

パルス中性子源における集光ビームを用いた
中性子共鳴スピンエコー分光法および小角散乱法の開発

船間 史晃

目次

第 1 章	序論	1
1.1	本研究の背景	1
1.1.1	中性子の特徴	1
1.1.2	中性子散乱分光法	2
1.1.3	中性子スピネコー分光法	4
1.2	本研究の目的	7
第 2 章	中性子スピネコー分光器	9
2.1	Mezei 型スピネコー分光器	9
2.2	中性子共鳴スピネコー分光器	14
2.3	様々な位相補正法	17
第 3 章	中性子共鳴スピネコー分光器における位相補正のための 2 回集光法	21
3.1	序言	21
3.2	2 次元平面での経路長差の幾何的な評価	21
3.3	MC シミュレーションを用いた 3 次元空間での経路長差の評価	26
3.4	2 回集光法を用いた NRSE 分光器	29
3.5	結言	33
第 4 章	回転楕円体集光ミラーを用いた集光 NRSE 分光器の実現可能性の評価	35
4.1	序言	35
4.2	MIEZE 分光器	36
4.3	大強度陽子加速器施設 (J-PARC) と中性子共鳴スピネコー分光器群 VIN ROSE	40
4.4	中性子回転楕円体集光ミラー	41

4.5	回転楕円体集光ミラーを用いた弾性散乱体からの TOF-MIEZE シグナル測定	42
4.6	結果・考察	46
4.7	結言	49
第 5 章	小型中性子源のためのリング状スリットを用いた SANS 実験体系の開発	53
5.1	序言	53
5.2	単純な r-SANS 体系の数値計算による評価	56
5.2.1	中性子強度利得	58
5.2.2	スミアリング効果	60
5.3	実験	62
5.3.1	京都大学加速器駆動中性子源 (KUANS)	62
5.3.1.1	中性子強度測定	63
5.3.1.2	減速材表面の中性子強度分布	64
5.3.2	KUANS における r-SANS 実験体系	67
5.3.3	シリカゲル試料	69
5.3.4	X 線小角散乱実験	72
5.4	結果・考察	72
5.4.1	r-SANS と SAXS 実験結果の比較	72
5.4.2	散乱モデルを用いた HC-N と C-500HG シリカゲル試料の解析	75
5.4.2.1	Debye-Bueche モデルと Porod 則	75
5.4.2.2	SAXS 実験結果の解析	76
5.4.2.3	r-SANS 実験結果とスミアリング効果を含んだ MC シミュレーション結果の比較	76
5.4.2.4	r-SANS 実験結果の DB モデルを用いたパラメータサーベイ	77
5.5	結言	80
第 6 章	結論	85
付録 A 章	2 回集光 (DF) 法の 2 次元平面における定式化	89
A.1	1 回集光体系	89
A.2	2 回集光体系	91

付録 B 章 回転楕円体集光ミラーの特性評価	97
B.1 集光特性	97
B.2 輸送効率と反射率	100
付録 C 章 式 (5.1) の導出	105
参考文献	107
発表論文	119

第 1 章

序論

1.1 本研究の背景

1.1.1 中性子の特徴

中性子は、電氣的に中性であり原子核を構成する要素の一つである [1, 2]。中性子の基本性質を以下の表 1.1 にまとめる [3]。質量は陽子とほぼ同じで電荷は持たない。スピンと磁気モーメントを持つ。

Properties	Values
Mass	1.6275×10^{-27} [kg]
Charge	0
Spin	$\frac{1}{2}$
Magnetic moment	-1.913 [μ_N]

表 1.1 中性子の性質 [3]。 μ_N は核磁子で 5.051×10^{-27} JT⁻¹ である。

核反応で発生する中性子は平均で約 1 MeV 以上の運動エネルギーを持つ [4]。この高エネルギー中性子から散乱実験によく使用される熱・冷中性子を得るために、減速材を使用する必要がある [5]。熱・冷中性子の運動エネルギーはそれぞれ 5–100 meV、0.1–10 meV 程度である [3]。減速材では、中性子と質量が同程度で断面積の大きい水素や、水素より吸収断面積の小さい重水素、もしくはこれらの原子数密度が多い物質が利用される。このように熱・冷中性子の発生には減速という過程が必須であることから、熱・冷中性子を取り出す減速材表面は、減速材を必要としない X 線源と比べ大きく、単位面積あたりの中性子数は少ない。これによりビーム利用できる中性子束は X 線と比べて低い。

熱・冷中性子は粒子としての性質と同時に波としての性質を顕著に示す [6]。この de Broglie 波長は固体、液体における原子間や分子間距離と同程度の長さを持つ。そのため散乱実験により、試料の静的構造を取得することができる。中性子の波長 λ と速度 v は以下の式で関係付けられる。

$$\lambda = \frac{h}{mv} \quad (1.1)$$

ここで m と h はそれぞれ中性子の質量とプランク定数である。

また熱・冷中性子の運動エネルギーは、室温における物質中の原子・分子の運動エネルギーと同程度である。このことから熱・冷中性子が試料で散乱した時の運動エネルギーの変化量は比較的大きく、物質中の原子・分子の動的構造を測定することが可能である。中性子は X 線と異なり、散乱断面積は原子番号に比例しない。そのため散乱断面積が原子番号に比例する X 線では観測の難しい軽元素の情報を得ることもできる。また中性子は磁気モーメントを持つことから、試料内や空間の磁場と相互作用する。この性質により磁性材料の磁氣的構造の測定が行われている。このように中性子は X 線とは異なる性質を持つことから、構造測定の手段の一つとして非常に有用である。

1.1.2 中性子散乱分光法

中性子散乱分光法を用いた構造測定法は大きく分けて二つに分類できる。一つは物質の静的構造を測定する弾性散乱分光法であり、もう一つは動的構造を測定する非弾性散乱分光法である [7]。図 1.1 に中性子散乱分光法や他の手法で一般的に測定可能な時空間領域を示す [8]。左右縦軸は試料の動的構造をそれぞれ遷移エネルギー、相関時間で表記したものである。上下横軸は試料の静的構造をそれぞれ運動量遷移、相関距離で表記したものである。下横軸の下方には各中性子弾性散乱分光法で測定できる静的構造の相関距離が色付きの範囲で示されている。グラフ内で色付けされている領域が、各中性子非弾性散乱分光法で測定可能な時空間領域である。

弾性散乱分光法は試料で散乱した中性子の運動量遷移 Q を測定することにより、試料の静的構造を取得する。 Q は中性子の波長と散乱角 2θ から

$$Q = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda} = \frac{2\pi}{d_s} \quad (1.2)$$

で関係付けられる。 d_s は試料における静的構造の相関距離である。弾性散乱分光法には比較的小さい結晶構造を調べることができる単結晶回折法や粉末結晶回折法、非晶質構造を調べることができる全散乱法がある。これは、図 1.1 において Diffraction として示されている。比較的大きい静的構造を取得する小角散乱法は SANS として、表面や界面の

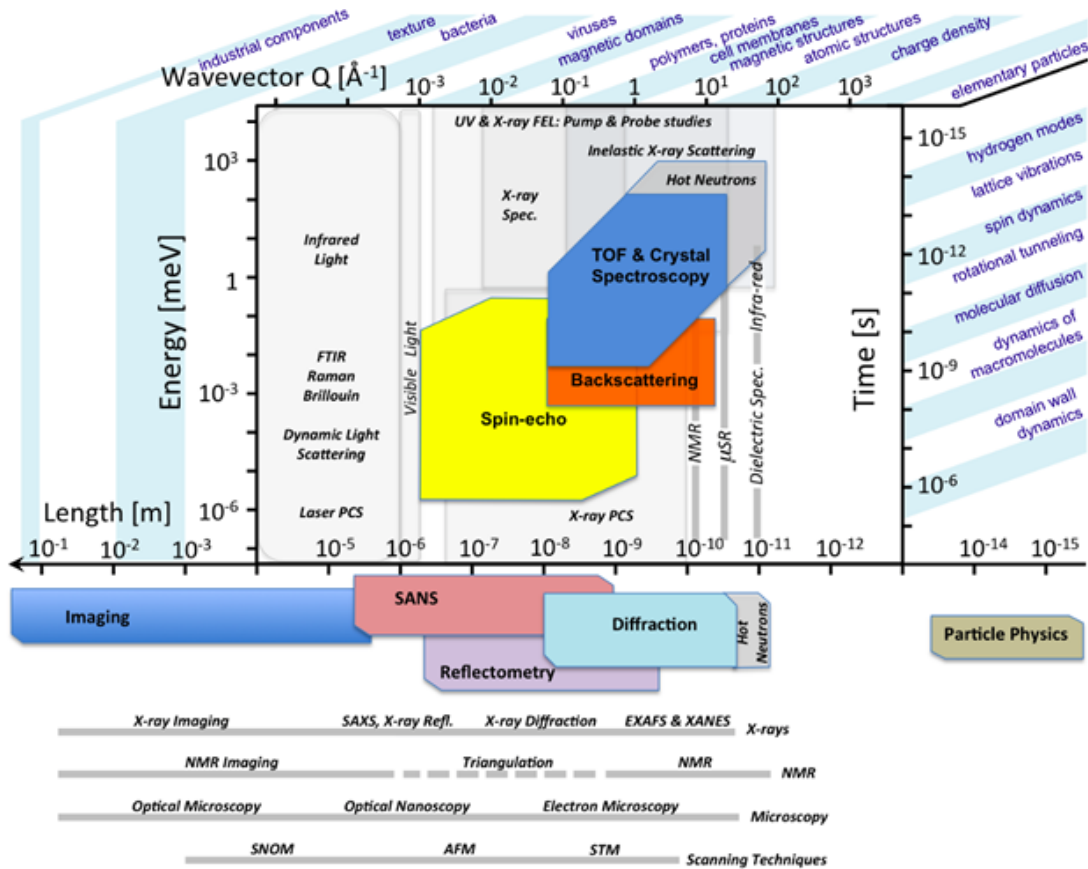


図 1.1 中性子散乱分光法や他の装置で測定可能な時空間領域 [8]。

構造を調べる反射率法は Reflectometry として示されている。また、それぞれの弾性散乱分光法で一つのスピン状態のみを持つ中性子 (偏極中性子) を利用することで、試料の静的な磁気構造を測定することが可能である。

物質の機能の発現には静的構造のみならず、その動的構造も重要である。一般的な中性子非弾性散乱分光法は散乱中性子の運動エネルギー遷移 $\hbar\omega$ を測定することにより、静的構造に関連づけて動的構造を取得できる。中性子非弾性散乱分光法の一つに試料のフォノンを精密に測定できる三軸分光法がある。三軸分光法はモノクロメーター結晶とアナライザー結晶と呼ばれる二つの結晶を用いて試料のエネルギー解析を行う。これは図 1.1 において Crystal spectroscopy に分類されている。飛行時間 (TOF) 法を用いることで異なる Q についての ω を同時に測定できる。TOF 法はパルス中性子を一定距離飛行させ、検出器で検出するまでの時間を測定することで中性子の速度 (波長) を測定する方法である。これは図 1.1 において TOF spectroscopy に分類されている。 μeV 程度のエネルギー変化の少ない非弾性散乱 (準弾性散乱) を測定する分光法として後方散乱分光法がある。こ

これは図 1.1 において Backscattering に分類されている。後方散乱分光法はアナライザーにより広い立体角をカバーできることから、特に非干渉性散乱断面積の大きい水素原子のゆっくりとした動的構造の測定に適している。このため例えば水分子の拡散運動の動的構造測定等に威力を発揮している [9–11]。これらの非弾性散乱分光法は試料の静的構造の空間相関と動的構造の時間相関のそれぞれのフーリエ変換である、動的構造因子 $S(Q, \omega)$ を測定する。また、弾性散乱分光法と同様に偏極中性子を利用することで、試料の動的な磁気構造を取得することが可能である。これらの分光法のエネルギー分解能を上げるためには、一般に入射中性子の波長分解能を高める必要がある。しかしビーム利用できる中性子の強度、特にエネルギーの低い冷中性子ビーム強度は中性子波長の約 5 乗で減衰するため、高エネルギー分解能の測定は中性子強度の観点で非常に困難を伴う。

中性子スピネコー (NSE) 分光法は図 1.1 において Spin-echo に分類されている。NSE 分光法は、meV から neV オーダーの幅広いエネルギー遷移を測定でき、中性子非弾性散乱分光法の中では最も高いエネルギー分解能を持つ。そのため NSE 分光法の開発は中性子で測定可能な時空間領域の拡大に繋がる。また NSE 分光法は動的構造因子 $S(Q, \omega)$ ではなく、その ω についての Fourier 変換である中間散乱関数 $I(Q, \tau)$ を直接測定し、試料の Q 空間に対応した緩和や拡散現象などのスローダイナミクス測定に利用されている。

図 1.1 に示されているように、NSE 分光法でカバーしている空間領域は中性子小角散乱 (SANS) の領域とよく一致している。そのため、NSE 分光法で対象とするダイナミクスを持つ物質の静的構造は、SANS 実験において事前測定されることが一般的である。その他にも同位体を用いたコントラスト変調法が利用可能な SANS 実験は、近年益々そのニーズが増加しており、より簡便に装置にアクセスできることが求められている。そのため比較的簡便に利用できる小型中性子源 [12] において、SANS 実験の可能性を示すことができればそのインパクトは大きい。SANS 実験機会の拡大には、より高い S/N 比での実験を可能にすることが必要であり、小型中性子源に適した SANS 実験体系の開発が行われている [13, 14]。そしてより安価で簡便に SANS 実験を行うために、小型中性子源施設の中でもより小型な施設における SANS 装置の開発が期待されている。

1.1.3 中性子スピネコー分光法

中性子スピネコー (NSE) 分光法は 1972 年に F. Mezei によって提案された [15]。NSE 分光法は中性子のスピン状態間の位相差によって中性子の速度分布を標識し、試料での非弾性散乱による中性子の速度変化を測定する分光法である [16]。中性子スピン状態

間の位相差は、中性子スピンを磁場中でラーモア歳差回転させるか、共鳴スピントリッパでスピン状態間にエネルギー差をつけることで生成できる。Mezei 型スピネコー分光法はラーモア歳差磁場と呼ばれる静磁場を、中性子共鳴スピネコー (NRSE) 分光法 [17] は共鳴スピントリッパを用いて位相差をつける。これらの NSE 分光法の原理は 2 章で詳細に説明するが、どちらの方法でも中間散乱関数 $I(Q, \tau)$ を測定し、原理的に、入射中性子強度を犠牲にすることなく、高エネルギー分解能の測定を実現することができる。ここで τ はフーリエタイムと呼ばれ、試料の動的構造の相関時間に対応する。また NSE 分光器による測定結果は、試料の $I(Q, \tau)$ と装置分解能関数の積で記述できるため、標準試料を用いた測定結果との割り算で装置分解能補正が行える。そのため、装置分解能補正に逆畳み込み演算を必要とする他の非弾性散乱分光法と比較し、正確な測定が可能である。このように NSE 分光法は $S(Q, \omega)$ を測定する他の中性子非弾性散乱分光法と大きく異なる特長を持ち、かつ中性子で測定可能な時空間領域の拡大に直接寄与する。

NSE 分光器は様々な大規模中性子源施設において盛んに開発が行われている。Mezei 型スピネコー分光器として代表的なものは Institut Laue-Langevin (ILL) 研究所の High-flux reactor (HFR) にある IN11 と IN15 である [18, 19]。IN11 では Mezei らによって NSE 分光法開発初期の研究がなされた [20]。また、IN15 では長波長中性子を利用した高エネルギー分解能の測定が行われており、既存の NSE 分光器としては最高のエネルギー分解能を備えている。ドイツでも研究用原子炉 FRJ-2 に NSE-FRJ2 [21]、FRM II に J-NSE [22] が作られた。J-NSE では最近、超電導コイルを用いた高度化が行われている [23, 24]。また、米国国立標準技術研究所 (NIST) においても NSE-FRJ2 をモデルに Mezei 型スピネコー分光器が作られた [25]。日本においても歳差磁場コイルの最適化が行われた iNSE が JRR-3 に設置されている [26]。

また NSE 分光器においても TOF 法を用いて、幅広い波長の中性子を利用した実験が可能である。アメリカの核破砕中性子源 SNS では TOF 法を利用した Mezei 型スピネコー分光器稼働している [27]。しかし SNS は陽子パルスの繰り返し周波数が 60 Hz と高いため、一度に測定できる波長帯が制限されている [28]。

Mezei 型スピネコー分光器はラーモア歳差磁場の生成にソレノイドコイルを用いるため、カバーできる散乱角の立体角が小さいという特徴がある。これを改善するため、試料下流で幅広い散乱角をカバーできる NSE 分光器が提案された [29]。本手法は巨大なヘルムホルツコイルの中心に試料を配置し、ヘルムホルツコイルの均質な磁場空間を歳差磁場として利用するもので、ドイツのベルリンにある研究用原子炉 BER II に SPAN と呼ばれる NSE 分光器が建設され、実証実験が行われた [30]。この結果を踏まえ、IN11 において WASP と呼ばれる同タイプの NSE 分光器が建設され、現在コミッショニングが行わ

れている [31]。WASP は HFR の大強度中性子ビームを利用し、幅広い Q 領域をカバーできる強力な分光器となるが、エネルギー分解能は Mezei 型スピネコー分光器に大きく劣る [32]。これは高エネルギー分解能化に必要な位相補正法が開発されていないからである。

NRSE 分光器は研究用原子炉であるフランスの Laboratoire Léon Brillouin (LLB) の Orphée や FRM II に設置された [33, 34]。Orphée は閉鎖したため、現在ではドイツの FRM II に建設されたビームライン RESEDA で共用利用運転が行われている。RESEDA では中性子のスピン状態を量子化する方向 (量子化軸) をビーム進行方向にとり、L-NRSE や L-MIZE と呼ばれる新しい NRSE 分光器が開発されている [35, 36]。Mezei 型スピネコー分光器同様、量子化軸をビーム進行方向にとることで共鳴スピントリッパーからの実効的な漏れ磁場を軽減して比較的高いスピン位相の均一性を実現すると同時に、フレネルコイルと呼ばれる位相補正コイルの利用を可能にしている [37]。

核破砕中性子源で唯一の NRSE 分光器が、J-PARC MLF BL06 において開発中の VIN ROSE である [38, 39]。VIN ROSE には NRSE と MIEZE の 2 種類の分光器が建設されている。MIEZE では short pulse 中性子源^{*1}の特徴を利用した TOF-MIEZE 分光法の開発の他、スキルミオンといった磁性体の緩和現象の測定が行われている [41, 42]。NRSE では回転楕円体集光ミラーを用いた位相補正法と微小試料に対応した分光器の開発が進められている。

さらに European Spallation Source (ESS) や SNS の第 2 ターゲットステーションにおいて、新たな NSE 分光器の開発計画が進められている [23, 43, 44]。このように NSE 分光法は現在でも精力的に開発が進められており将来性が期待されている。

NSE 分光法で高エネルギー分解能を達成するためには中性子スピンの位相を均一に保つための位相補正法が必要である。Mezei 型スピネコー分光器においては、ソレノイドコイルにより生成された歳差磁場に対して、フレネルコイルを用いた位相補正法が実用化されている [20, 45]。しかし、本補正手法はアルミ製のフレネルコイルをビーム軌道に設置する必要があり、中性子強度を減弱するだけでなく、測定可能な散乱中性子の立体角も制限する。そのため別の位相補正法が開発が進められてきた。NRSE 分光器で利用可能な位相補正法として、楕円の焦点間距離が等しいという幾何的な性質を利用する方法が 2002 年に Bleuel 等によって提案された [46]。ビーム経路長の均一化によって位相補正が可能な NRSE 分光法は、回転楕円体集光ミラーの利用によって高エネルギー分解能

^{*1} 中性子を発生させるための陽子ビームの時間幅が狭い中性子源。J-PARC の核破砕中性子源 JSNS では 10 meV の中性子でパルス幅は半値全幅で 92 μ s である [40]。

の実現が期待できる。また本手法は中性子ミラーを用いるので、特に長波長中性子に対して中性子ビーム強度の減弱が少なく、角度発散の大きいビームの利用を可能にする。また試料下流に回転楕円体集光ミラーを配置することにより、散乱中性子の広い立体角、つまり広い Q 領域の同時測定も可能である。このように様々な利点がある集光 NRSE 分光器であるが、Bleuel 等が提案した方法では高エネルギー分解能測定で利用できる実効的なビーム発散角が大きく制限されている。より多くの発散ビームを利用した集光 NRSE 分光器で高エネルギー分解能測定を行うためには、新たな位相補正法の開発が必要である。

1.2 本研究の目的

本研究の目的は、パルス中性子源における集光ビームを利用した中性子分光法の新たな実現可能性を示すことである。具体的には、高エネルギー分解能 NRSE 分光器及び研究室規模の小型中性子源における SANS 分光器の実現可能性を示すことである。特に前者は、高エネルギー分解能の肝となる位相補正法について、従来手法の問題点を明らかにし、それを解決する新たな手法を提案する。

集光 NRSE 分光器の基本コンセプトは Bleuel 等によって 2002 年に提案されていた。この位相補正法を元に、その後も NRSE 分光器の開発は続いていたが、これらの検証実験はもちろん、定量的なシミュレーションも非常に限られたものしかなかった。そこで、従来から提案された位相補正法である 1 ペアの回転楕円体集光ミラーを用いた体系 (1 回集光体系) において Monte Carlo シミュレーションを用いて評価する。この評価では Mezei 型スピネコー分光器における実効的なビーム発散角に対応する中性子強度を考慮して、集光 NRSE 分光器の到達可能なエネルギー分解能を見積もる。NRSE 分光法のエネルギー分解能は共鳴スピンフリッパー (RSF) 間経路長の均一性から評価できる。そこで回転楕円体集光ミラーの全周を用いた全周型回転楕円体集光ミラーによる 1 回集光体系の経路長分散を評価する。その結果を示しながら、本研究では 2 ペアの回転楕円体集光ミラーを用いる「2 回集光 (DF) 法」を提案する。本手法ではビームサイズに由来する経路長差が二つの集光ミラーを用いることで打ち消されるため、高エネルギー分解能測定に利用可能なビームサイズならびにビーム発散角の飛躍的な増加が期待できる。この DF 法の有効性を定量的に評価すると共に DF 法を用いた NRSE 分光器の評価を行う。

このようなシミュレーションや検証実験がなされて来なかった最大の理由は、回転楕円体集光ミラーの実現が非常に困難であったためであるが、近年、京都大学複合原子力科学研究所と理化学研究所を中心とした共同研究により製作に成功した。本研究では、その回転楕円体集光ミラーを試料の前後それぞれに設置した集光 NRSE 体系を構築する。そし

て弾性散乱体により散乱した中性子のスピネコーシグナルを観測し、そのコントラストが減少しないことを世界で初めて実験的に確かめる。これによって、パルス中性子源における回転楕円体集光ミラーを用いた高エネルギー分解能集光 NRSE 分光器の実現可能性が示される。

SANS 実験機会の拡大のため、集光ビームを利用する新たな SANS 実験体系 (r-SANS 体系) を開発し、より小型のパルス中性子源における SANS 実験の可能性を示す。r-SANS 体系はリング状にコリメートされた中性子を試料に入射することで、散乱中性子がリングの同軸上で集光する。そこに小さい有感エリアを持つ検出器を設置することでバックグラウンドを低く抑え、高い S/N 比の実験が可能になる。この r-SANS 体系の特徴と実現可能性を、シミュレーションおよび研究室規模の小型中性子源における実験で確認する。

第 2 章

中性子スピネコー分光器

中性子スピネコー (NSE) 分光法は中性子非弾性散乱分光法の一つで 1972 年に F. Mezei によって提案された [15]。本手法では中性子の波としての性質を利用する。中性子を量子力学的に扱くと自由空間ではその波動関数は平面波で表され、その位相因子が波数と呼ばれるベクトル量 \mathbf{k}_0 と位置を表すベクトル \mathbf{r} との積で与えられる。本章の説明では簡単のため 1 次元で考え、入射中性子の波数の大きさを $k_0 = \frac{mv}{\hbar} = \frac{2\pi}{\lambda}$ 、運動エネルギーを E と定義する。 m は中性子の質量、 v は中性子の速さ、 \hbar はディラック定数、 λ は中性子の波長である。自由空間では $E = \frac{1}{2}mv^2 = \frac{(\hbar k_0)^2}{2m}$ が成り立つ。また中性子が静磁場中で感じるポテンシャルエネルギーはその運動エネルギーと比較し非常に小さく、その影響は平面波の位相の変化として現れる [47]。NSE 分光法ではこのスピン状態間の位相差を精密に制御することにより、試料における非弾性散乱を測定する。本章では 2 種類の NSE 分光器の原理について解説する。そしてそれぞれの分光器における位相補正法についてまとめる。

2.1 Mezei 型スピネコー分光器

中性子スピンの位相の観点から、最も単純な Mezei 型スピネコー分光器の概念図を図 2.1 に示す [15]。図 2.1(a) は中性子デバイスの配置図、(b) は静磁場の強さ、(c) はスピン状態遷移とそれぞれの波数変化を示す。中性子はビームライン上流からポラライザー、 $\pi/2$ フリッパー、歳差磁場コイル、 π フリッパー、(試料)、歳差磁場コイル、 $\pi/2$ フリッパー、アナライザー、検出器の順に通過する。中性子源から取り出されたスピン状態の揃っていない中性子は、ポラライザーに入射し、spin-up 状態のみが取り出される。これは中性子の偏極と呼ばれる。

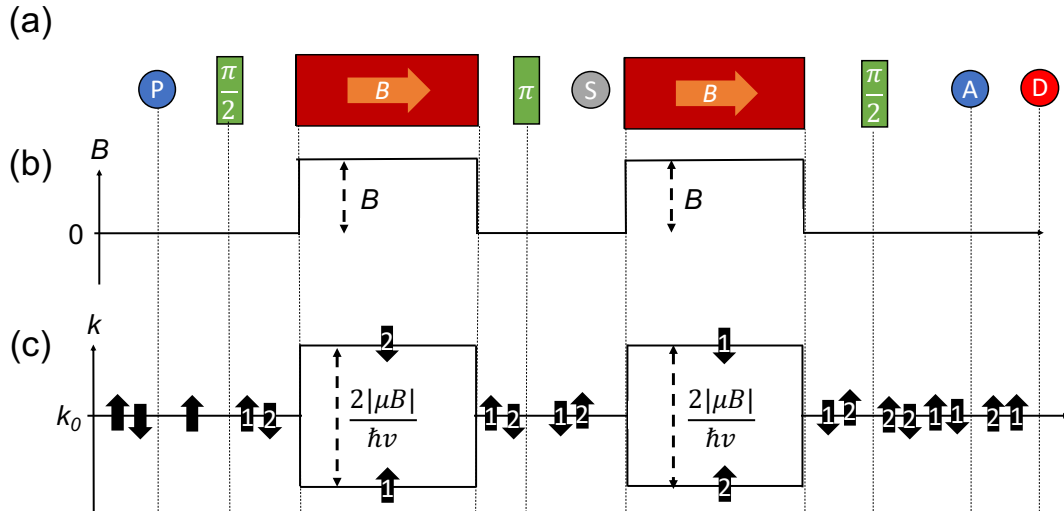


図 2.1 Mezei 型スピネコー分光器。(a) 中性子デバイスの配置図、(b) 静磁場の強さ、(c) スピン状態遷移とそれぞれの波数変化。P はポラライザー、S は試料、A はアナライザー、D は検出器を示す。緑の長方形はスピNFLリッパーを示す。

偏極された中性子は次に $\pi/2$ フリッパーに入射する。 $\pi/2$ フリッパーによって、中性子は確率 $1/2$ で反転し、spin-up と spin-down の重ね合わせ状態となる。このスピン状態の遷移は spin-up 状態を $|\uparrow\rangle$ 、spin-down 状態を $|\downarrow\rangle$ と表記すると次式のように表現できる。

$$|\uparrow\rangle \rightarrow \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\rangle + |\downarrow\rangle) \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(|1, \uparrow\rangle + |2, \downarrow\rangle) \quad (2.1)$$

ケットベクトル中の 1、2 は以降のスピン状態間の位相を追跡するためのラベルである。図 2.1(c) では spin-up、spin-down 状態をそれぞれを上下の黒矢印で示し、ラベルを矢印内に表記している。次に、重ね合わせ状態の中性子は歳差磁場コイルに入射する。本説明では簡単のため、磁束密度の大きさは一律に B と仮定する。それぞれのスピン成分は歳差磁場中で、スピン方向が磁場に平行か反平行かに応じて符号の異なるポテンシャル $\pm|\mu B|$ を感じる。ここで μ は中性子の磁気モーメントである。歳差磁場に入射する中性子の運動エネルギー $E = \frac{(\hbar k_0)^2}{2m}$ が $E \gg |\mu B|$ の場合、spin-up と spin-down 状態の歳差磁場中での波数は k_0 からそれぞれ

$$k'_\pm = \sqrt{\frac{2m(E - |\mu B|)}{\hbar^2}} \approx k_0 - \frac{|\mu B|}{\hbar v} \quad (2.2)$$

$$k'_- = \sqrt{\frac{2m(E + |\mu B|)}{\hbar^2}} \approx k_0 + \frac{|\mu B|}{\hbar v} \quad (2.3)$$

に変化する [16, 47]。よって歳差磁場出口でのスピン状態間の位相差 2ϕ は歳差磁場コイル中の中性子の経路長を一様に L と仮定すると、

$$2\phi = (k'_- - k'_+)L = \frac{2|\mu B|L}{\hbar v} \quad (2.4)$$

と書ける。 2ϕ は図 2.1(c) において、異なる状態 (波数) を表す線で囲まれた領域の面積に対応する。この位相差は中性子の速度に逆比例しており、遅い中性子ほど位相差が大きくなる。Mezei 型スピンエコー分光器におけるスピン状態間の位相差は、磁束密度の経路に沿った積分である磁場積分 (BL) に比例することが分かる。歳差磁場出口でのスピン状態は spin-up 状態の位相を基準にとると

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(|1, \uparrow\rangle + \exp(i2\phi) |2, \downarrow\rangle) \quad (2.5)$$

と書ける。

歳差磁場を出ると、中性子は π フリッパーに入射し、ラベル 1, 2 を持つスピン状態がそれぞれ反転する。このスピン状態の遷移は次式のように表現できる。

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(\exp(i2\phi) |2, \uparrow\rangle + |1, \downarrow\rangle) \quad (2.6)$$

試料 S は通常この π フリッパー後に置かれる。試料 S がない場合、中性子はその後、二つ目の歳差磁場コイルに侵入する。二つ目の歳差磁場コイルは一つ目の歳差磁場コイルと同一であるが磁場の微調整が可能であるとする。一つ目の歳差磁場と同様にスピン状態に応じて波数が変化し、今回は 1 に対して 2 が遅れる。二つ目の歳差磁場出口でのスピン状態は

$$\frac{1}{\sqrt{2}}(\exp(i(2\phi - 2\phi + \Phi)) |2, \uparrow\rangle + |1, \downarrow\rangle) = \frac{1}{\sqrt{2}}(\exp(i\Phi) |2, \uparrow\rangle + |1, \downarrow\rangle) \quad (2.7)$$

と書ける。ここで Φ は二つの歳差磁場を中性子が通過した後のスピン状態間位相差である。一つ目の歳差磁場中で中性子の速さに応じて生じた位相差は、二つ目の歳差磁場中でも速さに応じた位相差の打ち消しが起こるため、二つ目のコイルの出口では、 $\Phi = 0$ の時、中性子の速さによらずに位相が揃う。この現象をスピンエコーと呼ぶ。またこの位相が揃う条件をスピンエコー条件と呼ぶ。その後、 $\pi/2$ フリッパーによって 1, 2 それぞれ

の中性子のスピン成分が $\frac{1}{\sqrt{2}}$ の振幅で反転され、spin-up、spin-down 状態はそれぞれ 1、2 の重ね合わせになる。式 (2.1) と同様にそれぞれのスピン状態が

$$\frac{\exp(i\Phi)}{\sqrt{2}} |2, \uparrow\rangle \rightarrow \frac{\exp(i\Phi)}{2} (|2, \uparrow\rangle + |2, \downarrow\rangle) \quad (2.8)$$

$$\frac{1}{\sqrt{2}} |1, \downarrow\rangle \rightarrow \frac{1}{2} (|1, \uparrow\rangle + |1, \downarrow\rangle) \quad (2.9)$$

と遷移する。最後にアナライザーにより spin-up 状態を取り出すと、1、2 の重ね合わせの観測が可能となるので、これを検出器で検出する。検出位置における spin-up 状態を持つ中性子の確率密度は、

$$\left| \frac{1 + \exp(i\Phi)}{2} \right|^2 = \frac{1 + \cos(\Phi)}{2} \quad (2.10)$$

と書ける。これはラベル 1、2 それぞれの波動関数の線形的な重ね合わせの絶対値の 2 乗である。よって試料のないダイレクトビームを二つ目の歳差磁場を微調整することにより Φ の関数で測定すると、偏極率が 0–1 の間で振動する。この振動の振幅はスピンエコーシグナルのコントラストと呼ばれており、理想的な場合コントラストは 1 である。

次に試料で非弾性散乱が生じた場合を考える。試料での速度変化を δv ($v \gg \delta v$) とすると、この速度変化に由来する位相差 $\delta\phi$ は式 (2.4) より

$$\delta\phi = \frac{2|\mu B|L}{\hbar} \left(\frac{1}{v} - \frac{1}{v + \delta v} \right) \approx \frac{2|\mu B|L\delta v}{\hbar v^2} \quad (2.11)$$

と書ける。この中性子の速度変化による運動エネルギーの変化を角周波数 ω で書き直すと

$$\hbar\omega = \frac{1}{2}m((v + \delta v)^2 - v^2) \approx mv\delta v \quad (2.12)$$

と書ける。式 (2.12) を用いて $\delta\phi$ を ω で書き直すと

$$\delta\phi \approx \frac{2|\mu B|L}{mv^3}\omega = \frac{2|\mu B|m^2L\lambda^3}{h^3}\omega = \tau\omega \quad (2.13)$$

となる。ここで τ は時間の次元を持ち、フーリエタイムと呼ばれている。 ω は式 (2.12) から試料での中性子の速度変化 δv に由来するので、フーリエタイムが大きいほど試料での速度変化に由来する位相差が大きくなることがわかる。また、式 (2.13) より τ は中性子の波長の 3 乗に比例することがわかる。そのため、中性子の波長が長くなるとフーリエタイムも急速に増大する。

物理的には、フーリエタイムは試料の一点に到達する一つの中性子の磁場で分離した二つのスピン状態の時間差であり、結果として測定される偏極率から試料の $I(Q, \tau)$ が観測できる [16]。 τ は図 1.1 の右軸に対応し、一般的な NSE 分光法でカバーできる時間領域は数十 ps から μs オーダーである。またフーリエタイムを中性子のエネルギー遷移 $\Delta E = \frac{\hbar}{\tau}$ で書き直すと図 1.1 の左軸に対応する。

検出器で測定される確率密度は、式 (2.10) と同様に、spin-up 状態の波動関数の線形的な重ね合わせの絶対値の 2 乗なので

$$\left| \frac{1}{2}(1 + \exp(i(\Phi + \tau\omega))) \right|^2 = \frac{1 + \cos(\Phi + \tau\omega)}{2} \quad (2.14)$$

と書ける。NSE 実験で観測する試料からの散乱中性子によるスピンエコーシグナルを示すため、van Hove の時空相関関数 $G(r, t)$ [48] を時間と空間でフーリエ変換をした動的構造因子 $S(Q, \omega)$ を用いる。測定される散乱中性子強度は $S(Q, \omega)$ に $\frac{1 + \cos(\Phi + \tau\omega)}{2}$ が作用されているので、

$$\int_{-\infty}^{\infty} S(Q, \omega) \frac{1 + \cos(\Phi + \tau\omega)}{2} d\omega = \frac{I(Q, 0) + I(Q, \tau) \cos \Phi}{2} \quad (2.15)$$

と書ける。第 1 項 ($I(Q, 0) = S(Q)$) が弾性散乱成分、第 2 項が散乱中性子によるスピンエコーシグナルに対応する。NSE 実験で測定する ω 領域では通常 $S(Q, \omega)$ は偶関数とみなすことができ、フーリエ変換はコサインフーリエ変換で代用できる [3, 49]。弾性成分の寄与 (最大振幅のオフセット) で割ると式 (2.15) は

$$\frac{1 + \frac{I(Q, \tau)}{I(Q, 0)} \cos \Phi}{2} \quad (2.16)$$

と書ける。式 (2.10) と比較すると $\cos \Phi$ の係数が異なる。つまり、ダイレクトビームと散乱ビーム測定の間で $\cos \Phi$ が同位相であることを保証するため、スピンエコー条件 $\Phi = 0$ を満たした状態で、コントラストの減少割合を測定することにより $\frac{I(Q, \tau)}{I(Q, 0)}$ が測定できることがわかる。 Q を固定し異なる τ で測定することにより、 τ の関数で中間散乱関数 $I(Q, \tau)$ を測定することができる。

NSE 分光法では、式 (2.15) のようにエネルギーに関するフーリエ変換が実測データとして得られる。そのため、標準試料の測定結果を利用し、畳み込み計算ではなく割り算で正確な分解能補正を行うことが可能である [49]。

実際に装置として実現するために生じる制約や考慮すべき点をあげる。先にスピンエコー条件を満たすと、中性子の速さによらずに位相が揃うことを示した。このことから

NSE 分光法のエネルギー分解能は原理的には入射中性子の波長分解能に依存しないことがわかる。しかし、定常炉における一般的な Mezei 型スピネコー分光器では速度選別器によって波長分解能を 10 ~ 20% 程度に絞っている [49]。これはある程度波長分解能の制限がないと式 (1.2) からわかるように、 Q 分解能が悪くなり過ぎ、静的構造の相関距離と関連付けられなくなるためである。

長波長中性子の利用は、高エネルギー分解能測定の達成に重要だが、冷中性子ビーム強度は波長の 5 乗で減衰するため、必要な中性子強度を確保するために、大きな発散角のビームを利用する必要がある。大きな発散角を持つビームは、異なる中性子波長におけるスピネコー条件の達成を困難にする。また大きな照射面積による試料サイズの拡大は、大量作成が難しい生体試料等において測定を制限する。

Mezei 型スピネコー分光法では大きな歳差磁場コイルを試料上流と下流に設置する必要がある。しかし、歳差磁場コイルからの漏れ磁場の影響により、試料下流に歳差磁場コイルを複数設置することは難しい。そのため、一度に測定できる散乱中性子の散乱角 (Q 領域) が限定されるという特徴がある。また、この漏れ磁場の影響は磁場積分の精密な制御を難しくする。

2.2 中性子共鳴スピネコー分光器

NSE 分光法の一つである中性子共鳴スピネコー (NRSE) 分光法は 1987 年に Gähler と Golub によって提案された [17]。本手法は共鳴スピネフリップパー (RSF) でスピン状態間に全エネルギーの差をつけることで位相差をつける。

RSF は静磁場コイルと振動磁場コイルの二つのコイルで構成される。振動磁場コイルは静磁場コイル中に入っており、中性子はこの二つの磁場を同時に感じるようにコイル中を通過する。静磁場コイルの静磁場の強さを B_z 、振動磁場コイルが生成する振動磁場の角周波数を ω_s とすると、 $\hbar\omega_s = 2|\mu|B_z$ の共鳴条件を満たす場合、振動磁場のエネルギー $\hbar\omega_s$ の吸収もしくは放出を伴い、スピン状態がある確率で反転する [50,51]。この全エネルギーの増加・減少とスピン状態の遷移に伴い、RSF 出口では波数が変化する [47]。RSF を π フリップパーとして動作させる場合は、確率 1 でスピン状態が反転する。

図 2.2 に典型的な中性子共鳴スピネコー (NRSE) 分光器の概念図を示す。図 2.2(a) は中性子デバイスの配置図、(b) は静磁場の強さ、(c) はスピン状態遷移とそれぞれの波数変化を示す。NRSE 分光器は Mezei 型スピネコー分光器の歳差磁場コイルが二つの RSF と RSF で挟まれた磁場の無い零磁場空間に置き換えられただけである。そのため、ポライザー、 $\pi/2$ フリップパー、 π フリップパー、アナライザー、検出器は前節と同様のもの

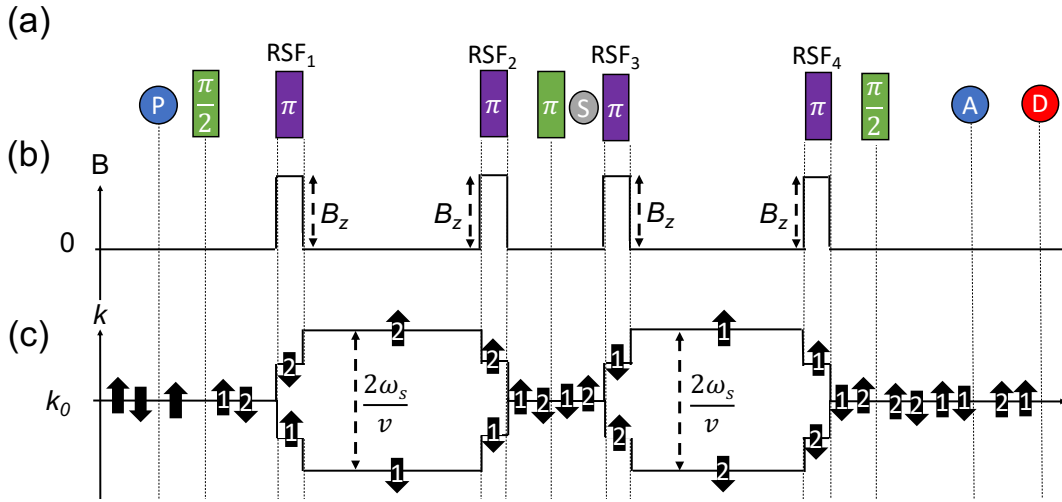


図 2.2 NRSE 分光器。(a) 中性子デバイスの配置図、(b) 静磁場の強さ、(c) スピン状態の変化とそれぞれの波数変化。P はポラライザー、S は試料、A はアナライザー、D は検出器を示す。緑と紫の長方形はそれぞれスピントリッパーと共鳴スピントリッパー (RSF) を示す。

