# MIEZE 型中性子共鳴スピンエコー分光器の開発

林田 洋寿

# 目次

第1章	序論	1
1.1	研究の背景	1
	1.1.1 中性子を使う利点	1
1.2	中性子を用いた物質内部のダイナミクス測定法	4
	1.2.1 中性子非・準弾性散乱装置の典型例	4
	1.2.2 スピンエコー法	5
	1.2.3 MIEZE 型共鳴スピンエコー分光器	7
1.3	MIEZE の有効性とエネルギー高分解能化の意義	9
1.4	研究の目的	11
第2章	エネルギー高分解能 MIEZE の開発	13
21	MIEZE 分光器の原理	13
2.1 0.0		17
2.2		11
	2.2.1 静磁場コイル	17
	Bootstrap 型 RSF	20
	2.2.2 振動磁場コイル	20
	2.2.3 インピーダンス整合器	22
	2.2.4 スピンフリップテスト	22
2.3	MIEZE のエネルギー高分解能化	23
	2.3.1 2次元位置検出時間分解検出器の導入	24
	2.3.2 MINE1 ポートの MIEZE 分光器と実効 1MHz MIEZE シグナルの観測	24
2.4	結論	33

第3章 磁性流体ダイナミクスの測定

35

3.1	試料	36
3.2	実験	37
3.3	データ解析	40
3.4	結論	53
第4章	高周波 RSF のパルス中性子への適応	55
4.1	時間に反比例する高周波交流電流の生成.......................	56
4.2	パルス中性子スピンフリップ実験	57
4.3	結論	59
第5章	結論	61
参考文献		67
発表論文		71
学会·研究	?会発表、英文紀要	73
謝辞		79

# 第1章

# 序論

# 1.1 研究の背景

### 1.1.1 中性子を使う利点

中性子は陽子と共に原子核を構成する粒子の一つであり、1932 年に Chadwick によってそ の存在が明らかとなった [1]。中性子の質量は陽子とほぼ同じであり、陽子は正の電荷を持つ のに対して中性子は電気的に中性である。また、スピン 1/2 で磁気モーメントを持ち、平均寿 命は約 880 秒 [2] である。

中性子発生の手法として原子炉を用いる方法と加速器を用いる方法とがある。いずれの手法 においても放出される中性子のエネルギーは MeV のオーダーを持つ高速中性子であり、その de Brogli 波長は 4 × 10<sup>-14</sup>m 以下である。中性子は中性子吸収の少ない減速材で減速されて 熱平衡に達すると、減速材の温度で特長付けられる Maxwell 分布を持つようになる [3, 4]。軽 水や重水によって減速されて熱平衡に達した中性子は熱中性子と呼ばれる。更に液体水素 (約

質量	$1.674928 \times 10^{-27} \mathrm{kg}$		
電荷	$\leq (-0.4 \pm 1.1) \times 10^{-21} e$		
スピン量子数	$-1/2\hbar$		
磁気モーメント	$-9.6491783(18) \times 10^{-27} \mathrm{JT}^{-1}$		
寿命	$878.5\pm0.8\mathrm{sec}$		

表 1.1 中性子の性質 [5, 6]

中性子の種類	エネルギー	波長	
高速中性子	$\geq\!0.5~{\rm MeV}$	$\leq 0.04 \text{ pm}$	
中速中性子	$1\sim 500~{\rm keV}$	$0.04\sim 0.9~\mathrm{pm}$	
熱外中性子	$0.5\sim 1000~{\rm eV}$	$0.9\sim 40~\rm{pm}$	
熱中性子	$5\sim 500~{\rm meV}$	$0.04\sim 0.4~\mathrm{nm}$	
冷中性子	$0.1 \sim 5 \text{ meV}$	$0.4\sim 2.9~\mathrm{nm}$	
極冷中性子	$0.25 \sim 100 \ \mu \mathrm{eV}$	$2.9\sim57~\mathrm{nm}$	
超冷中性子	$\leq 0.25 \ \mu \mathrm{eV}$	$\geq\!57~\mathrm{nm}$	

表 1.2 エネルギーによる中性子の分類

20K) や固体メタン(約27K)などの冷中性子源で減速されて熱平衡に達すると冷中性子となる。このように減速材によって様々な温度(エネルギー)をもつ中性子を取り出すことが出来る。中性子はエネルギーの違いによって波長が違っており、表1.2に示すように分類される。 本研究では冷中性子を対象としている。

中性子はこれまで X 線と共に物性研究や基礎物理研究を行うためのプローブの一つとして 利用されてきた。X 線と比べて中性子を利用することの利点をまとめると以下のようになる。

- ・中性子は主に原子核と相互作用するので、散乱の強さを表す散乱長は原子番号や質量数によって異なる。これに対してX線は電子と相互作用するので散乱長は原子番号に従って増加する。これらのことより、X線では水素などの軽元素は見えにくいのに対して、中性子では軽元素でも検出が容易である。更に中性子では軽水素と重水素のように同位体に対しても散乱長が異なる。この性質を利用して水素原子を多く含む高分子やソフトマターなどでは特定の部位の構造、ダイナミクスに着目した構造解析が可能である。
- 中性子は磁気モーメントを持つので物質内部の磁気モーメントと相互作用する。そのため磁性体等の磁気構造解析が可能である。
- 中性子は電気的に中性であり、透過性に優れている。X線や電子線よりも、より物質内部の構造を測定できる。
- 中性子で高分子やソフトマターの構造解析を行う場合、主に冷中性子が用いられる。
   meV オーダーのエネルギーを持つ冷中性子と同程度の波長の X 線のエネルギーは keV

のオーダーである。したがって冷中性子はサンプルに与えるダメージが X 線と比べて 極めて小さい。

また、X 線との比較以外でも以下のような特長を持っている。

- 熱・冷中性子のエネルギーは物質中の原子や分子の持つエネルギーに近いので、準弾性
   ・非弾性散乱による結晶格子の振動や分子の揺らぎなどのダイナミクスの測定に適している。
- ・中性子はスピン 1/2 のフェルミオンである。特に冷中性子 ~ 超冷中性子などのエネル ギーの低い中性子では波動性が顕著になり、磁場中において磁場の向きに平行・反並行 なスピンを定義でき、磁場制御デバイスによってスピンの選別や反転などの制御が容易 である。これにより、空間的にビームをを分波しなくても、スピン空間においてスピン 状態を分波することで容易に干渉させることが出来る。本研究で開発を行う MIEZE 型 中性子共鳴スピンエコー装置はこの性質を用いている。

