようなインサート方式を採用することで、世界中の施設での強磁場実験が可能になるわけである。

実際に我々が作製したインサートは、内径 70 mm 用と 100 mm のオレンジクライオスタット用の2種類である。装着できるコイルとしては、前者が最高磁場 30 T、後者が最高磁場 35 T である。発生磁場の違いは、100 mm 用の大きなインサート

の方がコイル用のスペースがあり、そのためより抵抗の少ない太い線材で巻くことが出来るためである。先にも述べたが、ミニパルス磁場では、最高磁場はコイルの機械的強度ではなく、発熱によって制限されていることが多いのである。



図4. 海外施設における中性子実験用にパックされたインサート。図中左手のアルミケースに収められている。

国際線の受託手荷物では、3辺の合計が150 cmから200 cmが預かる基準である。このインサートは専用アルミケースに収めれば、この手荷物の制限に引っかからずに受託手荷物にする事が出来る。実際、これまで世界の中性子の総本山であるILLへの出張実験を2度行っているが、その都度インサートを持って出かけている[6]。最も、手荷物で運ぶのはロストして実験に間に合わないと困る往路のみであって、帰路はいわゆる別送品として宅急便会社で送ってもらうことが出来る。

このインサートを用いた場合の温度としては試料は2 Kまで冷却可能で、その点は標準のオレンジクライオスタットと変わらない。現在ではILLの他アメリカのパルス中性子施設であるSNSでもこのインサートを用いており、コンデンサ電源とインサートで世界中に東北大方式の普及を図っているところである。ちなみに100 kgのコンデンサ電源をアメリカへ送った場合の費用は十数万程度であり約1名分の航空運賃程度であるので、海外出張実験はコスト的にもかなり身近なものであると言える。

謝辞

本研究は、特定領域 強磁場スピ科学 の支援の下に行われて来た。また国際共同研究に関しては、金属材料研究所 国際共同研究センターのプロジェクトにより支援されている。本研究は、多数の方々との共同研究であり、紙数の関係でここに記すことが出来なかつた方々も含めて日頃からの支援にあらためて感謝する。

参考文献

- [1] 本河光博, 三浦登編: 丸善実験物理学講座 2 基礎技術II (丸善, 1999)
野尻浩之: 固体物理 37 No.7(2002) 465-472.
- [2] S. Mitsuda, T. Uno, H. Nojiri, K. Takahashi, M. Motokawa, M. Arai: J. Phys. Chem. Solid **60** (1999) 1249.
- [3] 松田康弘, 稲見俊哉, 大和田謙二, 野尻浩之: 固体物理 40 No.11(2005) 882-890.
- [4] H. Nojiri: J. Neutron Research: **12** (2004) 279-281.
- [5] K. Ohoyama, N. Katoh, H. Nojiri, Y. H. Matsuda, H. Hiraka, K. Ikeda, H. M. Shimizu: J. Magn. Magn. Mat. **310** (2007) e974-976.
- [6] S. Yoshii, K. Ohoyama, K. Kurosawa, H. Nojiri, M. Matsuda, P. Frings, F. Duc, B. Vignolle, G. L. J. A. Rikken, L.-P. Regnault, S. Michimura, and F. Iga: Phys. Rev. Lett., **103** (2009) 077203.