のを想定する。使用する RSF (RSF₁、RSF₂、RSF₃、RSF₄) は全て π フリッパーとして動作しており、振動磁場の角周波数 ω_s 、静磁場 B_z で駆動させる。

Mezei 型スピネコー分光器と異なる部分についてスピン状態遷移と波数変化について説明する。 $\pi/2$ フリッパー (緑) 通過後、1、2 と標識されたそれぞれのスピン状態は RSF₁ と作用することで、全エネルギーの変化を伴ってスピン状態が遷移する。それに伴って、RSF₁ 出口での spin-up、spin-down 状態の波数は、以下のように書ける [16, 47]。

$$k'_+ = \sqrt{\frac{2m(E + \hbar\omega_s)}{\hbar^2}} \approx k_0 + \frac{\omega_s}{v} \quad (2.17)$$

$$k'_- = \sqrt{\frac{2m(E - \hbar\omega_s)}{\hbar^2}} \approx k_0 - \frac{\omega_s}{v} \quad (2.18)$$

近似では $E \gg \hbar\omega_s$ の条件を用いた。よって RSF₂ に侵入する直前での 2 状態の波動関数の位相差 2ϕ は、ゼロ磁場空間中の中性子の経路長 L を用いて

$$2\phi = (k'_+ - k'_-)L = \frac{2\omega_s L}{v} \quad (2.19)$$

と書ける。つまり 2 の位相は 1 より 2ϕ だけ進む。RSF 内部で波数は変化するがスピン状態間の位相差はつかない。これは共鳴条件によりスピン状態が遷移する際の全エネルギー

ギーの変化が静磁場 B_z に対するポテンシャルの変化と等しいので、遷移前後で運動量が変化しないからである [47]。よって NRSE 分光器のスピン状態間の位相差は RSF 間のゼロ磁場空間の経路長に比例する。

その後中性子は RSF₂ と作用することで、1、2 は同様のスピン状態の遷移を伴って波数が k_0 に戻る。続いてエネルギー遷移を伴わない π フリッパー (緑) と作用しスピン状態が反転する。そして試料位置下流でも試料位置上流と同一の二つの RSF (RSF₃ と RSF₄) とこれらに挟まれた零磁場空間を通過する。RSF₃–RSF₄ 間では 1 に対して 2 の波数が小さいことから上流の RSF₁–RSF₂ 間についてスピン状態間の位相差が打ち消される。その後は Mezei 型スピンエコー分光器と同様のスピン操作を行い、1、2 の重ね合わせ状態を測定することにより、式 (2.10) と同様のスピンエコーシグナルを測定できる。NRSE 分光器では RSF 間距離や振動磁場の位相を変化させることで、 Φ を変化させスピンエコーシグナルを測定する [47]。

試料で非弾性散乱が生じ中性子の速度が $v + \delta v$ に変化した場合、この速度変化により生じる位相 $\delta\phi$ は式 (2.19) より

$$\delta\phi = 2\omega_s L \left(\frac{1}{v} - \frac{1}{v + \delta v} \right) \approx \frac{2\omega_s L \delta v}{v^2} \quad (2.20)$$

と書ける。式 (2.12) を利用すると

$$\delta\phi \approx 2\omega_s L \left(\frac{1}{v} - \frac{1}{v + \delta v} \right) \approx \frac{2\omega_s L \hbar}{mv^3} \omega = \frac{\omega_s m^2 L \lambda^3}{\pi \hbar^2} \omega \quad (2.21)$$

と書ける。よって NRSE 分光器におけるフーリエタイム τ は

$$\tau = \frac{\omega_s m^2 L \lambda^3}{\pi \hbar^2} \quad (2.22)$$

と書ける。Mezei 型 NSE 分光器と同様に、フーリエタイムは波長の 3 乗に比例する。またコントラストの減少率から $I(Q, \tau)$ が測定する点、分解能補正が割り算で行える点も Mezei 型スピンエコー分光器と同様である。

NRSE 分光器における中性子スピン状態間の位相差は、式 (2.19) から分かるように零磁場空間中の経路長と波数差の積で決まる。また、RSF は図 2.3 のように静磁場コイルと振動磁場コイルの組み合わせからなるので、RSF 内外の境界を厳密制御できる。そのため、NRSE 分光器では RSF 間の経路長の均一性を高めることで、中性子スピン状態間の位相差の精密な制御が可能になり高エネルギー分解能測定が可能になる。これは磁場積分の均一性が必要な Mezei 型スピンエコー分光器と比較し、以下のような利点がある。歳差磁場を必要としないことから、NRSE 分光器は必要なスペースや漏れ磁場の問題が

緩和される。そのため様々な散乱角で散乱した中性子を同時に測定することで、幅広い Q 領域を一度の測定で観測できる。また RSF 間に中性子光学デバイスを設置することで、NRSE 分光器の高分解能化、高輝度化が可能である。

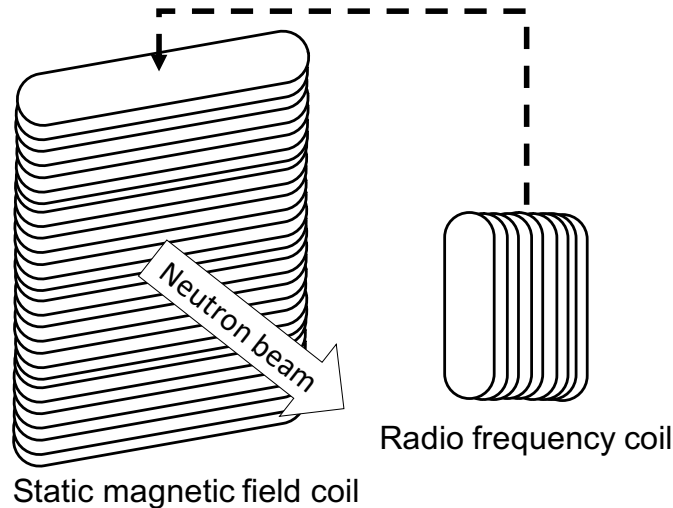


図 2.3 中性子共鳴スピントリッパーの概念図。静磁場コイルの中に振動磁場コイルが入っており、中性子は同時に二つの磁場を感じる。

2.3 様々な位相補正法

前節で Mezei 型スピネコー、NRSE 分光器それぞれにおいて異なるスピン状態間の位相差がどのように決まるかを示した。スピン状態間の位相差は Mezei 型スピネコー分光器では式 (2.4) より歳差磁場コイル内の中性子の磁場積分、NRSE 分光器では式 (2.19) より RSF 間の中性子の経路長に比例する。しかし、実際の装置では様々な経路を通る中性子について位相差を考える必要があり、Mezei 型スピネコー分光器では磁場積分、NRSE 分光器では経路長に分散が生じ、式 (2.7) のような 2ϕ の完全な打ち消しが起こらない。この試料による中性子の速度変化に起因しないスピン状態間の位相差の分散もスピネコーシグナルのコントラストを減少させる。そのため、非弾性散乱によるコントラストの減少割合 $\frac{I(Q,\tau)}{I(Q,0)}$ の測定を難しくする。中性子の速度変化以外のスピン状態間の位相差の分散を小さくすることは NSE 分光器の高エネルギー分解能測定において必須であり、そのための方法は「位相補正法」と呼ばれ開発が進められている。Mezei 型スピネコーと NRSE 分光器において、これまでに開発、提案された位相補正法を以下にまとめる。

ソレノイドコイルを用いた Mezei 型スピネコー分光器に適用可能な位相補正デバイスとして、Mezei はフレネルコイルと呼ばれる補正コイルを提案した [20]。フレネルコイルはビームの半径の 2 乗に比例する磁場積分分布を補正することができる。Monkenbusch は、歳差磁場コイルの両端と中央の 3 箇所 に補正コイルを設置する体系を提案した [45, 52]。これにより、歳差磁場コイル中で長い距離を通る飛行経路は補正コイルの磁束密度が大きい領域を通り、短い距離を通る飛行経路は補正コイルの磁束密度が小さい領域を通る。この結果、磁場積分が効率よく均一化される。また、Böhm は補正コイルに求められる高い電流密度を達成するために、ピタゴラスコイルと呼ばれる別種の補正コイルを開発した [53]。このコイルは二つの矩形コイルからなり、フレネルコイルと同様に半径の 2 乗に比例する不均一性を持つ磁場積分を補正することができる。しかしこれらの補正コイルはビーム軌道に配置する必要があり、中性子の吸収や散乱によるビーム強度の減衰、バックグラウンドの上昇を引き起こす。冷中性子の吸収断面積は一般に $1/v$ 則に従うため、長波長中性子の利用ではその影響は顕著となる。

また Zeyen 等は、歳差磁場コイル自体を最適化し磁場積分を均一化する手法を提案した [54]。通常のソレノイドコイルではコイルの直径に反比例して磁場積分の不均一性が生じる [20]。よって磁場積分の均一性と中性子強度を確保するため、コイルの直径を大きくする必要がある。しかし Zeyen コイルでは磁場積分分布はコイルの直径に依存しないので、コイルの直径を小さくすることが可能である。この結果、コイルの漏れ磁場と消費電力を抑えられるという長所がある [26]。しかし、コイルの直径を小さくすることは利用できる入射・散乱ビーム強度を制限する。またドイツの FRM II にあるスピネコー分光器 J-NSE では、歳差磁場コイルに超伝導コイルを用いた体系での磁場積分の最適化が行われている [23, 24]。

NRSE 分光器においては磁場積分ではなく、RSF 間の経路長を出来るだけ均一に保つことで中性子スピン状態間の位相差を精密に制御でき、高エネルギー分解能測定が可能になる。この事実に基づき、Bleuel 等は楕円集光ミラーを用いた NRSE 分光器 (集光 NRSE 分光器) を提案した [46]。図 2.4 に提案された集光 NRSE 分光器を示す。C で示されているのが RSF であり、試料の上流と下流両方の RSF 間に楕円集光ミラーが設置されている。楕円は二つの焦点と任意の楕円表面間の距離の和が等しいという幾何的な性質を持つ。そのため楕円の焦点位置から入射し、楕円ミラー表面で反射され、もう一方の焦点へ到達する中性子の経路長はすべて同じである。集光 NRSE 分光器では、焦点から見込める楕円ミラー分だけの発散角の大きいビームが利用できるため利用可能な中性子強度を高めることができる。また Mezei 型スピネコー分光法とは異なり、ビーム軌道に補正コイルを設置しないため中性子強度を減弱することがない。むしろ、通常中性子ミラー

は中性子波長が長い方が反射効率が高くなるので、高いエネルギー分解能を達成するために長波長中性子を利用するスピネコー分光器にとって適合性が良い。また、焦点に試料を設置すれば小さい領域に高輝度の中性子を照射できるので、微小試料の測定が容易になる。さらに図 2.4 では試料位置下流の RSF と集光ミラーを試料位置を中心に回転させることで、散乱ビームの位相を補正しながら様々な散乱角が測定可能であることが示されているが、複数の RSF と集光ミラーを試料位置下流に並べることで、幅広い Q を同時に測定することも可能である。

このような長所を持つ集光 NRSE 分光器であるが、ビームサイズによる経路長分散の補正が必要である。Bleuel 等は偏角方向に飛行するビームの経路長分散を無視することで (2 次元空間において) ビーム径が経路長に与える影響を評価している [46]。しかしこの評価は、実際の 3 次元空間における体系に則したのではなく不十分である。また、Bleuel 等が提案した集光 NRSE 分光器は、図 2.4 に示されているように集光ミラーの中心で反射するビームに対して、垂直になるように RSF を傾けている。このように RSF を傾けることによって、ビームサイズに起因する RSF 間の経路長分散を小さくしているため、本手法は回転楕円体集光ミラーの一部分の偏角から反射されたビームのみにしか適用できない。このような制限はあるものの、この Bleuel 等の手法を元に様々な集光 NRSE 分光器が開発、提案されてきた [55–58]。しかしより多くの発散ビームを利用し高エネルギー分解能測定を達成するためには、回転楕円体集光ミラーの全周を最大とする、より大きな偏角方向からのビームに適用可能な位相補正法の開発が必要である。

また回転楕円体集光ミラーの実現が非常に困難であったため、実際に回転楕円体集光ミラーを製作し散乱実験を行なった研究例はない。そのため集光 NRSE 分光器の実現可能性を実験的に示す必要がある。

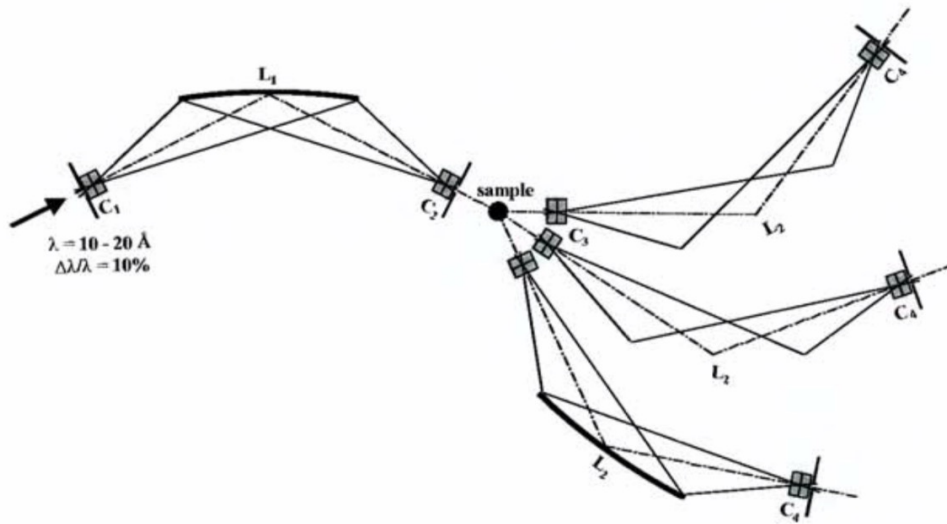


図 2.4 Bleuel 等によって提案された集光 NRSE 分光器 [46]。C は共鳴スピンフリップパー (RSF) である。RSF は集光ミラー中心で反射するビームに対して垂直になるように傾けられている。

第 3 章

中性子共鳴スピネコー分光器における位相補正のための 2 回集光法

3.1 序言

中性子共鳴スピネコー (NRSE) 分光器の位相補正は経路長の均一化によって達成される。Bleuel 等によって提案された既存の集光 NRSE 分光法では楕円体集光ミラーの一部分の利用しか考えていなかったため、共鳴スピネフリッパー (RSF) を傾けることでビームサイズに由来する中性子の経路長の分散を小さくしていた。そのため本手法は集光 NRSE 分光器で位相補正が可能なビーム発散角を大きく制限する。しかし本来、焦点と回転楕円体表面を結ぶ直線の距離が等しいという性質は全ての偏角 (全周) について成り立つ。回転楕円体集光ミラーの全周を利用した「全周型回転楕円体集光ミラー」による、より多くの発散ビームを利用するには新たな位相補正法の開発が必要である。

全周型回転楕円体集光ミラーが利用可能な位相補正法として 2 回集光 (DF) 法を提案する。本手法により NRSE 分光法において、高エネルギー分解能化と高輝度化を同時に達成することができる。本研究では 1 回集光法の評価結果を示しながら、DF 法の有効性を幾何的、数値的に評価する。

3.2 2 次元平面での経路長差の幾何的な評価

2 次元平面における 2 回集光 (DF) 体系の模式図を図 3.1 に示す。本体系では、同形状の二つの楕円を直列に配置する。一つ目の楕円の右側の焦点と二つ目の楕円の左側の焦点を同じ位置 (A_2) で重なるように配置する。幾何的な計算を行うため、一つ目の楕円中心

を原点する座標平面を設定する。また x 軸、 y 軸はそれぞれ楕円の長軸、短軸に沿うように設定する。この時一つ目の楕円と二つ目の楕円上の任意の点は次式を満たす。

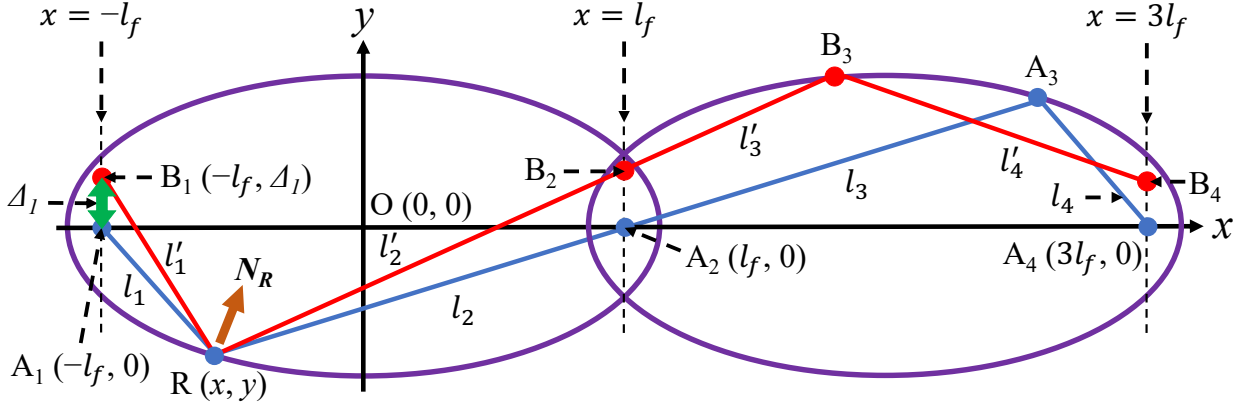


図 3.1 2次元平面での2回集光体系の模式図。

$$\left(\frac{x}{a}\right)^2 + \left(\frac{y}{b}\right)^2 = 1 \quad (3.1)$$

$$\left(\frac{x - 2l_f}{a}\right)^2 + \left(\frac{y}{b}\right)^2 = 1 \quad (3.2)$$

半長軸、半短軸はそれぞれ a 、 b である。半焦点距離 l_f は、 O から各焦点 (A_1 と A_2) までの距離であり、次のように計算できる。

$$l_f = \sqrt{a^2 - b^2} \quad (3.3)$$

ここで、 $x = l_f$ から $x = 3l_f$ まで伝搬する2種類のビームを考える。両ビームは、一つ目の楕円上の点 $R(x, y)$ で反射する。一つ目のビームは、理想的な焦点位置 $A_1(-l_f, 0)$ から発出するビームである。二つ目のビームは、 y 方向に Δ_1 ずれた位置 $B_1(-l_f, \Delta_1)$ から発出するビームである。一つ目の理想的なビームは、点 A_1 、 R 、 A_2 、 A_3 、 A_4 を通過する。このとき線分 $\overline{A_1R}$ 、 $\overline{RA_2}$ 、 $\overline{A_2A_3}$ 、 $\overline{A_3A_4}$ を、それぞれ l_1 、 l_2 、 l_3 、 l_4 と表記する。楕円の定義より

$$l_1 + l_2 = 2a \quad (3.4)$$

$$l_3 + l_4 = 2a \quad (3.5)$$

を満たす。二つ目のずれたビームは、 B_1 、 R 、 B_2 、 B_3 、 B_4 を通過する。線分 $\overline{B_1R}$ 、 $\overline{RB_2}$ 、 $\overline{B_2B_3}$ 、 $\overline{B_3B_4}$ を、それぞれ l'_1 、 l'_2 、 l'_3 、 l'_4 と表記する。

点 R において楕円の内側に向かうの単位法線ベクトル \mathbf{N}_R は一意に求まる。 \mathbf{N}_R と B_1 と R から求まる入射ベクトルを用いて、点 R で反射するビームの反射ベクトルが求まる。反射ベクトルと R の座標から反射ビームの直線の方程式が立てられる。この直線の方程式と $x = l_f$ 、式 (3.2) の解からそれぞれ、 B_2 の y 座標と B_3 の座標が求まる。一つ目の楕円と同様の手順で、 B_4 の y 座標を求めることができる。 B_1 、 R 、 B_2 、 B_3 、 B_4 の座標を用いて、線分 l'_1 、 l'_2 、 l'_3 、 l'_4 を Δ_1 と x の関数として求めることができる。

一つ目の楕円領域 ($-l_f \leq x \leq l_f$) と二つ目の楕円領域 ($l_f \leq x \leq 3l_f$) におけるずれたビームの経路長と理想的なビームの経路長 ($2a$) の差を経路長差 (PLD) と定義する。それぞれの PLD は次のように計算できる。

$$\delta = l'_1 + l'_2 - 2a \quad (3.6)$$

$$\delta' = l'_3 + l'_4 - 2a \quad (3.7)$$

表 3.1 に、計算に使用した楕円パラメータの値を示す。半長軸 a 、半短軸 b 、およびミラー長に関する x の範囲 $-\frac{L_m}{2} \leq x \leq \frac{L_m}{2}$ は、開発された回転楕円体集光ミラーの楕円パラメータの値と同じである [59]。また入射ビームサイズに関する Δ_1 の値は、3次元空間で利用可能な中性子強度に基づいて決められた。詳細は節 3.3 で説明する。

Parameters	Values [mm]
Semi-major axis: a	1250
Semi-minor axis: b	65.4
Mirror length: L_m	900
Semi-focal length: l_f	1248.3

表 3.1 計算に用いた楕円パラメータの値。これらは開発された回転楕円体集光ミラー [59] の楕円パラメータの値と同じである。

図 3.2(a) は、 $\Delta_1 = 1.5$ mm とした時の一つ目の楕円領域 (δ) と二つ目の楕円領域 (δ') の PLD、そして DF 体系 ($\delta + \delta'$) による PLD を点 R の x 座標の関数で表したものである。 δ と δ' はそれぞれ正と負の値を持つ。このことは図 3.1 から理解できる。 Δ_1 が正の値を持つとき、 $l'_1 + l'_2 > l_1 + l_2$ と $l'_3 + l'_4 < l_3 + l_4$ を満たす。図 3.2(a) では δ' に -1 を掛けて、 δ' の絶対値を δ と比較している。 δ と $-\delta'$ を比較すると、一つ目の楕円領域

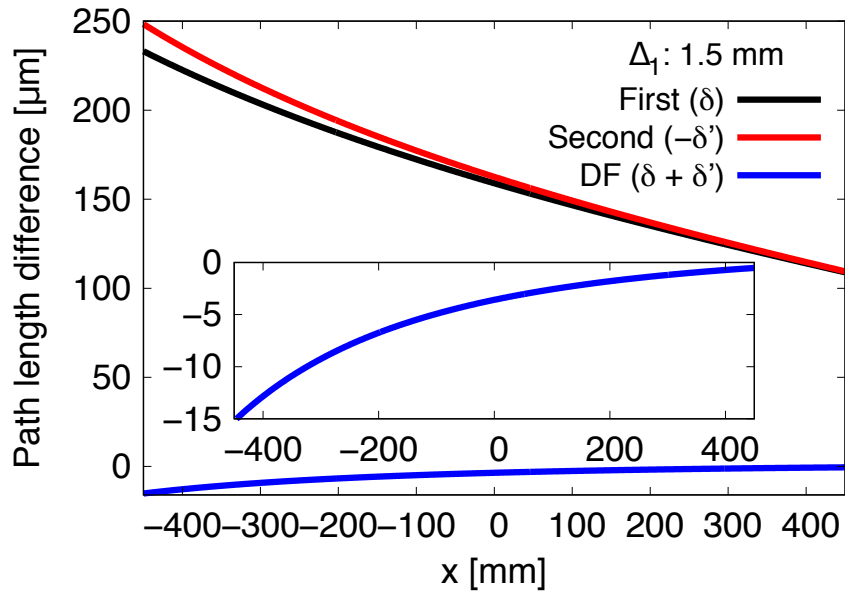
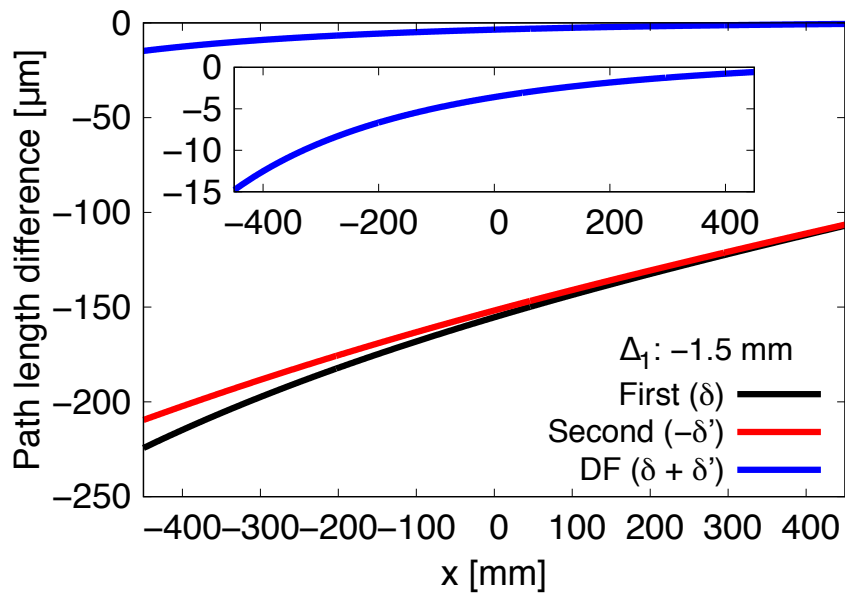
(a) $\Delta_1 = 1.5$ mm(b) $\Delta_1 = -1.5$ mm

図 3.2 一つ目の楕円領域 (δ)、二つ目の楕円領域 (δ')、2 回集光体系 ($\delta + \delta'$) によるの経路長差 (PLD) を、一つ目の楕円上の反射点 R の x の関数で幾何的に計算した結果。図 3.1 に示すように、発出位置 $x = -l_f$ での y 軸方向のずれを Δ_1 と表記している。図 (a)、(b) はそれぞれ Δ_1 に 1.5、-1.5 mm を代入した結果である。 δ と δ' の定義は、それぞれ式 (3.6) と式 (3.7) で示されている。また δ' の値は、 δ と比較しやすいように -1 を乗じている。挿入図は、PLD が -15 から 0 μm の拡大図である。

で生じる PLD が二つ目楕円領域で生じる PLD でほぼ打ち消されることがわかる。そして二つの楕円を用いる DF 体系では、PLD の分散が大幅に減少している。また、特に x の小さい領域では $-\delta'$ が δ よりもわずかに大きいため、DF 体系の残留 PLD は負の値を持つ。図 3.2(a) の挿入図に示すように、反射点 R の x 値が大きくなると PLD はほぼゼロになる。これは、 δ と δ' の原因となる $\angle B_1RA_1$ が小さくなるためである。

図 3.2(b) に $\Delta_1 = -1.5$ mm の結果を示す。図からわかる様にこの場合 δ と δ' の符号は $\Delta_1 = 1.5$ の場合と比較し逆転する。しかし DF 体系では $\Delta_1 = 1.5$ mm の時と同様に PLD は負で小さい値を持つ。

図 3.2(a)、3.2(b) の結果から、一回集光 (SF) 体系の PLD 幅が最大で ($x = -450$ mm で) 約 460 μm であるのに対し、DF 体系では約 15 μm であることがわかる。つまり、SF 体系と比較し DF 体系では経路長の分散が著しく小さい。

図 3.3 に DF 体系における PLD を x と Δ_1 の関数で描いた結果を示す。この図の $\Delta_1 = 1.5$ 、 -1.5 mm がそれぞれ図 3.2(a)、3.2(b) の青線に対応する。 $|\Delta_1|$ が大きくなるにつれて、全経路長 ($l'_1 + l'_2 + l'_3 + l'_4$) が $4a$ よりも短くなることがわかる。これは二つ目の楕円領域での経路長は一つ目の楕円領域での経路長に比べ、常に理想的な軌道長 $2a$ からより大きくずれることに起因すると考える。そのため、二つ目の楕円領域における補正効果は常に小さくなり $\Delta_1 > 0$ 、 $\Delta_1 < 0$ のいずれの場合も、 $\delta < -\delta'$ を満足すると考える。また図 3.3 は x が大きい位置での反射を利用することにより、 $|\Delta_1|$ が大きくても経路長の分散が小さいことを示している。つまり入射ピンホール位置から離れた位置の反射を利用することで、入射ピンホールの大きさが大きくても PLD は小さく抑えられることを示唆しており、DF 法を利用した集光ミラー NRSE 分光器設計において重要な知見である。またこの DF 体系は、同軸 (x 軸) に関して対称であるため、3次元空間で全周型回転楕円体集光ミラーを用いた場合でも、PLD の分散は著しく小さくなる可能性がある。

本節で示した幾何的な計算結果は、近似を用いて定式化し、PLD を評価した場合でも同様の結果が得られることを確かめた。定式化では、1次の近似の範囲で δ が Δ_1 に比例することがわかった。これにより一つ目の楕円と二つ目の楕円を組み合わせることで距離差が打ち消し合うという上述の知見が明らかになった。この定式化については冗長を避けるため、付録 A で説明する。

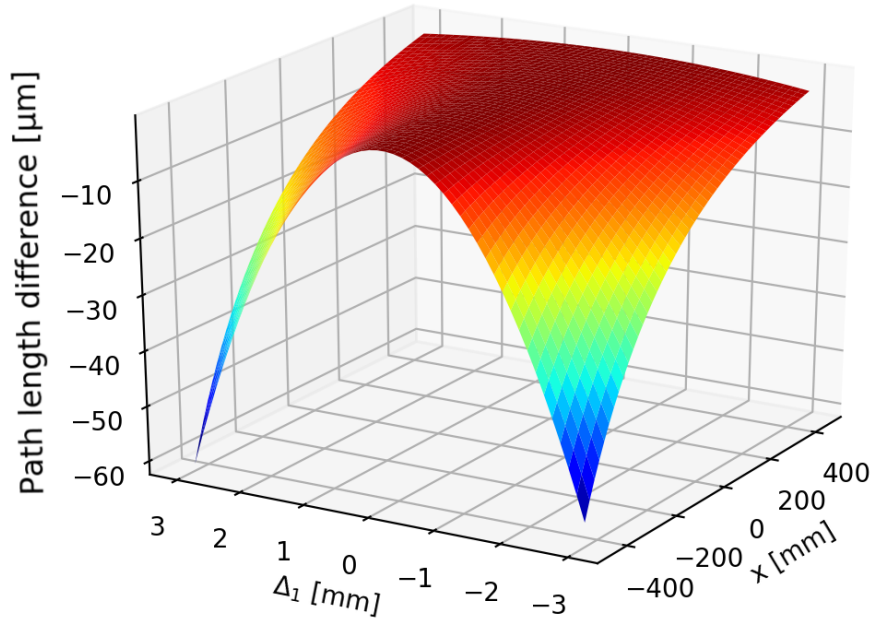


図 3.3 DF 体系での経路長差 (PLD) $\delta + \delta'$ 。PLD は x と Δ_1 の関数なので、それぞれ $-\frac{L_m}{2} \leq x \leq \frac{L_m}{2}$ 、 $-3 \text{ mm} \leq \Delta_1 \leq 3 \text{ mm}$ の領域で示している。

3.3 MC シミュレーションを用いた 3 次元空間での経路長差の評価

前節では 2 次元空間における DF 体系の PLD を評価した。しかし、この評価では回転楕円体の同軸を含む平面上では表現できないビーム軌道は考慮されていなかった。本節では 3 次元空間における DF 体系の有効性を評価するために、McStas [60, 61] を用いた Monte Carlo (MC) シミュレーションを行う。各ビーム軌道の PLD の計算には、飛行時間 (TOF) 法を用いる。中性子源から波長分解能が 1×10^{-16} の非常に単色性の良いビームを発生させ、全周型回転楕円体集光ミラーで反射した中性子ビームを検出して、その TOF データから各中性子の経路長を計算する。

MC シミュレーションで使用した 1 回集光体系 (SF) および DF 体系を図 3.4 に示す。計算体系の座標は 2 次元での評価で使用した座標 (図 3.1) に z 座標を追加している。このシミュレーション体系のパラメータは以下の通りである。 $x = -l_f$ における中性子源の半径、 $x = l_f$ における検出器 (SF 体系の場合) またはスリット (DF 体系の場合) の半径、 $x = 3l_f$ における検出器 (DF 体系の場合) の半径 r の値は全て 1.5 mm とした。 $x = 0$ および $2l_f$ のビームストッパーの半径 R_B は 20 mm とした。半径 R_B の円は集光ミラーで反射せずに直接集光点に到達する中性子ビームを遮蔽するのに十分な大きさであり、集光ミラーで反射した中性子を遮蔽しない程度の大きさである。計算で使用した全周型回転楕円体集光ミラーのパラメータの値は表 3.1 と同じである。また、 z 成分の半短軸は $b(65.4 \text{ mm})$ である。MC シミュレーションにおける全周型回転楕円体集光ミラーコンポーネントの計算アルゴリズムは、ILL のビームライン IN16B のグループで開発された *Guide_ellipsoid* コンポーネントと同じである [62]。本シミュレーションでは集光ミラーの反射率を 1 として計算した。

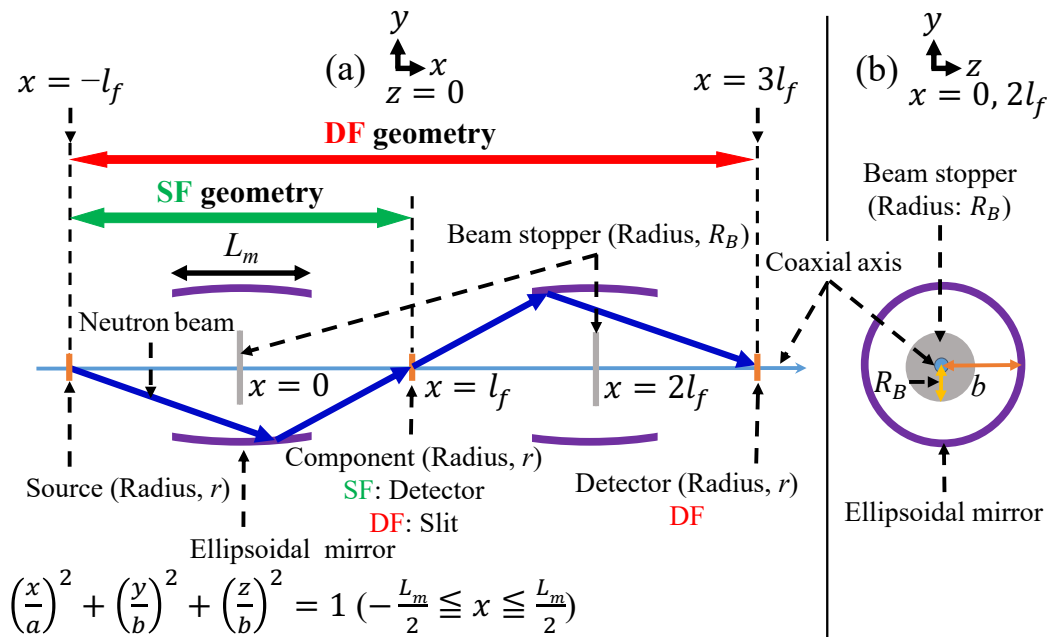


図 3.4 Monte Carlo(MC) シミュレーション体系。(a) $z = 0$ での x - y 平面、(b) $x = 0$ と $2l_f$ での z - y 平面。1 回集光 (SF) は $-l_f \leq x \leq l_f$ 、2 回集光 (DF) 体系は $-l_f \leq x \leq 3l_f$ の領域でシミュレーションを行った。 a 、 b 、 L_m 、 l_f の値は表 3.1 に示されている。図中の Slit はピンホールスリットのことであり、また半径 R_B 、 r は、それぞれ 20 mm、1.5 mm である。

ここで $r = 1.5 \text{ mm}$ の場合の DF 体系と NSE 実験において一般的なピンホール体系に

おける利用可能な入射中性子強度を比較する。ピンホール体系は、半径 15 mm の二つのピンホールスリットで構成され、スリット間の距離は 2.5 m である。この場合の最大ビーム発散角は 24 mrad であり、これは典型的な NSE 分光器で用いられる入射中性子ビームの発散角である [18, 19, 32]。このピンホール体系における中性子強度も、MC シミュレーションで 2 つのピンホールスリットの直前、直後にそれぞれ中性子源と検出器を設置することで計算した。ピンホール体系と DF 体系で計算されたそれぞれの中性子強度を I_p 、 I_{DF} とすると、それらの強度比 $\frac{I_{DF}}{I_p}$ は 0.790 ± 0.001 であった。このシミュレーション結果から、 $r = 1.5$ mm の DF 体系の中性子強度は、集光ミラーの反射率が 1 である理想的なケースにおいて、NSE 分光器で用いられる典型的なピンホール体系の 0.79 倍であることがわかった。 I_{DF} は I_p よりわずかに低いですが、DF 体系は集光ミラーを用いた減速材からの効率的なビーム輸送と相性が良いため、減速材からの中性子の輸送効率を考慮すると、DF 体系で利用可能な中性子強度はより高くなる可能性がある [63–67]。また実際 Mezei 型スピネコー分光器ではフレネルコイル等の補正コイルが用いられる。補正コイルは一般に Al 製で、厚さは最も厚い箇所では 1–2 cm である [21]。補正コイルの平均的な厚さを 1 cm と仮定した場合、波長 2 nm の中性子の透過率は 0.8 である。試料上流と下流でそれぞれ三つ補正コイルを利用を仮定すると全体の強度は 0.26 倍に減弱する。よって実際に NSE 実験に利用できる中性子強度は I_p より小さいと考えられる。一方、DF 体系においてもミラーの反射率を 1 に理想化している。ここで反射率を 0.8 と仮定すると 4 回反射 (試料上流と下流で 2 回ずつ) による減衰は 0.41 であり、強度利得は $0.79 \times 0.41 = 0.32$ となる。よって $r = 1.5$ mm の DF 体系と最大ビーム発散角が 24 mrad のピンホールコリメーションで利用可能な中性子強度はほぼ同程度と期待される。しかし一般に長波長中性子になるほどミラーの反射率は高い。実際に開発された回転楕円体集光ミラーにおいても波長 0.7 nm 以上の中性子において 0.83 以上の高い反射率を示しており、長波長になるほどその反射率は上がっている (図 B.7 参照)。よって DF 法を用いた集光 NRSE 分光器は、高エネルギー分解能測定に必要な長波長中性子において一般的なピンホール体系に比べ、より高い強度利得が見込まれる。

SF および DF 体系の PLD に対する中性子強度分布を図 3.5 に示す。横軸は SF および DF 体系の PLD を表す。PLD は SF と DF 体系でシミュレーションされた経路長から、それぞれ $2a$ と $4a$ を引いて計算した値である。縦軸は各体系でのピーク強度で規格化した中性子強度分布である。SF 体系の対称的な強度分布は、図 3.2 の δ の傾向と一致する。SF 体系で PLD は最大で 316 μm 程度広がる。これは先に中性子強度を評価したピンホールジオメトリの最大の経路長差 $180 \mu\text{m}(\sqrt{2500^2 + 30^2} - 2500 = 0.18 \text{ mm})$ と比較しても大きい。ピンホールジオメトリの経路長は RSF 間距離 2500 mm より短く

なることはないので、経路長の分散は SF 体系の経路長の分散より小さい。つまり全周型回転楕円体集光ミラーを用いた 1 回集光体系では経路長の均一化による位相補正ができないことを示している。

一方、DF 体系では PLD の最大幅が $4 \mu\text{m}$ と非常に小さい。DF 体系で生じる PLD の符号は負であり、この特性は図 3.2 の $\delta + \delta'$ と図 3.3 の傾向と一致する。DF 体系の PLD の最大幅 $4 \mu\text{m}$ は、SF 体系はもとよりピンホール体系の経路長 (最大幅 $180 \mu\text{m}$) と比較しても十分小さく、全周型回転楕円体集光ミラーを用いた位相補正が可能であることを示している。

計算された SF、DF 体系の最大の PLD 幅は、図 3.2 からわかる、2 次元平面において計算された最大の PLD 幅よりどちらも小さい。これは、MC 計算中では $x = l_f$ で半径 r の円内に集光しなかった中性子がスリットによって除去されているからである。

また集光ミラーの反射率を 1 とすると、SF 体系と比較した DF 体系における積分中性子強度の減衰は $3.0 \pm 0.1\%$ のみであった。これは $x = l_f$ で一度集光した中性子はほぼすべて $x = 3l_f$ に輸送されることを意味する。つまり DF 体系では SF 体系と比較し長波長中性子強度を落とすことなく、PLD の分散を大幅に縮小できることがわかった。以上の結果より全周型回転楕円体集光ミラーを用いた DF 体系は、3 次元空間においても有用であることが確認できた。

今回の MC シミュレーションでは重力を無視している。重力の影響は先行研究においてほぼ同じ楕円体パラメータを持つ集光ミラーを用いた類似の SF 体系で評価されている [57]。この研究では中性子の波長が 2 nm の場合、重力の影響は無視できると報告している。DF 体系では一つ目の回転楕円体ミラーまで重力で加速された中性子が、反射後に重力で減速されて二つ目に反射する。これにより、DF 体系は SF 体系に比べて重力による TOF のずれの影響は小さいことが期待される。