このように中性子は様々な特長を持つが、X 線と比べて強度が弱いことと発生源が少ないこ とが欠点である。現状では、ILL(Institut Laue Langevin)の原子炉が58MW 駆動で世界一 の中性子束を誇っている[7]。高いエネルギーまで加速された陽子を重金属ターゲットに衝突 させたときに起こる核破砕反応を利用して、1980年以降から加速器中性子源が実用化された。 現在では The UK Rutherford Appleton Laboratory における800MeVの陽子シンクロトロ ンを利用した ISIS が加速器中性子源での世界最高の中性子束を達成している[8]。

中性子強度を更に高めるために、現在日米において次世代の核破砕型加速器中性子源(陽子の加速エネルギー1GeV以上)の建設プロジェクトが進行中である。米国では大強度陽子加速器を利用した核破砕型パルス中性子源SNS(The Spallation Neutron Source)の建設が進んでいる[9,10]。また欧州では、現在では財政的な事情で計画が進んでいないが、大強度のパルス中性子源ESS(The European Spallation Source)の建設が計画されている[11,12]。日本では日本原子力研究開発機構と高エネルギー加速器研究機構とが共同して大強度陽子加速器計画J-PARC(Japan Proton Accelerator Research Complex)の建設が進行中である[13,14]。この大強度陽子加速器中性子源の建設により、物質科学や基礎物理の分野において様々な成果が期待されている。

## 1.2 中性子を用いた物質内部のダイナミクス測定法

中性子の利点でも述べたように、中性子は軽水素と重水素に対して散乱長が異なり、また分 子の揺らぎなどの測定に向いている。そのため高分子やソフトマターの静的、動的構造解析の 研究分野では中性子は重要な役割を果たしてきている。

### 1.2.1 中性子非·準弾性散乱装置の典型例

中性子を用いた動的構造解析装置には大きく分けて2種類ある。入射中性子ビームの単色化 と散乱された中性子ビームのエネルギー解析に単結晶を用いる結晶型と、パルス中性子ビーム を用いて中性子の飛行時間から入射及び散乱中性子ビームのエネルギーを求める TOF(Time Of Flight)型とに分類される。結晶型分光器の代表例としては3軸分光器があり、TOF型分 光器の代表例としてはチョッパー分光器が挙げられる。

3 軸分光器の概念図を図 1.1 に示す。この分光器はモノクロメータへの入射角、サンプルでの散乱角、アナライザへの入射角と、3 つの軸を持つので3 軸分光器と呼ばれる。入射中性子 ビームの単色化及び散乱ビームのエネルギー解析に単結晶を用いている。

中性子源から導かれた幅広い波長域を持つ定常的な中性子ビームに対してある角度で単結晶 モノクロメータを設置すると、Bragg 条件を満たす波長の(単色化された)中性子が反射され て分光器に入射される。単結晶アナライザは測定したい散乱角に置かれる。アナライザでも Bragg 条件を満たす波長の中性子のみが反射されるので、サンプルからの散乱ビームに対し て角度スキャンを行うことで散乱ビームのエネルギー解析を行うことができる。この分光法で は、入射中性子の波長、サンプルでの散乱角、単結晶アナライザでの反射角によって運動量遷 移が決定される。また、サンプルでの散乱過程における中性子のエネルギー遷移量が測定され る。したがって観測量は散乱関数  $S(Q, \omega)$ であり、例えばフォノンの励起などによる非弾性 散乱の観測に適している。

次にチョッパー分光器の概念図を図 1.2 に示す。中性子源から導かれたパルス状の中性子が チョッパーによって単色化されてサンプルに入射する。チョッパーからの信号で中性子のス タート時刻が分かり、チョッパー ~ サンプル、サンプル ~ 検出器までの距離は分かっている ので、検出器で検出されるまでの飛行時間を測定することでサンプルでのエネルギー遷移量が 測定される。また、チョッパーによって選別された中性子波長と散乱角とで運動量遷移も決定 される。観測量は 3 軸分光器と同様に散乱関数  $S(Q, \omega)$  である。



図 1.1 3 軸分光器の概念図

図 1.2 チョッパー分光器の概念図

ここで挙げた分光器は共に入射中性子の波長分解能でエネルギー分解能が決定される。ある ω というエネルギー遷移を測定したい場合には入射中性子の波長(エネルギー)分解能をωよ りも良くする必要がある。したがって、小さいエネルギー遷移を測定する(高分解能)ために は、入射中性子をより単色化する必要がある。しかしより単色化するということは利用するエ ネルギー幅を狭くすることであり、これは即ち中性子強度が損なわれることを意味している。

結晶型分光器の例として、ILL の後方散乱分光器 (IN10、IN13) 及び ISIS の逆転配置型分 光器 (IRIS) があり、1µeV 程度のエネルギー分解能が得られている [7, 8, 15, 16]。

### 1.2.2 スピンエコー法

これらに対して、1972年に Mezei により提唱された中性子スピンエコー法 (Neutron Spin Echo, NSE) では、中性子のスピン自由度の導入により、測定されるエネルギー分解能と測定 に用いる入射中性子のエネルギー分解能とを独立に扱うことが可能である [17]。

図 1.3 に NSE 原理の概念図を示す。中性子は +y 方向に進行するとする。B 点以前の領域 では +z 方向に  $B_0$  の強さの静磁場がかけられており、B 点以降の領域では -z 方向に  $B_0$  の 強さの静磁場がかけられている。幅広い波長分散の白色中性子が入射されるとする。入射中性 子はスピンの向きが +z 方向に偏極されており、A 点において +x 方向にスピンの向きが揃え られる。中性子スピンの +x 方向成分を  $P_x$  とする。A 点では色々な波長の中性子のスピンが 全て +x 方向を向いており、A 点で  $P_x$  を規格化して  $P_x = 1$  とする。

A 点までは中性子スピンは静磁場と同じ向きを向いているが、A-B 間では中性子スピンは 静磁場  $B_0$  の周りで歳差回転を行う。中性子は波長分散を持っているので個々の中性子の  $P_x$ も分散を持つようになりその重ねあわせを表示すると図 1.3 の下に示すように、 $P_x$  は徐々に 減衰する。

B 点以降は静磁場の向きが逆向きであるので、中性子スピンの歳差回転の向きも A-B 間に



図 1.3 NSE 法の原理概念図

対して逆回転となる。B 点以降での逆回転により  $P_x$  の分散が取り戻されて徐々に回復する。 A-B 間距離を  $L_0$  とすると、B 点から  $L_0$  進んだ点 C において、 $P_x$  は A 点と同じ状態に戻る (スピンのエコー)。C 点を通過すると A 点以降と同じように再び  $P_x$  は減衰する。