3.4 2 回集光法を用いた NRSE 分光器

本節では DF 体系を用いた NRSE 分光器の性能を評価する。図 3.6 に DF 体系を用いた NRSE 分光器の概念図を示す。試料は二つの DF 体系の中央に配置する。図 3.6 のスリットは全てピンホールスリットを表している。緑色で示された $\pi/2$ 、 π フリッパーは図 2.2 の $\pi/2$ 、 π フリッパーと同様、全エネルギー変化のつかないフリッパーである。spin-up と spin-down 状態間で異なる位相を実現するために、 π フリッパーとして動作する RSF を各 DF 体系の両側に配置する。RSF1-RSF2 間および RSF3-RSF4 間の距離は $4l_f$ とした。RSF 間の PLD の分散を最小にするためには、各 RSF を全周型回転楕円

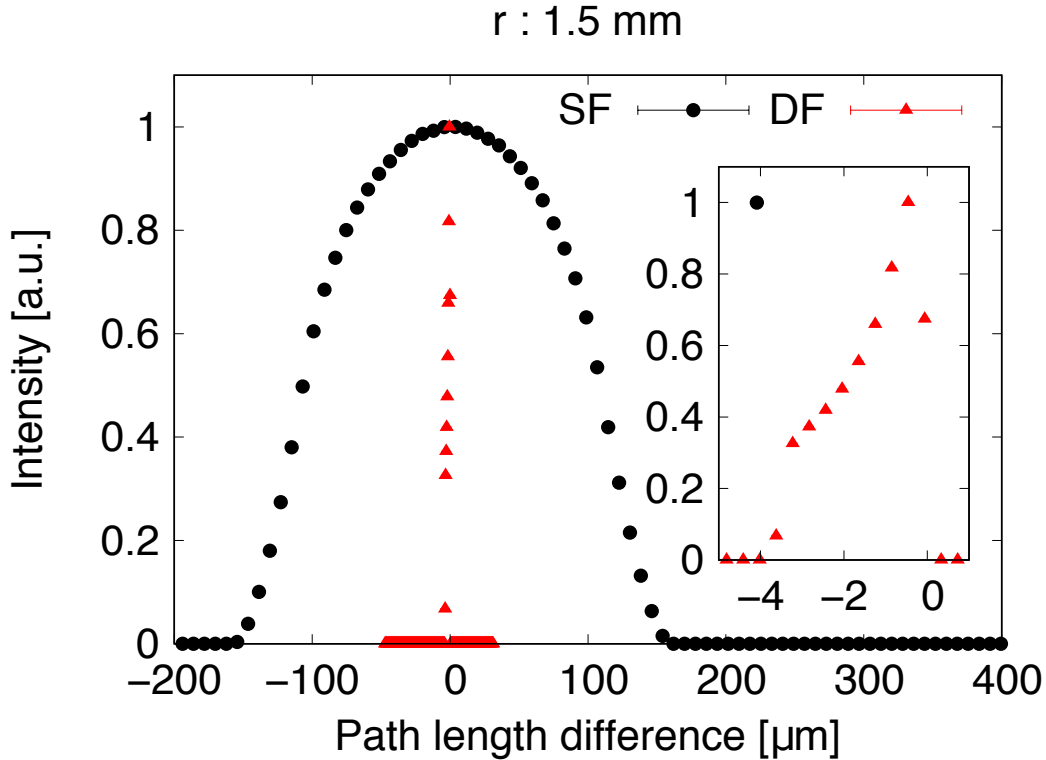


図 3.5 Monte Carlo(MC) シミュレーションを用いて計算した、1回集光 (SF) および 2回集光 (DF) 体系の経路長差 (PLD) に対する中性子強度。シミュレーション体系は図 3.4 に示している。PLD は、SF および DF 体系で計算された各経路長から、それぞれ $2a$ および $4a$ を引いて計算した値である。両者の中性子強度は各ピーク強度で規格化している。規格化しない場合、SF、DF 体系で検出される中性子の積分強度はほぼ同じであった。挿入図は PLD が -5 から $1 \mu\text{m}$ の間の拡大図である。

体集光ミラーの焦点に配置する必要がある。しかし試料を焦点に配置するためには、各 RSF を焦点から少しずれた位置に配置する必要がある。このオフセット長を d と定義する。このオフセットはポライザーの下流に他と同じ形状の回転楕円体集光ミラーを追加することで対応できる。集光ミラーを用いた減速材からの効率的なビーム輸送法は先行研究で議論されているのでこの仮定は妥当である [58, 63–67]。ポライザーの位置は slit 位置 (最上流の焦点位置) の前後どちらでも良いので図中では slit+polarizer と表記した。

図 3.6 に示された NRSE 分光器において、 d の値に依存する NRSE シグナルのコントラストとそれに対応するフーリエタイムを計算する。計算ではすべてのスリットの半径 r を節 3.3 と同様に 1.5 mm とした。DF 体系のオフセット長が d の場合、PLD の値 p に対する規格化された中性子強度を $I(p, d)$ と定義する。例えば、 $d = 0$ の DF 体系 (図 3.4 の DF 体系) での計算結果は $I(p, 0)$ であり、これは図 3.5 の DF に示されている。一つ目

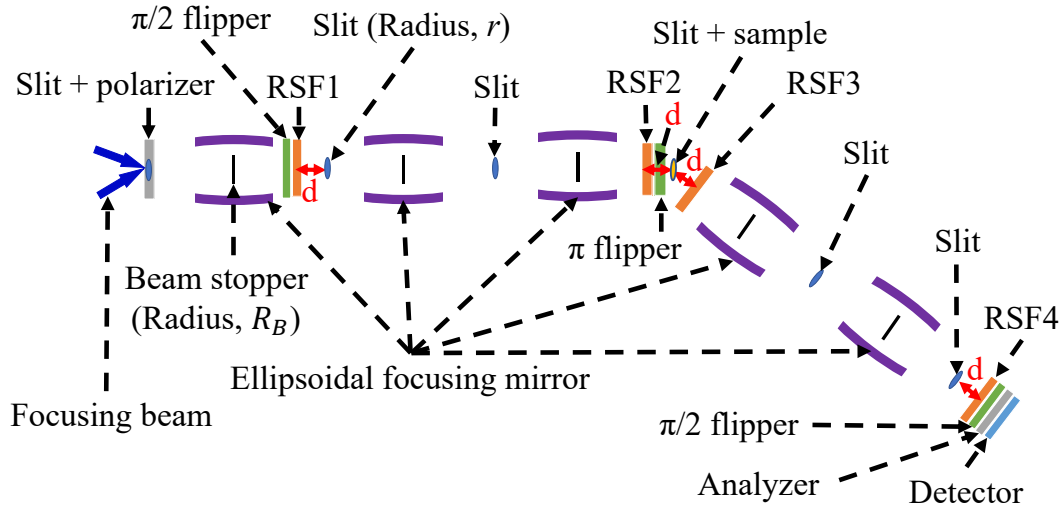


図 3.6 2回集光法を用いた NRSE 分光器の模式図。オフセット長を d で示す。図中の Slit はピンホールスリットのことであり、ピンホールスリットとビームストップの半径 r と R_B はそれぞれ 1.5 mm と 20 mm である。

の DF 体系 (RSF1–RSF2) と二つ目の DF 体系 (RSF3–RSF4) は同一であるため、それぞれの $I(p, d)$ は同一である。中性子の波数ベクトルは試料での散乱によって変化するため、 $I(p, d)$ は試料の前後で独立して評価する必要がある。そこでそれぞれの $I(p, d)$ を次のように畳み込んだ。

$$I_c(p, d) = I(p, d) * I(p, d) \quad (3.8)$$

この $I_c(p, d)$ を用いて、以下のように NRSE シグナルのコントラスト C を計算した。

$$C = \frac{1}{\sum_{i=1}^j I_c(p_i, d)} \sum_{i=1}^j I_c(p_i, d) \cos\left(\frac{f_e m \lambda}{\hbar} p_i\right) \quad (3.9)$$

ここで f_e 、 m 、 λ 、 \hbar はそれぞれ実効周波数、中性子の質量、波長、ディラック定数である [68, 69]。 $I_c(p_i, d)$ は、 $I_c(p, d)$ の i 番目の PLD のデータ点であり、 j は各 d における計算結果の PLD データ点の総数を表す。 RSF1–RSF2 および RSF3–RSF4 の経路長を L としたとき、フーリエタイム τ は次のように計算される。

$$\tau = \frac{m^2 f_e L \lambda^3}{4\pi^2 \hbar^2} \quad (3.10)$$

これは式 (2.22) の駆動角周波数 ω_s を実効振動数 πf_e に変換した式である。

d を 0 から $0.2l_f$ の間で変化させた場合の τ に対するコントラスト C を図 3.7 に示す。この計算では、 f_e の値を 100 kHz から 6 MHz の間で 10 kHz ステップで変化させた。こ

これは上部横軸に示されている。また、これらの計算では L は $4a = 5$ m、 λ は 2 nm に設定した。 d が大きくなるにつれて、より短い τ でコントラストが減衰する。これは、 d が大きくなると $I(p, d)$ の分散が大きくなるためである。オフセット長 d が 0 および $0.05l_f$ の時、フーリエタイム τ が 1 μ s (エネルギー分解能 0.7 neV) の場合のコントラスト C はそれぞれ 0.93 および 0.36 であった。これらから非弾性散乱によるコントラストの減少が測定可能なので、本計算結果はフーリエタイムが 1 μ s の NRSE 実験の可能性を示している。これは、NRSE 分光器ではこれまで達成されていないエネルギー分解能であり、本手法を用いることで NRSE 分光器で測定可能な時間領域の拡大が期待できる。

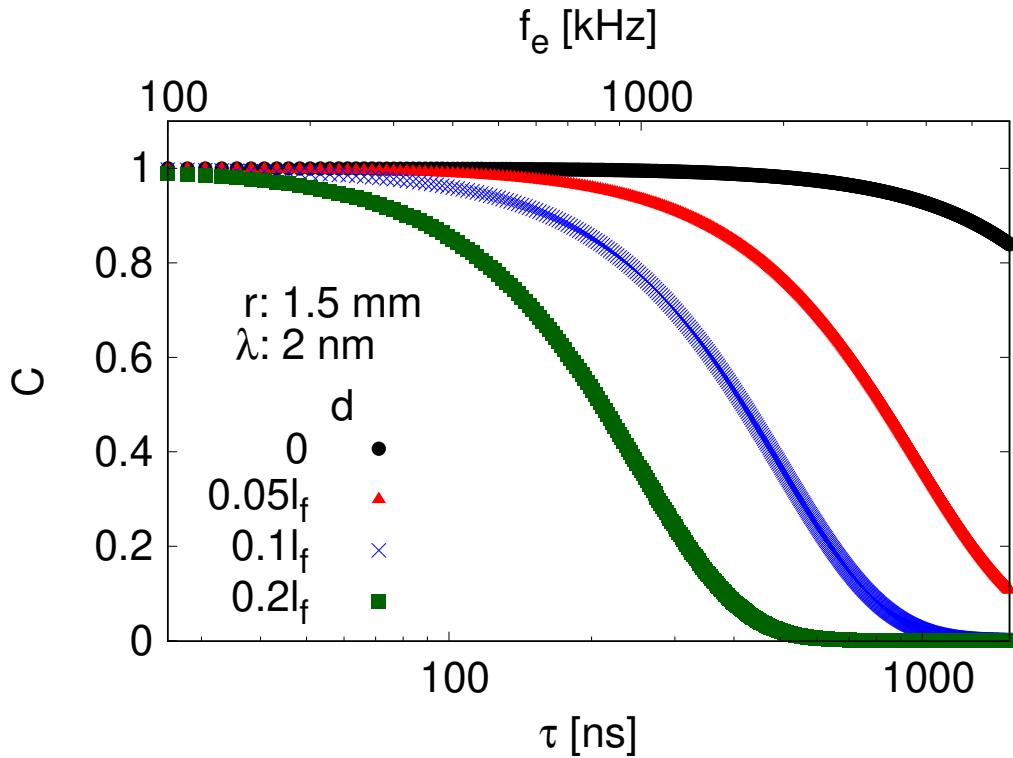


図 3.7 異なるオフセット長 d をもつ DF 体系を用いた NRSE 分光器のフーリエタイム τ に対する NRSE シグナルのコントラスト C 。半焦点距離 l_f の値は表 3.1 に示している。図 3.6 のピンホールスリットの半径 r は 1.5 mm として計算した。また、中性子の波長 λ は 2 nm、実効周波数 f_e は 100 kHz から 6 MHz の間で 10 kHz ステップで変化させ τ を計算した。対応する f_e を上部横軸に示す。

3.5 結言

Bleuel 等によって提案された従来の集光 NRSE 分光器では、楕円体集光ミラーが部分的にしか配置されていないため、位相補正が可能なビーム発散角が大きく制限されていた。そこで、回転楕円体集光ミラーの全周を用いた「全周型回転楕円体集光ミラー」からのより多くの発散ビームに適用可能な新たな位相補正法として、2 回集光 (DF) 法を提案した。本手法では二つの同一の回転楕円体集光ミラーを直列に配置する。この体系を用いることで、共鳴スピントリッパー (RSF) 位置でのビームサイズに起因する経路長分散を補正できる。従来の 1 回集光 (SF) 体系とは異なり RSF を傾ける必要がないため、この DF 体系は全周型回転楕円体集光ミラーを用いたより大きな発散ビームを利用することができる。開発された回転楕円体集光ミラーの楕円体パラメータを用いて、その有効性を評価した。

2 次元空間で焦点からずれた位置から発出するビーム軌道の経路長差 (PLD) を幾何的に計算した。その結果、一つ目の楕円の焦点間で行く経路長差は二つ目の楕円の焦点間で行く経路長差でほぼ打ち消され、二つを組み合わせた DF 体系では経路長の分散が SF 体系と比較し著しく減少することがわかった。そして DF 体系は楕円の同軸に対して対称であるため、全周型回転楕円体集光ミラーによる 3 次元的に集光・発散するビームにおいても、PLD の分散が小さく保たれる可能性があった。

これを確認するために、3 次元空間においても Monte Carlo (MC) シミュレーションを用いて経路長差を計算した。DF 体系における 3 箇所の焦点位置でのビームサイズを半径 1.5 mm の円内に限定した場合、全周型回転楕円体集光ミラーを用いた DF 体系で利用できる中性子強度は、NSE 実験において用いられる典型的なピンホールコリメーション (最大ビーム発散角が 24 mrad) から評価される中性子強度の 0.790 ± 0.001 倍であった。この DF 体系における経路長差の最大幅は 4 μm であり、1 回集光体系の経路長差の最大幅 316 μm と比較し著しく減少した。これは一般的な NSE 実験で用いられるピンホールコリメーションで生じる経路分散と比較しても著しく小さいことから、DF 法を用いることで全周型回転楕円体集光ミラーを用いた位相補正が可能であることを意味する。このシミュレーション結果により、DF 法は従来の集光ミラーを用いた位相補正法と比較し、高エネルギー分解能測定に利用可能な中性子強度を大幅に増加させることがわかった。

DF 法の有用性を確認したので DF 法を利用した集光 NRSE 分光器を提案し、そのエネルギー分解能を評価した。この評価には MC シミュレーションを用いて計算した経路長差に対する中性子強度分布を用いた。試料上流と下流で同じ DF 体系を用いたことか

ら、それぞれの計算結果を畳み込んだ強度分布を用いることで、フーリエタイムに対する NRSE シグナルのコントラストを計算した。波長 2 nm の中性子を仮定した場合、焦点と RSF 間の距離 (オフセット長) が 0 および $0.05l_f$ (l_f :半焦点間距離 1248.3 mm) の時、フーリエタイム 1 μs (エネルギー分解能 0.7 neV) における NRSE シグナルのコントラストはそれぞれ 0.93 および 0.36 であった。これらから非弾性散乱によるコントラストの減少が測定可能なので、本計算結果はフーリエタイムが 1 μs (エネルギー分解能 0.7 neV) の NRSE 実験の可能性を示している。これは NRSE 分光器で測定可能な時間領域の拡大を示唆する結果である。

本研究で提案した DF 法による位相補正法はパルス中性子源のみならず定常炉においても利用できる。しかしパルス中性子源と組み合わせることで広い運動量遷移空間の同時測定が可能であり、微小試料に対応した NSE 分光法における静的構造と関連づけたスローダイナミクス測定の利用拡大が期待される。

第4章

回転楕円体集光ミラーを用いた集光 NRSE 分光器の実現可能性の評価

4.1 序言

回転楕円体集光ミラーを用いた中性子共鳴スピンエコー (NRSE) 分光器は、様々なグループですでに提案されていたが、その実現可能性の実験的評価はされてこなかった [46, 55–58]。これは回転楕円体集光ミラーの製作が困難だったためである。しかし最近、京都大学複合原子力科学研究所と理化学研究所を中心としたグループの共同研究により製作に成功した [59]。開発された回転楕円体集光ミラーを用いて集光 NRSE 分光器の開発研究が進展しており、ダイレクトビームによる集光 NRSE シグナルの観測には成功していた [70]。しかしこの実験は試料を用いておらず、散乱実験で同様の NRSE シグナルを取得できることを保証するものではなかった。集光 NRSE 分光器の実現可能性を示すためには、試料からの散乱中性子を集光させ、スピンエコーシグナルを観測する必要がある。

そこで本研究では NRSE 分光器の一種である Modulated intensity with zero effort (MIEZE) 分光器を J-PARC MLF BL06 に構築し、弾性散乱体からの散乱中性子の MIEZE シグナルを測定する。経路長に起因するスピン状態間の位相差を反映したスピンエコーシグナルを観測する観点では、MIEZE 分光器は最もシンプルな NRSE 分光器である。また回転楕円体集光ミラーの枚数が限られていたこともあり、比較的簡単にスピンエコーシグナルが観測できる MIEZE 分光器によって、弾性散乱体により散乱した中性子のスピンエコーシグナルを観測した。実験では試料の前後に回転楕円体集光ミラーを設置し、試料への入射中性子のみならず試料からの散乱中性子も集光させることで、パルス中

中性子源における集光 NRSE 分光器の実現可能性を評価する。

4.2 MIEZE 分光器

MIEZE 分光器は NRSE 分光器の一種である [17, 71]。図 4.1 に最も単純な MIEZE 分光器の概念図を示す。図 4.1(a) は中性子デバイスの配置図、(b) は静磁場の強さ、(c) はスピン状態遷移とそれぞれの波数変化を示す。使用されているデバイスは 2 章の Mezei 型スピンエコー、NRSE 分光器で説明したものと同様である。

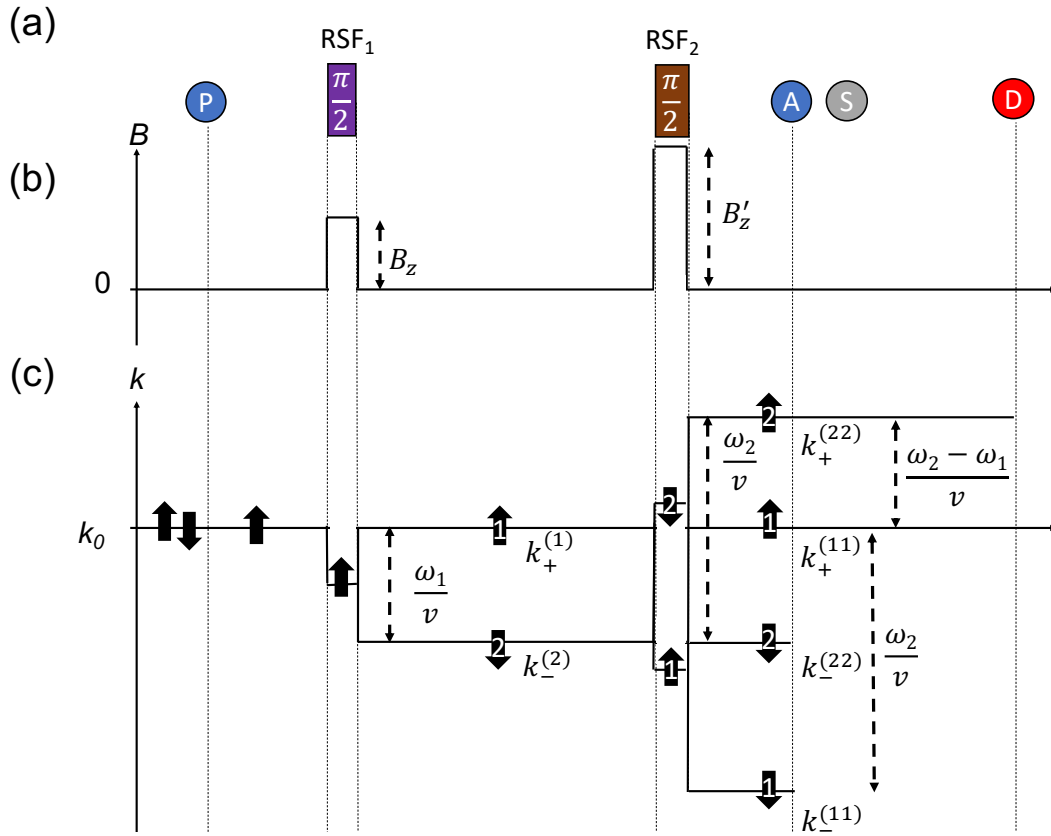


図 4.1 MIEZE 分光器。(a) 中性子デバイスの配置図、(b) 静磁場の強さ、(c) スピン状態遷移とそれぞれの波数変化。P はポライザー、A はアナライザー、S は試料、D は検出器を示す。RSF₁ と RSF₂ は共鳴スピントリッパーであり、どちらも $\pi/2$ 条件だがそれぞれ異なる角周波数 ω_1 と ω_2 で駆動させる。

ポライザーで偏極した中性子は静磁場の大きさが B_z の共鳴スピントリッパー RSF₁ に侵入する。RSF₁ の共鳴条件は $\hbar\omega_1 = 2|\mu|B_z$ であり、 ω_1 は RSF₁ の振動磁場コイル

が生成する振動磁場の角周波数である。RSF₁ は $\pi/2$ フリッパーとして駆動させる。以降のスピン状態間の位相を追跡するため、図 4.1(c) に示すように RSF₁ 後の spin-up、spin-down 状態の中性子を 1、2 と標識する。スピン状態の遷移は式 (2.1) と同じである。しかし全エネルギーが変化するので、RSF₁ 出口での spin-up、spin-down 状態の波数は以下のように書ける。

$$k_+^{(1)} = k_0 \quad (4.1)$$

$$k_-^{(2)} = \sqrt{\frac{2m(E - \hbar\omega_1)}{\hbar^2}} \approx k_0 - \frac{\omega_1}{v} \quad (4.2)$$

波数の肩の括弧内の数字は標識である。RSF₁–RSF₂ 間における中性子の経路長を L_{12} とすると、RSF₁–RSF₂ 間でつく、2 を基準にした位相差は

$$\phi_1 = (k_+^{(1)} - k_-^{(2)})L_{12} = \frac{\omega_1}{v}L_{12} \quad (4.3)$$

と書ける。RSF₁–RSF₂ 間では 2 に対して 1 の位相が進むことがわかる。

次に中性子は静磁場の大きさが B'_z 、振動磁場の角周波数が ω_2 の RSF₂ に侵入する。RSF₂ は共鳴条件 $\hbar\omega_2 = 2|\mu|B'_z$ を満たし、RSF₁ と同様に $\pi/2$ フリッパーとして駆動させる。RSF₂ は $B'_z > B_z$ つまり共鳴条件から $\omega_2 > \omega_1$ の条件で駆動させる。その結果 RSF₂ による波数変化は RSF₁ による波数変化よりも大きくなる。

RSF₂ と作用する前に波数 $k_+^{(1)} = k_0$ を持つ spin-up 状態の波数は RSF₂ と作用することで、確率 1/2 でスピン状態が遷移する。よって RSF₂ 出口の波数はそれぞれ以下のように書ける。

$$k_+^{(11)} = k_+^{(1)} \quad (4.4)$$

$$k_-^{(11)} = \sqrt{\frac{2m(E - \hbar\omega_2)}{\hbar^2}} \approx k_+^{(1)} - \frac{\omega_2}{v} \quad (4.5)$$

E は入射中性子の運動エネルギーで $E = \frac{(\hbar k_0)^2}{2m}$ である。また RSF₂ と作用する前に波数 $k_-^{(2)} = k_0 - \frac{\omega_1}{v}$ を持つ spin-down 状態の波数は、RSF₂ の出口で同様に変化しそれぞれ以下のように書ける。

$$k_-^{(22)} = k_-^{(2)} \quad (4.6)$$

$$k_+^{(22)} = \sqrt{\frac{2m(E - \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2)}{\hbar^2}} \approx k_-^{(2)} + \frac{\omega_2}{v} \quad (4.7)$$

MIEZE 分光器では試料に入射する前にアナライザーで spin-up 状態のみ ($k_+^{(11)}$ と $k_+^{(22)}$) を取り出し、波動関数の線形的な重ね合わせの絶対値の 2 乗である確率密度を測定する。そのため MIEZE 分光器では試料後に偏極デバイスを設置することで、偏極解析が可能である。

RSF₂-検出器間における経路長を L_{2d} とすると、RSF₂-検出器間でのラベル 2 を基準とした位相差は

$$\phi_2 = (k_+^{(11)} - k_+^{(22)})L_{2d} = \frac{\omega_1 - \omega_2}{v}L_{2d} \quad (4.8)$$

と書ける。 $\omega_2 > \omega_1$ であるので ϕ_2 は負の値を持ち、RSF₂-検出器間では 2 に対して 1 の位相が遅れることがわかる。

式 (4.3) と (4.8) から中性子の速度に依らず位相が揃うスピンエコー条件は $\phi_1 + \phi_2 = 0$ であり、書き換えると

$$\omega_1 L_{12} = (\omega_2 - \omega_1)L_{2d} \quad (4.9)$$

となる。これは MIEZE 条件と呼ばれている。MIEZE 条件は図 4.1(c) で示すと、RSF₁-RSF₂、RSF₂-検出器間において異なる波数を表す線で囲まれた領域の面積が等しくなる条件である。

検出器位置で測定されるのは、同一の spin-up 状態だが異なる波数を持つ重ね合わせ状態の中性子である。それぞれの波数に対応する運動エネルギーの差は式 (4.4) と (4.7) より

$$\frac{(\hbar k_+^{(22)})^2 - (\hbar k_+^{(11)})^2}{2m} = \hbar(\omega_2 - \omega_1) = \hbar\omega_m \quad (4.10)$$

と書ける。つまりこの運動エネルギー差は RSF の振動磁場の角周波数差に由来する中性子の全エネルギー差に対応し、波数 $k_+^{(22)}$ と $k_+^{(11)}$ の 2 つの状態間の位相差は時間 t に比例して $\omega_m t$ で変化する。 t に依存しない位相差は MIEZE 条件により打ち消されることから、検出器位置では式 (2.10) と同様に

$$\left| \frac{1 + \exp(i\omega_m t)}{2} \right|^2 = \frac{1 + \cos(\omega_m t)}{2} \quad (4.11)$$

の時間で振動するスピンエコーシグナルが観測される。この偏極率の時間うなりを MIEZE シグナルと呼ぶ。Mezei 型スピンエコー分光器や NRSE 分光器では式 (2.10) のように、スピン状態間の位相差 Φ を人工的に変化させスピンエコーシグナルを測定する。一方 MIEZE 分光器では、同一のスピン状態だが異なる波数 ($k_+^{(22)}$ と $k_+^{(11)}$) を持つ状態の位相差が時間 t で (Zero effort で) 変化することでスピンエコーシグナル (MIEZE シグナル) が生じる。よって試料のないダイレクトビームを t の関数で測定すると、偏極率が

0–1 の間で角周波数 ω_m で振動する。理想的な場合の MIEZE シグナルのコントラストは 1 である。

試料で非弾性散乱が生じ、中性子の速度が $v + \delta v$ に変化した場合を考える。この速度変化に起因する位相の変化 $\delta\phi$ は

$$\delta\phi = \omega_m L_{sd} \left(\frac{1}{v} - \frac{1}{v + \delta v} \right) \approx \frac{\omega_m L_{sd} \delta v}{v^2} \quad (4.12)$$

と書ける。ここで L_{sd} は試料–検出器間における中性子の経路長である。式 (2.12) を利用すると

$$\delta\phi \approx \frac{\hbar\omega_m L_{sd}}{mv^3} \omega \quad (4.13)$$

となる。よって MIEZE 分光器におけるフーリエタイム τ は

$$\tau = \frac{\hbar\omega_m L_{sd}}{mv^3} = \frac{m^2 \omega_m L_{sd} \lambda^3}{8\pi^3 \hbar^2} \quad (4.14)$$

と書ける。Mezei 型スピネコー分光器や NRSE 分光器と同様に MIEZE 分光器もフーリエタイムは波長の 3 乗に比例する。また、試料での速度変化によって位相差が生じると、MIEZE シグナルのコントラストが崩れ、その減少割合から $\frac{I(Q,\tau)}{I(Q,0)}$ が測定できる点も同様である。MIEZE 分光器で高エネルギー分解能の実験を行うためには、様々な軌道を通る中性子に対して、RSF₁–RSF₂ 間と RSF₂–検出器間のそれぞれの経路長をできるだけ均一に揃える必要がある。MIEZE 分光器も NRSE 分光器同様、RSF₁–RSF₂ 間や試料–検出器間に中性子光学デバイスを設置することによる高度化が可能である。このように MIEZE 分光器におけるスピン状態間位相差も NRSE 分光器と同様に経路長で取り扱えることから、集光ミラーを用いた MIEZE 分光器によって集光 NRSE 分光器の実現可能性を実験的に評価することができる。

RSF 間は原理的には零磁場空間で良いが環境磁場による減偏極を防ぐために、しばしばガイド磁場と呼ばれる弱い磁場がかけられる。そこで RSF₁–RSF₂ 間に、磁束密度の大きさが B_g のガイド磁場がかけられている場合の MIEZE 条件を考える。RSF₁、RSF₂ の静磁場の向きがガイド磁場と平行な場合、1 と 2 は前節の Mezei 型スピネコー分光器で変化した波数と同様に、それぞれ $-\frac{|\mu B_g|}{\hbar v}$ と $\frac{|\mu B_g|}{\hbar v}$ だけ変化する。よって RSF₁–RSF₂ 間での 1、2 の波数差は $\frac{\omega_1}{v}$ から $\frac{\omega_1}{v} - 2\frac{|\mu B_g|}{\hbar v}$ へ変化する。もしガイド磁場と RSF₁、RSF₂ の静磁場の向きが反平行の場合、ガイド磁場で感じるポテンシャルの正負が逆転するので、RSF₁–RSF₂ 間での波数差は $\frac{\omega_1}{v} + 2\frac{|\mu B_g|}{\hbar v}$ となる。これらよりガイド磁場を考えた時の MIEZE 条件は以下ようになる。

$$\left(\omega_1 \mp 2\frac{|\mu B_g|}{\hbar} \right) L_{12} = (\omega_2 - \omega_1) L_{2d} = \omega_m L_{2d} \quad (4.15)$$

ここで \mp はガイド磁場と RSF の静磁場がそれぞれ平行、反平行の場合に対応する。どちらの場合も検出される中性子の波数の差 $k_+^{(22)} - k_+^{(11)}$ は一定なので、運動(全)エネルギー差も一定であることから、検出される MIEZE シグナルの角周波数 ω_m は変わらない。

また飛行時間 (TOF) 法と組み合わせた MIEZE 分光器は TOF-MIEZE 分光器と呼ばれている。TOF-MIEZE 分光器では中性子強度の速度分布に対応する TOF スペクトルと $k_+^{(22)}$ と $k_+^{(11)}$ の波数差 (全エネルギー差) に起因する時間振動が同じ時間の関数であるため、観測されるスピンエコーシグナル (TOF-MIEZE シグナル) は TOF スペクトル上に時間で振動する MIEZE シグナルが掛けられたものになる。Short pulse 中性子源における TOF-MIEZE 分光器では、波長分解能が良いことから MIEZE 条件からの不整合に由来する MIEZE シグナルのコントラストへの影響は小さい [72]。これは式 (4.11) で測定される MIEZE シグナルに対して、パルス幅を Δt 、MIEZE 振動数 ($f_m = \frac{\omega_m}{2\pi}$) の変位である離調振動数 (Detuning frequency) を Δf_m とすると、

$$\Delta t \Delta f_m \ll 1 \quad (4.16)$$

が成り立つ場合有効である。また Δf_m から定量的に RSF や検出器位置の MIEZE 条件からの変位が推定できるという利点がある [41, 73]。

4.3 大強度陽子加速器施設 (J-PARC) と中性子共鳴スピンエコー分光器群 VIN ROSE

大強度陽子加速器施設 (Japan Proton Accelerator Research Complex; J-PARC) の実験施設の一つに物質・生命科学研究施設 MLF がある [74]。MLF は J-PARC の世界最高強度のミュオン及び中性子ビームを用いて物質と生命の科学研究を推進することを目的とした施設である。MLF の核破碎中性子源 (JSNS) ではエネルギー 3 GeV、周波数 25 Hz、平均電流 333 μ A (1 MW 運転時) の陽子ビームを水銀ターゲットに照射し、核破碎反応により中性子を生成する [75]。パルス中性子源なので TOF 法を利用した中性子の波長の測定が可能である。

JSNS の減速材は、低エネルギー中性子の断面積が小さいパラ水素が用いられている [76]。また、中性子強度やパルス幅などの様々なビームラインの要求に答えられるよう、結合型、非結合型、ポイズン型の三種類の減速材が設置されている [77]。

中性子共鳴スピンエコー分光器群 VIN ROSE は結合型減速材を見込んであるビームライン 6 番 (BL06) に設置されている。これはスピンエコー分光法で高エネルギー分解能を達成するには、長波長中性子強度が必要であるためである。VIN ROSE には MIEZE ラ

インと NRSE ラインの 2 種類のビームラインが設置されており [39]、MIEZE ラインは 2018 年から共同利用が開始されているが NRSE ラインは開発途上である。本研究ではこの NRSE ライン用いて実験を行った。

4.4 中性子回転楕円体集光ミラー

図 4.2、4.3 に開発された中性子回転楕円体集光ミラーの 3D モデルと断面図を示す [59]。回転楕円体集光ミラーに使用する基板の作成は理化学研究所で行われた。基板は構造材としても使用できるように、金属であるアルミ合金が使用されている。この基板には無電解ニッケルリンメッキが施されている。この無電解ニッケルリンメッキは非晶質であるため、研磨により超平滑化が可能である。この工夫により集光ミラー表面で、2 乗平均粗さが 0.2 nm 以下の平滑性を実現できる [78]。この小さい表面粗さはスーパーミラーの散漫散乱の低減につながり、集光ミラーの反射率向上に寄与する。

イオンスパッタリング装置で一度に成膜できる面積の制限から、全周型回転楕円集光ミラーは図 4.2(c) のように、複数のセグメントに分割できるように設計されている。三つのセグメント (各々 300 mm) を組み合わせることで図 4.3 (a) に示すように長さ 900 mm の回転楕円体集光ミラーが組み立てられる。また、図 4.3 (b) の x-y 平面に示す通り、各ミラーセグメントは回転楕円体の偏角 20° 分をカバーする。よって 1 周分は 18 個のセグメントで実現でき、 z 方向は三つのセグメントからなるので、 $3 \times \frac{360}{20} = 54$ セグメントで図 4.2(a) のような、長さ 900 mm の全周型回転楕円体集光ミラーが実現できる。

今回の回転楕円体集光ミラーでは NiC/Ti スーパーミラーを用い、その成膜は京都大学複合原子力科学研究所のイオンビームスパッタリング装置で行われた [79]。試料基板の取り付け可能サイズは直径 480 mm 程度なので、セグメントを分割して並べることで、三つのセグメントを同時に成膜することが可能である。

回転楕円体集光ミラーを用いた弾性散乱体からの TOF-MIEZE シグナル測定を行うため、まず製作された回転楕円体集光ミラーの特性を評価するための実験を行なった。その結果、(1) 回転楕円体集光ミラーからの集光ビームはその回転楕円体パラメータから予想される軌道で集光すること (2) 回転楕円体集光ミラーの有無による集光位置での 2 次元強度分布から、入射及び散乱中性子の高輝度化が可能であること (3) 反射率測定結果から、JSNS からの幅広い波長領域を持つ中性子に対応した回転楕円体集光ミラーが実現できていることを実験的に確認した。詳細は冗長を避けるため付録 B に示す。

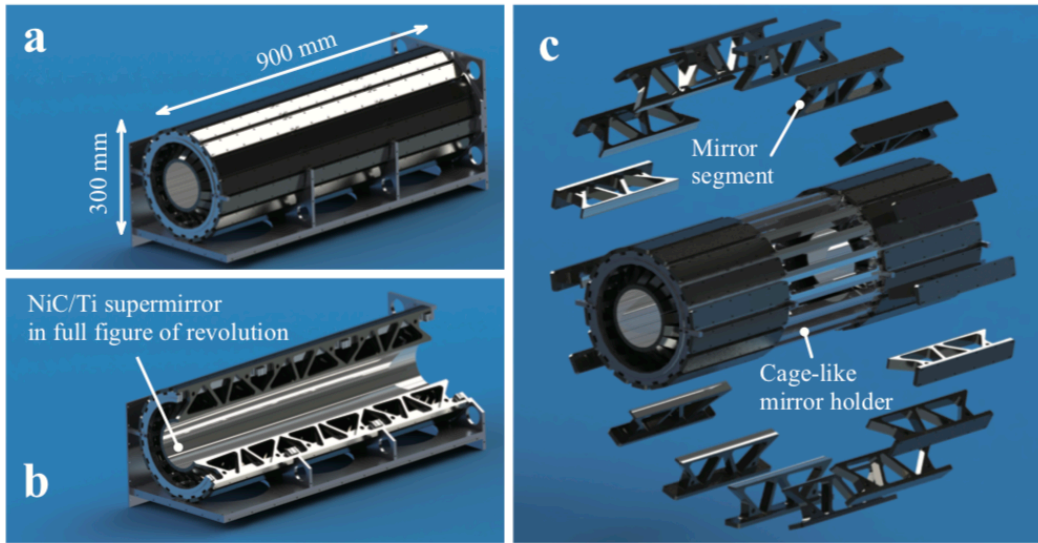


図 4.2 全周型回転楕円体集光ミラーの 3D モデル。(a) 外観図、(b) 部分断面図、(c) 分解斜視図 [59]。

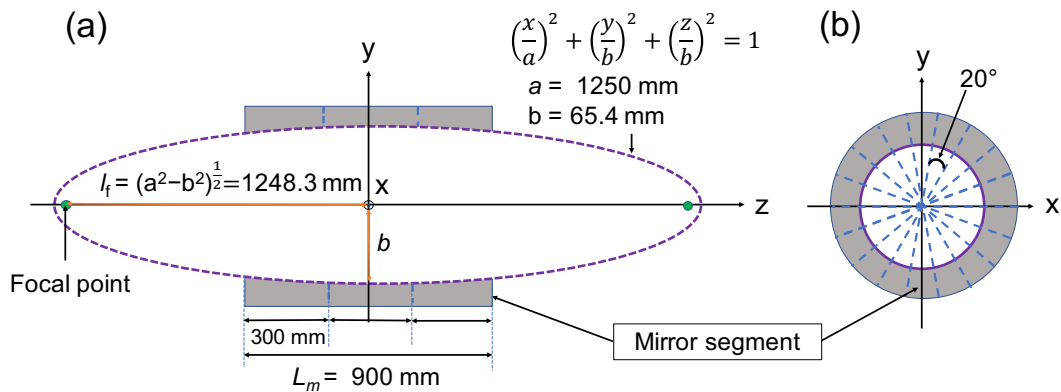


図 4.3 全周型回転楕円体集光ミラーの断面図。(a) z-y 平面、(b) x-y 平面。

4.5 回転楕円体集光ミラーを用いた弾性散乱体からの TOF-MIEZE シグナル測定

実験は J-PARC MLF BL06 の NRSE ビームラインで行なった。実験のために構築した集光 TOF-MIEZE 分光器の概略図を図 4.4 に示す。図 4.4(a) と (b) に、ガイド管出口から検出器までの実験装置の側面図と上面図を示す。また実験体系の写真を図 4.5 に示

す。減速材から検出器までの総飛行距離は 29.3 m で、試料の前後に一つずつ回転楕円体集光ミラーを配置した。この回転楕円体集光ミラーはそれぞれ 3 セグメントを組み合わせることで、長さ 900 mm、偏角 20°分をカバーする。使用した回転楕円体集光ミラーのスーパーミラーコーティングの m 値は 5 であった。 m 値はスーパーミラーの全反射に対応する Q 値が、自然同位体存在比のニッケル表面の全反射に対応する Q 値の何倍かを示す値である [80]。微小試料に対応した分光器の実現可能性を示すため、回転楕円体集光ミラーの焦点位置に試料を設置した。ピンホールスリット 1、試料、検出器を回転楕円体集光ミラーの幾何形状から決まる焦点位置に設置した。ガイドミラーは NiC/Ti のスーパーミラーであり、RSF1 以降の中性子強度の減衰を防ぐ目的で設置されている。ピンホールスリットは厚さ 1 mm の Cd でできている。ピンホールスリット 1 の直径は 5 mm であり、3 章における DF 法を用いた集光 NRSE 分光器のピンホールサイズ (半径: 1.5 mm) より大きい。これは実験で利用できた回転楕円体集光ミラーのセグメント数に制限があり利用できる発散ビームが限られていたため、散乱実験に必要な中性子強度を稼ぐためにピンホールサイズを大きくした。回転楕円体集光ミラーで反射されないビームを遮蔽するため、B4C 入りのシリコンゴム製のビームストッパーをそれぞれの集光ミラー中心に設置した。図 4.4(a) に示すように、ピンホールを通過した中性子は平面ミラーで反射され、集光ミラー 1 に入射する。平面ミラーは NiC/Ti のスーパーミラーであり、集光ミラーにビームを入射させるために設置した。ピンホールスリット 1 から試料までの距離と、試料から検出器までの距離 Lsd は、回転楕円体の幾何形状から 2.5 m である。RSF2 と試料の間にアナライザーを設置する必要があるため、RSF2-検出器間距離 $L2d$ は、RSF1-RSF2 間距離 $L12$ よりも長くなった。RSF1-RSF2 間にはガイド磁場が y 負方向にかけられており、その大きさ B_g は測定位置にも依存するが約 0.4 mT であった。