C 点において  $P_x \equiv P_{\text{NSE}}$  と定義する。 $P_{\text{NSE}}$  はビジビリティと呼ばれ、エコーシグナルの振幅を規格化した値である。

次に B 点に試料が設置されている場合を考える。試料での散乱過程が準弾性散乱とすると 散乱された中性子の速度が変化する。速度が変化すると、試料がない場合に比べて C 点で中 性子スピンが揃わなくなり、 $P_{\rm NSE}$  は減衰する。この  $P_{\rm NSE}$  の減衰は散乱された中性子の速度 変化によって生じ、中性子の速度変化は試料との相互作用 (準弾性散乱)によって生じる。し たがって  $P_{\rm NSE}$  の減衰度合いを検出することで試料内のダイナミクスを調べることができる。

中性子速度変化を観測する分解能は、A-B 間で中性子スピンを多く回転させるほど中性子の わずかな速度変化も測定可能となる。これは、速度の遅い(長波長)中性子を使用する、静磁 場の強さを強くする、静磁場領域を長くする、の3通りの方法によって可能となる。

先にも述べたが、NSE 法では幅広い波長分散を持った白色中性子を使用可能である。一方 で波長分散とは無関係なパラメータによって高エネルギー分解能化が可能である。3軸分光 器、チョッパー分光器に対して、NSE 法では使用する中性子波長を絞る必要がないため、大強 度で高分解能なダイナミクス観測ができることが最大の利点である。NSE 法での観測量は中 間散乱関数  $I(\boldsymbol{Q}, \tau)$  であり、これは散乱関数  $S(\mathbf{Q}, \omega)$  の時間フーリエ変換の関係にある。例 えば溶液系の粒子の拡散運動などによる準弾性散乱の測定に適している。

上で述べた中性子スピンの歳差回転は、中性子スピン干渉の観点からは、歳差回転面に対し て垂直な2固有状態の中性子スピンの位相差に対応する(例えば、歳差回転面がx - y平面内 であるとすれば、このときの歳差回転は+z と-zの2固有状態間の位相差に対応している)。 したがって、中性子共鳴スピンフリッパー(Resonance Spin Flipper, RSF)と呼ばれる素子に より中性子スピン固有状態間に波数差をつけ、この状態で一定距離を飛行させると波数差と飛 行距離に応じた位相差が生じる。このようにして歳差回転と同等の効果が生じる。この RSF を用いたものが中性子共鳴スピンエコー装置(Neutron Resonance Spin Echo, NRSE)であ り、1987年に Gähler、Golub らによって提案された [18]。

NRSE も NSE 同様に、中性子の波長分解能を絞る必要がないため、大強度で高分解能なダイナミクス測定が可能である。観測量は中間散乱関数  $I(\mathbf{Q}, \tau)$  である。

NSE, NRSE のエネルギー分解能は  $3 \times 10^{-3} \sim 1 \times 10^{-9}$ eV の領域である。NSE, NRSE のエネルギー分解能を 1rad の位相差を生じさせるエネルギー遷移量と定義すると [19]、これ に対応するスピンエコータイムは 20psec~  $0.6\mu$ sec に対応する

### 1.2.3 MIEZE 型共鳴スピンエコー分光器

NRSE の一種として MIEZE (Modulated IntEnsity by Zero Effort, MIEZE)型共鳴スピ ンエコー装置がある [18, 20]。NSE や NRSE では試料の後でスピンアナライズ (スピンの向 きを調べる)を行うのに対して、MIEZE ではスピンアナライズ後に試料を配置する点が最大 の特長である。図 1.4 に MIEZE 分光器の配置図を示す。

MIEZE 分光器では周波数の異なる  $\omega_1$  および  $\omega_2$  の 2 つの RSF を用いて、 $\omega_1 - \omega_2$  の正弦 的時間振動を持つ TOF スペクトルが作り出される。試料散乱による中性子速度変化を TOF スペクトルの位相変化の重ね合わせによるビジビリティの低下から、中間散乱関数 S( $Q, \tau$ ) を 観測する。また、NSE や NRSE では試料周りの磁場によってビジビリティが低下するのに 対して、MIEZE 法では試料位置での磁場や、試料による散乱に中性子スピンフリップ、ノ ンフリップとが混合している場合でもビジビリティは影響を受けない特徴がある。一方で、 MIEZE 分光器のビジビリティは、試料により散乱される中性子経路の分散が直接ビジビリ ティに影響を与えるという問題がある。

図 1.5 にチョッパー分光器、3 軸分光器、NSE、NRSE、MIEZE の占める  $Q - \Delta E$  の図 を示す。MIEZE のエネルギーレンジは  $5 \times 10^{-3} \sim 2 \times 10^{-7} eV$ (スピンエコータイムでは



図 1.4 MIEZE 分光器の配置図

0.1psec~ 2nsec に対応する) であり、スピンエコー装置の中ではエネルギー分解能が低いが、 チョッパー分光器や3軸分光器と比べると同等以上のエネルギー分解能を持っている。更に NSE, NRSE と同様に波長分解能を絞る必要が無いので、中性子強度において MIEZE は有利 である。以下にチョッパー分光器、3軸分光器に対する MIEZE のメリット、デメリットをま とめる。

- 非弾性散乱装置 (チョッパーや3軸分光器) が中性子強度的に苦手とするエネルギー領域 (10µeV 以下) をカバーできる。
- チョッパーや3軸分光器より大強度、高エネルギー分解能である。
- 試料~検出器間の配置がチョッパー分光器と同じであるが、チョッパー分光器よりも
   大強度で高エネルギー分解能である。
- 準弾性散乱に適している。
- 非弾性散乱の測定に対してはチョッパーや3軸分光器の方が適している。

また、NSE, NRSE に対する MIEZE のメリット、デメリットを以下にまとめる。

- 試料~検出器間に一切の光学素子を必要としない。
  - 中性子スピンフリップを伴う磁気散乱によるビジビリティの減衰がなく、磁性体の
     ダイナミクス測定、インコヒーレント散乱によるダイナミクス測定に向いている。
  - 試料に外部磁場をかけることができ、磁場環境下での磁性体ダイナミクスの測定が可能である。
  - オプションとして試料後に偏極デバイス (例えば磁気ミラーなど)を設置することで、スピンフリップ散乱とスピンノンフリップ散乱とを分離した測定が可能である。
  - 小角散乱測定、反射率測定にそのまま適用可能である。
- エネルギー分解能に関しては NSE, NRSE の方が高分解能である (MIEZE : 1meV~



図 1.5 Chopper, TAS(3 軸), MIEZE, NSE, NRSE の占める  $Q - \Delta E$  領域

 $1\mu eV$ , NSE & NRSE :  $100\mu eV \sim 10 neV$ ).

# 1.3 MIEZE の有効性とエネルギー高分解能化の意義

先にも述べたとおり、MIEZE では試料 ~ 検出器間に一切の光学素子を必要としない点が 特長である。これにより中性子小角散乱 (Small Angle Neutron Scattering, SANS) や中性子 反射率 (Neutron Refrectometry, NR) 測定にそのまま適応可能である [21, 22]。SANS は高 分子化合物などの静的構造解析に用いられる代表的な手法の一つであり、NR は高分子薄膜な どの膜厚の構造解析に用いられる非常に重要な手法である。これらの手法に MIEZE を適応さ せることが実現されれば、高分子化合物の静的構造、高分子薄膜の膜厚の構造解析と同時にこ れらの動的構造も測定できることが期待される。また、これまでスピングラスや磁性流体など のスピンフリップを伴うサンプルのダイナミクス測定が NSE を用いて行われているが、サン プルでの散乱でスピンフリップ成分があるとサンプルより下流の歳差磁場領域を通過しても中 性子スピンが巻き戻されなくなる。この効果により NSE ではビジビリティが最大 0.5 でしか 観測できなくなり、測定精度が落ちる [23]。これに対して MIEZE ではアナライザ後にサンプ ルを設置するので、スピンフリップを伴うような磁気散乱が生じるサンプルに対しても、その ダイナミクスを精度良く測定が可能である。また磁性体とは別に、スピンフリップを伴う散乱 として、軽水素からくるインコヒーレント散乱がある。この場合でも同様な問題があるため、 軽水素を多く含む生体高分子の動的構造研究に対しても MIEZE は有効であると期待される。 更に、MIEZE では試料後に偏極デバイス (例えばアナライザー)をオプションとして挿入す ることで、スピンフリップ成分をスピンノンフリップ成分とを分離しての測定が可能となる。 この手法は NSE, NRSE では不可能であり、MIEZE の特長を最大限に生かした新たな手法で ある。

このように MIEZE は他の分光器にない特長を有しており、1992 年に世界初の MIEZE シ グナルの観測なされ [20]、1998 年に Laboratoire Léon Brillouin(LLB) において開発が進め られ、グリセロールのインコヒーレント散乱による動的構造解析の成果が報告されている [24, 25]。しかしこれまでに報告されている MIEZE による研究成果はこの 1 例のみである。 この理由は、MIEZE では試料での散乱位置の違いから生じる経路分散により、弾性散乱で あってもビジビリティが減衰してしまうという問題点があったためである。この経路分散の 効果はエネルギー分解能が高くなるほど顕著になり、エネルギー分解能に限界を与えた。ま た、MIEZE では高エネルギー分解能になればなるほど高い時間分解能を持ち、かつ検出面の 薄い検出器が必要となる。経路分散の問題と合わせて高エネルギー分解能化には限界があり、 MIEZE を用いた散乱実験はなされてこなかった。

しかし、元々 MIEZE はその有効性が期待されていた装置であり、ドイツ Forschungsneutronenquelle Heinz Maier-Leibnits(FRM II) のグループ [26, 27] やアメリカ Argonne National Laboratory のグループ [22, 28] などで現在 MIEZE の開発が進められている。我々のグルー プでもこれまでに MIEZE の開発を行ってきており、0.1MHz のシグナルの観測まで成功して いる [29, 30]。FRM II のグループでは試料環境の整備が進んでおり、低温下における磁性体 の研究に向けて開発が進められている。また、Argonne のグループでは SNS への設置を目指 してパルス中性子対応が進められており、パルス中性子での MIEZE シグナルの観測に成功し ている [31]。更に SANS へのオプションとしての MIEZE の開発も盛んに行っている (以下 MIEZE-SANS と呼ぶ)。例えば 1MHz の振動数のシグナルまで観測できれば、試料 ~ 検出器 間距離 10m の SANS 装置に設置し、2nm の波長の中性子を用いることにより、エネルギー分 解能が 0.5µsec まで到達可能であり、SANS オプションとして十分に使用可能であると提案さ れている [22]。

一方、磁性体の研究対象の例として、磁性流体の超常磁性緩和運動やスピングラスの緩和 運動などがある。例えば磁性流体の超常磁性緩和過程のダイナミクスレンジは室温近傍で  $10^{-9} \sim 10^{-12}$ のオーダーである [32, 33]。これまで超常磁性緩和運動の研究は主にメスバウ アー法により研究されてきた。しかしメスバウアー法では、磁化のゆらぎが核の線幅の特性時 間である  $10^{-8}$ sec より早い運動では、同程度の常磁性吸収幅を与えるために核の揺らぎと磁気 の揺らぎとの区別がつかない。これに対して MIEZE 法では nsec 以上の早いスピン緩和も観 測可能である。更に、メスバウアー法に対して、MIEZE はダイナミクスと同時にサイズも同 時測定が可能という特長も持つ。

超常磁性の性質を持つ磁性流体は MRI の造影剤としても利用されている有用な物質である [34, 35, 36]。また、粒径の異なる粒子の超常磁性運動の変化の研究もなされている [37]。この 点において、MIEZE のエネルギー分解能を nsec オーダーまで高分解能化して超常磁性運動 の観測に成功すれば、MIEZE はこの分野の研究に大きく貢献できる。更に、磁性流体に限ら ずスピングラスの研究等に対しても同様に有効である。

## 1.4 研究の目的

現在我々のグループでは J-PARC への設置を目指して [38] 日本原子力研究開発機構内にあ る改造 3 号炉、C3-1-2-2、MIEZE1 ポートにて MIEZE 及び NRSE を開発中である。MINE1 ポートの中性子波長は 0.81nm で、試料 ~ 検出器間距離は 0.5m 程度である。この環境におい て、MIEZE シグナルの振動数を 1MHz まで上げることができれば 1.7nsec のスピンエコータ イムに到達でき、MIEZE を磁性体研究に用いることが可能となる。更に、Argonne のグルー プが提案しているような MIEZE-SANS の実現が可能であることを示すことにも繋がる。

本研究では MIEZE を高分解能化し、磁性体研究に有効であり、MIEZE-SANS への実用も 期待できる装置の開発を目指す。更に、経路分散の影響を補正するための一手法を提案し、こ れを実証すると共に磁性流体の超常磁性運動を観測し、MIEZE の磁性体研究への有効性を実 証することも目的とする。