ビーム方向に沿った中性子の波数の変化を図 4.4(c) に示す。2 つの RSF は図 4.1 と同様に $\pi/2$ フリッパーとして動作させたので、基本的なスピン状態の遷移や波数の変化は 4.1(c) と同様である。しかし図 4.4(c) では共鳴スピンフリッパー (RSF) の静磁場の方向を基準とし、spin-up と spin-down 状態を \uparrow と \downarrow の記号で示している。実験では RSF の静磁場コイルからの漏れ磁場とガイド磁場 B_g との干渉によって生じるゼロ磁場領域を無くすため、静磁場の向き (y 正方向) とガイド磁場の向き (y 負方向) は反平行にした。そのため入射中性子のスピン状態が図 4.1 とは逆で示されている。

実験で使用した RSF の静磁場コイル (空芯コイル) の最大磁束密度は 7.3 mT であった。そのため、RSF の最大周波数は 220 kHz という制限があった。この制限の中で、より高い MIEZE 周波数 ($\frac{\omega_m}{2\pi}$) を実現するために、距離 $L12$ をできるだけ長くする必要があった。そのために、RSF1 をガイドミラーの前に配置することで $L12$ を $L2d(3.1 \text{ m})$ と

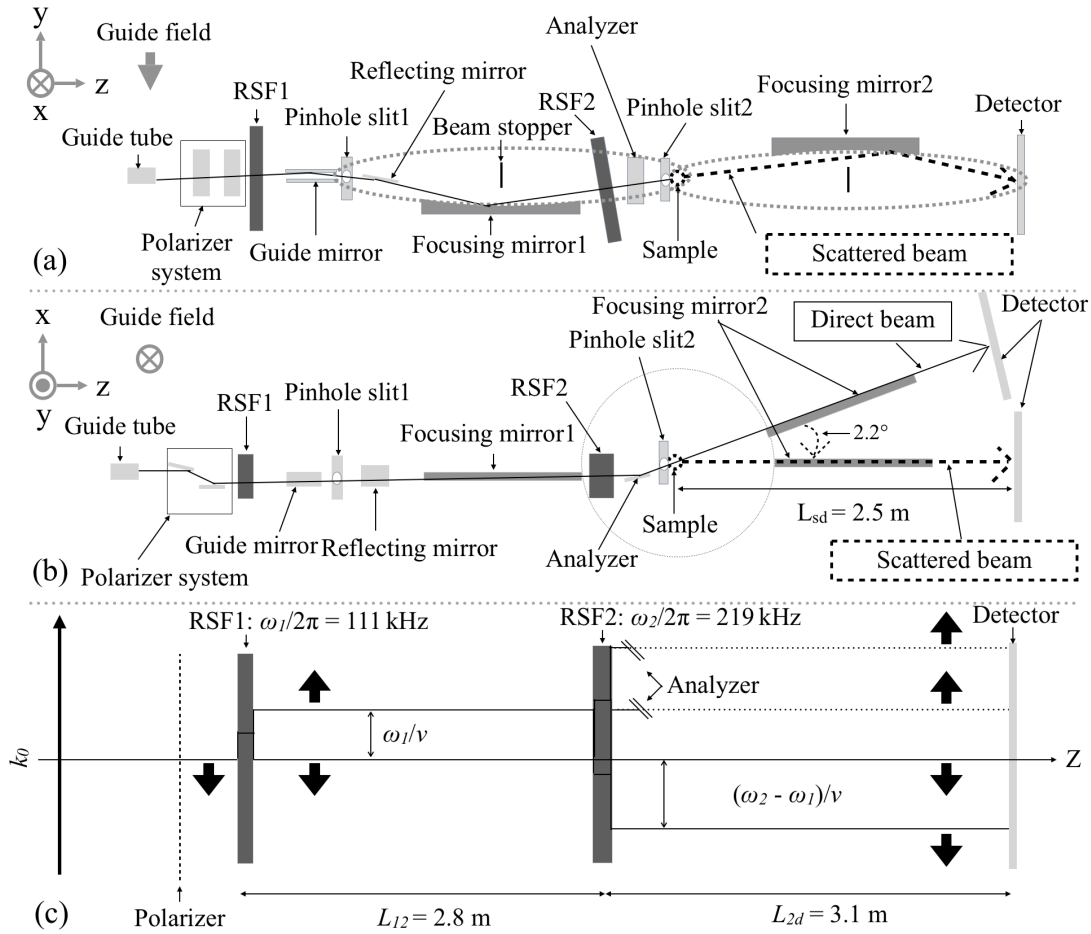
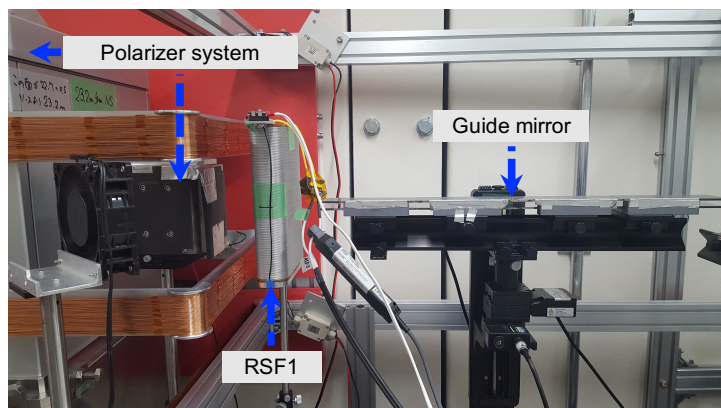


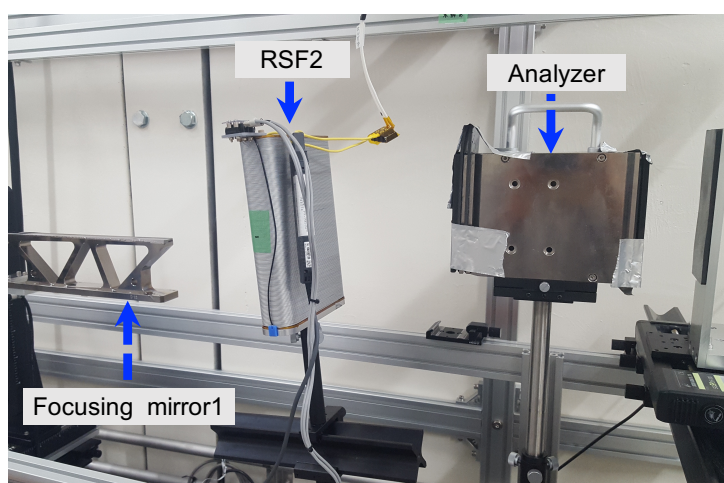
図 4.4 回転楕円体集光ミラーを用いた TOF-MIEZE 分光器の概略図と波数変化を示す図。(a) は側面図、(b) は上面図、(c) は中性子経路に沿った波数変化。(c) の↑と↓の記号は、共鳴スピントリッパ (RSF) の静磁場の方向を基準とした、spin-up と spin-down 状態を示す。ガイド磁場と静磁場方向は反平行であるので、RSF1 に入射する中性子の spin 状態が図 4.1 とは逆向きで表示されている。

近い 2.8 m にすることができた。回転楕円体集光ミラーの焦点間距離と RSF を設置できるスペース、RSF の静磁場コイルの最大磁束密度の制限により、RSF1($\frac{\omega_1}{2\pi}$) と RSF2($\frac{\omega_2}{2\pi}$) の駆動周波数をそれぞれ 111 kHz と 219 kHz に設定した。spin-down 状態の中性子の全エネルギー差が $\hbar(\omega_2 - \omega_1)$ なので MIEZE 周波数 $\frac{\omega_m}{2\pi}$ は、 $\frac{\omega_2 - \omega_1}{2\pi} = 108$ kHz での測定を行なった。またパルス中性子源からの幅広い波長に対応して RSF を駆動させるため、RSF の振動磁場コイルの振動電流の振幅を中性子の飛行時間に反比例するように変化させた [81]。

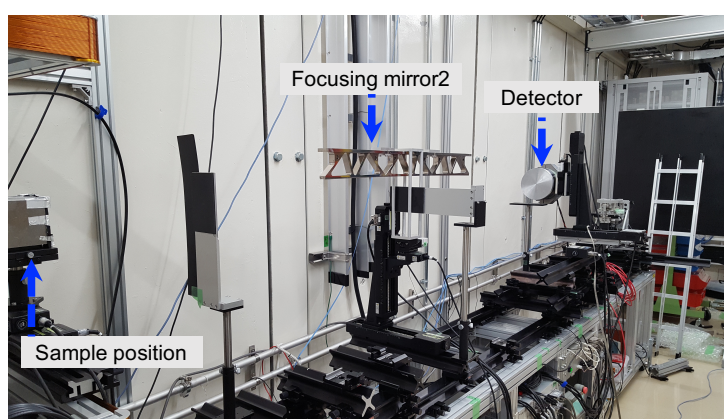
ガイド磁場の大きさ B_g の実測値は約 0.4 mT であったが、式 (4.15) に実験体系の $\frac{\omega_1}{2\pi}$ 、



(a) ポラライザー、RSF1、ガイドミラー。



(b) 集光ミラー 1、RSF2、アナライザー。



(c) 試料位置、集光ミラー 2、検出器。

図 4.5 実験体系の写真。(a) ポラライザー、RSF1、ガイドミラー。(b) 集光ミラー 1、RSF2、アナライザー。(c) 試料位置、集光ミラー 2、検出器。

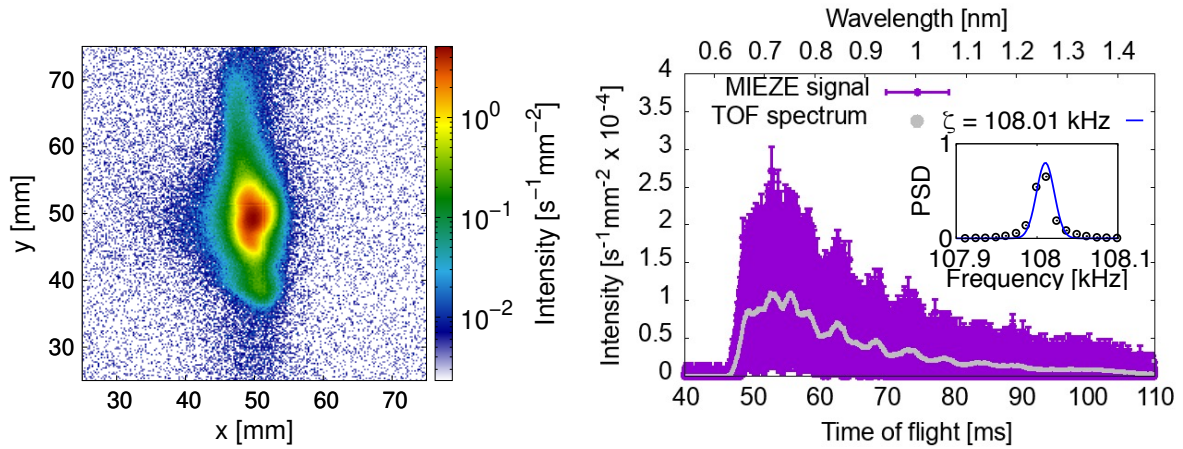
$\frac{\omega_2}{2\pi}$ 、 $L12$ 、 $L2d$ を与え、実効的な B_g を評価すると 1.84 mT となった。共鳴条件を満たす RSF1、RSF2 のそれぞれの静磁場の磁束密度は 3.7、7.2 mT であり、この静磁場コイルは漏れ磁場を閉じ込めるための磁気回路が組まれておらず、その漏れ磁場によって実効的なガイド磁場の値がずれている。このことは、RSF や検出器位置だけではなく、ガイド磁場等の中性子スピン状態間の位相差に影響するものを含めて MIEZE 条件が最適化されていること、つまり TOF-MIEZE 分光法において MIEZE シグナルの実効振動数の変位から定量的に MIEZE 条件が最適化できることを示している。

さらに、ビームサイズによる RSF 間の経路分散を小さくするため、図 4.4(a)、4.5(b) に示すように、RSF2 を x 軸方向に約 3° 傾けた。このように傾けることで経路長の分散が小さくなり、MIEZE シグナルのコントラストを高く保つことができた。この傾きは集光ミラーの半長軸 (1250 mm)、半短軸 (65.4 mm) の値から計算できる集光ミラー中心を通るビームの打ち上がり角度や、付録 B で実験的に示した集光ビームの打ち上がり角度 2.85° を踏まえ、ビームをできるだけ垂直に受け入れ経路分散を小さくするための角度として妥当である。この RSF を傾けることによる MIEZE シグナルのコントラストへの影響は、類似の集光 MIEZE 体系における MC 計算を用いた先行研究でも報告されている [58]。

試料は弾性散乱体である多結晶ダイヤモンドナノパウダー (DNP)(Microdiamant AG 製) を用いた。DNP を直径 20 mm、厚さ 2 mm の薄い円筒形の石英セルに封入し、図 4.4(a)、(b)、図 4.5(c) に示される試料位置に設置した。試料位置直前には直径 10 mm のピンホールスリット 2 を配置して、試料の照射領域を直径 10 mm 以内に制限した。図 4.4(b) に示すように、DNP 測定時には集光ミラー 2 と検出器を 2.2° 回転させることで DNP からの小角散乱を測定した。

4.6 結果・考察

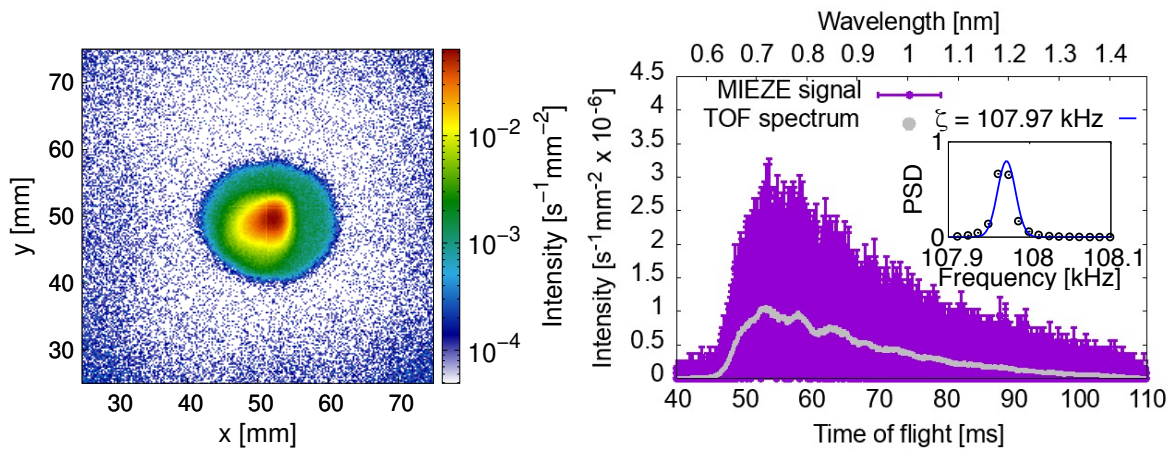
図 4.6、4.7 に測定されたダイレクトビームと散乱ビームの 2 次元中性子強度分布と TOF-MIEZE シグナルを示す。図 4.6(a)、4.7(a) からダイレクトビームと散乱ビームの両ビームにおいて、検出器位置 (集光位置) で約直径 5 mm の円に集光できていることがわかる。図 4.6(a) では、集光ミラー 2 からの散漫散乱の影響が $25 \leq y \leq 75$ mm の縦に長い範囲で確認できる (青色と緑色)。図 4.7(a) の試料測定では直径約 20 mm の検出領域を除いて、 B_4C 遮蔽材で検出器を覆った。そのためバックグラウンドの強度が円形 (緑色) で示されている。このように回転楕円体集光ミラーを用いることで、散乱ビームの集光にも成功した。



(a) ダイレクトビームの2次元強度分布。

(b) ダイレクトビームの TOF スペクトル。

図 4.6 ダイレクトビームの集光 TOF-MIEZE シグナル。(a) 2次元強度分布。(b) TOF-MIEZE スペクトル。(b) の挿入図は、TOF-MIEZE シグナルをフーリエ変換したパワースペクトル密度 (PSD)。PSD をガウス関数でフィッティングして得られた頂点 ζ の周波数も示す。



(a) DNP からの散乱ビームの2次元強度分布。

(b) DNP からの散乱ビームの TOF スペクトル。

図 4.7 ダイヤモンドナノパウダー (DNP) からの集光 TOF-MIEZE シグナル。(a) 2次元強度分布。(b) TOF-MIEZE スペクトル。(b) の挿入図は、TOF-MIEZE シグナルをフーリエ変換したパワースペクトル密度 (PSD)。PSD をガウス関数でフィッティングして得られた頂点 ζ の周波数も示す。

観測された TOF-MIEZE シグナルを図 4.6(b) および 4.7(b) に示す。これらのスペクトルは図 4.6(a) と図 4.7(a) の $47.25 \leq x \leq 52.75$ mm、 $47.25 \leq y \leq 52.75$ mm の領域で検出された中性子強度を用いている。両 TOF スペクトルで 0.65–1.45 nm の幅広い波長

の中性子が観測された。また観測された中性子強度から、DNP からの散乱中性子強度はダイレクトビーム強度よりも約 2 桁低いことがわかる。

図 4.6(b)、4.7(b) 中の挿入図はそれぞれの TOF-MIEZE シグナルをフーリエ変換したパワースペクトル密度 (PSD) である。ダイレクトビームと DNP からの散乱ビームの MIEZE 周波数はそれぞれ 108.01、107.97 kHz であった。これらは、RSF1($\frac{\omega_1}{2\pi} = 111$ kHz) および RSF2($\frac{\omega_2}{2\pi} = 219$ kHz) の駆動周波数から予想される実効周波数 $\frac{\omega_m}{2\pi} = 108$ kHz とほぼ一致する。これにより MIEZE 条件がほぼ満たされていることがわかる。しかしダイレクトビームと散乱ビームそれぞれにおいて離調振動数 (Δf_m) 0.01、-0.03 kHz が観測された。JSNS からの波長 1 nm を持つ中性子のパルス幅を 200 μ s と仮定すると [40]、式 (4.16) の左辺はそれぞれのビームにおいて、 2×10^{-3} 、 6×10^{-3} であり、式 (4.16) を満たす。よって MIEZE 条件を完全に満たしていないことによるコントラストの減少は無視できる。このように離調振動数が生じた原因は、集光ミラー 2 と検出器をそれぞれ独立に移動させたことに起因する設置誤差である。この設置誤差はダイレクトビームと DNP 測定時の MIEZE 周波数差 0.04 kHz から評価でき、検出器位置が DNP 測定時に $29.3 \times \frac{0.04}{108} = 0.011$ m 下流に移動していたとわかる [72]。

本実験体系でカバーされるフーリエタイム τ は観測された中性子の波長 λ : 0.65–1.45 nm、TOF-MIEZE シグナルの実効角周波数 $\frac{\omega_m}{2\pi}$: 108 kHz、試料–検出器間距離 L_{sd} : 2.5 m を式 (4.14) に代入すると 0.48–5.3 ns と計算できる。

統計的に十分な中性子強度を用いて MIEZE シグナルのコントラストを得るために、複数の TOF データを足し合わせることで MIEZE シグナルの正弦曲線を再構成した。MIEZE シグナルの周波数は 108 kHz なので、正弦曲線の一周期は 9.25×10^{-3} ms である。TOF データの単位ビン幅を 0.84×10^{-3} ms に設定すると、11 個の TOF データ点を用いて一つの正弦曲線を再構成することができる。図 4.8(a) は、ダイレクトビームと散乱ビームの両ビームにおいて、再構成された MIEZE シグナルの例である。TOF が 74.5–75.5 ms の範囲に対応する 101 個の正弦曲線を足し合わせることで、平均的な MIEZE シグナルを再構成した。再構成したダイレクトビームと散乱ビームをそれぞれ正弦曲線でフィッティングした結果も図 4.8(a) に示す。フィッティングにより求めた、MIEZE シグナルのコントラストはそれぞれ 0.63 ± 0.013 、 0.60 ± 0.014 であった。コントラストの誤差は、正弦曲線でフィッティングしたときの振幅とベースラインの値の誤差を用いて算出した。式 (4.11) よりコントラストは理想的には 1 になるはずであるが、以下の二つの理由によりコントラストが 1 より低いと考える。一つは実験で使用した中性子デバイスが理想的でないことである。もう一つは RSF1–RSF2、RSF2–検出器間における経路長分散と RSF1–RSF2 間におけるガイド磁場による磁場積分の分散に起因するス

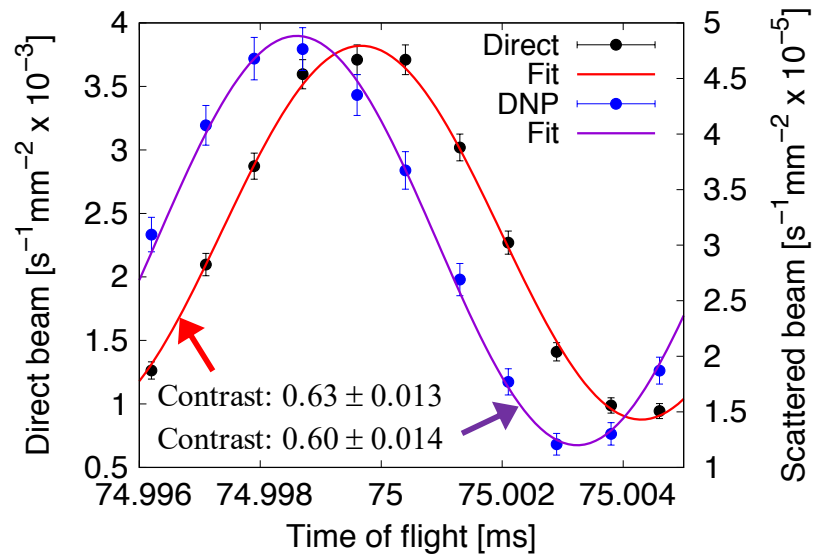
ピン状態間の位相差に分散があることである。しかしこのコントラストは理想的な1よりは低い、非弾性散乱によるコントラストの減少を測定するには十分高い。またダイレクトビームと散乱ビームの結果を比較すると、 0.71 ± 0.03 rad の位相差がある。これは先に述べた設置誤差の影響であるが、この位相差は設置誤差 11 mm で生じる位相差と比較し十分小さいため、この位相差が直接設置誤差に対応するわけではない。

TOF が 50–107.5 ms の範囲で 2.5 ms ステップごとに上述の操作を繰り返すことで、幅広い波長領域において MIEZE シグナルのコントラストが得られる。図 4.8(b) にダイレクトビームと散乱ビームの TOF に対する MIEZE シグナルコントラストの結果を示す。TOF に対応する中性子波長は上部横軸に示す。各コントラスト (縦軸) のエラーバーはフィッティング誤差から得られた値であり、TOF (横軸) のエラーバーは MIEZE シグナルを再構成するために足し合わせた TOF 領域である。全体的に DNP からの散乱ビームのコントラストは、ダイレクトビームのコントラストよりもわずかに低い。これは DNP からの散乱中性子強度がダイレクトビームのそれよりも約 2 桁低い、集光ビーム強度に対するバックグラウンド強度の比がダイレクトビームの場合と比較して高くないことが原因だと考える。実際、図 4.6(b) および図 4.7(b) の MIEZE シグナルを描くために使用した図 4.6(a)、4.7(a) の関心領域によって、MIEZE シグナルのコントラストに影響を与えることを確認した。これを踏まえると、DNP からの TOF-MIEZE シグナルのコントラストは、ダイレクトビームのコントラストと誤差の範囲で一致しており、TOF が 50–107.5 ms の領域で約 0.6 であった。よって本実験結果は弾性散乱の TOF-MIEZE シグナルの観測に成功したことを示している。

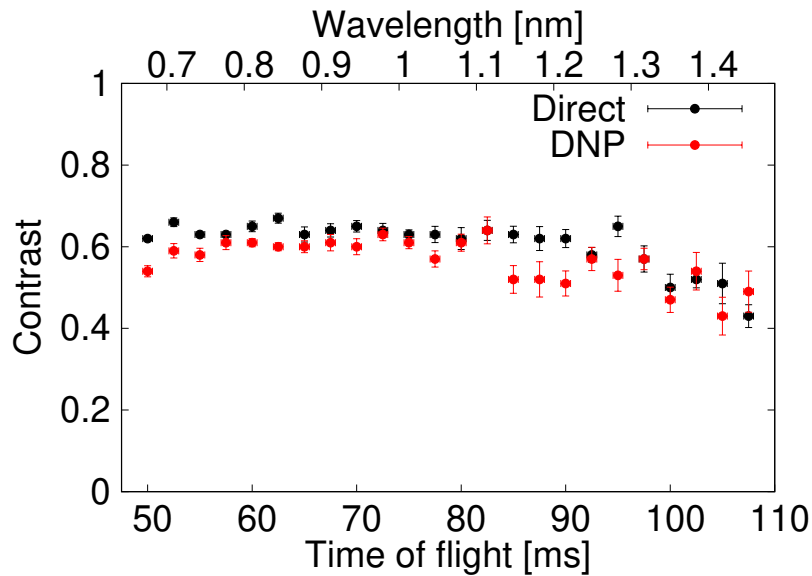
また TOF が 90 ms より長い領域では、長波長になるほどコントラストが低下する傾向が見られた。長波長でコントラストが減少する原因は二つ考えられる。一つは式 (4.3) からわかるように速度が遅い長波長中性子ほど 2 状態間で波数差が大きくなるので、経路分散に起因する 2 状態間の位相差の分散がより大きくなるからである。もう一つは長波長中性子の方が短波長と比較し、JSNS の減速材内で減速に時間がかかるため波長分解能が悪いからである [82]。

4.7 結言

パルス中性子源における集光 NRSE 分光器の実現性を実験的に検証するため、NRSE 分光器の一種である TOF-MIEZE 分光器を構築し、弾性散乱体からの集光 TOF-MIEZE シグナルを測定した。実験は回転楕円体集光ミラーをダイヤモンドナノパウダー (DNP) 試料の前後に配置し、試料を集光位置に設置することで、微小試料の測定が可能な実験体



(a)



(b)

図 4.8 ダイレクトビームとダイヤモンドナノパウダー (DNP) からの散乱ビームの集光 TOF-MIEZE シグナルの比較。(a) 101 周期を周期的に足し合わせて再構成した MIEZE シグナルと、正弦波関数によるフィッティング結果。TOF が 75 ms 付近の結果を示す。左右の縦軸はそれぞれダイレクトビームと DNP からの散乱ビームの強度に対応する。(b) TOF が 50–107.5 ms の範囲で得られた TOF-MIEZE シグナルのコントラスト。対応する中性子の波長は上部横軸に示す。各コントラスト (縦軸) のエラーバーは、正弦波関数によるフィッティング結果のパラメータ誤差から得られた値である。TOF (横軸) のエラーバーは、MIEZE シグナルを再構成するために足し合わせた TOF 領域を表している。

系で実施した。観測された中性子の波長帯：0.65–1.45 nm、TOF-MIEZE シグナルの実効周波数：108 kHz、試料–検出器間距離：2.5 m を考慮すると測定したフーリエタイムは 0.48–5.3 ns であった。DNP により散乱した中性子を集光した TOF-MIEZE シグナルのコントラストは、ダイレクトビームのコントラストと誤差の範囲で一致した。これは試料からの散乱中性子を集光ミラーで集光し、スピンエコーシグナルの観測に成功した初めての実験結果である。本実験は弾性散乱体で散乱された集光ビームにおいて、中性子の速度変化に起因しないスピン状態間の位相差の分散を無くしたことを示しており、回転楕円体集光ミラーを用いた位相補正法を実証し、集光 NRSE 分光器による非弾性散乱測定が可能であることを示した重要な実験である。

本実験で達成されたエネルギー分解能は、3 章で提案した 2 回集光 (DF) 法で目指すエネルギー分解能と比較し低く、高エネルギー分解能集光 NRSE 分光器の実現には集光ミラーの増強や高周波 RSF 開発等、未だ課題があることは否めない。しかし本実験と 3 章で提案した DF 法により、パルス中性子源における高エネルギー分解能の集光 NRSE 分光器の実現可能性が示された。

第5章

小型中性子源のためのリング状スリットを用いた SANS 実験体系の開発

5.1 序言

中性子小角散乱 (SANS) 法は比較的散乱角の小さい散乱中性子を検出することで、1–100 nm の比較的大きな静的構造を測定する方法である [83]。SANS 法は中性子の高い透過力や磁気モーメント、同位体ごとに異なる散乱断面積を利用して、X 線小角散乱 (SAXS) 法では測定が難しい静的構造を測定できるため近年そのニーズは増加している。例えば、前節までで説明した中性子スピネコー (NSE) 分光法で測定されるスローダイナミクスを持つ静的構造は一般にナノメートル以上の大きさを持ち、中性子は小さい運動量遷移 Q を伴って散乱される。また高エネルギー分解能測定を行うためには長波長中性子の散乱強度を必要とすることから、NSE 分光法は頻繁に SANS 法と組み合わせて用いられる [84–86]。そのため、NSE 分光器による動的構造測定以前に SANS 実験において静的構造の事前測定を行うことが一般的である。

その他にもさまざまな需要がある SANS 法であるが、十分な中性子強度をもつ中性子源の数が限られているためその利用が制限されている。より簡便に利用できる小型中性子源における SANS 実験の可能性を示すことは、SANS 実験機会の増加につながる。また SANS 測定は産業利用への展開も期待されており、より小型の中性子源において SANS 実験の可能性を示すことができればそのインパクトは大きい。

SANS 実験のほとんどは大型中性子源で行われているが、近年加速器を用いた小型中性

子源においても SANS 実験結果が数例報告されている。表 5.1 に、SANS 実験結果を報告した主な小型中性子源施設と本研究で使用した京都大学加速器駆動中性子源 (KUANS) の仕様を示す。例えば、Das 等は Low Energy Neutron Source (LENS) において高濃度ミセルを用いた SANS 実験結果を報告した [87]。Furusaka 等は北海道大学中性子源 (HUNS) において合金の小・中角散乱実験を行い、また mini-focusing SANS 法の開発を行った [88–90]。Koizumi 等は理化学研究所加速器駆動中性子源 (RANS) において、多層グリッドマルチピンホールによる集光ビームを利用したマルチピンホール SANS 法を開発し、グラッシーカーボンプレートの SANS 実験結果を報告した [13]。表 5.1 に示すように、KUANS の中性子生成率は他の小型中性子源に比べて一桁以上低い。しかし KUANS は実験スペースを含め、約 $5 \times 5 \text{ m}^2$ におさまり、他の小型中性子源施設と比較してもさらにコンパクトであり、研究室に設置できる規模である。このような中性子源で SANS 測定の実現可能性を示すことは、SANS 実験の機会増加に繋がる。

	LENS [91]	HUNS [90]	RANS [92]	KUANS [93]
Accelerator	Proton RFQ + 2 linacs	Electron linac	Proton RFQ + linac	Proton RFQ
Nuclear reaction	Be (p, n)	(e, X), (X, n)	Be (p, n)	Be (p, n)
Beam energy [MeV]	13	35	7	3.5
Beam power [kW]	4	1	0.7	0.35
Pulse width [μs]	10–600	0.01–3	8–200	30–200
Frequency [Hz]	10–40	50 or 100	20–200	20–200
Production rate [s^{-1}]	$\sim 1 \times 10^{13}$	1.6×10^{12}	$\sim 1 \times 10^{12}$	$\sim 1 \times 10^{11}$

表 5.1 小角散乱実験が行われた小型中性子源施設と KUANS の比較 [12]。

ビーム強度不足に対応するための実験体系の工夫は、小型の SAXS 装置の開発初期段階においても行われた [94]。その一つであるスリットコリメーションを用いた SAXS 実験体系は、X 線強度不足を補うための方法として当時一般的であった [95]。スリットコリメーション体系ではスリット状に X 線をコリメートし試料に入射する。スリットの長手方向の角度発散を許容するので入射 X 線強度を増大できる。そして名目散乱角をスリット長手方向と垂直な方向に取ることにより、小さい Q の測定を可能にしている。

スリットコリメーションを参考に、中性子強度の弱い小型中性子源において SANS 実験を行うためのリング状スリットを用いた新しい SANS(r-SANS) 体系を開発した。r-SANS 体系の概念図を図 5.1 に示す。この体系は、リング状にコリメートしたビームを大きな試料に入射させることで散乱中性子強度を増大させる。そしてスリットコリメー

ション体系と同様に、名目散乱角を取る方向と垂直な方向への入射ビームの発散を許容し、散乱ビームの重ね合わせを検出器で測定する。ここで中性子ビームは試料により円錐状(赤の破線)に散乱すると仮定する。この場合、名目散乱角ごとの散乱中性子がリング中心軸の各点に重なるため、散乱中性子束はリング中心軸上に自然に集光する。そのためスリットコリメーション体系以上に検出器位置で単位面積あたりの散乱中性子強度を高めることができ、高 S/N 比の実験が可能になる。このリング中心軸上に点検出器を配置すると、幾何学的に決められた名目散乱角 2θ で集光する散乱中性子を測定できる。そしてパルス中性子源で利用可能な飛行時間 (TOF) 法を用いることで、 θ を変化させなくとも入射中性子の波長分布に対応した Q 領域を測定することができる。

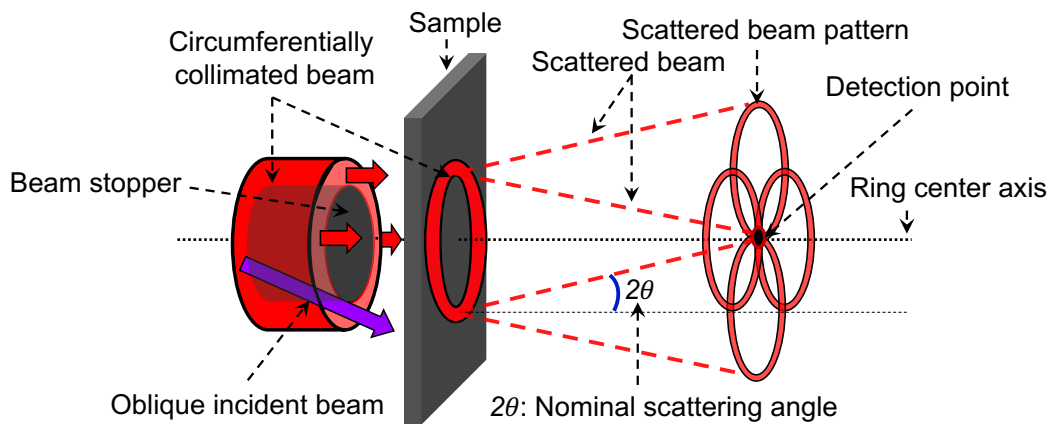


図 5.1 r-SANS 体系の概念図。紫矢印は射入射中性子ビームを示す。

r-SANS 体系は大きな試料を使用することで、高い散乱強度を得ることができること以外にいくつかの利点がある。(1) r-SANS 体系では、中性子の検出効率が高い ^3He 点検出器を使用することができる。(2) 検出器の検出面積が小さいため、検出器の周囲を遮蔽することで、環境ノイズを低く抑えることができる。(3) r-SANS 体系は、一般的な中性子検出器や光学機器に比べて比較的安価な ^3He 点検出器と中性子遮蔽材で作られたリング状スリットで実現できる。そのため他の小型中性子源にも比較的安価で導入することができる。小型中性子源では光学機器の交換が比較的容易であることから、r-SANS 体系は、一般的な SANS 体系では測定できない散乱強度の弱い試料を測定する際の選択肢としても利用できる。

しかし r-SANS 体系にはいくつかの課題がある。(1) 中性子ビームは試料のリング状の領域に入射するため、試料の面積はリング状領域全体を覆う必要があり、試料サイズとしては大きくなる。ただしリング状スリットと同じ形状のサンプルホルダーを使用する

ことで、必要な試料の量を抑えることができる。(2) 散乱角の分解能が低い。名目散乱角はリングの大きさ、検出器の検出面積、試料-検出器間距離で幾何的に決められる。しかし図 5.1 の紫矢印のように、リングの中心軸に平行ではないが、リング状にコリメートされた斜入射ビームがある。この斜入射中性子は散乱角の分解能を低下させ、スメアリング効果を引き起こす。ここでスメアリング効果とは実験体系による散乱角や波長分解能によって散乱強度分布 ($I(Q)$) がぼやける、もしくは非対称に歪む効果のことを指す。しかし、r-SANS 体系ではこの斜入射中性子も利用することで高い入射中性子強度が見込める。(3) 斜入射中性子ビームの影響によりスメアリングが生じるため、実験データを解析する際、スメアリング効果を考慮する必要がある。r-SANS 体系におけるスメアリング効果は、リング状にコリメートされたビームの半径や幅、検出器の検出領域、試料と検出器の距離など、r-SANS 体系の幾何学的な条件に依存する。そのため Monte Carlo(MC) シミュレーションにおいて理想的な試料を仮定して計算することで、スメアリング効果を含んだ試料の散乱強度を計算できる。このシミュレーション結果と実験結果を直接比較することで、試料の散乱モデルパラメータを推定することができる。(4) r-SANS 体系では、散乱中性子を測定できる立体角が一般的な SANS 装置に比べて小さい。このため 1 回の測定で測定可能な Q 領域は小さい。しかし、検出器をリング中心軸に沿って移動させることで、測定可能な Q 領域の拡大が可能である。

本研究では、r-SANS 体系の特性と実現性を数値的および実験的に評価する。まず、単純な r-SANS 体系における MC シミュレーションにより、斜入射ビームによるスメアリング効果を評価する。r-SANS 体系の実現可能性を示すために、小型のパルス中性子源である KUANS において同様の r-SANS 体系を構築し、2 種類の多孔質シリカゲル (HC-N と C-500HG) の SANS 測定を行う。また同じ試料を典型的なピンホール体系で SAXS 測定を行う。そして r-SANS 実験結果と SAXS 実験結果を仮想試料の散乱強度分布として設定した MC シミュレーション結果を比較する。さらに r-SANS 実験結果と Debye-Bueche(DB) モデルを用いた MC シミュレーション結果を組み合わせることで、r-SANS 実験結果から HC-N 試料の相関長を推定する。これにより r-SANS 体系の実現可能性並びに研究室規模の小型中性子源における SANS 実験の可能性を実験的に示す。

5.2 単純な r-SANS 体系の数値計算による評価

単純な r-SANS 体系での斜入射中性子によるスメアリング効果を Monte Carlo(MC) シミュレーションツールである McStas を用いて評価した [60,61]。計算に使用した r-SANS 体系の模式図を図 5.2 に示す。示されているパラメータの値を表 5.2 に示す。このパラ

メータの多くの値は KUANS で実際に構築した実験体系に基づいている。このシミュレーション体系と実際の実験体系との違いは 5.3.2 節で述べる。r-SANS 体系は、減速材、三つのリング状スリット (Slit1、Slit2、Slit3)、試料、検出器 (実験では ^3He 点検出器) で構成される。シミュレーションでは、Slit1、Slit2、Slit3 の半径をそれぞれ 42 mm とした。図 5.2 中では、各スリットの半径を緑色の矢印で示しており、これはリング中心からリング幅の中央までの距離を示している。リング幅は、 $Rw1$ 、 $Rw2$ 、 $Rw3$ で示す。減速材表面–Slit1、Slit1–Slit2、Slit2–Slit3、Slit3–試料、試料–検出器間距離は、それぞれ $Lm1$ 、 $L12$ 、 $L23$ 、 $L3s$ 、 Lsd で示す。減速材表面–検出器間距離を Lmd で示す。散乱した中性子が検出される遮蔽窓の半径は rd である。すべてのコンポーネントの中心はリングの中心軸上に配置されている。リング状にコリメートされたビームは三つのリング状スリットを用いて生成される。Slit2 は、Slit1 から Slit3 へリング状にコリメートされず斜めに通過する中性子を遮蔽するために配置している。

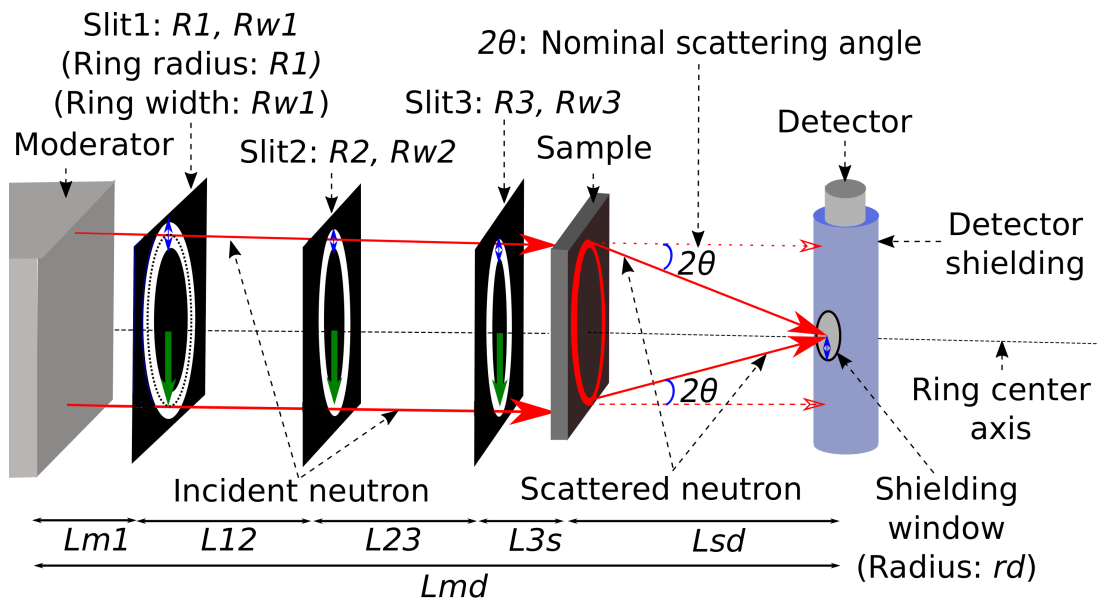


図 5.2 r-SANS 体系の模式図。

斜入中性子の影響を評価するために、Slit1 と Slit3 の間に、理想的な中性子吸収体でできた薄い板状の「fin」を設置する。例として 8 枚の fin を用いた r-SANS コリメーションの模式図を図 5.3 に示す。各 fin の一端はリングの中心軸上に沿って配置されており、各 fin の幅は 44 mm で三つのリングの外径よりも長い。fin 数を増やすと、隣り合う fin 間の角度が小さくなり、入射中性子ビームが中心軸に対してより平行になる。64 枚の fin を使用した場合、隣り合う fin 間の円弧の長さは 4.1 mm となり、リング幅 4 mm とほぼ同