# 第2章

# エネルギー高分解能 MIEZE の開発

本章では MIEZE 分光器の原理の説明を行う。この説明を受けて、高エネルギー分解能化に 向けて開発した RSF の説明を行い、実際に高エネルギー分解能化の実験について述べる。

## 2.1 MIEZE 分光器の原理

典型的な MIEZE の原理の説明を行う。図 2.1 に MIEZE の構成要素の配置図 (上) とフラ イトパスに沿った中性子の波数の変化 (下) を示す。構成要素は上流からポラライザ、 $\pi/2$  フ リッパー (DC1)、RSF1、RSF2、 $\pi/2$  フリッパー (DC2)、アナライザー、サンプルステージ、 検出器となっている。RSF は全て  $\pi$  条件 (中性子スピンが  $\pi$ rad 回転する条件) を満たしてい る。また、RSF1、RSF2 の駆動振動数をそれぞれ  $\omega_1$ 、 $\omega_2$  ( $\omega_1 < \omega_2$ ) とする。

ポラライザ~RSF1

ポラライザでスピンダウン状態の中性子のみが選別され、 $\pi/2$ 条件に調整された DC1 で中 性子スピンがアップ (|+>) とダウン (|->) の 2 状態に分波されて RSF1 に入射される。図 2.1 中では |+> 状態を実線、|-> 状態を破線で示しており、説明のために DC1 で |+> と |-> 状態 に分波された成分それぞれに a, b のラベルをつける。これから行う |+> と |-> 状態間の位相 差の計算ではラベル a の状態を基準として計算を行っていく [29, 30]。

RSF1

RSF1 への入射時刻を  $t_1$  とする。RSF1 では  $|+_a\rangle \rightarrow |-_a\rangle \ge |-_b\rangle \rightarrow |+_b\rangle$ のスピンの 反転が起こる。この反転過程において、  $|+_a\rangle \rightarrow |-_a\rangle$  では全エネルギーが  $\hbar\omega_1$  だけ増加し、 これに伴って波数が  $k_0 \rightarrow k_0 + \omega_1/v \ge$ 変化する。  $|-_b\rangle \rightarrow |+_b\rangle$  では全エネルギーが  $\hbar\omega_1$ だけ減少し、これに伴って波数が  $k_0 \rightarrow k_0 - \omega_1/v \ge$ 変化する。また RSF1 通過の過程で、



図 2.1 MIEZE の構成要素配置図 (上) とフライトパスに沿った中性子の波数の変化 (下)。

各々のスピン状態に対応する波動関数の位相には、RSF の振動磁場の位相  $-\pi/2$  が付け加わる [39] ので、RSF1 を通過した直後における位相差  $\Phi_1$  は次式で表される。

$$\Phi_1 = \left(\omega_1 t_1 - \frac{\pi}{2}\right) - \left(-\omega_1 t_1 - \frac{\pi}{2}\right) = 2\omega_1 t_1 \tag{2.1}$$

RSF1~RSF2

RSF1~RSF2 間の距離と中性子の飛行時間とをそれぞれ  $L_{12}$ ,  $t_{12}$  とする。RSF1~RSF2 間における  $|-_a\rangle$  と  $|+_b\rangle$  間のエネルギー差と波数差はそれぞれ  $2\hbar\omega_1$ ,  $2\omega_1/v$  であるので、 RSF1~RSF2 間で生じる位相差  $\Phi_{12}$  は次式で表される。

$$\Phi_{12} = 2\omega_1 t_{12} + \frac{2\omega_1}{v} L_{12} \tag{2.2}$$

RSF2

RSF2 への入射時刻を  $t_2$  とする。RSF2 では  $|-_a\rangle \rightarrow |+_a\rangle \ge |+_b\rangle \rightarrow |-_b\rangle$ のスピンの 反転が起こる。この反転過程において、 $|-_a\rangle \rightarrow |+_a\rangle$ では全エネルギーが  $\hbar\omega_2$  だけ減少し、 これに伴って波数が  $k_0 + \omega_1/v \rightarrow k_0 + (\omega_1 - \omega_2)/v$  と変化する。 $|+_b\rangle \rightarrow |-_b\rangle$ では全エネ ルギーが  $\hbar\omega_2$  だけ増加し、これに伴って波数が  $k_0 - \omega_1/v \rightarrow k_0 + (-\omega_1 + \omega_2)/v$  と変化する。また RSF1 のときと同様に RSF2 通過の過程で、各々のスピン状態に対応する波動関数の位相には、RSF の振動磁場の位相  $-\pi/2$  が付け加わるので、RSF2 を通過することで生じる位相差  $\Phi_2$  は次式で表される。

$$\Phi_2 = \left(-\omega_2 t_2 - \frac{\pi}{2}\right) - \left(\omega_2 t_2 - \frac{\pi}{2}\right) = -2\omega_2 t_2 \tag{2.3}$$

RSF2~ 検出器

DC2 では a, b の状態はそれぞれ反転率 1/2 で反転される。アナライザでは  $|-\rangle$  状態の中性 子のみを選別するので  $|-_a\rangle + |-_b\rangle$  の重ねあわせが検出される。以後  $|-_a\rangle \ge |-_b\rangle$  の状態のみ を考える。

アナライザの下流にはサンプルステージがある。まずはサンプルがない場合を考える。 RSF2~サンプルステージ間距離とこの区間の中性子飛行時間とをそれぞれ  $L_{2s}$ ,  $t_{2s}$ 、サンプルステージ~検出器間距離とこの区間の中性子飛行時間とをそれぞれ  $L_{sd}$ ,  $t_{sd}$ 、検出器位置での時刻を  $t_d$  とする。RSF2~検出器間における  $|-_a\rangle \ge |-_b\rangle$ 間のエネルギー差と波数差はそれぞれ  $-2\hbar(\omega_2 - \omega_1)$ ,  $-2(\omega_2 - \omega_1)/v$  であるので、RSF2~検出器間で生じる位相差はRSF2~サンプルステージ間で生じる位相差  $\Phi_{2s}$  と、サンプルステージ ~検出器間で生じる位相差  $\Phi_{sd}$  との和として次式で表される。

$$\Phi_{2s} + \Phi_{sd} = -2(\omega_2 - \omega_1)(t_{2s} + t_{sd}) + \frac{-2(\omega_2 - \omega_1)}{v}(L_{2s} + L_{sd})$$
(2.4)