Parameters	Values
$R1$ [mm]	42
$R2$ [mm]	42
$R3$ [mm]	42
$Rw1$ [mm]	4
$Rw2$ [mm]	4
$Rw3$ [mm]	4
$Lm1$ [mm]	45
$L12$ [mm]	965
$L23$ [mm]	940
$L3s$ [mm]	30
Lsd [mm]	840
Lmd [mm]	2820
rd [mm]	2
2θ [rad]	0.05

表 5.2 MC シミュレーションに使用した単純な r-SANS 体系のパラメータとその値。パラメータは図 5.2 と対応している。

じになる。この場合 r-SANS 体系は、半径 42 mm の円の円周上に 64 個のピンホールを並べた体系とほぼ同じになる。この fin を用いた r-SANS 体系では実際の散乱角が名目散乱角とほぼ同じであるため、斜入射ビームによるスミアリング効果の除去が期待できる。

5.2.1 中性子強度利得

fin 数の異なる r-SANS 体系での中性子強度利得を図 5.4 に示す。ここでの強度利得は、ある fin 数を用いた体系での試料位置での強度を、64 枚の fin を用いた体系での試料位置での強度で割ったものと定義する。64 枚の fin を用いた体系での強度は、 fin で区切られた 64 個のチャンネルを通過したすべての中性子強度の和である。MC シミュレーションのエラーバーは 1σ の統計誤差を示す。使用する fin 数が少ない場合、中性子強度が増加する。今回の計算体系では、 fin を用いない体系での斜入射中性子ビームによる強度利得は 12.4 であった。

計算結果の妥当性を確認するため、 fin を用いない体系の中性子強度利得を Slit3 から

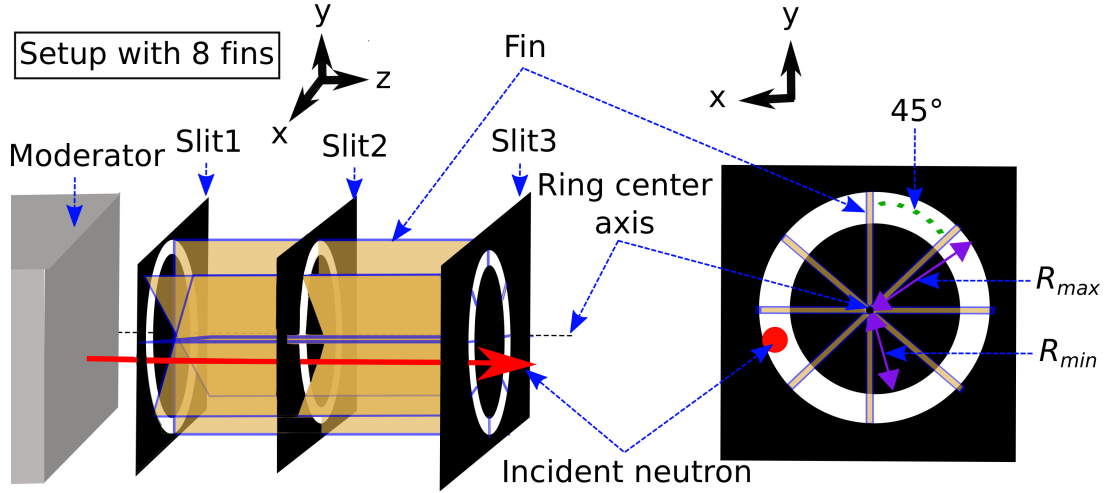


図 5.3 fin を用いた r-SANS コリメーションの模式図。fin は理想的な中性子吸収体でできた薄い板である。リング状スリットを 8 等分する 8 枚の fin を用いた体系を例として示す。

見込める減速材表面の面積から推定した。計算体系では、 $Lm1$ は $L12 + L23$ よりもはるかに短いため、Slit1 のリング状スリットの面積が利用できる減速材表面の面積に近似できる。64 枚の fin を使用した場合、隣り合う fin の間の面積は 16.5 mm^2 となり、これは Slit3 の半径 l とは関係なく、幾何学的に計算できる。一方 fin を使用しない場合、Slit3 から見込める Slit1 の面積は l に依存する。図 5.4 のように、 R_{max} と R_{min} をリング状の領域の外半径と内半径とする。スリットの幅 $R_{max} - R_{min}$ で平均化された、Slit3 から見込める、Slit1 上の面積を A_{S1} とすると A_{S1} は以下のように解析的に計算できる。

$$A_{S1} = R_{max}^2 \arccos\left(\frac{R_{min}}{R_{max}}\right) - R_{max}R_{min} \sin\left(\arccos\left(\frac{R_{min}}{R_{max}}\right)\right) + (R_{min} + R_{max}) \int_{R_{min}}^{R_{max}} \arccos\left(\frac{R_{min}}{l}\right) dl. \quad (5.1)$$

この式の導出は冗長を避けるため付録 C に示す。 R_{min} が 0 のとき、 A_{S1} は予想通り、半径 R_{max} の円の面積、 πR_{max}^2 になる。実際の R_{max} (44 mm) と R_{min} (40 mm) の値を代入すると、 A_{S1} は 196 mm^2 となる。したがって、Slit1 の表面積から解析的に計算される強度利得は $\frac{196}{16.5} = 11.9$ となる。この値は図 5.4 に青点でプロットされており、近似のない MC 計算による利得と十分一致する。わずかな違いは計算の際に行った近似に起因すると考える。このように解析的に計算された強度利得が、fin なしの体系で MC シミュレーションにより計算された強度利得に近いこと、MC シミュレーションによる計算結果は妥当であり、斜入射中性子ビームの利用により入射中性子強度が 12.4 倍増加すること

が確かめられた。

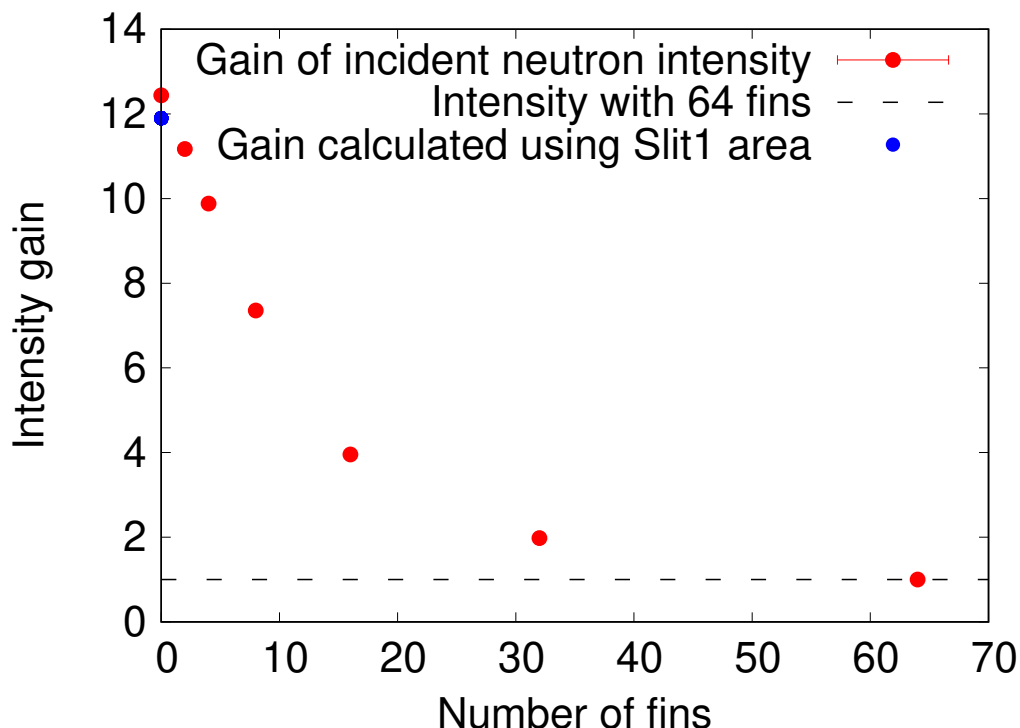


図 5.4 fin 数が異なる体系における試料位置での入射ビーム強度を、64 枚の fin を用いる体系での強度で規格化することで計算した中性子強度利得の結果。Slit3 から見込める Slit1 の面積を用いて解析的に計算した強度の利得を青点で示す。

5.2.2 スメアリング効果

r-SANS 体系の幾何学的な条件によるスメアリング効果を確認するために、中性子の運動量遷移 Q に対する試料の散乱強度分布 $I(Q)$ を McStas を用いて計算した。点検出器をリング中心軸に設置した場合、名目散乱角 2θ は表 5.2 に示す $R1$ 、 $R2$ 、 $R3$ 、 Lsd を用いて幾何学的に決定できる。また TOF 法により、中性子の波長 λ を求められる。散乱した中性子の Q は式 (1.2) で与えられることから、名目散乱角が幾何学的に固定されていても、TOF 法を用いることで波長分布に対応した Q 領域において散乱中性子を測定することができる。

r-SANS 体系のスメアリング効果を評価するための、仮想試料には小角散乱測定用の Q の校正によく用いられるベヘン酸銀を想定した 5.8 nm の格子面間隔を持つ粉末試料を用いた [96]。この場合、試料による散乱強度のピークは $Q = 1.08 \text{ nm}^{-1}$ に表れる。図 5.5 に、

いくつかの fin 数の条件で計算した粉末試料からの散乱強度分布 $I(Q)$ を示す。横軸は運動量遷移 Q で縦軸は Q に対応する散乱強度分布 $I(Q)$ である。散乱強度分布は、 fin なしの体系で計算されたピーク強度が 1 になるように規格化している。また、このシミュレーションでは、多重散乱および非干渉性散乱は考慮していない。

図 5.5 から fin 数が増加するとともにピークの積分強度は減少することがわかる。これは、 fin 数が増えることによってスリット中心軸に平行でない中性子が取り除かれ、入射中性子強度が減っていくためである。実際、それぞれの fin 数に応じた散乱強度分布を積分すると、図 5.4 の値とほぼ一致している。

fin を 64 枚用いた時の散乱強度分布は、期待される $Q = 1.08 \text{ nm}^{-1}$ にピークを持つ。これは、 fin によって入射中性子ビームの発散角が小さくなり、入射ビーム軌道が同軸に対して平行に近くなるためである。 fin 数が減少するとリングの中心軸に平行ではない斜入射中性子の数が増加する。そのため、名目散乱角よりも大きな散乱角を持つ中性子の割合が増加するので、測定された散乱中性子はピーク位置がより低い Q にシフトする。また、 Q 分解能 (ピーク強度の半値幅) も fin なしの場合約 20% だったのが $\text{fin}64$ 枚の場合で約 10% に改善する。しかしこれらは中性子強度とのトレードオフであり、斜入射中性子を利用することで Q 分解能が約 2 倍悪化し、非対称な smearing 効果を生じるが散乱中性子強度が 12.4 倍増加することを示している。

r-SANS 体系は小型中性子源の強度不足を補うための体系なので、smearing 効果を許容し斜入射中性子による中性子強度利得を最大限活用する需要が大きいと考える。そのため r-SANS 実験のデータ解析では、上記で示した r-SANS 体系の幾何学的な条件によるスメアリング効果を考慮する必要がある。これは MC シミュレーションにより考慮できる。まず MC シミュレーション体系として、実際の実験体系にできるだけ近い r-SANS 体系を構築する。散乱モデルから計算されるそれぞれ異なる散乱強度を持つ試料を仮想試料として用いて、MC シミュレーションを行う。この仮想実験により、r-SANS 体系の幾何学的な配置の影響でスメアされた散乱強度を計算することができる。仮想試料として異なるモデルやパラメータを用いた MC シミュレーション結果と実験結果の比較を繰り返すことで、r-SANS の実験結果を説明できるモデルとパラメータを推定することができる。

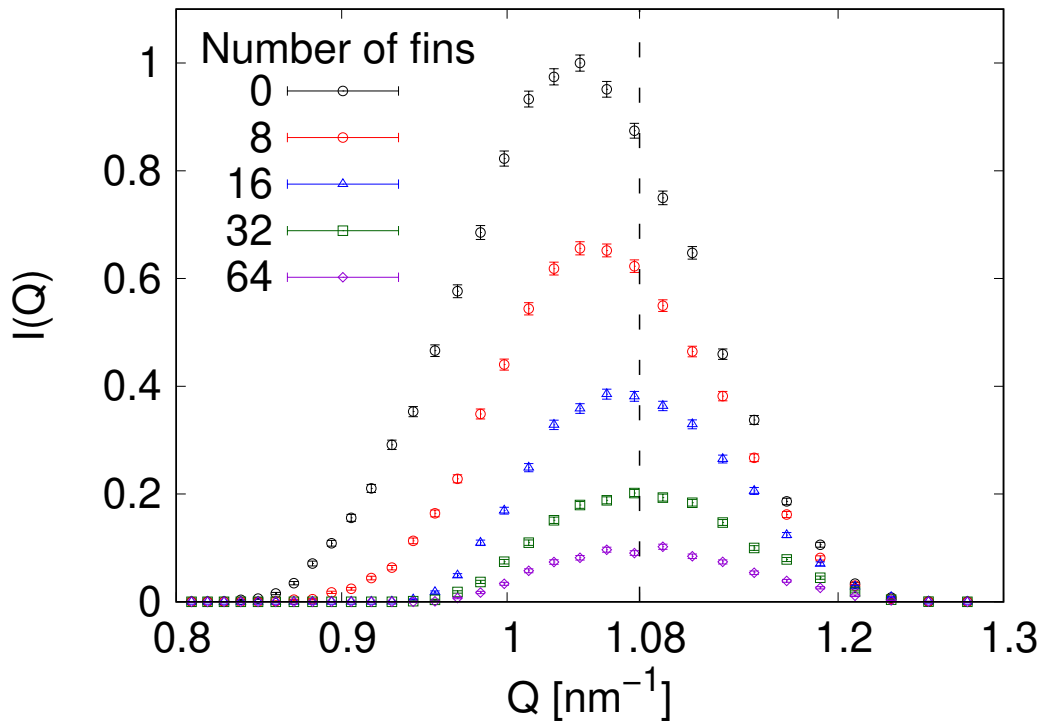


図 5.5 異なる fin 数を用いた場合に測定される散乱強度分布の McStas シミュレーション結果。仮想試料には格子面間隔が 5.8 nm の粉末試料を使用した。計算結果は fin を使用しない場合の散乱強度分布のピーク強度で規格化している。

5.3 実験

5.3.1 京都大学加速器駆動中性子源 (KUANS)

KUANS は、市販の陽子加速器 (AccSys Technology, Inc.) を利用した小型中性子源である [93]。図 5.6(a)、(b)、(c) は、それぞれ KUANS の模式図、外観とターゲットステーション (ターゲット+減速材付近) の写真である。パルス状の陽子ビームが 3.5 MeV のエネルギーに加速され、Be ターゲットに入射する。Be の (p, n) 反応により、中性子が生成される [97]。このように KUANS はパルス中性子源であり TOF 法を利用した中性子波長の決定が可能である。中性子は高密度ポリエチレン減速材で減速され、陽子ビームの入射方向と垂直方向に取り出される。この構成では入射陽子ビームに平行な方向に中性子を取り出した場合に比べて Be ターゲットからの高速中性子数が少なく、バックグラウンドの低減が期待できる [98,99]。減速材からの中性子の漏れを減らすために、図 5.6(a)、(c)

に示されているように減速材を黒鉛反射体で囲んでいる。KUANS の陽子加速器、ターゲットステーション、実験スペースを含めた総面積は約 $5 \times 5 \text{ m}^2$ と非常にコンパクトで研究室に設置できる規模である。減速材の大きさは、 $120(\text{w}) \times 120(\text{h}) \times 85(\text{t}) \text{ mm}^3$ だが、ビームラインから見込むことができる減速材の表面積は約 $100(\text{w}) \times 100(\text{h}) \text{ mm}^2$ である。加速される陽子のエネルギーや電流が小さいため、ターゲットに付与される平均エネルギーは数百 W 程度であり、得られる中性子束はビーム利用を目的とする小型中性子源の中では最も低いものの一つである。ターゲットに付与されるエネルギーが低いため残留放射線量も低く、ターゲットステーションへのアクセスが容易であることから、実験目的に応じて光学機器を減速材の直後から配置することができる。減速材直後にスリットを配置することで効率的に不要な中性子を遮蔽できる。これによりバックグラウンドの低減が期待できるだけでなく、減速材と検出器の距離が短くなり利用可能な中性子強度の増加に寄与する。

本実験における陽子加速器の条件を以下にまとめる。繰り返し周波数は 80 Hz。パルス幅は 60 μs 。RFQ 出口でモニターされた平均陽子電流は 40 μA であった。よってビームパワーは $3.5 \text{ MeV} \times 40 \mu\text{A} = 140 \text{ W}$ であった。このビームパワーは表 5.1 の半分以下である。そのため実際の SANS 実験中のターゲット位置での中性子生成率は表 5.1 の半分以下であると考えられる。

5.3.1.1 中性子強度測定

KUANS でビーム利用可能な中性子強度を評価するために、 ^3He 点検出器 (6 気圧、1 in) を用いて中性子強度測定を行った。検出器は、中性子が検出できる遮蔽窓を除いて B_4C を含む遮蔽材で覆った。遮蔽窓の面積は $9(\text{w}) \times 13(\text{h}) \text{ mm}^2$ とした。減速材と検出器の距離は 2.57 m で、両者の間には何も設置しなかった。つまり測定されたビームのコリメーションは、減速材表面 $100(\text{w}) \times 100(\text{h}) \text{ mm}^2$ と遮蔽窓 $9(\text{w}) \times 13(\text{h}) \text{ mm}^2$ のみで決定された。図 5.7 に測定された TOF スペクトルを示す。横軸は中性子波長 λ 、縦軸は中性子強度で、単位は $\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ に校正されている。実験結果のエラーバーは 1σ の統計誤差である。測定された熱中性子スペクトルは波長 0.114 nm でサーマルピークを持つ。全波長および 0.063 nm より長い波長で積分した中性子強度は、それぞれ 636 ± 1 および $389.0 \pm 0.7 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であった。これらの結果は、KUANS でビーム利用可能な中性子強度が非常に低いことを示している。

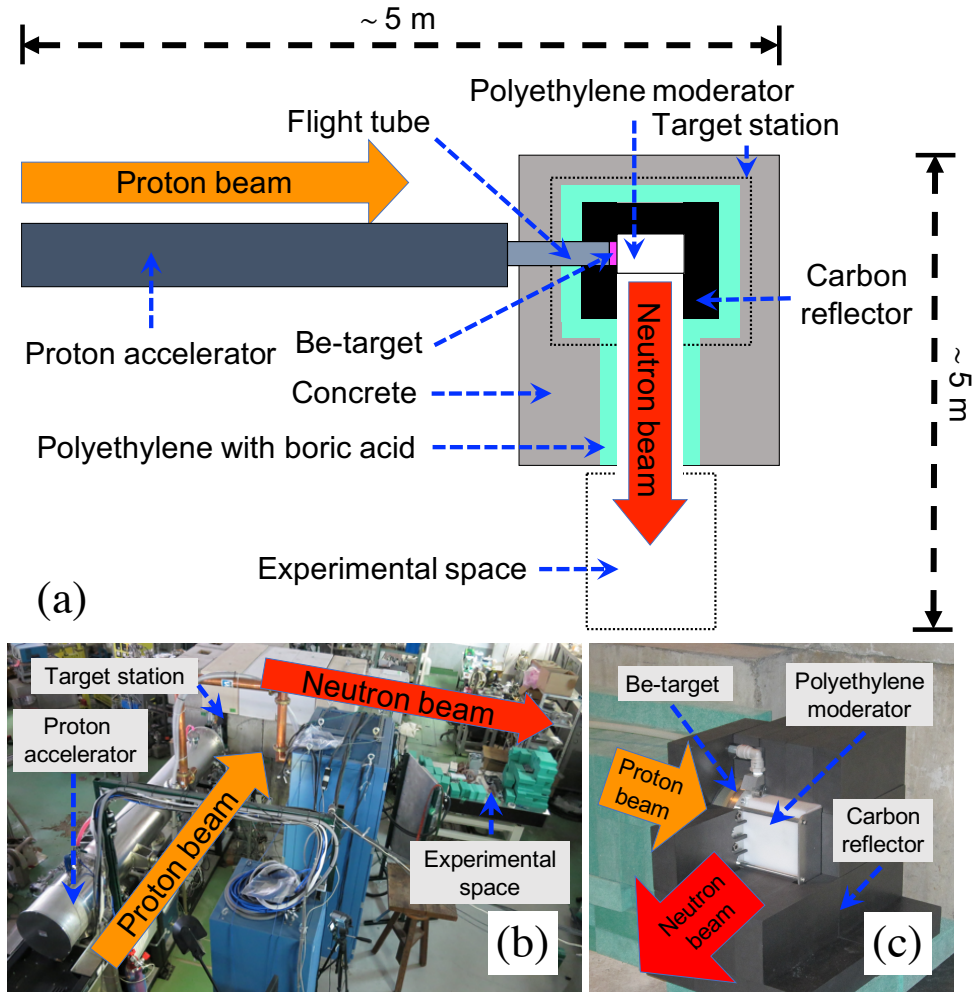


図 5.6 京都大学加速器駆動中性子源 (KUANS) の (a) 模式図と (b) 外観、(c) ターゲットステーションの写真。

5.3.1.2 減速材表面の中性子強度分布

KUANS のビームラインから見える減速材表面のピンホールカメラ画像を取得し、中性子強度分布を測定した [100]。直径 5 mm のピンホールスリットを減速材表面から 1500 mm 離れた場所に設置し、2次元シンチレーション検出器をスリットから 1000 mm 離れた場所に設置することでピンホールカメラ画像を取得した。図 5.8 は、減速材表面の 2次元中性子強度分布の測定結果である。この画像は 0.063 nm より長い波長の中性子を用いて描画している。減速材表面-ピンホールスリット、ピンホールスリット-検出器間距離からわかるように、測定画像の面積はビームラインから見込める減速材表面積よりも小さ

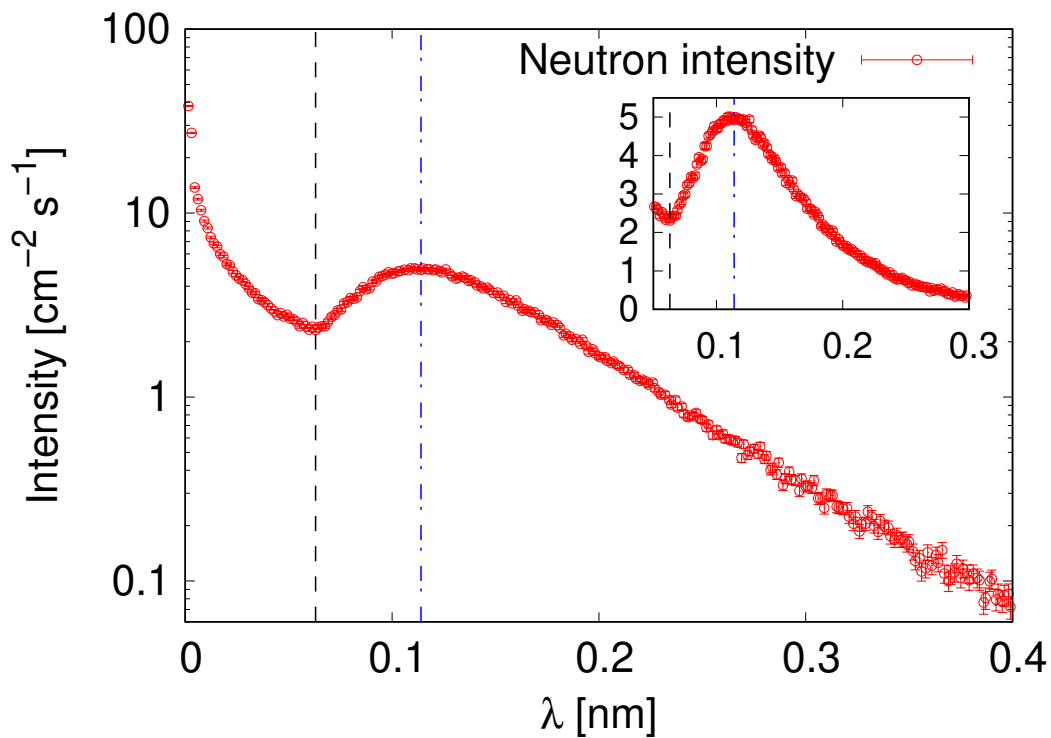


図 5.7 KUANS の TOF スペクトル。挿入図は、波長 0.05–0.3 nm の間を拡大したもので、縦軸を線形目盛に変換している。黒と青の破線は、それぞれ 0.063 nm と 0.114 nm の波長に対応する。

い。測定画像から実際の大きさに合うように等倍し、 180° 回転することで、図 5.8 の 2次元強度分布を得た。原点 $(x, y) = (0, 0)$ は、図 5.6(c) 中の減速材表面の左下に対応する。 x が 5–40 mm、 y が 30–70 mm の領域は中性子強度が比較的高い。これはこの領域が Be ターゲットに近いからである。この実験結果から中性子強度の低い部分と高い部分の強度差が約 3 倍程度あることがわかった。

r-SANS 実験で使用する Slit1(図 5.2) のリング半径 $R1$ とリング幅 $Rw1$ を決めるために、図 5.8 の実験結果を用いて、半径の異なるリング状スリットを減速材表面に設置した際のスリットを通過する中性子強度を計算した。リング半径を変化させたときの積分強度を図 5.9 に示す。横軸はスリット半径、縦軸はリング領域での積分強度である。リング幅が 2、4、6 mm の場合において評価した。リング中心は、図 5.8 の減速材表面中心である $(x, y) = (50, 50)$ とした。積分強度はリング半径にほぼ比例している。しかし、半径が 40 mm を超えると、積分強度は飽和し始めることがわかる。これは図 5.8 からわかるように、減速材表面の端の部分の強度が低いためである。また、減速材表面の中性子強度の

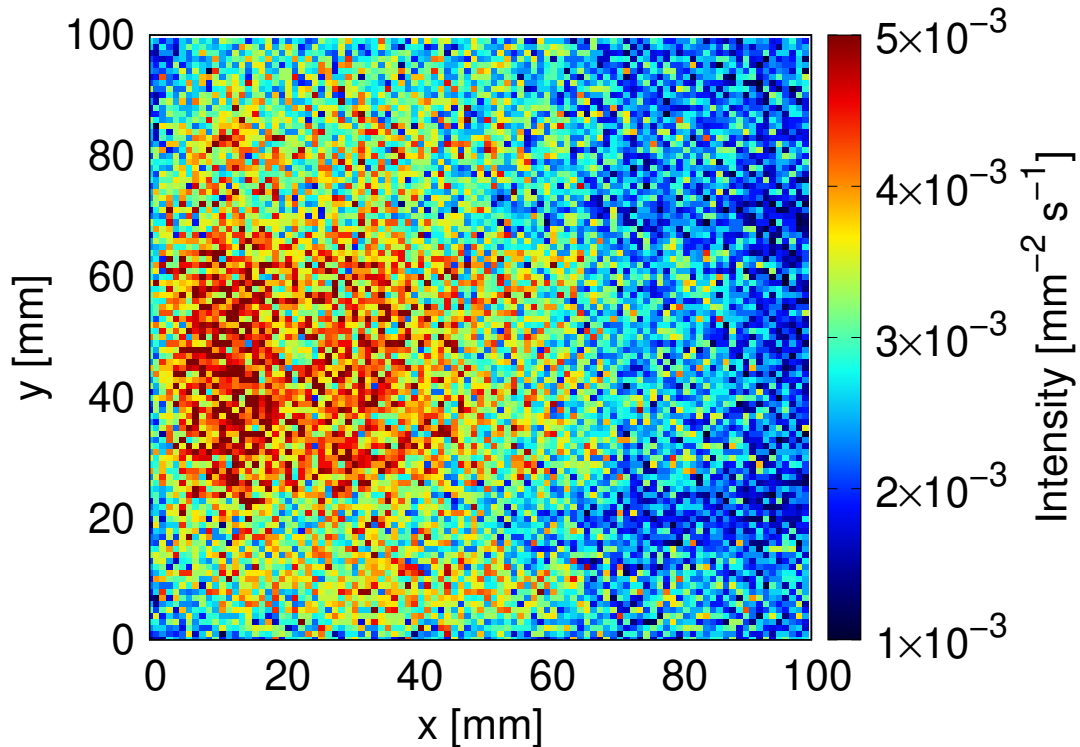


図 5.8 KUANS の減速材表面における 2 次元強度分布。

高い領域を考慮して、リング中心が (20, 50)、リング幅が 4 mm の場合の積分強度も計算した。その結果も図 5.9 に示す。リング半径が 18 mm 以下の場合、中心が (50, 50) の場合よりも多くの中性子を利用できることがわかる。しかし、リング中心が (50, 50) でリング半径を大きくした場合の積分強度は、リング中心を (20, 50) にした場合の最大積分強度よりも高いことがわかった。また半径の大きいリング状スリットを用いると、半径の小さいリング状スリットを用いた場合と比較し、より多くの斜入射中性子を利用できる。散乱中性子と入射中性子ビームの分離、およびリング状スリット製作の技術的困難さを考慮して、本実験で使用する Slit1 のリング半径 $R1$ 、リング幅 $Rw1$ をそれぞれ 42 mm、4 mm とした。この場合、減速材表面全体の平均強度が $3.0 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}\text{mm}^{-2}$ であるのに対し、リング内の平均強度は $3.1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}\text{mm}^{-2}$ となった。この結果は r-SANS 体系が、減速材表面の中性子強度の高い領域だけでなく低い領域も利用するにもかかわらず、広い減速材表面から発出する中性子を用いて r-SANS 実験を行うことが可能であることを示している。

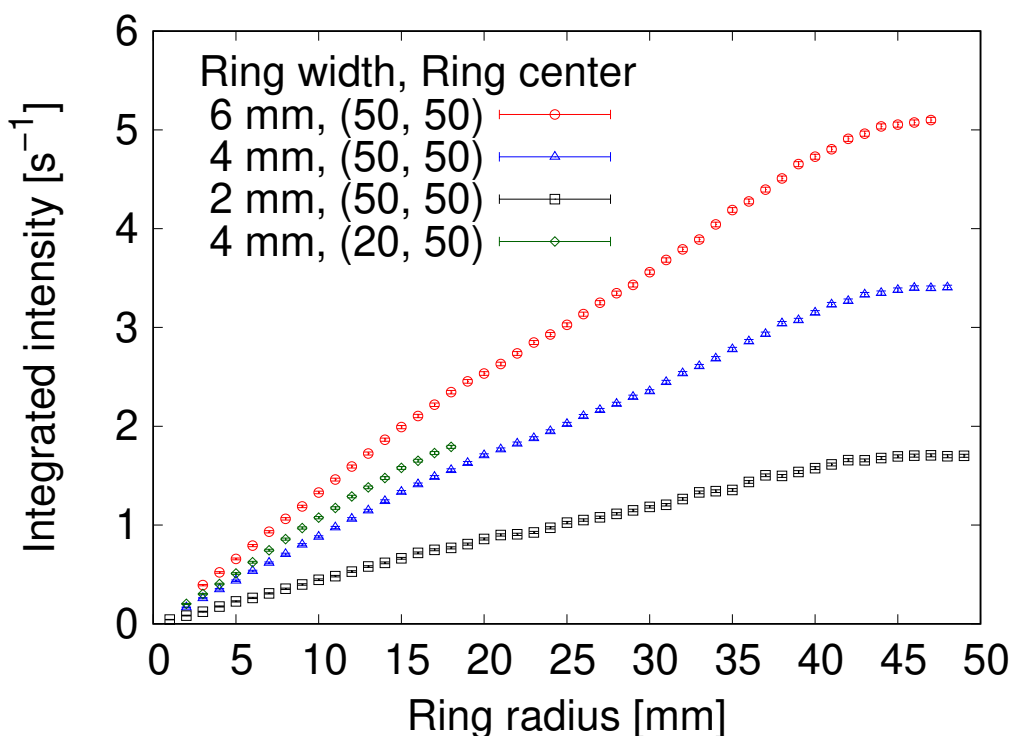


図 5.9 リング幅とリング半径を変えた場合の減速材表面上の積分強度。リング中心は図 5.8 中の (50, 50) である。リング幅が 4 mm の場合、リング中心が (20, 50) の場合の積分強度も示している。

5.3.2 KUANS における r-SANS 実験体系

KUANS に構築した r-SANS 実験体系は、節 5.2 で述べた MC シミュレーション体系とおおよそ同じである。ただし、表 5.2 に記載されているいくつかのパラメータの値を変更した。 $R2$ 、 $Rw2$ 、 $R3$ 、 rd 、 θ の値を、31.5 mm、8 mm、21 mm、4.5 mm に変更した。これに応じて θ も 6.8 mrad となった。Slit2 は Slit1 から Slit3 へ斜めに通過する中性子を吸収することが目的なので、実験装置構築のアライメントの都合上 $Rw2$ を 4 mm から 8 mm に変更した。また Slit2、Slit3 のリング半径を Slit1 よりも徐々に小さくすることで、試料への入射ビームをリング中心軸に向かって集光させた。これにより、小さい Q 領域の測定が可能になるだけでなく、試料-検出器間距離が短くなり、測定可能な散乱強度が強くなる。しかしその結果、 Q 分解能が犠牲になり節 5.2 の単純な r-SANS 体系よりもスミアリング効果が大きくなる。r-SANS 体系の幾何的な条件に起因するスミアリング効果は MC シミュレーションに含めることができるので、この影響はデータ解析で対

応する。

リング状スリットとターゲットステーションの写真を図 5.10(a) と (b) に示す。スリットはすべて株式会社アトムシールド社製の炭化ホウ素入りのシリコンゴム (厚さ 5 mm、B4C 濃度 80%) を用いて作成した。中心の遮蔽用円盤を保持し、スリット形状をリング状に保つために、厚さ 0.5 mm 以下の薄いアルミ板を使用した。Slit1 は図 5.10(b) に示すように、減速材の表面から 45 mm の位置に設置した。構築した r-SANS 体系の減速材表面-検出器間距離は 2820 mm であり、大型の中性子源施設と比べるとはるかに短く、より多くの中性子を利用することが可能である。

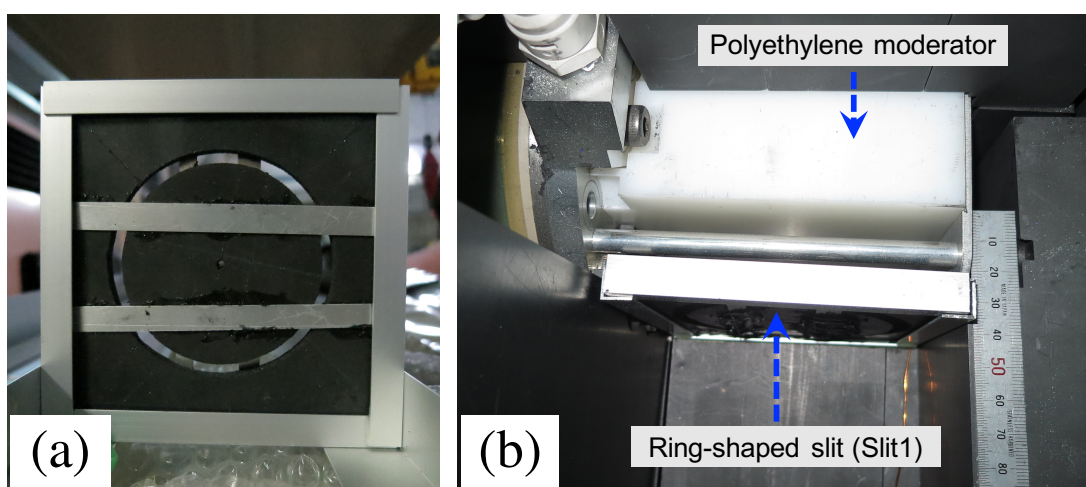


図 5.10 (a) リング状スリットの写真。(b) リング状スリット (Slit1) を設置した際の KUANS のターゲットステーションの写真。

実験データの解析は、TOF 法を用いた SANS データの解析法を簡略化したものを用いた [101]。用いた式を以下に示す。

$$I(Q) \propto \frac{\frac{I_s(\lambda, 2\theta)}{T(\lambda)} - I_b(\lambda, 2\theta)}{I_i(\lambda)} \quad (5.2)$$

$I(Q)$ は散乱強度分布で、試料の巨視的散乱断面積に比例する。 $I_s(\lambda, 2\theta)$, $I_b(\lambda, 2\theta)$ はそれぞれ散乱強度とバックグラウンドの測定値である。また $T(\lambda)$ と $I_i(\lambda)$ は、それぞれ試料の透過率と入射中性子ビームの TOF スペクトルである。この実験体系の名目散乱角 2θ は 13.6 mrad であった。この値は、リング中心軸に対する名目入射ビーム角度 θ_i からリング中心軸に対する名目散乱ビーム角度 θ_s を引いたものであり、それぞれの角度は $\theta_i = \frac{R1-R3}{L12+L23}$ 、 $\theta_s = \frac{R3-\theta_i L3s}{Lsd}$ で計算できる。式 (5.2) において、試料の自己遮蔽効果を補正する out-scatter 補正が $I_s(\lambda, 2\theta)$ を $T(\lambda)$ で割ることで行われている。サンプルホル

ダーはアルミ製のものを使用した。このホルダーを構成するアルミ板の厚さは 0.5 mm 以下と非常に薄く、ホルダーによる中性子の散乱・吸収は無視できるほど小さかった。

5.3.3 シリカゲル試料

SANS 実験の標準試料としてよく用いられるシリカゲルをテスト試料として用いた [102, 103]。いくつかのシリカゲルは KUANS に構築した r-SANS 体系で測定できる Q 領域において、シリカ相と空孔相のポテンシャルギャップに起因する散乱が生じる。この散乱強度を解析することによって測定できる物理量については節 5.4.2.1 で説明する。本実験では、富士フィルム和光純薬株式会社製の多孔質シリカゲル「Wakosil HC-N」(HC-N) と「Wakogel C-500HG」(C-500HG) の 2 種類の多孔質シリカゲルを用いた。検査証明書やカタログに記載されている試料の細孔径、粒子径、細孔容積、比表面積、180 °C での乾燥減量を表 5.3 に示す。表 5.3 に記載されている質量密度は次のように測定した。水置換法で体積を測定した容器を用意し、この容器にシリカゲル粉末を充填した。その時の質量の増加を測定することで密度を測定した。正確な結果を得るために、18 °C の室温中で測定を 3 回繰り返した。測定された質量密度の平均値が表 5.3 に示されている。中子透過率測定と r-SANS 実験のために、シリカゲル試料はいずれも 50(w)×50(h)×30(t) mm³ の体積を持つサンプルホルダーに封入した。

Properties	HC-N	C-500HG
Pore size [nm]	3	7
Particle size [μm]	35–63 (95.5%)	5–20 (94%)
Pore capacity [mL g ⁻¹]	0.6	0.8
Specific surface area [m ² g ⁻¹]	780	450
Loss on drying at 180 °C [%]	6.9	2.0
Mass density [g mL ⁻¹]	0.66	0.49

表 5.3 シリカゲル試料の性質。

式 (5.2) からわかるように、SANS データの解析には試料の中性子透過率が必要である。そこで C-500HG と HC-N 試料の中性子透過率を KUANS で測定した。実験はスリットコリメーションで行った。6(w)×50(h) mm² のスリットを減速材表面直後に設置し、同じ幅と高さのスリットを、1860 mm 離れた位置に設置した。試料は二つ目のスリットから 15 mm 下流に設置し、この試料から 1055 mm 下流に 1 次元の ³He 検出器を設置し