検出器位置で検出される  $|-_a\rangle$  と  $|-_b\rangle$  との全位相差  $\Phi$  は式  $(2.1)\sim(2.4)$  の和で与えられる。

$$\Phi = \Phi_{1} + \Phi_{12} + \Phi_{2} + \Phi_{2s} + \Phi_{sd}$$

$$= 2\omega_{1}(t_{1} + t_{12}) - 2\omega_{2}t_{2} - 2(\omega_{2} - \omega_{1})(t_{2s} + t_{sd})$$

$$+ \frac{2\omega_{1}}{v}L_{12} + \frac{-2(\omega_{2} - \omega_{1})}{v}(L_{2s} + L_{sd})$$

$$= -2(\omega_{2} - \omega_{1})(t_{2} + t_{2s} + t_{sd})$$

$$+ \frac{2}{v}\{\omega_{1}L_{12} - (\omega_{2} - \omega_{1})(L_{2s} + L_{sd})\}$$

$$= -2\Delta\omega t_{d} + \frac{2}{v}\{\omega_{1}L_{12} - \Delta\omega(L_{2s} + L_{sd})\}$$
(2.5)

ここで、 $\Delta \omega \equiv \omega_2 - \omega_1$  である。また、式変形では、全ての RSF に適用される振動磁場 と検出器での時間分解が同期していることから生じる時間に関する条件  $t_2 = t_1 + t_{12}$  と  $t_d = t_2 + t_{2s} + t_{sd}$ を用いた (検出器の時間分解については後述する)。振動磁場による位 相差が相殺されずに残るため、時間に対して振動するシグナルが検出される。言い換える と異なる波数を持った波どうしの重ねあわせであるので時間に対して振動する。このよう にシグナルが時間に対して振動するので、検出器にも時間分解能を持たせることが必要と なり、検出器の時間分解は RSF の振動磁場と同期させる必要がある。スピンエコー条件は  $\omega_1L_{12} = \Delta\omega(L_{2s} + L_{sd})$ (RSF1~RSF2 間での磁場積分と RSF2~ 検出器間での磁場積分が等 しくなる)で与えられ、このとき中性子の速さによらず検出器位置において、波数の差に起因 する位相差は 0 となる。このように MIEZE では検出器の位置で波数差に起因する位相差が取 り戻されるように検出器が設置される。

検出される中性子強度  $I_d$  は  $\Phi$  を用いて次式で表される。

$$I_d = \frac{1 + \cos \Phi}{2} \tag{2.6}$$

スピンエコー条件下では、

$$I_d = \frac{1 + \cos 2\Delta\omega t_d}{2} \tag{2.7}$$

となる。

次にサンプルでの散乱において中性子の速度が変化した場合を考える。中性子の速度変化 を  $\delta v (\ll v)$  とすると (このときの中性子のエネルギー変化は  $\hbar \omega \simeq m v \delta v$ )、 $\Phi_{sd}$  には位相差  $2\omega_s L_{sd}/v \times (\delta v/v)$  が付加される。更に、フライトパス  $L_{sd}$  間の飛行時間の変化量を  $\delta t_{sd}$  と すると、 $\Phi$  は次式のようになる。

$$\Phi = -2\Delta\omega(t_2 + t_{2s} + t_{sd} + \delta t_{sd}) + \frac{2}{v} \{\omega_1 L_{12} - \Delta\omega(L_{2s} + L_{sd})\} - \frac{2\Delta\omega}{v} L_{sd} \times \frac{\delta v}{v}$$
(2.8)

飛行時間の関係は  $t_2 = t_1 + t_{12}, \ t_d = t_2 + t_{2s} + t_{sd} + \delta t_{sd}$ となるので、 $\Phi$ は、

$$\Phi = -2\Delta\omega t_d + \frac{2}{v} \{\omega_1 L_{12} - \Delta\omega (L_{2s} + L_{sd})\} - \frac{2\Delta\omega}{v} L_{sd} \times \frac{\delta v}{v}$$
(2.9)

と表される。このとき、サンプルでの散乱によって付加された位相差 (式 (2.9) の第 3 項) を  $\omega \tau_{\text{MIEZE}}$  と定義することでスピンエコータイム  $\tau_{\text{MIEZE}}$  が定義される。

$$\frac{2\Delta\omega}{v}L_{sd} \times \frac{\delta v}{v} \equiv \omega\tau_{\text{MIEZE}}$$
$$\tau_{\text{MIEZE}} = \frac{2\hbar\Delta\omega L_{sd}}{mv^3} \tag{2.10}$$

 $au_{ ext{MIEZE}}$ は時間の次元を持っており、 $L_{sd}, \Delta \omega, 1/v^3$ の積に比例する。 $au_{ ext{MIEZE}}$ が大きくなればなるほど、中性子速度変化による位相差が大きくなり、速度変化に対する感度が高くなる。

したがって、スピンエコータイムはスピンエコー装置におけるエネルギー分解能の指標として 用いられ、<sub>TMIEZE</sub>が大きいほど高エネルギー分解能となる。MIEZE では、高周波、試料 ~ 検出器間距離が長い、使用する中性子速度が遅い(長波長)ほど高分解能となる。試料 ~ 検出 器間距離は装置を設置するビームポートのスペースで制限され、中性子速度は導管の特性で決 定されるので、高エネルギー分解能にするには高周波化することが有効な手段となる。しかし 高周波化するほど検出器に求められる時間分解能も高くなるので、高い時間分解能を持った検 出器を導入する必要がある。

サンプルからの散乱ビームから得られるスピンエコーシグナルのビジビリティ  $P_{\text{MIEZE}}(\mathfrak{p})$ グナルの振幅を規格化したもの) は、散乱関数  $S(\boldsymbol{Q}, \omega)$  を用いて次式で表される。

$$P_{\text{MIEZE}} = \int S(\boldsymbol{Q}, \omega) \frac{1 + \cos(2\Delta\omega t_d + \omega\tau_{\text{MIEZE}})}{2} d\omega / \int S(\boldsymbol{Q}, \omega) d\omega$$
$$= \frac{1}{2} \frac{I(\boldsymbol{Q}, 0) + I(\boldsymbol{Q}, \tau_{\text{MIEZE}})}{I(\boldsymbol{Q}, 0)}$$
(2.11)

MIEZE での観測量は中間散乱関数  $I(Q, \tau_{\text{MIEZE}})$  である。中間散乱関数は位置の相関を運動量遷移 Q で表した際の標的核との時間的な相関を表している。

### 2.2 高周波駆動 RSF の開発

先に述べたように、MIEZE の高分解能化には (1)RSF の高周波化 (2) 試料  $\sim$  検出器間距離 を伸ばす (3) より遅い中性子 (長波長) を使用する、の 3 つの手段があるが、我々はまず RSF の高周波化によって MIEZE の高分解能化を目指した。

そのために高周波駆動の RSF の開発を行い、これを用いて MIEZE を組み上げることを 試みた。MINE1 ポートでは RSF 駆動周波数の 2 倍の振動数のシグナルが観測されるように セットアップしている。そこで、1MHz 周波数のシグナルを観測するために、0.5MHz 駆動の RSF の開発を行った [40]。

#### 2.2.1 静磁場コイル

RSF は静磁場コイルと振動磁場コイルという 2 種類のコイルで形成される。静磁場コイル で発生する磁場の強さを  $B_z$ 、振動磁場コイルで発生する磁場の振動数を  $\omega_s$  とする。RSF が フリッパーとして機能するためには、これらの間に  $\hbar\omega_s = 2|\mu_n|B_z$  という共鳴条件を満たす 必要がある [39]。 $\mu_n$  は中性子の磁気モーメントである。そのため、RSF を高周波で機能させ るには大きな静磁場が必要となる。また、MIEZE を含む中性子共鳴スピンエコー法では 2 つ の中性子スピン状態間の位相差は、RSF の駆動周波数とRSF 間の無磁場領域の距離との積で 表される。仮にRSF の静磁場コイルで発生される静磁場の端面が粗い場合、中性子ビームの 通過エリアの違いによって無磁場の飛行距離にばらつきが生じ、この結果蓄積される位相差に ばらつきが生じる。そのため静磁場コイルで発生される静磁場の境界には面精度が要求され る。例えば MINE1 ポートでは 0.81nm の波長の中性子を用いているが、これで 1MHz の周 波数のシグナルを観測するためには、0.4mm 以下の面精度が要求される。

世界の他のグループでも高周波 RSF の開発は進められており、Keller らのグループで 0.8MHz 駆動の RSF が報告されている [42]。この RSF では静磁場の面精度を出すためにフ ラットワイヤーを用いて静磁場コイルが作られており、比較的低電流で高磁場を出すために 2 重にフラットワイヤーを巻いている。そのため絶縁のためにフラットワイヤーには酸化皮膜処 理が施されている。

一方我々は、静磁場の面精度を出すためにフラットワイヤを用いる点は同じだが、酸化皮膜 による小角散乱成分を無くし、更に中性子の透過率を上げるためにフラットワイヤの素材とし て純アルミを用いることにした [40, 43]。また、Keller らのグループでは 2 重巻きであるのに 対して、我々の RSF では 1 重巻きとする。

例えば 0.5MHz で駆動させる場合、共鳴条件を満たすためには 17mT の静磁場  $B_z$  が必要 となる。8mm 幅のフラットワイヤー 1 重巻きのコイルで 17mT 出すためには 110A の電流が 必要で、このときワイヤーでの発熱が生じる。これを冷却するために冷却板機構が必要とな る。我々は冷却板を準備して、これとフラットワイヤーとが接するようにした。フラットワイ ヤーと冷却版間に PFA(Perfluoroalkoxy) 絶縁フィルムを挿入することで冷却版とフラットワ イヤとを絶縁している。

面精度を出すために、次のような工作手順で 8mm 幅のフラットワイヤーを用いたコイルは 作成された。

- 1 図 2.2 に示すように、冷却板に厚さ 1mm の純アルミ板を貼る。
- 2 幅 8mm になるようにカットする (図 2.3)。これにより幅 8mm のフラットワイヤーが完成 する。このときワイヤーとワイヤーとのギャップは 0.5mm とした。
- 3 手順1,2で作成される冷却板とフラットワイヤーとのセットを、もう1セットつくり、フ ラットワイヤー同士が向かい合うようにする。フラットワイヤーの端を図2.4に示すように 銅コネクタで接続する。片方は並行に接続し、もう片方は1ラインずらして接続することで コイルが形成される。





図 2.4 手順 3。フラットワイヤー同士を銅コネクタで接続する。片方の端は平行に、もう 片方の端は1 ラインずらして接続することでコイルが出来上がる。



図 2.5 に示すように、冷却版には水冷機構と空冷機構が設けられている。中性子ビームが 入射されるビーム窓の部分には水を流せないので、ビーム窓部分は空冷によって冷却される。 ビーム窓部分のサイズは 50mm×50mm である。図 2.5 右のビーム窓の拡大図にあるように、 細かい穴が開いており、ここからビーム窓部分に向かって空気が放出される。ビーム窓以外の 部分は水冷によって冷却される。

Bootstrap 型 RSF

先の手順で作成された RSF を 2 つ並べ、それぞれの静磁場コイルで発生する磁場の向きが 互いに逆向きになるように配置して、Bootstrap 型配置の RSF[42, 44] を作成した。図 2.6 左 に示すように、上下を  $\mu$  メタルで覆って静磁場  $B_z$  の磁気回路を組んで静磁場コイルからの漏 れ磁場を抑える働きをしている。もしこの漏れ磁場があると、静磁場の面精度に影響が及び位 相にばらつきが生じることにつながる。したがって静磁場コイルからの漏れ磁場を防ぐことは 重要なことである。Bootstrap 配置では磁気回路を組むことで静磁場コイルからの漏れ磁場を 抑制し、更に中性子スピン  $|+\rangle$  と  $|-\rangle$  間の波数差を 2 倍にすることができるという利点があ る。図 2.7 に Bootstrap 型 RSF の実物の写真を示す。外形はビーム進行方向に 92mm、高さ 258mm、横幅 311mm である。ビーム通過領域のサイズは 50mm×50mm である。

#### 2.2.2 振動磁場コイル

図 2.8 に振動磁場コイルの概念図と写真を示す。中央の 50mm × 50mm の領域が中性子が 通過する領域で、純アルミのワイヤーを用いて製作した。中央部分から上下に"C"の形をした コイルがあるが、これは振動磁場の漏れ磁場を閉じるためのコイルである。また、振動磁場 コイルには MHz オーダーの高周波電流が流れるため、ワイヤーでの浮遊容量を抑えるため



図 2.6 Bootstrap 型 RSF の概念図。左が側面から見た図で磁気回路を形成していることを示している。



図 2.7 Bootstrap 型 RSF の写真。



図 2.8 振動磁場コイル

表 2.1 振動磁場コイルのインピーダンス。

振動数 [MHz]	2.0	1.0	0.4
インピーダンス [Ω]	4.0	1.3	0.5

に"C"型コイルにはリッツ線を用いている[44]。

実際にはファンクションジェネレーターで生成した振動電流を電力増幅器で増幅して振動磁 場コイルに送り込むが、浮遊容量を小さくすることで効率よく振動電流を流れるようになり、 電力増幅器の負担が軽減され消費電力も抑えることに繋がる。振動磁場コイルの、振動数に 対するインピーダンスを表 2.1 に示す。2MHz という高周波に対しても 4.0Ω という低いイン ピーダンスが実現された。