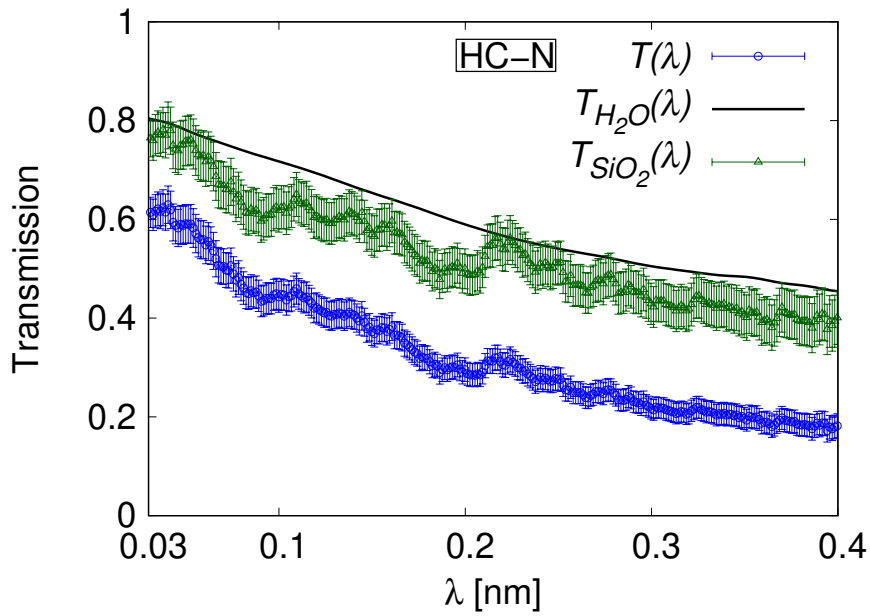
た。検出した中性子のうち $13(w) \times 25(h)$ mm² の領域で観測された中性子強度の TOF スペクトルを試料の有無に応じて透過ビーム、ダイレクトビームスペクトルとした。各試料の透過ビームスペクトルはそれぞれ 30 分間測定した。透過率は、透過ビームスペクトルをダイレクトビームスペクトルで割ることで取得した。図 5.11 に、(a) HC-N と (b) C-500HG 試料の透過率 $T(\lambda)$ を示す。横軸は中性子波長、縦軸は透過率を表している。HC-N の透過率は C-500HG の透過率に比べて低いことが確認できる。

シリカゲルには無数の細孔があり、大気中の水分子が分子間力で細孔に吸着する。水の中性子全断面積は二酸化ケイ素 (SiO_2) と比較し大きいので、測定した透過率に影響を与える可能性がある。そこで、大気中から吸収された水が透過率に与える影響を評価した。HC-N と C-500HG の単位体積あたりの吸収された水分子の原子数密度は、表 5.3 の質量密度と乾燥減量の値を用いて計算できる。HC-N と C-500HG に吸収された水の質量密度はそれぞれ $0.069 \times 0.66 = 4.6 \times 10^{-2}$ と $0.02 \times 0.49 = 9.8 \times 10^{-3}$ g cm⁻³ と評価できる。よって HC-N と C-500HG に含まれる水分子の原子数密度 $N_{\text{H}_2\text{O}}$ は、それぞれ 1.5×10^{21} と 3.3×10^{20} cm⁻³ である。これらから試料中の水による透過率は以下のように計算できる。

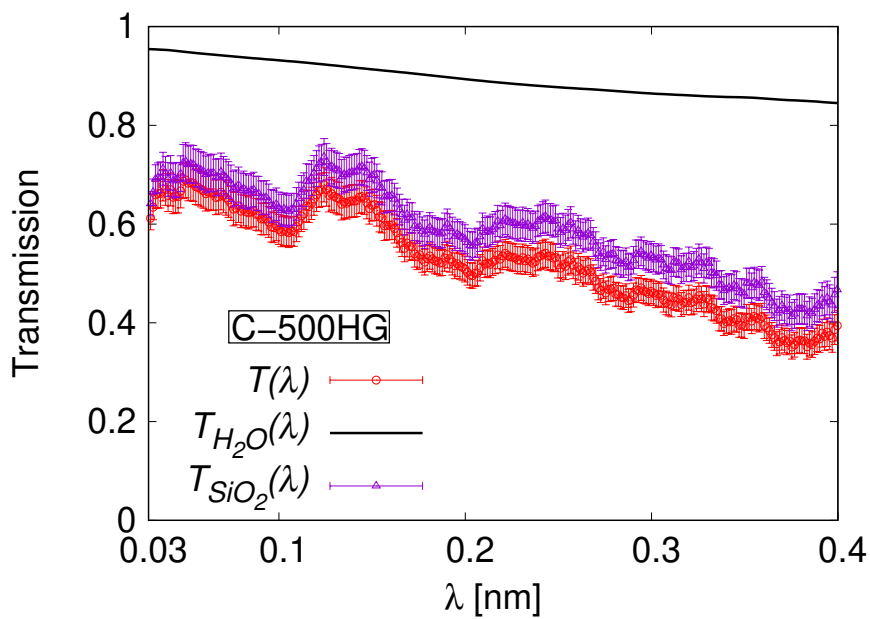
$$T_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda) = \exp(-N_{\text{H}_2\text{O}}\sigma_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda)t_s) \quad (5.3)$$

ここで、 $\sigma_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda)$ と t_s は、それぞれ軽水的全断面積と試料の厚さを表している。水分子の全断面積 $\sigma_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda)$ は分子動力学シミュレーション結果を用いて計算された結果を用いた [104]。両サンプルの厚さ 3 cm を用いて、水による透過率 $T_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda)$ を計算した。その結果も図 5.11 に示す。C-500HG と HC-N の両方で $T_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda)$ は、中性子の波長が長くなるにつれて減少している。このことから、中性子の波長が長くなるにつれて透過率が低下する原因の一つは、吸収された水分子によるものであると考えられる。また HC-N の $T_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda)$ は、C-500HG よりも水分量が多いため低い透過率を示している。

$T(\lambda)$ を $T_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda)$ で割った $T_{\text{SiO}_2}(\lambda)$ も図 5.11 に示した。HC-N の場合、 $T_{\text{SiO}_2}(\lambda)$ は透過率 $T(\lambda)$ よりも高い値を示している。このことは、散乱中性子スペクトルに対する多重散乱の影響が、 $T(\lambda)$ から予想されるほど大きくないことを示している。水分子は強い非干渉性の散乱体であり、low Q 領域では基本的に Q に依存しないため、SANS スペクトルに与える影響は大きくないと考える。一方、C-500HG の $T_{\text{SiO}_2}(\lambda)$ は、 $T_{\text{H}_2\text{O}}(\lambda)$ が高いため、 $T(\lambda)$ との差は小さい。HC-N と C-500HG の $T_{\text{SiO}_2}(\lambda)$ から、r-SANS 測定時に多重散乱は生じているが特に波長の短い中性子に対しては、散乱強度分布への影響は無視できる程度であると考えられる。



(a)



(b)

図 5.11 (a) HC-N および (b) C-500HG シリカゲル試料の中性子透過率 $T(\lambda)$ 。大気中から吸収された水と SiO_2 による透過率をそれぞれ $T_{H_2O}(\lambda)$ と $T_{SiO_2}(\lambda)$ で示す。 $T_{SiO_2}(\lambda)$ は各サンプルの $T(\lambda)$ を $T_{H_2O}(\lambda)$ で割ることで計算した。

5.3.4 X線小角散乱実験

r-SANS 実験の結果を検証するために、HC-N と C-500HG 試料の SAXS 実験を行った。SAXS 実験には京都大学複合原子力科学研究所 (KURNS) の小角 X 線散乱装置 NANO-Viewer(リガク社製) を使用した [105]。Mo の特性 X 線である波長 0.071 nm の X 線を直径 0.3、0.2、0.4 mm の三つのピンホールスリット用いてコリメートし、試料に入射した。ビームのコリメーションは第 1 および第 2 のスリットによって決定され、第 3 スリットは寄生散乱を除去するためのスリットである。入射 X 線ビームの最大発散角は 0.88 mrad であった。試料からの散乱 X 線は、2 次元検出器 PILATUS(リガク社製) を用いて検出した。試料から検出器までの距離は 1730 mm であり、測定可能な Q 領域は $0.2\text{--}2\text{ nm}^{-1}$ であった。

5.4 結果・考察

5.4.1 r-SANS と SAXS 実験結果の比較

C-500HG と HC-N からの散乱中性子とバックグラウンドの TOF スペクトルを図 5.12 に示す。測定時間はそれぞれ 3、5、6 時間であった。縦軸は測定時間だけではなく、測定中の陽子ビーム出力の変化に起因する入射中性子強度の変化を考慮して、各測定におけるビームモニターの総カウント数で強度を重み付けした後、C-500HG の熱ピーク強度で規格化した中性子強度である。横軸は測定された中性子の波長 λ である。波長が 0.063 nm 以上の規格化前のバックグラウンド強度の積分値は、 $2.4 \times 10^{-3}\text{ s}^{-1}$ (8.8 counts/h) であった。減速材表面から検出器までの距離 Lmd が 2820 mm と短いにも関わらず、このようにバックグラウンドを非常に低く抑えることができた。これは r-SANS 体系では検出器の検出領域が小さく環境ノイズの遮蔽が行いやすいことに起因している。

r-SANS 実験で測定した HC-N と C-500HG の散乱中性子強度分布 $I_{r\text{-SANS}}(Q)$ と SAXS 実験で測定した散乱強度分布 $I_{\text{SAXS}}(Q)$ をそれぞれ図 5.13(a) と 5.13(b) に示す。HC-N と C-500HG の $I_{r\text{-SANS}}(Q)$ は名目散乱角 13.6 mrad と式 (5.2) を用いて求めた。測定された Q 領域 $0.34\text{--}1\text{ nm}^{-1}$ は、図 5.12 の中性子波長 0.0877–0.258 nm に対応する。絶対強度ではなく散乱強度分布 (プロファイル) の適合度を比較するため、すべての散乱強度は $Q = 0.4\text{ nm}^{-1}$ での散乱強度で規格化した。 Q の小さい領域では、HC-N と C-500HG の散乱強度の変化は Q の大きい領域に比べて小さい。これはシリカゲル粉末試料からの散乱強度の一般的な傾向である [103]。この傾向から、r-SANS 測定のスメ

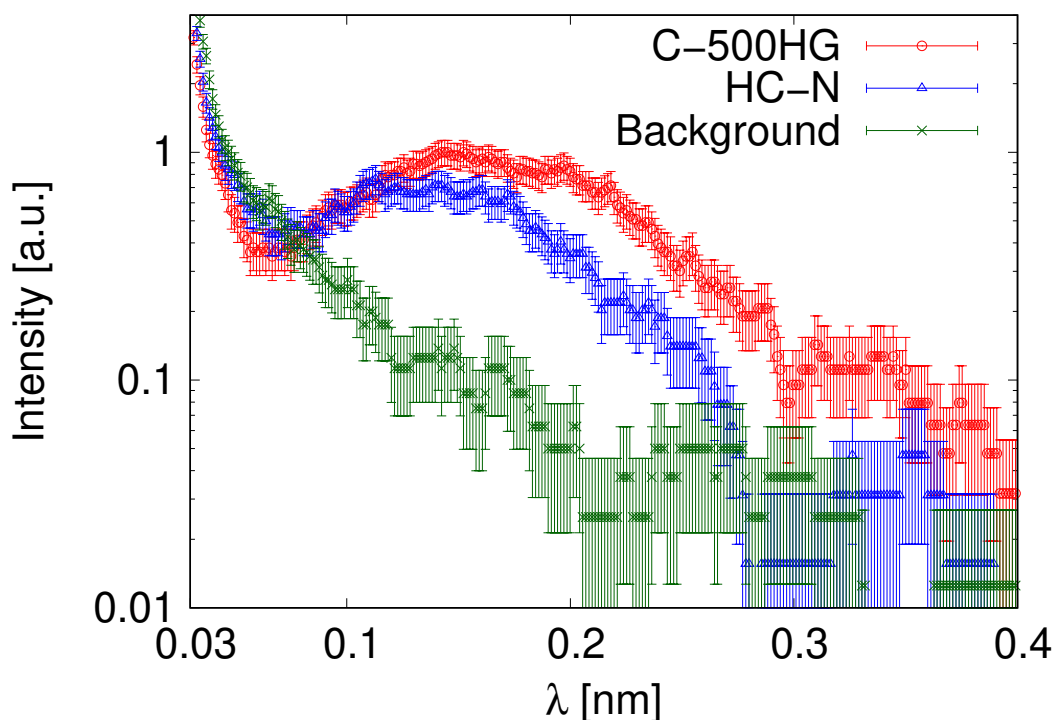
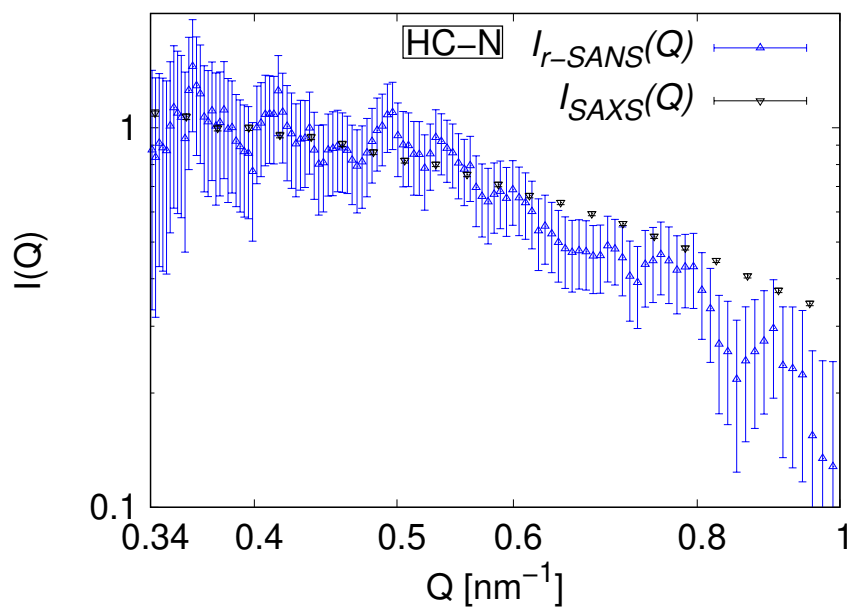


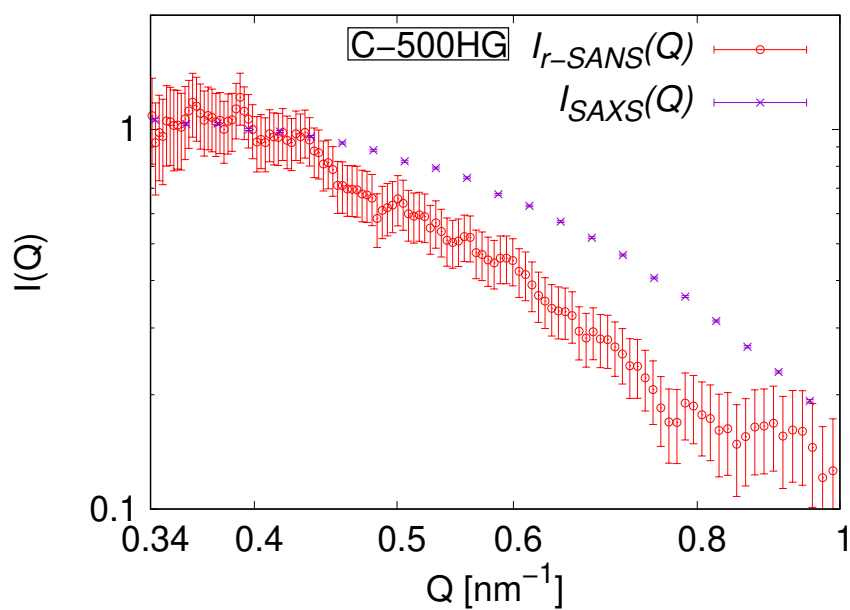
図 5.12 KUANS における r-SANS 体系での実験結果。C-500HG および HC-N シリカゲル試料による散乱中性子とバックグラウンドの TOF スペクトルを示している。

アリング効果が少ない Q の小さい領域の点を規格化点として選んだ。HC-N については、 $I_{r-SANS}(Q)$ と $I_{SAXS}(Q)$ は類似している。しかし、 Q が $0.6\text{--}1\text{ nm}^{-1}$ の範囲では、 $I_{r-SANS}(Q)$ の方が強度が低い。一方 C-500HG では、 $I_{SAXS}(Q)$ と $I_{r-SANS}(Q)$ は明らかに一致せず、特に Q が 0.44 nm^{-1} よりも大きい領域では違いが顕著である。

C-500HG 試料において SAXS と r-SANS 実験結果が明らかに異なる理由は、おおよそ次のように説明できる。試料の散乱強度分布の変化量が一定の場合には、スミアリング効果はそれぞれの Q で均等に散乱強度に影響を与えるので、スミアリング効果の散乱強度分布に与える影響は小さい。一方、散乱強度分布の傾きが急激に変化する場合には、スミアリング効果が r-SANS の測定結果に大きく影響し、散乱強度分布の傾きや傾きが変化し始める Q が変化する。図 5.13 から分かるように、C-500HG の $I_{SAXS}(Q)$ は、HC-N の $I_{SAXS}(Q)$ と比べ比較的大きな傾きの変化を持つ。このため C-500HG のスミアリング効果は HC-N のそれよりも顕著であると考えられる。



(a)



(b)

図 5.13 (a) HC-N、(b) C-500HG シリカゲル試料の r-SANS 実験結果 $I_{r-SANS}(Q)$ および SAXS 実験結果 $I_{SAXS}(Q)$ 。どちらの実験結果も $Q = 0.4 \text{ nm}^{-1}$ で規格化している。

5.4.2 散乱モデルを用いた HC-N と C-500HG シリカゲル試料の解析

本節では SAXS 実験結果を解析し、HC-N および C-500HG の散乱モデルおよびモデルパラメータを求める。また、SAXS 実験結果自体を McStas 計算の試料コンポーネントの入力として与え、MC シミュレーションを行う。その結果と r-SANS 実験結果を比較することで、r-SANS 体系の幾何学的な条件に起因する散乱強度分布のスメアリング効果の影響を評価する。最後に SAXS と r-SANS 実験結果から得られた散乱モデルパラメータの一貫性を示すため、r-SANS 実験結果に対してパラメータサーベイを行い、散乱モデルパラメータを推定する。

5.4.2.1 Debye-Bueche モデルと Porod 則

固体試料の不均一性を解析するモデルの一つに、Debye-Bueche(DB) モデルがある [106, 107]。DB モデルはシリカゲルの SAXS や SANS 実験結果の解析によく用いられる [108, 109]。このモデルでは、鋭い相境界を持つ二つの相からなる系を考える。相の一つはシリカで、もう一方の相は空孔である。空孔相はシリカ相の中にランダムに分散していると仮定する。小角散乱はシリカ相と空孔相間のポテンシャルギャップにより生じる。相関関数 $\Gamma(r)$ を Debye 相関関数 $\gamma(r)$ で表すと次のように書ける [110]。

$$\Gamma(r) = \gamma(r)\Gamma(0) = \gamma(r)V \langle \eta^2 \rangle \quad (5.4)$$

ここで r は試料内の任意の 2 点間の距離、 V は照射された体積、 $\langle \eta^2 \rangle$ は試料全体の電子密度または散乱長密度の平均に対する 2 乗揺らぎである。DB モデルでは、 $\gamma(r)$ を次のように定義する。

$$\gamma(r) = \exp\left(-\frac{r}{b}\right) \quad (5.5)$$

定数 b は相関長であり、サンプルの不均領域の指標となる物理量である。DB モデルに従う試料からの散乱強度 $I_{DB}(Q)$ は次のように計算できる。

$$I_{DB}(Q) = \int \Gamma(r) \exp(-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} = \frac{8\pi V \langle \eta^2 \rangle b^3}{(1 + (bQ)^2)^2} \quad (5.6)$$

Q が十分大きい時、式 (5.6) は

$$I_P(Q) = \frac{8\pi V \langle \eta^2 \rangle}{bQ^4} \quad (5.7)$$

と近似できる。これは Porod 則である [111]。DB モデルでモデル化される試料からの散乱強度分布は、 Q が十分に大きい範囲で Q^{-4} に比例する。

5.4.2.2 SAXS 実験結果の解析

HC-N と C-500HG の SAXS 実験結果 $I_{SAXS}(Q)$ を、DB モデルと Porod 則を用いて解析した結果を図 5.14 に示す。両者の散乱強度分布は、 $Q = 0.4 \text{ nm}^{-1}$ での散乱強度で規格化されている。HC-N については、 $I_{SAXS}(Q)$ を $0.2\text{--}2 \text{ nm}^{-1}$ の範囲で DB モデルを用いてフィッティングした。フィッティング曲線は茶色線で示されており、 χ^2 は 0.65 であった。HC-N の $I_{SAXS}(Q)$ は DB モデルと良く一致し、その相関長は $1.058 \pm 0.004 \text{ nm}$ であった。一方、C-500HG の $I_{SAXS}(Q)$ は、DB モデルでは表せなかった。そこで Q が 1.2 nm^{-1} より大きい領域において式 $\alpha + \beta Q^{-4\gamma}$ を用いてフィッティングを行なった。 α 、 β 、 γ はフィッティングパラメータである。フィッティングの χ^2 は 0.99 であった。フィッティングの結果 (緑線)、散乱強度は $Q^{-4.8 \pm 0.12}$ に比例して減衰していることがわかった。これは Porod 則とも一致しない。この不一致はシリカ相と空孔相の界面境界が鋭い境界とはみなせず、拡散しているためであると考えられる [112]。また、X 線でポテンシャル差を感じる場所では中性子と同じシリカ相と空孔相の境界なので、SAXS 実験結果は SANS 実験結果の参考データとして利用できる。

5.4.2.3 r-SANS 実験結果とスミアリング効果を含んだ MC シミュレーション結果の比較

r-SANS 体系に起因するスミアリング効果を考慮に入れ、r-SANS 実験結果を評価するため McStas を用いた MC シミュレーションを行った。McStas シミュレーション体系では KUANS での r-SANS 実験体系を模擬し、試料は McStas のコンポーネントである「SANScurve」を使用した。SANScurve は、 Q と対応する散乱強度 (散乱強度分布) を入力として与えることで、入力した散乱強度分布を線形補間することでシミュレーション中で仮想試料として振舞う。本シミュレーションでは、波長 $0.03\text{--}0.37 \text{ nm}$ の白色中性子ビームを使用することで r-SANS 実験で測定した Q 領域をカバーした。また、シミュレーションでは試料における多重散乱は無視した。

図 5.15(a) に HC-N の r-SANS 実験結果 $I_{r-SANS}(Q)$ とシミュレーション結果の比較を示す。 $I'_{SAXS}(Q)$ は、SAXS 実験結果 $I_{SAXS}(Q)$ を用いてシミュレーションした散乱強度である。ここでは、HC-N の $I_{SAXS}(Q)$ をシミュレーションにおける SANScurve の入力データとして使用した。また $I_{SAXS}(Q)$ も参考として示す。すべてのデータは $Q = 0.4 \text{ nm}^{-1}$ で規格化している。 $I'_{SAXS}(Q)$ は r-SANS 体系によるスミアリング効果を含んでいるため、 $I_{r-SANS}(Q)$ は $I_{SAXS}(Q)$ よりも $I'_{SAXS}(Q)$ とよく一致した。図 5.15(b) に示すように、C-500HG においても $I_{r-SANS}(Q)$ と $I'_{SAXS}(Q)$ の比較を行った。 $I'_{SAXS}(Q)$ は C-500HG の $I_{SAXS}(Q)$ を入力データとしたシミュレーション結果である。

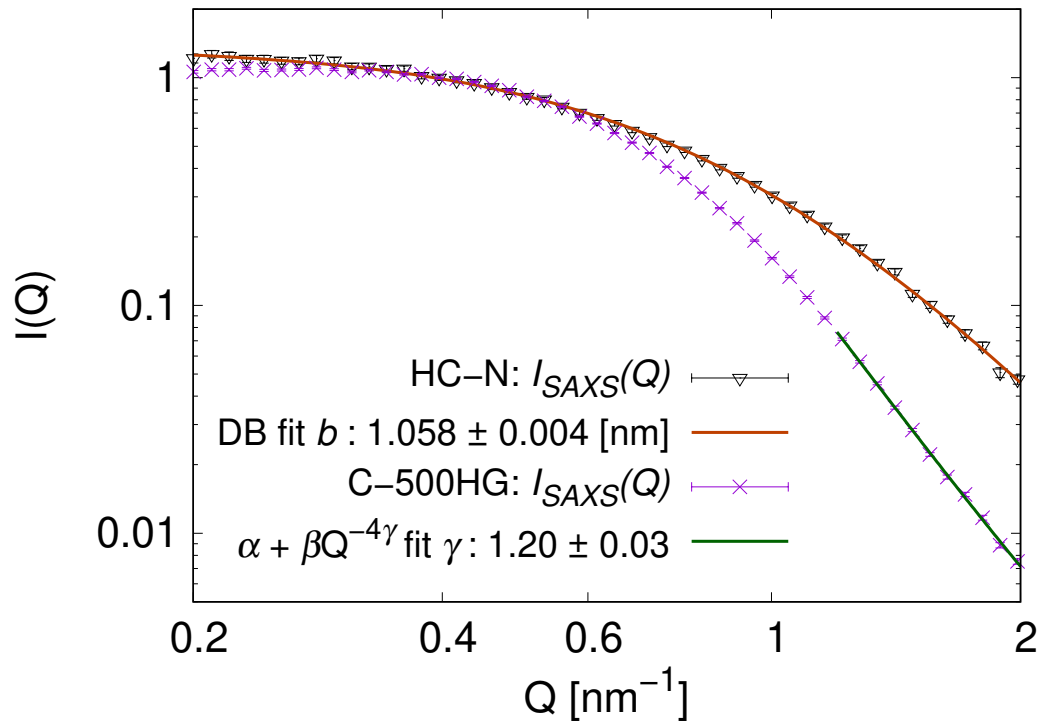
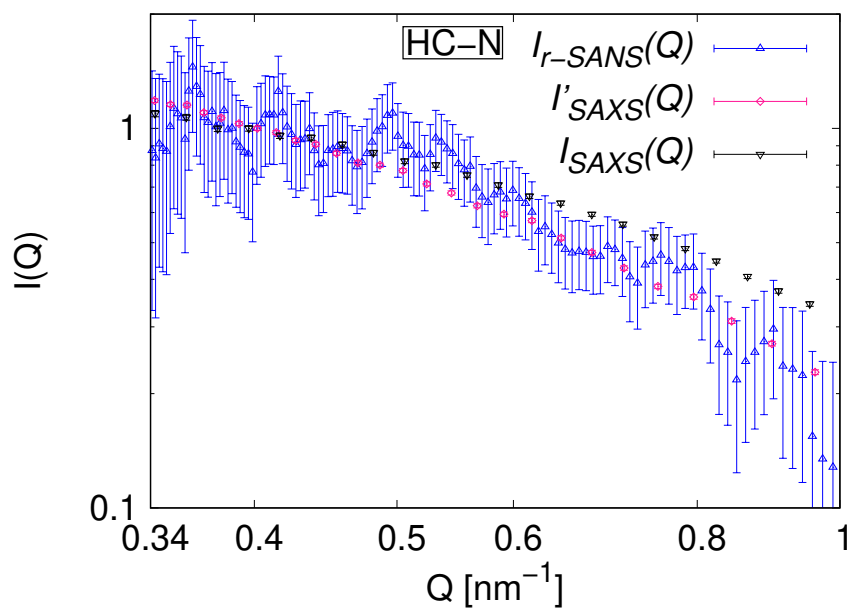


図 5.14 2 種類のシリカゲル試料 HC-N と C-500HG に対する SAXS 実験結果 $I_{SAXS}(Q)$ 。実験結果は両方共、 $Q = 0.4 \text{ nm}^{-1}$ で規格化している。HC-N については DB モデルを、C-500HG については Porod 則を用いてフィッティングを行った。HC-N については相関長 b を C-500HG についてはフィッティングパラメータ γ のフィッティング結果を示す。

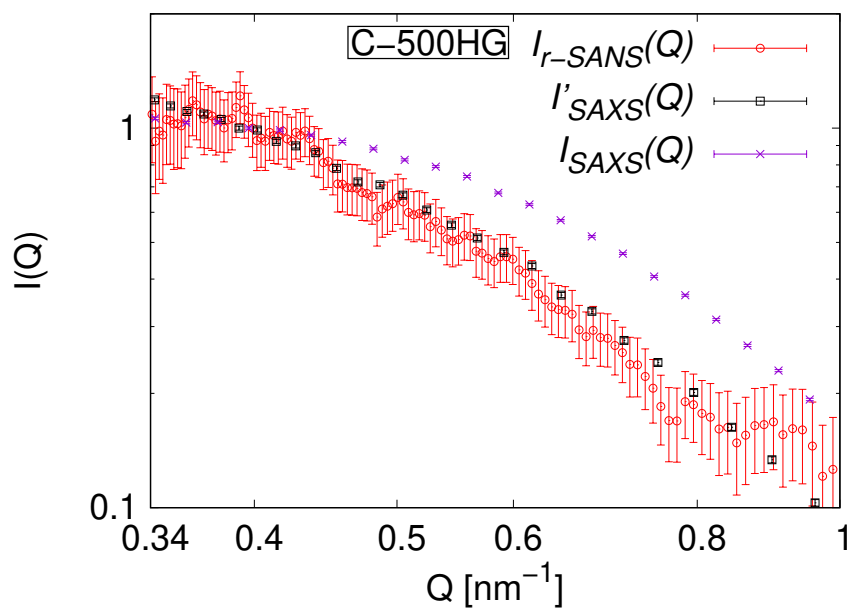
また C-500HG の SAXS 結果である $I_{SAXS}(Q)$ も参考として示す。同様に、散乱強度は $Q = 0.4 \text{ nm}^{-1}$ での散乱強度で規格化されている。こちらも $I'_{SAXS}(Q)$ は、 $I_{r-SANS}(Q)$ と誤差の範囲で一致した。HC-N および C-500HG それぞれの実験結果とシミュレーション結果の比較から、r-SANS と SAXS の実験結果の不一致は、r-SANS 体系の幾何学的な条件に起因するスメアリング効果によるものであることがわかった。

5.4.2.4 r-SANS 実験結果の DB モデルを用いたパラメータサーベイ

HC-N の散乱強度分布は、測定された Q の範囲で DB モデルに従うことが節 5.4.2.2(図 5.14) で確認された。この事実を利用し、r-SANS 実験結果を用いた HC-N の相関長の推定を McStas シミュレーションを援用したパラメータサーベイにより試みた。McStas シミュレーション中の仮想試料である *SANScurve* の入力に異なる相関長 b を用いた DB モデル (式 (5.6)) から算出される散乱強度分布を与え、McStas シミュレーションを行うこ



(a)



(b)

図 5.15 (a) HC-N および (b) C-500HG の r-SANS 実験結果 $I_{r-SANS}(Q)$ 、McStas を用いたシミュレーション結果 $I'_{SAXS}(Q)$ 、および SAXS 実験結果 $I_{SAXS}(Q)$ の比較。 $I'_{SAXS}(Q)$ は、MC シミュレーションにおける各仮想試料の散乱強度の入力として SAXS 実験結果を用いてシミュレーションした結果である。すべてのデータは $Q = 0.4 \text{ nm}^{-1}$ で規格化している。

とでそれぞれの b におけるスメアリング効果を含んだ散乱強度分布を計算した。これらの結果と r-SANS 実験結果を比較することでパラメータサーベイを行なった。図 5.16 に HC-N の r-SANS 実験結果 $I_{r-SANS}(Q)$ と、 b を 0.565–1.565 nm の間で 0.25 nm ステップで変更し、シミュレーションした結果 $I'_{DB}(Q)$ を示す。このグラフでは、 $I_{r-SANS}(Q)$ の Q ビンの幅をシミュレーション結果と同じになるよう調整した。すべてのデータは、 $Q = 0.4 \text{ nm}^{-1}$ で規格化している。図 5.16 より b の値が大きくなるにつれて、散乱強度分布の傾きが大きくなるのが分かる。 b が 0.565 および 1.565 nm の結果は、明らかに $I_{r-SANS}(Q)$ と一致していない。しかし、シミュレーションにより計算された散乱強度分布の傾向を考慮すると、調べた b の範囲で、 $I_{r-SANS}(Q)$ に最も適合する相関長の推定が可能であることがわかる。

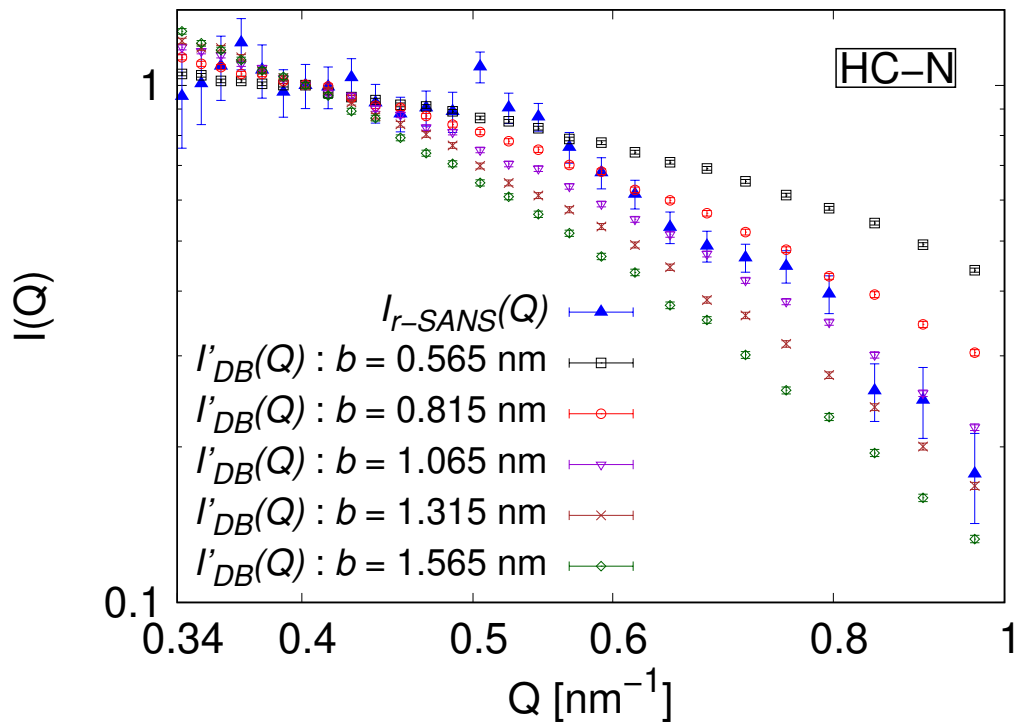


図 5.16 r-SANS 体系による HC-N シリカゲル試料の散乱強度分布の実測値 $I_{r-SANS}(Q)$ と仮想試料 *SANScurve* の入力データを変化させ、McStas シミュレーションにより計算した散乱強度分布の結果 $I'_{DB}(Q)$ 。入力データは DB モデル (式 (5.6)) を用いて、相関長 b を 0.565–1.565 nm の間で 0.25 nm ステップで変化させ計算した。すべての散乱強度分布は $Q = 0.4 \text{ nm}^{-1}$ における散乱強度で規格化している。

$I_{r-SANS}(Q)$ と $I'_{DB}(Q)$ の間の適合性を定量的に評価するために、それぞれの差の絶対値を $I_{r-SANS}(Q)$ で割った相対絶対偏差 RAD を各 Q ごとに計算した。この割り算は

RAD の中性子強度の影響を取り除くために行った。各 b のシミュレーション結果に対する RAD の Riemann 和、 R_{RAD} を次のように計算した。

$$R_{RAD} = \sum_{i=1}^j \frac{|I_{r-SANS}(Q_i) - I'_{DB}(Q_i)|}{I_{r-SANS}(Q_i)} \Delta Q_i \quad (5.8)$$

ここで $I_{r-SANS}(Q_i)$ と $I'_{DB}(Q_i)$ は、それぞれ i 番目の Q データに対する r-SANS 実験結果とシミュレーション結果である。 i は図 5.16 中の小さい Q データから数えたデータ番号である。 $I_{r-SANS}(Q_i)$ と $I'_{DB}(Q_i)$ は、それぞれ i 番目の Q データに対する r-SANS 実験結果とシミュレーション結果である。 ΔQ_i は $Q_{i+1} - Q_i$ の値である。また各散乱強度データの総数が j である。なお ΔQ_{27} は $Q_{28} = 1.03 \text{ nm}^{-1}$ の値を用いてを計算した。図 5.17 は、 b が $0.565\text{--}1.565 \text{ nm}$ の間を 0.0625 nm ステップで計算した R_{RAD} の結果である。式 (5.8) から分かるように R_{RAD} が小さいほど、 $I_{r-SANS}(Q)$ との適合性が良い。計算された R_{RAD} の結果は非対称である。これは図 5.16 から同じ b の増加でも $I'_{DB}(Q)$ の変化量が異なることから理解できる。

R_{RAD} が最小となる b を得るために、2 次関数でフィッティングを行なった。一般に、 R_{RAD} の関数は未知である。しかし極小点の近傍では、テイラー展開の原理により 2 次関数でフィッティングすることができる。フィッティング関数は $A + B(b - b_v)^2$ とし、 A 、 B 、 b_v をフィッティングパラメータとした。 b が $0.8775\text{--}1.315 \text{ nm}$ の範囲のデータをフィッティングしたところ、頂点の b の値 b_v は $1.09 \pm 0.12 \text{ nm}$ となった。この誤差は、 R_{RAD} の誤差を誤差伝播法で直接計算したものである。得られた b_v の誤差は DB モデルを用いたフィッティングで求まる相関長の誤差とは異なるが、推定された b_v は節 5.4.2.2 の SAXS 実験で得られた相関長と誤差の範囲で一致した。この結果から、r-SANS 体系ではより多くの入射中性子を利用するために Q 分解能を犠牲にし、スミアリング効果を許容しているものの、r-SANS 実験結果と MC シミュレーション結果を組み合わせることで、典型的な SANS 測定で得られる物理量に対応する散乱モデルパラメータを決定することが可能であることがわかった。今回のパラメータサーベイは、一つのパラメータのみを変更して行われた。一方、r-SANS 実験結果を解析するための一般的な手法の開発は、今後の課題である。

5.5 結言

小型中性子源で中性子小角散乱 (SANS) 実験を行うために、リング状スリットを用いた SANS 実験体系 (r-SANS) を提案、開発した。この体系では、リング状にコリメート

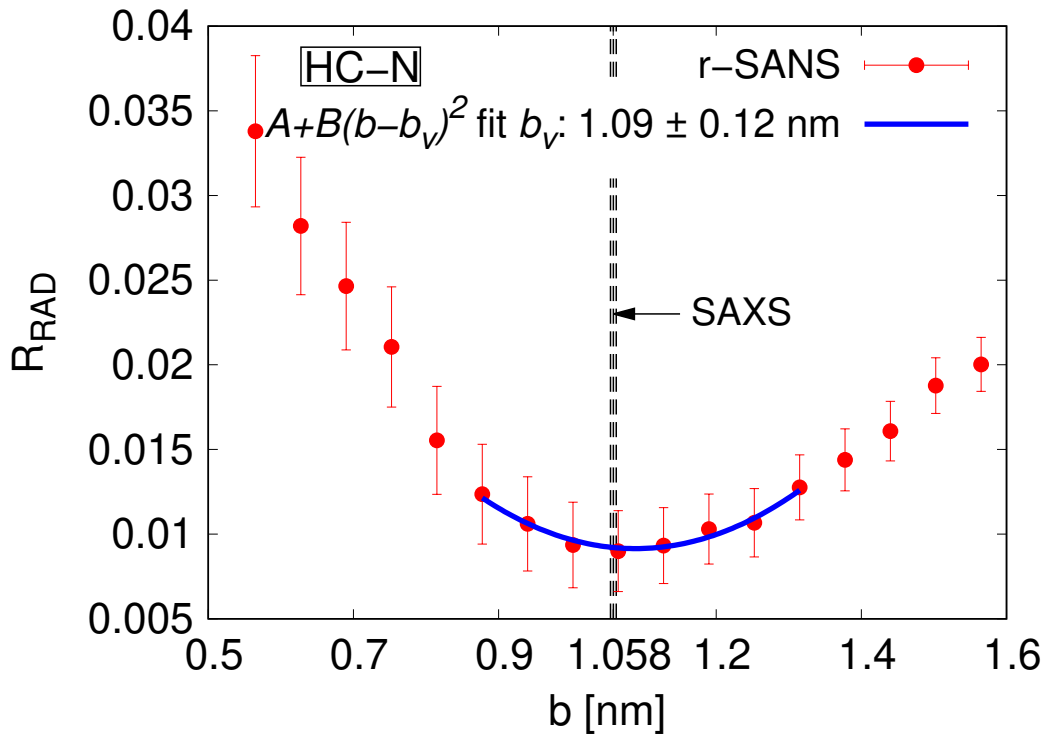


図 5.17 HC-N の r-SANS 実験結果 $I_{r-SANS}(Q)$ と複数の相関長 b に対する MC シミュレーション結果 $I'_{DB}(Q)$ との適合度を式 (5.8) で示される R_{RAD} で評価した結果。得られた R_{RAD} は極小値近傍 (0.8775–1.315 nm) で 2 次関数 $A+B(b-b_v)^2$ を用いてフィットした。 A 、 B 、 b_v はフィッティングパラメータである。またフィッティングによって得られた b_v の値と、 SAXS の実験結果 (図 5.14) から得られた相関長 $b = 1.058 \pm 0.004$ nm を示す。 SAXS で求めた b のエラーバーの大きさは破線の太さに対応している。

した中性子ビームを試料に入射する。試料からの散乱中性子は、自然にリングの中心軸に集光し、この位置に計数効率が高い ^3He 点検出器を設置する。 r-SANS 体系では検出器開口部を集光位置のみに制限することができるので、バックグラウンド中性子の遮蔽が行いやすい。実際、 KUANS での r-SANS 実験のバックグラウンドは $2.4 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (8.8 counts/h) と非常に低く抑えることができた。バックグラウンドを低く抑えることは小型中性子源で散乱実験を行う上で非常に重要な点である。またパルス中性子源で利用可能な飛行時間 (TOF) 法を用いることで、名目散乱角を変化させることなく入射中性子の波長分布に対応した運動量遷移 (Q) 領域を測定することができる。

単純な r-SANS 体系における Monte Carlo (MC) シミュレーションにより、 r-SANS 体系による散乱中性子強度の増加は、試料体積の増加に起因するものだけではなく、測定結

果にスミアリング効果をもたらす斜入射中性子による影響もあることがわかった。そしてこの斜入射中性子は、散乱強度分布 $I(Q)$ を非対称に歪めるスミアリング効果を引き起こすことが明らかになった。

r-SANS 実験の実現性を検証するために、京都大学加速器駆動中性子源 (KUANS) で実際に r-SANS 体系を構築し実験を行った。KUANS は中性子ビーム施設の中で最もコンパクトで、最も中性子強度の低い施設の一つである。実際、実験中の陽子ビームの出力は 140 W と非常に低かった。減速材表面から 2.57 m 離れた位置で、点検出器 (6 atm, 1 in) を設置し、実験的に中性子強度を測定した。波長が 0.063 nm より長い中性子の強度は $389.0 \pm 0.7 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であり、ビーム利用できる中性子の強度は非常に低いことが分かった。またピンホールカメラ画像を撮影することで、減速材表面の 2 次元中性子強度分布を測定した。実験結果から減速材表面の広い範囲から熱中性子が放出していることが確認できた。リング状スリット (Slit1) を半径 42 mm、幅 4 mm に設計すると、リング部分の単位面積当たりの強度は、減速材表面全体の平均強度とほぼ同じであった。

r-SANS 実験では、2 種類の多孔質シリカゲル、HC-N と C-500HG をテスト試料として使用した。両試料とも、典型的なピンホール体系の小角 X 線散乱 (SAXS) 装置を用いて散乱強度スペクトルを測定した。HC-N については、r-SANS と SAXS による散乱強度分布は類似していたが、 $0.6\text{--}1 \text{ nm}^{-1}$ の Q 領域ではスミアリング効果が見られた。SAXS 測定結果を解析すると、Debye-Bueche(DB) モデルにより HC-N の散乱強度分布はよく説明できることがわかった。そして DB モデルを用いたフィッティングで得られた相関長は $1.058 \pm 0.004 \text{ nm}$ であった。C-500HG では、r-SANS 実験結果と SAXS 実験結果は一致しなかった。これは、r-SANS 体系の幾何学的な条件に起因するスミアリング効果による影響であると考えた。このスミアリング効果を考慮するために、MC シミュレーション中で r-SANS 実験体系を構築しシミュレーションを行なった。SAXS 実験結果を、McStas の試料コンポーネントである *SANSCurve* の入力データとして使用した。HC-N と C-500HG 試料の SAXS 結果を *SANSCurve* の入力として与えてシミュレーションした結果は、r-SANS 体系の幾何学的な条件によるスミアリング効果を含んでいるため、r-SANS 実験結果とよく一致した。r-SANS 実験結果から試料の散乱モデルパラメータを推定するために、パラメータサーベイ法により HC-N の r-SANS 実験結果を解析した。r-SANS 実験結果と複数の相関長を持つ DB モデルを用いて計算されたシミュレーション結果を比較することで、HC-N の相関長を推定した。その結果は $1.09 \pm 0.12 \text{ nm}$ となり、SAXS 実験結果と誤差の範囲で一致した。このことから、r-SANS と MC シミュレーションを組み合わせることで、試料の散乱モデルパラメータの値を推定できることがわかった。これは MC シミュレーションを援用したデータ解析の実効性を示している。今回の

パラメータサーベイは一つのパラメータのみを変更して実施した。一方、r-SANS の実験結果を解析するための一般的な手法の開発は今後の研究課題である。

本研究で提案した r-SANS 体系は、小さな検出領域と重ね合わされた散乱ビームを利用して、バックグラウンドを抑えながら、試料からの散乱中性子を検出することができる。そのため中性子源を含めた一般的な SANS 装置と比較し、少ないコストと小さいスペースで SANS 実験を可能にする。このように実験ではスミアリング効果を許容し、出来るだけ散乱中性子を観測しやすい実験体系で SANS 実験を行い、実験結果の解釈は MC シミュレーション結果を援用することで行うという方法は、入射中性子強度の弱い研究室規模の SANS 装置の一つの選択肢となり得ると考える。そして本研究で示された研究室規模の小型中性子源における SANS 実験の可能性は、SANS 実験機会の増加に寄与することが期待される。

第6章

結論

本研究ではパルス中性子源における集光ビームを利用した新たな中性子散乱分光法の実現可能性を探求した。その結果、中性子共鳴スピネコー (NRSE) 分光器で高エネルギー分解能を達成するための位相補正法の開発、集光 NRSE 分光器の実現可能性の実験的評価、小型中性子源のためのリング状スリットを用いた中性子小角散乱 (SANS) 実験体系の開発に成功した。それぞれの成果を下記にまとめる。

中性子共鳴スピネコー分光器における位相補正のための2回集光法

Bleuel 等によって提案された集光 NRSE 分光器では、楕円体集光ミラーが部分的にしか配置されていないため、位相補正が可能なビーム発散角が大きく制限されていた。そこで、回転楕円体集光ミラーの全周を用いた「全周型回転楕円体集光ミラー」によるより多くの発散ビームに適用可能な新たな位相補正法として、2回集光 (DF) 法を提案した。DF 法では二つの同形状の回転楕円体集光ミラーを焦点を共有するように直列に配置する。2次元の DF 体系において、焦点からずれて入射したビームと焦点を通過して入射したビームの経路長差を幾何学的に評価した結果、一つ目の楕円の焦点間で行う経路長差は二つ目の楕円の焦点間で行う経路長差でほぼ打ち消され、二つを組み合わせた DF 体系では経路長の分散が著しく減少することがわかった。また Monte Carlo (MC) シミュレーションを用いて全周型回転楕円体集光ミラーを用いた1回集光 (SF) 体系と DF 体系の経路長差を計算した。焦点位置でのビームサイズを半径 1.5 mm の円とした場合、両体系での試料への入射中性子強度はほぼ等しく、その強度は一般的な NSE 実験に用いられるピンホールコリメーションでの試料への入射中性子強度と同等であった。そして SF 体系では経路長差が最大幅 316 μm に広がるのに対し、DF 体系では最大幅 4 μm と著しく減少することがわかった。この MC シミュレーションにより、DF 法は従来の SF 法による位相補正法と

比較し、高エネルギー分解能測定に利用可能な中性子強度を増加させることがわかった。次にそのエネルギー分解能を定量的に評価した。その結果、波長 2 nm の中性子を仮定した場合、回転楕円体焦点と共鳴スピンプリッパー (RSF) 間の距離に依存するが、フーリエタイム 1 μs (エネルギー分解能 0.7 neV) の NRSE 実験の可能性を示した。本研究結果は、微小試料に適応した高エネルギー分解能 NRSE 分光法の実現可能性を示しており、ゆっくりとしたダイナミクスを含む様々な運動モード (例えば、生体高分子等の動的構造評価) が高い S/N で測定できる可能性を示している。また DF 法は定常炉においても利用できるがパルス中性子源と組み合わせることで広い運動量遷移 (Q) 空間の同時測定も可能であり、中性子スピネコー (NSE) 分光法における静的構造と関連づけたスローダイナミクス測定への利用拡大が期待される。

回転楕円体集光ミラーを用いた集光 NRSE 分光器の実現可能性の評価

集光 NRSE 分光器の提案は先行研究でなされていたが、回転楕円体集光ミラーの製作が非常に困難であったため、その検証実験はこれまでなされていなかった。しかし近年、京都大学複合原子力科学研究所と理化学研究所を中心としたグループの共同研究により製作に成功した。そこで本研究では製作された回転楕円体集光ミラーを用いて、パルス中性子源における集光 NRSE 分光器の実現可能性を実験的に評価した。利用する回転楕円体集光ミラーの集光特性、反射率を測定した後、これを用いてスピネコーシグナルの観測を試みた。実験では回転楕円体集光ミラーを試料の上流と下流に配置し、NRSE 分光器の一種である MIEZE 分光器を構築した。そして弾性散乱体であるダイヤモンドナノパウダーからの弾性小角散乱中性子の TOF-MIEZE シグナルを測定した。その結果、MIEZE シグナルのコントラストがダイレクトビームとほぼ変わらない、弾性散乱の MIEZE シグナルがパルス中性子源からの幅広い波長帯で観測できた。またダイレクトビームと散乱ビームはそれぞれ約 $5 \times 5 \text{ mm}^2$ 以内に集光した。この実験結果は散乱中性子を回転楕円体集光ミラーで集光させ、スピネコー実験に成功した初めての実験結果である。これにより集光ミラーを使うことで、試料への入射中性子のみならず試料による散乱中性子も集光する、集光 NRSE 分光器の実現可能性が実験的に示された。入射中性子ビームの集光は試料位置での中性子強度を増大させるので、散乱中性子の集光による効果と相まって、従来よりも弱い散乱が測定できる可能性を拓く。また、試料下流に回転楕円集光ミラーと検出器を複数設置することは容易であるので、NSE 分光法では困難な幅広い Q 領域にわたっての同時測定が可能であることも示している。

小型中性子源のためのリング状スリットを用いた SANS(r-SANS) 実験体系の開発

近年 SANS 実験のニーズは増加しており、より簡便に SANS 実験が行えることが望まれている。そこで研究室規模の小型中性子源での SANS 実験の可能性を示すため、集光ビームを利用する新たな SANS(r-SANS) 実験体系を開発した。r-SANS 体系ではリング状にコリメートされた中性子をリングをカバーできる大きさの平面状試料に入射することにより、リングの中心軸に沿って、試料から散乱された中性子が集光する。散乱中性子の名目散乱角は、リング状にコリメートされた入射中性子の特性と試料平面から集光位置までの距離に応じて決まる。また中性子波長はパルス中性子源で利用可能な TOF 法により決定できるので、名目散乱角が一定でも Q に対応した散乱中性子強度が測定できる。r-SANS 体系では中心軸上でのみ散乱中性子を検出するので、検出器の検出器窓の面積を狭くでき、バックグラウンドを低く抑えられる。実際、京都大学加速器駆動中性子源 KUANS で行なった r-SANS 実験でのバックグラウンドは、 $2.4 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (8.8 counts/h) と非常に低く抑えることができた。また r-SANS 体系で得られる小角散乱データは、試料の静的構造因子が Q に関して非対称に歪められた (スミアされた) ものなので、単純な分解能補正法が使えないが、静的構造因子のモデルを立て MC シミュレーションを援用することで実際に KUANS でシリカゲル試料の相関長を推定した。r-SANS 実験で得られた相関長は $1.09 \pm 0.12 \text{ nm}$ であり、SAXS 実験で得られた相関長 $1.058 \pm 0.004 \text{ nm}$ と比較し誤差の範囲で一致した。この結果は KUANS のような非常に中性子強度の弱い研究室規模の小型中性子源における SANS 実験の可能性を示しており、SANS 実験機会の増加に寄与することが期待される。

付録 A 章

2 回集光 (DF) 法の 2 次元平面における定式化

2 回集光 (DF) 法における経路長補正について数学的な背景を示すため、近似を用いて定式化を行った [113]。まず 1 回集光 (SF) 体系において焦点からずれたビームが通る経路長と焦点を通るビームの経路長との差 (経路長差) を定式化する。その結果を 2 つ目の楕円領域で生じる経路長差の評価に応用する。そして 2 つの結果を足し合わせることで 2 回集光 (DF) 体系における経路長差を計算する。

A.1 1 回集光体系

図 A.1 の SF 体系を考える。示されている記号とその意味は図 3.1 の一つ目の楕円領域中の記号と対応している。新しく $\angle B_1RA_1$ と $\angle B_2RA_2$ を $\delta\theta$ 、 $\angle OA_1R$ を θ_1 、 $\angle OA_2R$ を θ_2 と定義する。 $x = l_f$ 地点での y 方向への変異を Δ_2 と定義する。線分 l_1 と l_2 は次の関係を満たす。

$$l_1^2 = (l_f + x)^2 + y^2 \quad (\text{A.1})$$

$$l_2^2 = (l_f - x)^2 + y^2 \quad (\text{A.2})$$

線分 l'_1 は y を $y + \Delta_1$ に変更することで求まる。

$$l'_1 = \sqrt{(l_f + x)^2 + (y + \Delta_1)^2} \approx l_1 + \frac{y\Delta_1}{l_1} \quad (\text{A.3})$$

同様に線分 l'_2 は

$$l'_2 = \sqrt{(l_f - x)^2 + (y + \Delta_2)^2} \approx l_2 + \frac{y\Delta_2}{l_2} \quad (\text{A.4})$$

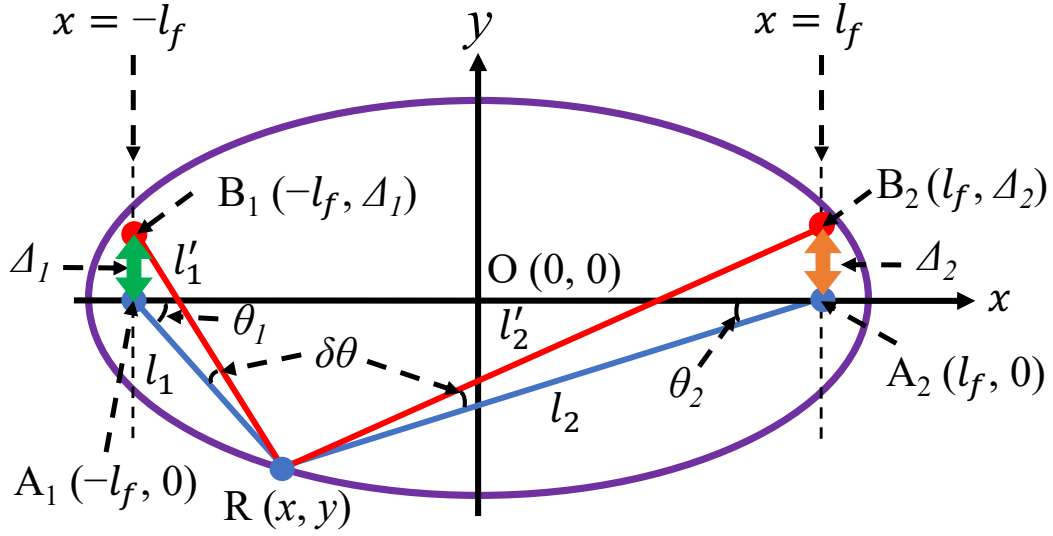


図 A.1 2次元平面での1回集光(SF)体系の概念図。

と求まる。式 (A.3) と (A.4) を式 (3.6) に代入することで一つ目の楕円領域における経路長差 δ は

$$\delta = \frac{y\Delta_1}{l_1} + \frac{y\Delta_2}{l_2} \quad (\text{A.5})$$

と書ける。

Δ_2 を Δ_1 と x で表すために、以下の関係を利用する。

$$\tan \theta_2 = \frac{y}{l_f - x} \quad (\text{A.6})$$

$$\tan(\theta_2 + \delta\theta) = \frac{y + \Delta_2}{l_f - x} \quad (\text{A.7})$$

$\delta\theta$ は小さいので、式 (A.7) の左辺は次のように近似できる。

$$\frac{\tan \theta_2 + \tan \delta\theta}{1 - \tan \theta_2 \tan \delta\theta} \approx \frac{\tan \theta_2 + \delta\theta}{1 - \tan \theta_2 \delta\theta} \approx \tan \theta_2 + (1 + \tan^2 \theta_2)\delta\theta = \tan \theta_2 + \frac{\delta\theta}{\cos^2 \theta_2} \quad (\text{A.8})$$

二つ目の近似では、 $|\tan \theta_2| < 1$ を仮定している。これは中性子集光ミラーの臨界角が小さいことを考えると妥当である。式 (A.7) の右辺は次のように書ける。

$$\frac{y + \Delta_2}{l_f - x} = \tan \theta_2 + \frac{\Delta_2}{l_f - x} \quad (\text{A.9})$$

式 (A.8)、(A.9) を (A.7) に代入し $\cos \theta_2 = \frac{l_f - x}{l_2}$ を利用すると

$$\Delta_2 = (l_f - x) \frac{\delta \theta}{\cos^2 \theta_2} = \frac{l_2^2 \delta \theta}{(l_f - x)} \quad (\text{A.10})$$

が成り立つ。

線分 $l_1(\overline{B_1R})$ についても同様に考えると

$$\delta \theta = \frac{(l_f + x) \Delta_1}{l_1^2} \quad (\text{A.11})$$

が成り立つ。式 (A.5)、(A.10)、(A.11) を利用すると δ は

$$\delta = \frac{y}{l_1} \left(1 + \frac{l_2(l_f + x)}{l_1(l_f - x)} \right) \Delta_1 \quad (\text{A.12})$$

と表せる。この結果は、 δ が Δ_1 に比例することを示しており、DF 法の有効性を理解する上で重要な点である。これは単にそれらの大きさが入射点と焦点の距離の差に依存するというばかりでなく、焦点の反対側にずれる場合には経路長差の符号も反転することを意味する。

図 A.2 は式 (A.12) より計算した x と δ の関係である。 Δ_1 はそれぞれ 1.5 と -1.5 mm を代入し計算した。楕円パラメータの a と b の値や x の領域は 3.2 節と同様である。図 A.2 の結果は解析解である図 3.2(a)、(b) の δ の結果とほぼ一致している。

式 (A.12) より δ は Δ_1 に比例するので、 δ と Δ_1 は同じ符号を持つことがわかる。また x の値が大きいと、 $|\delta|$ が小さくなっている。これは二つの理由が考えられる。一つ目は式 (A.11) からわかるように、 l_1 が短いほど $\delta \theta$ が大きくなるからである。二つ目は R が A_1 に近い時、反射ビームの飛行経路が長くなるため、理想的な経路長との差 $|l_2' - l_2|$ が大きくなるからである。

A.2 2回集光体系

図 A.3 に DF 体系の概念図を示す。この体系は二つの同じ楕円を直列に並べて構成されており、一つ目の楕円の右側の焦点と二つ目の楕円の左側の焦点は、同じ位置 (B_2) に配置する。この場合、二つ目の楕円領域の始点は、 $-\Delta_2$ だけ y 方向にずれた点と考えることができる。入射側の焦点からのずれは $-\Delta_2$ で与えられるので、二つ目の楕円領域による光路差は、前節の結果で Δ_1 を $-\Delta_2$ で置き換え、二つ目の楕円上の反射点 X' の x 座標が分かれば評価することができる。また、焦点からのずれの符号が異なることから、

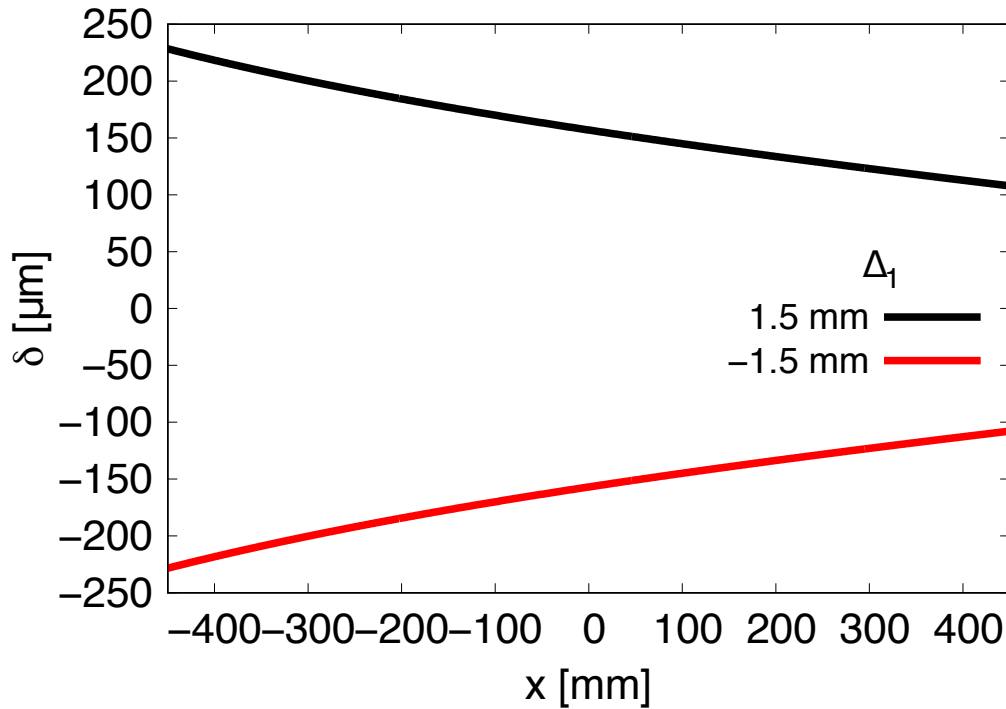


図 A.2 一つ目の楕円領域における、反射位置 R の x 座標に応じた経路長差 δ 。 Δ_1 は、図 A.1 中の A_1 からの y 方向へのずれを表す。

一つ目の楕円領域による δ をキャンセルするように、二つ目の楕円領域による δ' が加わることが示唆される。

二つ目の楕円に起因する PLD を計算するために座標の原点を再定義する。また理想的な焦点を通過し点 X' で二つ目の楕円と交わる参照ビームを考える。DF 体系の対称性から、 X' の座標は $(-x, -y)$ となる。ずれたビーム (赤線) は、 X'' で反射する。式 (A.12) より、 Δ_1 を $-\Delta_2$ に変更し、 X'' の x 座標を用いることで、二つ目の楕円による PLD を評価できる。

評価を簡単にするため、 X' と X'' の y 座標の値は同じであると近似する。この近似は、以下の二つの理由で妥当である。(1) $a \gg b$ により楕円の形が x 軸に沿って長い。(2) 中性子スーパーミラーの臨界角を考えると、集光ミラーの領域は楕円上の $x = 0$ 付近に限られる。 X'' が x 方向に関して異なる理由は、図 A.3 からわかるように、 $\delta\theta$ に起因する δx_1 と Δ_2 に起因する δx_2 に分けられる。 δx_1 は、 A_2 を通過しかつ R からの反射ビーム (赤線) に対して平行であるビーム (緑線) を評価することで求まる。この条件を考えると

と書ける。始点の y 方向へのずれが $-\Delta_2$ で反射位置の x 座標が x'' とすると、二つ目の楕円による経路長差 δ' は式 (A.12) を用いて以下のように書ける。

$$\delta' = -\frac{y'}{l'_1} \left(1 + \frac{l'_2(l_f + x'')}{l'_1(l_f - x'')} \right) \Delta_2 \quad (\text{A.19})$$

ここで

$$y' = \sqrt{b^2 - \frac{b^2}{a^2} x''^2} \quad (\text{A.20})$$

$$l_1'^2 = (f + x'')^2 + y'^2 \quad (\text{A.21})$$

$$l_2'^2 = (f - x'')^2 + y'^2 \quad (\text{A.22})$$

である。

図 A.4 に式 (A.12) を用いて計算した δ と式 (A.19) を用いて計算した δ' と DF 体系の距離差であるそれらの和 $\delta + \delta'$ を示す。近似なしの結果である図 3.2 と比較すると、特に x が小さい領域において δ' の両者に大きな違いがあることがわかる。これは δ' を求める際に行った近似の影響である。しかし、 $\delta + \delta'$ の全体の傾向としては近似なしの結果と類似している。

これらの評価から楕円ミラーによる反射では、ビームが焦点から発出した場合に比べて、ずれた点から発出するとそのずれの距離に比例して経路長が異なることが分かった。そして二つ目の楕円領域への、入射点 (焦点位置) での y 方向へのずれの符号が、一つ目の楕円における発出点の焦点位置からのずれの符号と必ず反対になることから、二つの楕円を直列につなげることで一つ目の楕円領域でついた距離差が二つ目の楕円領域で打ち消されることがわかった。また、打ち消されない場合でも負の距離差が残ることがわかった。

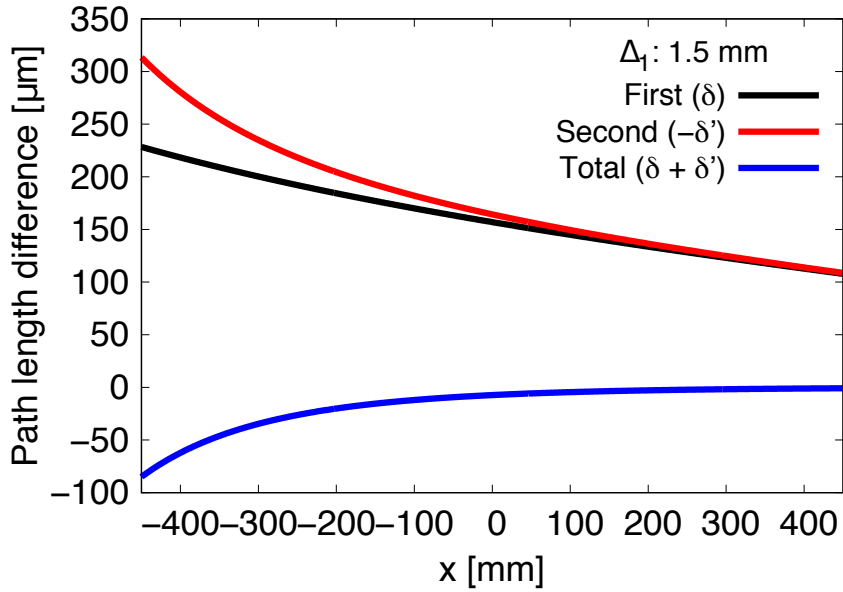
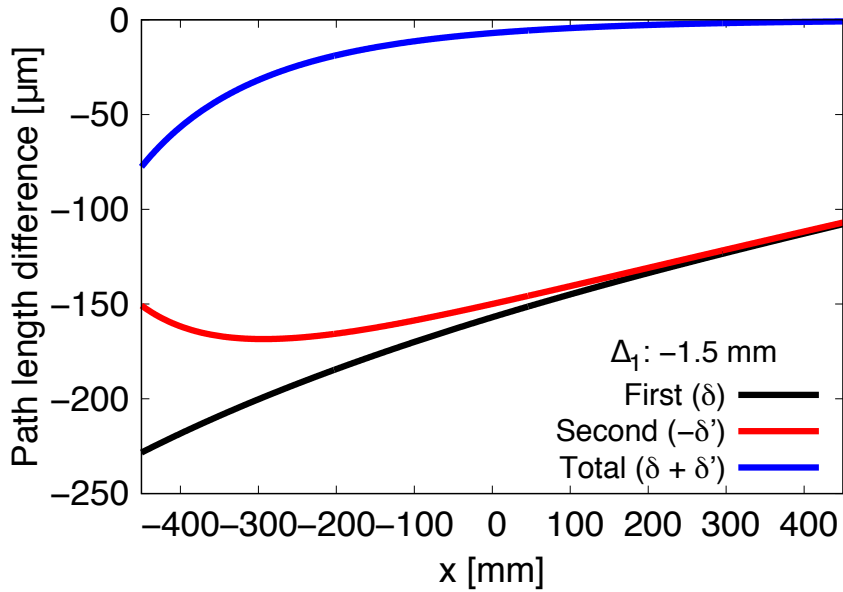
(a) $\Delta_1 = 1.5$ mm(b) $\Delta_1 = -1.5$ mm

図 A.4 近似式を用いて評価した一つ目の楕円領域 (δ)、二つ目の楕円領域 (δ')、2回集光体系による経路長差 (PLD) を、一つ目の楕円上の反射点 R の x の関数で描いた結果。(a) $\Delta_1 = 1.5$ mm、(b) $\Delta_1 = -1.5$ mm。 δ と δ' の計算には、それぞれ式 (A.12) と (A.19) を用いた。なお δ' は、 δ と比較しやすいように -1 を乗じている。

付録 B 章

回転楕円体集光ミラーの特性評価

集光 NRSE 分光器のキーデバイスである回転楕円体集光ミラーの実験的評価を行った。回転楕円体集光ミラーは技術的に製作が難しく、最近実現した新しいデバイスである。そこで J-PARC MLF BL06 の NRSE ラインにおいて長さ 900 mm、偏角 20° 分 (3 セグメント分) の回転楕円集光ミラーの集光特性と中性子波長ごとの反射率を測定した。

B.1 集光特性

実験体系を図 B.1 に示す。NRSE ラインの中性子ガイドは、曲導管によって上下左右の両方向で集光するビームを整形している。曲導管は、ガンマ線や高速中性子の少ない低速中性子のみを輸送するため、減速材を直接見込まないように設計されている。ガイド管出口の中性子スペクトルは文献 [39] に示されている。本実験で使用した中性子ビームはガイド管からの中性子を偏極ミラーで反射した中性子を使用した。また、陽子ビームの繰り返し周波数は 25 Hz であるが、中性子のフレームオーバーラップを防ぐためにディスクチョッパーによって中性子の繰り返し周期を 12.5 Hz に削減し実験を行った。

この中性子を回転楕円体集光ミラーの焦点位置に設置した直径 1 mm のピンホールスリットに入射した。また、集光ミラーに照射できる面積だけを切り抜いた扇状スリットを集光ミラー直前に設置した。集光ミラーは地面と平行な軸である z に対して 3° 傾けて設置することで集光ミラーに入射しないビームを遮蔽した。検出器表面は y' 軸に対して平行になるように傾けた。検出器位置を集光位置 $z = L_f = 1248$ mm から 2 cm 幅で ± 10 cm 移動させ、集光ビームの 2 次元強度分布を測定した。図 B.2 に検出器を $z = L_f - 10$, L_f , $L_f + 10$ cm の位置に設置した時の 2 次元強度分布を示す。KP はキッカーパルス数であり、陽子ビームが JSNS に入射する時のタイミング信号と 12.5 Hz で回転するディス

クチョッパーの同期信号の論理積を取った信号である [114]。使用した検出器のピクセル幅は 0.113 mm に相当する。図 B.1 からわかるように検出器をミラーに近づけた時は y' が小さい位置 (検出器下側) に集光ビームが観測でき、 z が大きくなるにつれて y' が大きい位置に移動した。集光ビームの下側に伸びる、弱い中性子強度は集光ミラーからの散漫散乱である。

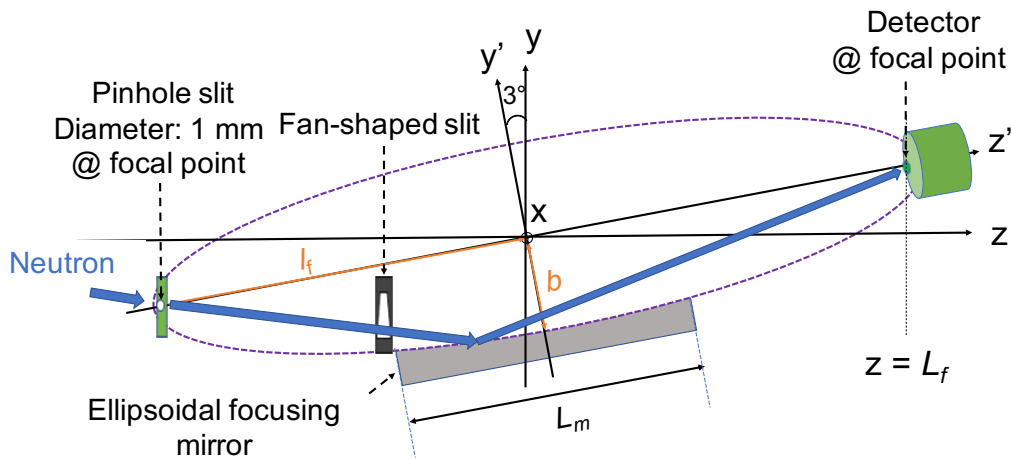


図 B.1 集光特性の評価の実験体系。

観測した 2 次元強度分布を y' と x 方向についてそれぞれ積分し、 x 方向、 y' 方向それぞれの集光特性を評価した。 x 方向への集光特性を評価するため、各検出器位置 $z = L_f - 10, L_f, L_f + 10$ cm における 2 次元強度分布を検出器平面上 y' 方向に積分したヒストグラムとそれぞれのヒストグラムについて、ガウス関数を用いて行ったフィッティング結果を図 B.3(a) に示す。 $z = L_f$ でピーク強度が一番大きくなり、ガウス関数の標準偏差が小さくなっていることがわかる。このフィッティングを検出器位置を z 方向に $L_f - 10$ から $L_f + 10$ cm の間で 2 cm 毎に移動させ取得したヒストグラムにおいて同様に行った。それぞれの検出器位置における中性子強度のピーク位置と標準偏差からも止まる半値全幅 (FWHM) についてまとめた結果が図 B.3(b) である。横軸は検出器位置 $z - L_f$ 、左軸と右軸はそれぞれフィッティングにより求めたピーク強度と FWHM である。エラーバーはフィッティングによって求められたパラメータ誤差である。図から明らかのように集光位置でピーク強度が最大になり FWHM が最小になることが分かる。これより、中性子ビームが x 方向に集光していることが確かめられた。集光位置での FWHM は 2.0 mm であった。これは設置したピンホールの直径 1 mm を考慮すると妥当である。

y' 方向への集光特性を評価するため、各検出器位置 z での検出器平面上 x 方向に積分

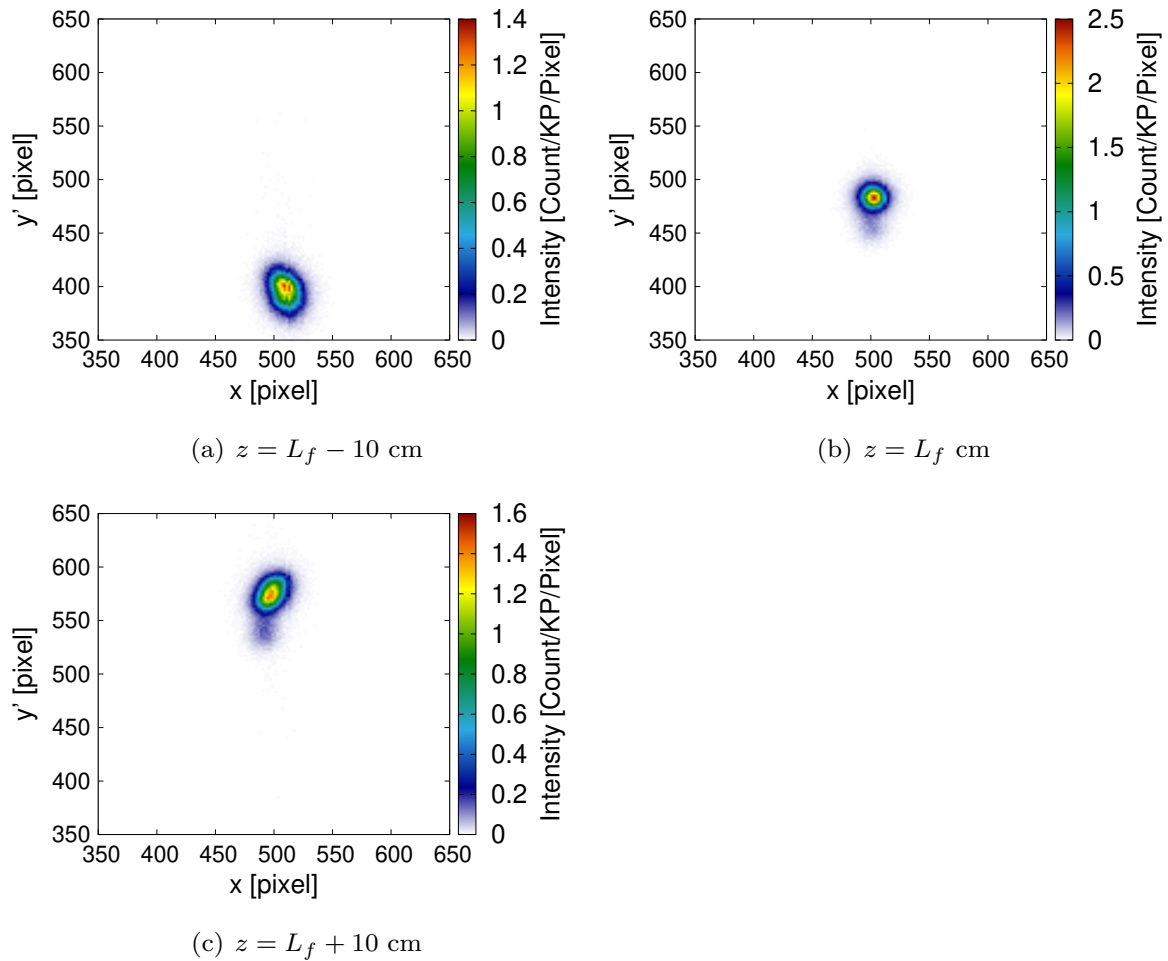
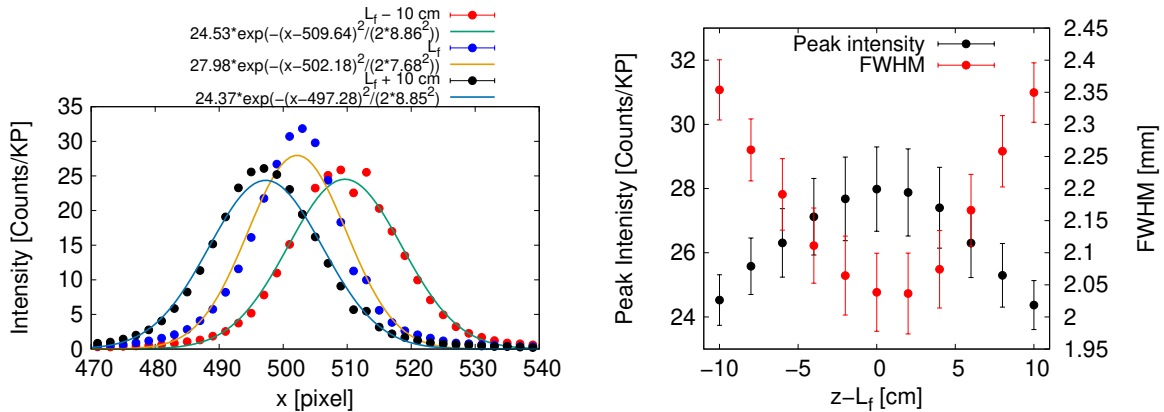


図 B.2 2 次元検出器を集光位置 (L_f) からずらした時の、中性子強度の 2 次元分布 (a) $z = L_f - 10$ cm、(a) $z = L_f$ cm、(c) $z = L_f + 10$ cm。KP はキッカーパルス数であり、1 pixel は 0.113 mm に対応する。

したヒストグラムとそのフィッティング結果を図 B.4(a) に示す。 x 方向への集光特性結果と同様に $z = L_f$ でピーク強度が一番大きくなり、ガウス関数の標準偏差が小さくなっていることがわかる。同様に、このフィッティングを検出器位置を z 方向に $L_f - 10$ から $L_f + 10$ cm の間で 2 cm 毎に移動させ取得したヒストグラムについて行った。フィッティング結果のピーク位置と標準偏差からも止まる半値全幅 (FWHM) についてまとめた結果を図 B.4(b) に示す。横軸は検出器位置 $z - L_f$ 、左軸と右軸はそれぞれピーク強度と FWHM である。図から明らかなように集光位置でピーク強度が最大になり FWHM が最小になっていることが分かる。集光位置での FWHM は 2.2 mm であった。 x 方向への集光 (y' 方向に積分した時) と比べ少し広がっているのは、散漫散乱による影響だと考える。



(a) 図 B.2 を y' 方向に積分したヒストグラム。 (b) フィットtingによって求めた検出器位置ごとのピーク強度と半値全幅。

図 B.3 測定された 2 次元強度分布を y' 方向に積分した結果の解析結果。(a) 検出器位置 z が $L_f - 10$ 、 L_f 、 $L_f + 10$ cm の時の積分値とガウス関数によるフィッティング結果。(b) 検出器位置を $z = L_f - 10$ cm から $L_f + 10$ cm の範囲で 2 cm ずつ移動し、 y' 方向に積分した結果に対する、ガウス関数によるフィッティング結果。左軸はピーク強度、右軸は半値全幅を表す。KP はキッカーパルス数である。

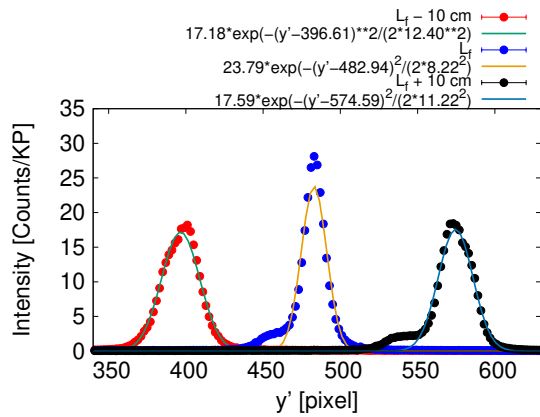
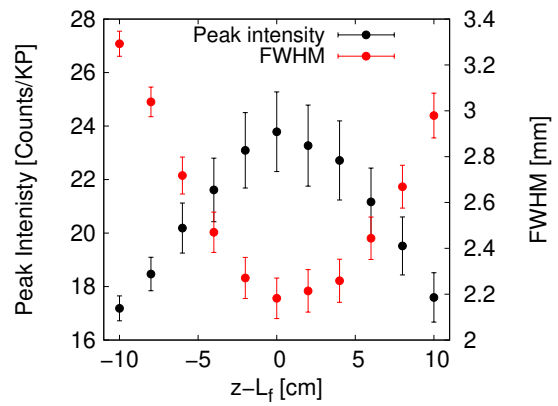
これより、中性子ビームが y' 方向にも集光していることが確かめられた。

またフィッティングにより求められた頂点の y' 値を各 z について示した結果を図 B.4(c) に示す。この結果を線形関数でフィッティングすることより、ビームの打ち上がり角度を求めた。その結果打ち上がり角度は $8.88 \times \frac{0.113}{10} = 0.1 \text{ rad}$ (5.7°) であった。よって長さ 900 mm の回転楕円体集光ミラーを一枚の平面ミラーと近似した場合の平均の反射角は 2.85° と評価できた。これは集光ミラーの設置角度である 3° と少し異なる。この理由は、中性子導管から出てきた中性子ビームの角度分布に応じた強度むらや設置誤差によるものだと考える。

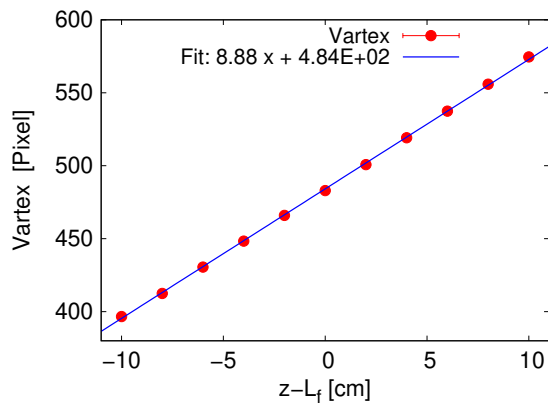
以上の実験結果により、製作された回転楕円体集光ミラーからの集光ビームはその回転楕円体パラメータから予想される軌道で集光していることが確かめられた。これにより、製作された回転楕円体集光ミラーの幾何形状が、設計したものと同様であることが実験的に示された。

B.2 輸送効率と反射率

集光ミラーでの輸送効率や波長ごとの反射率を調べるため、集光ミラーの有無による中性子強度の比較を行った。反射ビームの測定は図 B.1 の体系で、検出器を $Z = L_f$ の位置

(a) 図 B.2 を x 方向に積分したヒストグラム。

(b) フィッティングによって求めた検出器位置ごとのピーク強度と半値全幅。



(c) フィッティングによって求めた頂点と検出器位置の関係。

図 B.4 測定された 2 次元強度分布を x 方向に積分した結果の解析結果。(a) 検出器位置 z が $L_f - 10$ 、 L_f 、 $L_f + 10$ cm の時の積分値とガウス関数によるフィッティング結果。(b) 検出器位置を $z = L_f - 10$ cm から $L_f + 10$ cm の範囲で 2 cm ずつ移動し、 x 方向に積分した結果に対する、ガウス関数によるフィッティング結果。左軸はピーク強度、右軸は半値全幅を表す。KP はキッカーパルス数である。(c) 検出器位置 $z - L_f$ に対するガウスフィッティングにより求めた頂点位置 y' 。反射したビームの平均的な打ち上がり角度を求めるための線形関数によるフィッティング結果も示す。

に設置して行なった。ダイレクトビーム測定の実験体系を図 B.5 に示す。集光ミラーをビームが当たらない位置にずらし、検出器を y と平行に移動させることでピンホールから広がってくる中性子ビームを直接検出した。検出された 2 次元強度分布を図 B.6 に示す。扇状スリット形状を拡大した形が確認でき、約 $4.5 \times 3 \text{ cm}^2$ に広がっていることがわかる。また中性子導管から出てきた中性子ビームの角度分布に応じた強度むらも確認できる。

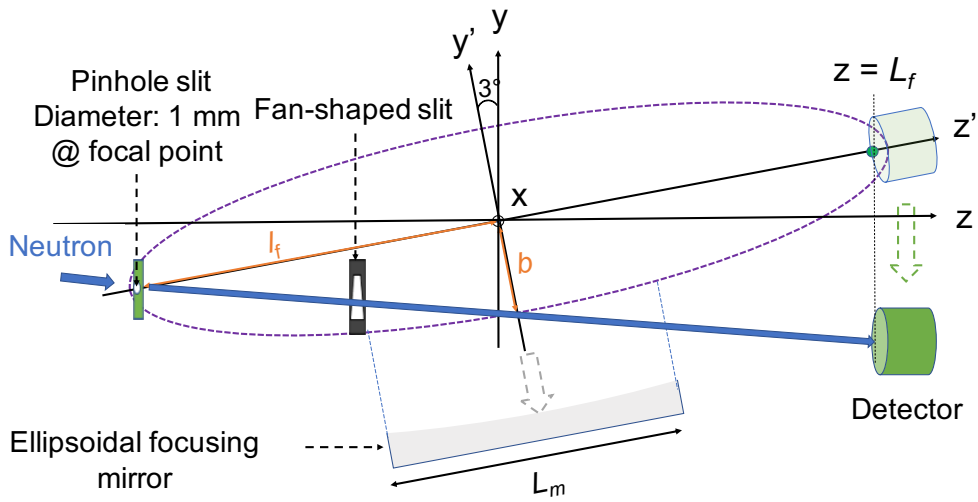


図 B.5 ダイレクトビーム測定の実験体系。

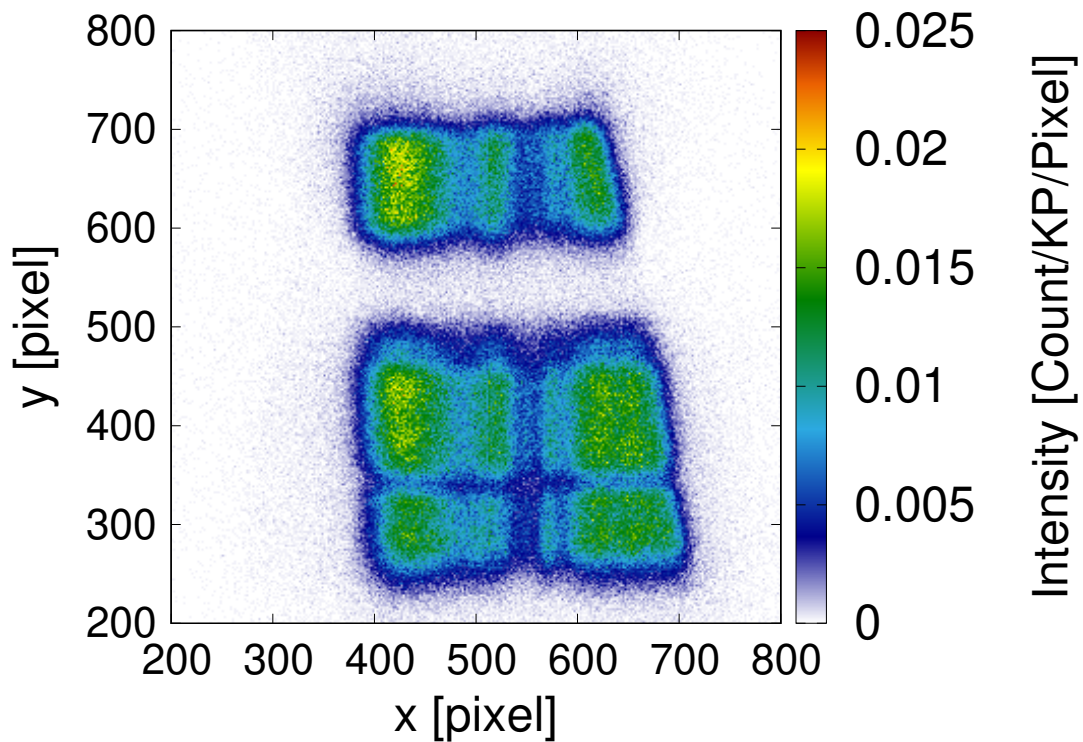


図 B.6 ダイレクトビームの2次元強度分布。

2次元強度分布図 B.2(b)(Reflected beam)、B.6(Direct beam) に対応する TOF スペクトルを図 B.7 に示す。横軸は TOF で上部横軸は対応する中性子の波長である。減速材

から検出器までの総飛行距離は 25.9 m であった。左軸はキッカーパルス数で規格化した中性子強度、右軸は反射ビーム強度をダイレクトビーム強度で割った値に対応する。両測定において、波長が約 0.65–1.45 nm の幅広いエネルギーの中性子が観測された。青線は各波長毎の中性子の反射率を示す。波長が長いほど中性子の運動量遷移 Q が小さいので、反射率が高いことがわかる。製作された回転楕円体集光ミラーは波長 0.7 nm 以上の中性子において、83% 以上の反射率を示した。この結果は JSNS からの幅広い中性子波長に対応した回転楕円体集光ミラーが実現していることを示している。

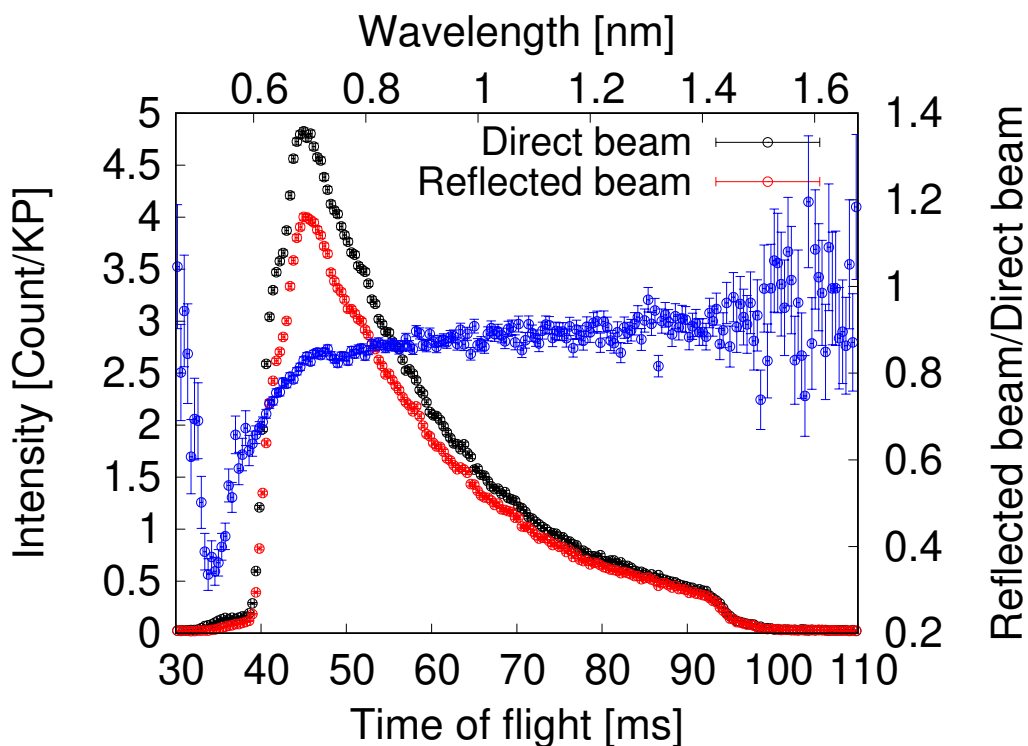


図 B.7 ダイレクトビームと反射ビームの TOF スペクトルの比較。右軸は反射ビーム強度をダイレクトビーム強度で割った値 (青点) に対応する。

全波長に関して積分するとダイレクトビーム強度が 263 ± 0.25 [Count/KP] に対して反射ビーム強度は 222 ± 0.22 [Count/KP] であった。ダイレクトビーム強度に対する反射ビーム強度の比から中性子の輸送効率は $85 \pm 0.12\%$ と求められる。つまり、集光ミラーが設置されない場合、図 B.6 のように約 $4.5 \times 3 \text{ cm}^2$ に広がる中性子の内、85% が図 B.2(b) ように約 5 mm^2 の領域に集光することが確認できた。それぞれの体系で観測された最大中性子強度 (count/KP/pixel) は集光ミラーを用いた方が 101 倍高かった。この実験結果から回転楕円体集光ミラーを用いた高輝度化が実現可能であることが実験的に示さ

れた。これは試料上流に集光ミラーを用いることで、試料位置での高輝度化が可能であるというだけでなく、試料下流に集光ミラーを設置することで微小試料からの散乱中性子を集光し、検出器位置での高輝度化が可能であるということを示している。集光位置のみで中性子を検出することから、遮蔽を強化することができバックグラウンドの低下も期待できる。以上の結果より、開発された回転楕円体集光ミラーを用いることで、従来よりも弱い散乱が測定できる可能性があると考えられる。

付録 C 章

式 (5.1) の導出

Slit3 上の半径 l の点から見込める Slit1 平面上の面積を求めるための計算体系を図 C.1 に示す。求める面積 A_{S1} は、半径 l に依存しない部分の面積 S と l に依存する部分の面積の l に対する平均値 $S(l)$ を用いて以下のように書ける。

$$A_{S1} = 2S + S(l) \quad (\text{C.1})$$

θ_1 と θ_2 は図 C.1 よりそれぞれ $\arccos \frac{R_{min}}{R_{max}}$ 、 $\arccos \frac{R_{min}}{l}$ である。また S は

$$S = \frac{R_{max}^2 \theta_1}{2} - \frac{R_{min} R_{max} \sin \theta_1}{2} \quad (\text{C.2})$$

と表せる。半径 l の時の l に依存する面積 $S'(l)$ は

$$S'(l) = \theta_2 (R_{max}^2 - R_{min}^2) \quad (\text{C.3})$$

と表せる。半径 l が R_{min} から R_{max} の場合、 $S'(l)$ の l に対する平均値 $S(l)$ は

$$S(l) = \frac{\int_{R_{min}}^{R_{max}} S'(l) dl}{\int_{R_{min}}^{R_{max}} dl} = (R_{max} + R_{min}) \int_{R_{min}}^{R_{max}} \theta_2 dl \quad (\text{C.4})$$

と計算できるので、式 (C.2) と (C.4) を式 (C.1) に代入すると式 (5.1) となる。

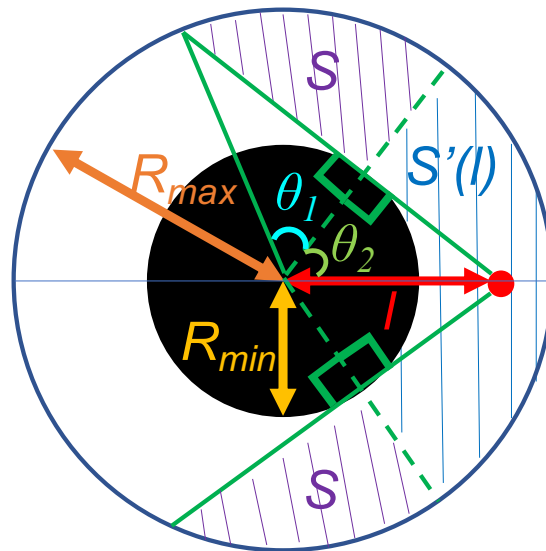


図 C.1 Slit3 上の半径 l の点から見定める Slit1 平面上の面積を定式化するための計算体系。

参考文献

- [1] J. Chadwick. Possible existence of a neutron. *Nature*, 129(3252):312–312, 1932.
- [2] J. Chadwick. The existence of a neutron. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 136(830):692–708, 1932.
- [3] G. L. Squires. *Introduction to the theory of thermal neutron scattering*. Courier Corporation, 1996.
- [4] 鬼柳善明. 加速器を用いた中性子源 (特集 広がる加速器の利用 中性子). *加速器: 日本加速器学会誌*, 13(4):192–197, 2016.
- [5] J. R. Lamarsh, A. J. Baratta, et al. *Introduction to nuclear engineering*, volume 3. Prentice hall Upper Saddle River, NJ, 2001.
- [6] E. Fermi and L. Marshall. Interference phenomena of slow neutrons. *Physical Review*, 71(10):666, 1947.
- [7] D. S. Sivia. *Elementary scattering theory: for X-ray and neutron users*. Oxford University Press, 2011.
- [8] S. Peggs. ESS Technical Design Report (2013).
- [9] S.-H. Chen, F. Mallamace, C.-Y. Mou, M. Broccio, C. Corsaro, A. Faraone, and L. Liu. The violation of the Stokes–Einstein relation in supercooled water. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 103(35):12974–12978, 2006.
- [10] T. Yamada and T. Tominaga. In Situ Quasi-Elastic Neutron Scattering of Nafion Membrane with Water–Vapor Pressure Control System. In *Proceedings of the 3rd J-PARC Symposium (J-PARC2019)*, page 011085, 2021.
- [11] H. Seto and T. Yamada. Quasi-elastic neutron scattering study of the effects of metal cations on the hydration water between phospholipid bilayers. *Applied Physics Letters*, 116(13):133701, 2020.

- [12] I. Anderson, C. Andreani, J. Carpenter, G. Festa, G. Gorini, C.-K. Loong, and R. Senesi. Research opportunities with compact accelerator-driven neutron sources. *Physics Reports*, 654:1–58, 2016.
- [13] S. Koizumi and Y. Noda. A Variety of Small-angle Neutron Scattering Instruments Available in Tokyo Area, Japan—Complimentary Use of Accelerator and Reactor—. In *Proceedings of the 3rd International Symposium of Quantum Beam Science at Ibaraki University” Quantum Beam Science in Biology and Soft Materials (ISQBSS2018)”*, page 011004, 2019.
- [14] H. Wu, W. Hong, Y. Zhang, P. Bai, W. Mo, Y. Yang, H. Gong, Z. Zhang, X. Xu, W. Cai, et al. Conceptual design of the grazing-incidence focusing small-angle neutron scattering (gif-SANS) instrument at CPHS. *Journal of Neutron Research*, 23:1–5, 2021.
- [15] F. Mezei. Neutron spin echo: A new concept in polarized thermal neutron techniques. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and nuclei*, 255(2):146–160, 1972.
- [16] R. Gähler, R. Golub, K. Habicht, T. Keller, and J. Felber. Space-time description of neutron spin echo spectrometry. *Physica B: Condensed Matter*, 229(1):1–17, 1996.
- [17] R. Gähler and R. Golub. A high resolution neutron spectrometer for quasielastic scattering on the basis of spin-echo and magnetic resonance. *Zeitschrift für Physik B Condensed Matter*, 65(3):269–273, 1987.
- [18] Characteristics of IN11. <https://www.ill.eu/users/instruments/instruments-list/in11/characteristics>. Accessed: 2021-04-24.
- [19] Characteristics of IN15. <https://www.ill.eu/users/instruments/instruments-list/in15/characteristics>. Accessed: 2021-04-24.
- [20] F. Mezei, editor. *Neutron spin echo*, volume 128 of Lecture Notes in Physics. Springer, 1980.
- [21] M. Monkenbusch, R. Schätzler, and D. Richter. The Jülich neutron spin-echo spectrometer—Design and performance. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 399(2-3):301–323, 1997.
- [22] O. Holderer, M. Monkenbusch, R. Schätzler, H. Kleines, W. Westerhausen, and D. Richter. The JCNS neutron spin-echo spectrometer J-NSE at the FRM II. *Measurement science and technology*, 19(3):034022, 2008.

-
- [23] S. Pasini and M. Monkenbusch. Optimized superconducting coils for a high-resolution neutron spin-echo spectrometer at the European Spallation Source, ESS. *Measurement science and technology*, 26(3):035501, 2015.
- [24] S. Pasini, O. Holderer, T. Kozielowski, D. Richter, and M. Monkenbusch. J-nse-phoenix, a neutron spin-echo spectrometer with optimized superconducting precession coils at the mlz in garching. *Review of scientific instruments*, 90(4):043107, 2019.
- [25] N. Rosov, S. Rathgeber, and M. Monkenbusch. Neutron spin echo spectroscopy at the NIST Center for Neutron Research. 2000.
- [26] T. Takeda, S. Komura, H. Seto, M. Nagai, H. Kobayashi, E. Yokoi, C. M. Zeyen, T. Ebisawa, S. Tasaki, Y. Ito, et al. A neutron spin echo spectrometer with two optimal field shape coils for neutron spin precession. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 364(1):186–192, 1995.
- [27] M. Ohl, M. Monkenbusch, N. Arend, T. Kozielowski, G. Vehres, C. Tiemann, M. Butzek, H. Soltner, U. Giesen, R. Achten, et al. The spin-echo spectrometer at the Spallation Neutron Source (SNS). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 696:85–99, 2012.
- [28] P. Zolnierczuk, O. Holderer, S. Pasini, T. Kozielowski, L. Stingaciu, and M. Monkenbusch. Efficient data extraction from neutron time-of-flight spin-echo raw data. *Journal of applied crystallography*, 52(5):1022–1034, 2019.
- [29] C. Pappas, G. Kali, T. Krist, P. Böni, and F. Mezei. Wide angle NSE: the multidetector spectrometer SPAN at BENSC. *Physica B: Condensed Matter*, 283(4):365–371, 2000.
- [30] C. Pappas, R. Kischnik, and F. Mezei. Wide angle NSE: the spectrometer SPAN at BENSC. *Physica B: Condensed Matter*, 297(1-4):14–17, 2001.
- [31] P. Fouquet, G. Ehlers, B. Farago, C. Pappas, and F. Mezei. The wide-angle neutron spin echo spectrometer project WASP. *Journal of Neutron Research*, 15(1):39–47, 2007.
- [32] Characteristics of WASP. <https://www.ill.eu/users/instruments/instruments-list/wasp/characteristics>. Accessed: 2021-04-24.
- [33] M. Kaisermayr, M. Rennhofer, G. Vogl, C. Pappas, and S. Longeville. Neutron

- spin-echo spectroscopy for diffusion in crystalline solids. *Physical Review B*, 66(2):024302, 2002.
- [34] W. Häussler, B. Gohla-Neudecker, R. Schwikowski, D. Streibl, and P. Böni. RESEDA—The new resonance spin echo spectrometer using cold neutrons at the FRM-II. *Physica B: Condensed Matter*, 397(1-2):112–114, 2007.
- [35] C. Franz, O. Soltwedel, C. Fuchs, S. Säubert, F. Haslbeck, A. Wendl, J. K. Jochum, P. Böni, and C. Pfeleiderer. The longitudinal neutron resonant spin echo spectrometer RESEDA. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 939:22–29, 2019.
- [36] C. Franz, S. Säubert, A. Wendl, F. X. Haslbeck, O. Soltwedel, J. K. Jochum, L. Spitz, J. Kindervater, A. Bauer, P. Böni, et al. Mieze neutron spin-echo spectroscopy of strongly correlated electron systems. *Journal of the Physical Society of Japan*, 88(8):081002, 2019.
- [37] M. Krautloher, J. Kindervater, T. Keller, and W. Häußler. Neutron resonance spin echo with longitudinal DC fields. *Review of Scientific Instruments*, 87(12):125110, 2016.
- [38] M. Hino, T. Oda, M. Kitaguchi, N. L. Yamada, H. Sagehashi, Y. Kawabata, and H. Seto. Current status of BL06 beam line for VIN ROSE at J-PARC/MLF. *Physics Procedia*, 42:136–141, 2013.
- [39] M. Hino, T. Oda, N. L. Yamada, H. Endo, H. Seto, M. Kitaguchi, M. Harada, and Y. Kawabata. Supermirror neutron guide system for neutron resonance spin echo spectrometers at a pulsed neutron source. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 54(11):1223–1232, 2017.
- [40] J-PARC 物質・生命科学実験施設 Web サイト「中性子源の性能」. <http://j-parc.jp/researcher/MatLife/ja/instrumentation>. Accessed: 2021-09-11.
- [41] T. Oda, M. Hino, H. Endo, H. Seto, and Y. Kawabata. Tuning Neutron Resonance Spin-Echo Spectrometers with Pulsed Beams. *Physical Review Applied*, 14(5):054032, 2020.
- [42] T. Nakajima, T. Oda, M. Hino, H. Endo, K. Ohishi, K. Kakurai, A. Kikkawa, Y. Taguchi, Y. Tokura, and T.-h. Arima. Crystallization of magnetic skyrmions in MnSi investigated by neutron spin echo spectroscopy. *Physical Review Research*, 2(4):043393, 2020.

-
- [43] R. Georgii, J. Kindervater, C. Pfeiderer, and P. Böni. RESPECT: Neutron resonance spin-echo spectrometer for extreme studies. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 837:123–135, 2016.
- [44] Time-of-Flight Wide-Angle Neutron Spin Echo at STS EXPANSE. <https://conference.sns.gov/event/272>. Accessed: 2021-09-03.
- [45] M. Monkenbusch. On solenoid design for neutron spin echo spectrometers. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 287(3):465–475, 1990.
- [46] M. Bleuel, F. Demmel, R. Gähler, R. Golub, K. Habicht, T. Keller, S. Klimko, I. Köper, S. Longeville, and S. Prokudaylo. Future developments in resonance spin echo. In *Neutron Spin Echo Spectroscopy*, pages 176–200. Springer, 2002.
- [47] 阿知波紀郎 et al. 中性子スピン光学, 2003.
- [48] L. Van Hove. Correlations in space and time and Born approximation scattering in systems of interacting particles. *Physical Review*, 95(1):249, 1954.
- [49] 長尾道弘. 中性子スピンエコーの原理. *波紋*, 19(1):42–48, 2009.
- [50] I. I. Rabi, N. F. Ramsey, and J. Schwinger. Use of rotating coordinates in magnetic resonance problems. *Reviews of Modern Physics*, 26(2):167, 1954.
- [51] L. W. Alvarez and F. Bloch. A quantitative determination of the neutron moment in absolute nuclear magnetons. *Physical review*, 57(2):111, 1940.
- [52] M. Monkenbusch, R. Schätzler, and D. Richter. The Jülich neutron spin-echo spectrometer — Design and performance. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 399(2):301–323, 1997.
- [53] B. Böhm. Test und Weiterentwicklung eines longitudinalen Neutronenresonanzspinechos. http://www.physi.uni-heidelberg.de/Publications/dipl_boehm.pdf, 2003. (Master’s thesis), Accessed: 2021-04-24.
- [54] C. Zeyen, P. Rem, R. Hartmann, and L. Van de Klundert. Optimal neutron Larmor precession magnets. *IEEE transactions on magnetics*, 24(2):1540–1543, 1988.
- [55] R. Maruyama, M. Hino, H. Hayashida, M. Kitaguchi, N. Achiwa, D. Yamazaki, T. Ebisawa, and K. Soyama. A beam divergence correction mirror for neutron resonance spin echo. *Physica B: Condensed Matter*, 404(17):2594–2599, 2009.

- [56] M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, S. Tasaki, R. Maruyama, and T. Ebisawa. High resolution NRSE spectrometer with 2D-focusing supermirrors. *Physica B: Condensed Matter*, 406(12):2470–2472, 2011.
- [57] T. Oda, M. Hino, M. Kitaguchi, and Y. Kawabata. Numerical simulation of a beam divergence correction for NRSE spectrometer using polygonal 2D-focusing supermirrors. *Physics Procedia*, 42:121–124, 2013.
- [58] T. Weber, G. Brandl, R. Georgii, W. Häußler, S. Weichselbaumer, and P. Böni. Monte-Carlo simulations for the optimisation of a TOF-MIEZE instrument. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 713:71–75, 2013.
- [59] T. Hosobata, M. Hino, H. Yoshinaga, T. Kawai, H. Endo, Y. Yamagata, N. L. Yamada, and S. Takeda. Precision mechanical design of 900 mm long ellipsoidal neutron-focusing supermirror for VIN ROSE at J-PARC/MLF. In *Proceedings of the International Conference on Neutron Optics (NOP2017)*, page 011010, 2018.
- [60] P. K. Willendrup and K. Lefmann. McStas (i): Introduction, use, and basic principles for ray-tracing simulations. *Journal of Neutron Research*, (Preprint):1–16, 2019.
- [61] P. K. Willendrup and K. Lefmann. McStas (ii): An overview of components, their use, and advice for user contributions. *Journal of Neutron Research*, (Preprint):1–21, 2020.
- [62] M. Appel, B. Frick, and A. Magerl. A flexible high speed pulse chopper system for an inverted neutron time-of-flight option on backscattering spectrometers. *Scientific reports*, 8(1):1–8, 2018.
- [63] P. Böni. High intensity neutron beams for small samples. In *Journal of Physics: Conference Series*, volume 502, page 012047. IOP Publishing, 2014.
- [64] F. Mezei. The raison d’être of long pulse spallation sources. *Journal of Neutron Research*, 6(1-3):3–32, 1997.
- [65] C. Schanzer, P. Böni, U. Filges, and T. Hils. Advanced geometries for ballistic neutron guides. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 529(1-3):63–68, 2004.
- [66] S. Mühlbauer, M. Stadlbauer, P. Böni, C. Schanzer, J. Stahn, and U. Filges.

-
- Performance of an elliptically tapered neutron guide. *Physica B: Condensed Matter*, 385:1247–1249, 2006.
- [67] K. H. Andersen, D. N. Argyriou, A. J. Jackson, J. Houston, P. F. Henry, P. P. Deen, R. Toft-Petersen, P. Beran, M. Strobl, T. Arnold, et al. The instrument suite of the European Spallation Source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 957:163402, 2020.
- [68] H. Hayashida, M. Hino, M. Kitaguchi, Y. Kawabata, and N. Achiwa. A study of resolution function on a MIEZE spectrometer. *Measurement Science and Technology*, 19(3):034006, 2008.
- [69] G. Brandl, R. Georgii, W. Häußler, S. Mühlbauer, and P. Böni. Large scales—long times: Adding high energy resolution to SANS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 654(1):394–398, 2011.
- [70] H. Endo, T. Oda, M. Hino, and T. Hosobata. Current status of the neutron resonance spin echo spectrometer on BL06 “VIN ROSE” at MLF, J-PARC. *Physica B: Condensed Matter*, 564:91–93, 2019.
- [71] R. Gähler, R. Golub, and T. Keller. Neutron resonance spin echo—a new tool for high resolution spectroscopy. *Physica B: Condensed Matter*, 180:899–902, 1992.
- [72] T. Oda, M. Hino, M. Kitaguchi, P. Geltenbort, and Y. Kawabata. Pulsed neutron time-dependent intensity modulation for quasi-elastic neutron scattering spectroscopy. *Review of Scientific Instruments*, 87(10):105124, 2016.
- [73] T. Oda, H. Endo, H. Ohshita, T. Seya, Y. Yasu, T. Nakajima, M. Hino, and Y. Kawabata. Phase correction method in a wide detector plane for MIEZE spectroscopy with pulsed neutron beams. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1012:165616, 2021.
- [74] S. Nagamiya. Introduction to J-PARC. *Progress of Theoretical and Experimental Physics*, 2012(1), 2012.
- [75] N. Watanabe. Neutronics of pulsed spallation neutron sources. *Reports on Progress in Physics*, 66(3):339, 2003.
- [76] R. MacFarlane. Cold-moderator scattering kernel methods. Technical report,

- Los Alamos National Lab., NM (United States), 1998.
- [77] K. Nakajima, Y. Kawakita, S. Itoh, J. Abe, K. Aizawa, H. Aoki, H. Endo, M. Fujita, K. Funakoshi, W. Gong, et al. Materials and life science experimental facility (MLF) at the Japan proton accelerator research complex II: neutron scattering instruments. *Quantum Beam Science*, 1(3):9, 2017.
- [78] 細島拓也, 日野正裕, 吉永尚生, 河合利秀, 山形豊, 武田晋, 遠藤仁, and 山田悟史. 全周型回転楕円体中性子集光ミラーの分割構造と超精密切削・研磨加工. In 精密工学会学術講演会講演論文集 2018 年度精密工学会春季大会, pages 353–354. 公益社団法人 精密工学会, 2018.
- [79] M. Hino, T. Oda, M. Kitaguchi, N. L. Yamada, S. Tasaki, and Y. Kawabata. The ion beam sputtering facility at KURRI: Coatings for advanced neutron optical devices. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 797:265–270, 2015.
- [80] F. Mezei. Novel polarized neutron devices: supermirror and spin component amplifier. *Communications on Physics (London)*, 1(3):81–85, 1976.
- [81] R. Maruyama, T. Ebisawa, S. Tasaki, M. Hino, M. Takeda, T. Kawai, Y. Kawabata, and K. Sakai. A resonance neutron-spin flipper for neutron spin echo at pulsed sources. *Physica B: Condensed Matter*, 335(1-4):238–242, 2003.
- [82] T. Kai, M. Harada, M. Teshigawara, N. Watanabe, and Y. Ikeda. Coupled hydrogen moderator optimization with ortho/para hydrogen ratio. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 523(3):398–414, 2004.
- [83] Y. B. Melnichenko and G. D. Wignall. Small-angle neutron scattering in materials science: Recent practical applications. *Journal of Applied Physics*, 102(2):3, 2007.
- [84] M. Monkenbusch, O. Holderer, H. Frielinghaus, D. Byelov, J. Allgaier, and D. Richter. Bending moduli of microemulsions; comparison of results from small angle neutron scattering and neutron spin-echo spectroscopy. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 17(31):S2903, 2005.
- [85] R. Inoue, R. Biehl, T. Rosenkranz, J. Fitter, M. Monkenbusch, A. Radulescu, B. Farago, and D. Richter. Large domain fluctuations on 50-ns timescale enable catalytic activity in phosphoglycerate kinase. *Biophysical journal*, 99(7):2309–

- 2317, 2010.
- [86] I. Hoffmann, R. Michel, M. Sharp, O. Holderer, M.-S. Appavou, F. Polzer, B. Farago, and M. Gradzielski. Softening of phospholipid membranes by the adhesion of silica nanoparticles—as seen by neutron spin-echo (nse). *Nanoscale*, 6(12):6945–6952, 2014.
- [87] N. C. Das, H. Cao, H. Kaiser, G. T. Warren, J. R. Gladden, and P. E. Sokol. Shape and size of highly concentrated micelles in CTAB/NaSal solutions by small angle neutron scattering (SANS). *Langmuir*, 28(33):11962–11968, 2012.
- [88] M. Furusaka, H. Sato, T. Kamiyama, M. Ohnuma, and Y. Kiyonagi. Activity of Hokkaido University neutron source, HUNS. *Physics Procedia*, 60:167–174, 2014.
- [89] T. Ishida, M. Ohnuma, B. S. Seong, and M. Furusaka. Intermediate-angle Neutron Scattering Instrument for Quantitative and Non-destructive Characterization of Nanostructures in Steels and Other Alloys. *ISIJ International*, pages ISIJINT–2017, 2017.
- [90] K. Inoue, Y. Kiyonagi, and H. Iwasa. An accelerator-based cold neutron source. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 192(2-3):129–136, 1982.
- [91] D. V. Baxter. Materials and neutronic research at the Low Energy Neutron Source. *The European Physical Journal Plus*, 131(4):83, 2016.
- [92] Y. Ikeda, A. Taketani, M. Takamura, H. Sunaga, M. Kumagai, Y. Oba, Y. Otake, and H. Suzuki. Prospect for application of compact accelerator-based neutron source to neutron engineering diffraction. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 833:61–67, 2016.
- [93] S. Tasaki, T. Nagae, M. Hirose, Y. Yamashita, K. Hironaka, Y. Abe, Y. Yamagata, Y. Otake, and K. Hirota. Properties and Possible Applications of Kyoto University Accelerator Based Neutron Source (KUANS). *Physics Procedia*, 60:181–185, 2014.
- [94] O. E. Bolduan and R. S. Bear. Effective Use of Collimating Apertures in Small-Angle X-Ray Diffraction Cameras. *Journal of Applied Physics*, 20(10):983–992, 1949.
- [95] O. Kratky and H. Stabinger. X-ray small angle camera with block-collimation system an instrument of colloid research. *Colloid and Polymer Science*,

- 262(5):345–360, 1984.
- [96] T. Huang, H. Toraya, T. Blanton, and Y. Wu. X-ray powder diffraction analysis of silver behenate, a possible low-angle diffraction standard. *Journal of applied crystallography*, 26(2):180–184, 1993.
- [97] Y. Yamagata, K. Hirota, J. Ju, S. Wang, S.-y. Morita, J.-i. Kato, Y. Otake, A. Taketani, Y. Seki, M. Yamada, et al. Development of a neutron generating target for compact neutron sources using low energy proton beams. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 305(3):787–794, 2015.
- [98] W. Howard, S. Grimes, T. Massey, S. Al-Quraishi, D. Jacobs, C. Brient, and J. Yanch. Measurement of the thick-target ^9Be (p, n) neutron energy spectra. *Nuclear science and engineering*, 138(2):145–160, 2001.
- [99] Y. Wakabayashi, A. Taketani, T. Hashiguchi, Y. Ikeda, T. Kobayashi, S. Wang, M. Yan, M. Harada, Y. Ikeda, and Y. Otake. A function to provide neutron spectrum produced from the $^9\text{Be}+p$ reaction with protons of energy below 12 MeV. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 55(8):859–867, 2018.
- [100] 沖田 将一郎. 京大加速器中性子源 (KUANS) における減速材の改良に関する研究. Master’s thesis, 2019.
- [101] T. Imae, T. Kanaya, M. Furusaka, and N. Torikai. *Neutrons in soft matter*. John Wiley & Sons, 2011.
- [102] G. D. Wignall and F. S. Bates. Absolute calibration of small-angle neutron scattering data. *Journal of Applied Crystallography*, 20(1):28–40, Feb 1987.
- [103] D. Liu, B. Khaykovich, M. V. Gubarev, J. L. Robertson, L. Crow, B. D. Ramsey, and D. E. Moncton. Demonstration of a novel focusing small-angle neutron scattering instrument equipped with axisymmetric mirrors. *Nature communications*, 4(1):1–5, 2013.
- [104] Y. Abe, T. Tsuboi, and S. Tasaki. Evaluation of the neutron scattering cross-section for light water by molecular dynamics. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 735:568–573, 2014.
- [105] Y. Oba, S. Koppoju, M. Ohnuma, T. Murakami, H. Hatano, K. Sasakawa, A. Kitahara, and J.-i. Suzuki. Quantitative analysis of precipitate in vanadium-microalloyed medium carbon steels using small-angle X-ray and neutron scattering methods. *ISIJ international*, 51(11):1852–1858, 2011.

-
- [106] P. Debye and A. Bueche. Scattering by an inhomogeneous solid. *Journal of Applied Physics*, 20(6):518–525, 1949.
- [107] P. Debye, H. Anderson Jr, and H. Brumberger. Scattering by an inhomogeneous solid. II. The correlation function and its application. *Journal of applied Physics*, 28(6):679–683, 1957.
- [108] G. Longman, G. Wignall, M. Hemming, and J. Dawkins. Studies of pore diameters in porous silica by small angle X-ray scattering and gel permeation chromatography. *Colloid and Polymer Science*, 252(4):298–305, 1974.
- [109] G. T. Wignall and F. S. Bates. Absolute calibration of small-angle neutron scattering data. *Journal of applied crystallography*, 20(1):28–40, 1987.
- [110] R. J. Roe. *Methods of X-ray and neutron scattering in polymer science*, volume 739. Oxford University Press New York, 2000.
- [111] G. Porod. General theory. In *Small angle X-ray scattering*. 1982.
- [112] W. Ruland. Small-angle scattering of two-phase systems: determination and significance of systematic deviations from Porod’s law. *Journal of Applied Crystallography*, 4(1):70–73, 1971.
- [113] S. Tasaki. private communication, Aug. 2020.
- [114] 小田達郎. *J-PARC MLF BL06* における飛行時間法を用いた中性子共鳴スピネコー分光法に関する研究. PhD thesis, 京都大学, 2016.

発表論文

主著

1. **F Funama**, S Tasaki, M Hino, T Oda, and H Endo. Double-focusing geometry for phase correction in neutron resonance spin-echo spectroscopy. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 1010:165480, 2021.
2. **F Funama**, M Hino, T Oda, H Endo, T Hosobata, Y Yamagata, S Tasaki, and Y Kawabata. A Study of Focusing TOF-MIEZE Spectrometer with Small-angle Neutron Scattering. In *Proceedings of the 3rd J-PARC Symposium (J-PARC2019)*, page 011088, 2021.
3. **F Funama**, M Hino, T Oda, H Endo, T Hosobata, Y Yamagata, and S Tasaki. Observation of TOF-MIEZE Signals with Focusing Mirrors at BL06, MLF, J-PARC. *Journal of Surface Investigation: X-ray, Synchrotron and Neutron Techniques*, 14(1):S50-S55, 2020.
4. **F Funama**, Y Adachi, S Tasaki, and Y Abe. Small-angle neutron scattering geometry with ring-shaped collimation for compact neutron sources. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 992:165013, 2021.
5. **F Funama**, Y Adachi, S Tasaki, and Y Abe. Development of new small-angle neutron scattering geometry with ring-shaped collimated beam for compact neutron source. In *EPJ Web of Conferences*, volume 231, page 05001. EDP Sciences, 2020.

共著

1. S Tasaki, Y Idobata, Y Adachi, **F Funama**, and Y Abe. Study on moderation properties of cold mesitylene using KUANS. In *EPJ Web of Conferences*, volume 231, page 04005. EDP Sciences, 2020.
2. I Kanno, D Nishimatsu, and **F Funama**. Simulation Study on the Feasibility of Current-mode SPECT for B-10 Concentration Estimation in Boron Neutron-Capture Therapy. *Journal of Instrumentation*, 14(02):C02002, 2019.

謝辞

本研究について終始適切な御指導をいただきました京都大学工学研究科田崎誠司准教授並びに京都大学複合原子力科学研究所日野正裕准教授に心から感謝致します。東京大学物性研究所小田達郎助教授には京都大学複合原子力科学研究所に所属していた当時、研究指導および J-PARC での実験全般において多大なる御教授をいただきました。心から感謝致します。京都大学工学研究科安部豊助教授には特に修士課程での研究について御指導いただきました。この場を借りて深く御礼申し上げます。同 神野郁夫教授には日々の研究において様々な有益な御指導、ご助言を頂くと共に博士論文の執筆において大局的観点からの御意見を頂きました。心から感謝致します。京都大学理学研究科廣瀬昌憲技官には KUANS の運転等多義に渡り、技術的なご支援を頂きました。厚く御礼申し上げます。KEK 物質構造科学研究所遠藤仁准教授には J-PARC での実験の際様々な御協力、御指導を頂きました。心から感謝致します。J-PARC での実験で用いた回転楕円集光ミラーの基板は理化学研究所細畠拓也博士、山形豊博士によって作製されました。この場を借りて深く御礼申し上げます。

2021 年 11 月

船間 史晃