### 2.2.3 インピーダンス整合器

ファンクションジェネレーター ~ 電力増幅器 ~ 振動磁場コイルで構成される回路は共振回 路となっている。したがって、適当な容量のコンデンサーを用いてインピーダンス整合を取る ことで、回路のインピーダンスを最小にして効率よく振動磁場コイルに電流を流すことができ る。回路のインピーダンス Z は次式で表される。

$$|Z| = \sqrt{R^2 + \left(\omega L - \frac{1}{\omega C}\right)^2} \tag{2.12}$$

ここで、R は回路の抵抗、L はコイルのインダクタンス、C はコンデンサーの容量、 $\omega$  は電流の振動数である。インピーダンス整合を取ることはコイルのインピーダンス  $\omega L$  とコンデンサーのインピーダンス  $1/\omega C$  がキャンセルされることである ( $\omega = 1/\sqrt{LC}$ )。

本研究では RSF を低周波 ~ 高周波での駆動を想定して、容量が可変のコンデンサーを用い て幅広い周波数帯でインピーダンス整合を取れるようなシステムを導入した (図 2.9)。今回導 入した整合器では 0.4MHz~2MHz でのインピーダンス整合が可能であった。

### 2.2.4 スピンフリップテスト

導入したインピーダンス整合器を用いて RSF を 0.5MHz で駆動させた。図 2.7 に示した Bootstrap 型 RSF の片方の静磁場コイルにのみ振動磁場コイルをセットして、単体でのスピ ンフリップ実験を行った (振動磁場コイルのセットされていない方の静磁場コイルは磁場の漏



図 2.9 インピーダンス整合器の写真。上が整合器一式で、下が電力増幅器。

れを防ぐために機能させている)。RSF が ON と OFF のときの中性子カウントをそれぞれ  $I_{
m ON}$ 、 $I_{
m OFF}$ とすると、スピン反転率  $P_{
m RSF}$ は次式で表される。

$$P_{\rm RSF} = \frac{I_{\rm OFF} - I_{\rm ON}}{I_{\rm OFF}} \tag{2.13}$$

スピンフリップテストの結果、スピン反転率は 0.91 であった。この結果、単体で 0.5MHz で 駆動する RSF の開発に成功した。

# 2.3 MIEZE のエネルギー高分解能化

MIEZE では検出器位置で2つのエネルギー状態にある中性子間の位相差がキャンセルされ るように検出器を設置する必要がある。そのため、RSF に求められる面精度と同様に検出器 面にも面精度が必要とされる(0.4mm 以下の精度)。また、検出面の面精度が出ていても、検 出面が厚いと検出される中性子の位相にばらつきが出てしまう。更に、MIEZE シグナルは時 間に対して振動するシグナルであるので、検出器に時間分解能が必要である。例えば1MHz の周波数のシグナルは1周期1µsec であるので、このシグナルを検出するためには0.1µsec 程 度の時間分解能が必要となる。これらのことより、MIEZE の検出器には(1)検出面の面精度 が高い(2)検出面が薄い(3)高い時間分解能を持つ、ということが求められる。また、MIEZE ではスピンアナライズ後に試料を設置するので、小角から高角まで、試料からの散乱ビームを 全て検出することもできる。例えば広い領域を検出器で覆えば広角の散乱を同時に検出するこ とが可能である。その第一歩として MINE1 では上記の(1)~(3)の条件を満たし、かつ2次 元位置分解能をもった検出器(2-Dimensional Position Sensitive Detector, 2D-PSD)を導入 した。また、この2D-PSD のシステムでは、任意の位置分解能のデータを抽出できるように なっている。

2D-PSD と、0.5MHz 駆動の RSF を用いて MIEZE をセットアップし、MIEZE の高エネ ルギー分解能化を行った [41]。

以下、2D-PSDの導入、MIEZEの高分解能化について述べる。

#### 2.3.1 2次元位置検出時間分解検出器の導入

これらの条件を満たすために、MINE1 ポートには光電子増倍管 (浜松フォトニクス株式会 社製、型番 R3292)の表面に 0.2mm 厚、直径 5 インチの<sup>6</sup>Li シンチレーター (応用光研工業 株式会社製)を貼り付けた 2D-PSD を導入した [45]。光電子増倍管の受光面、<sup>6</sup>Li 直径サイズ は 12.7cm(5 インチ) である。これを縦横それぞれ 128 分割し、1mm×1mm の位置分解能ま でが可能である。概念図を図 2.10 に、写真を図 2.11 に示す。

2D-PSD の時間分解とデータ処理は KEK 佐藤節夫氏により開発された module(Kicker pulse and Data processing module) によりなされる (以下佐藤 module と呼ぶ)。今、時間分 解の 1channel 当たりの時間を t とする。この t が時間分解能に相当し、MINE1 ポートで用 いている佐藤 module では  $t = 0.1\mu$ sec までの分解能に対応している。また、ファンクション ジェネレータからキッカーパルスという矩形のパルスを発するが、このキッカーパルスの周期 を T とする。佐藤 module では時刻 0 で最初のキッカーパルスを受けて次のキッカーパルス を受けるまでの時間 T の間、t の時間分解能で中性子を検出する。この間検出された中性子カ ウントの情報を A というメモリに保存されるとする。次に T から 2T の間、先ほどと同じよ うに中性子を検出し、今度は A とは別の B というメモリに保存する (図 2.12 上)。キッカーパ ルスの周期を MIEZE シグナルの周期と同じ周期に設定すると、メモリ A, B, C, … にはそ れぞれ MIEZE シグナル 1 周期分のシグナルがストックされる (図 2.12 下)。最後にこれらの メモリを足し合わせることで、測定時間内に検出された MIEZE シグナルが得られる。例えば 2 周期分の MIEZE シグナルを得たい場合には、キッカーパルスの周期を MIEZE シグナルの

### 2.3.2 MINE1 ポートの MIEZE 分光器と実効 1MHz MIEZE シグナルの観測

現在 MINE1 ポートに設置している制御系全体の写真を図 2.13 に、制御系の概念図を図 2.14 に示す。250A 電源コントローラー (株式会社高砂製作所、TC-911F)、Motro Controller(シグ マ光機株式会社、SHOT-204MS, Mark-204)、Current Controller(株式会社テクシオ、PSR-600)、ファンクションジェネレーター (株式会社エヌエフ回路設計ブロック、WF1946B) は全



図 2.10 2D-PSD の概念図



図 2.11 2D-PSD の写真。丸 で囲った部分に<sup>6</sup>Li シンチレー ターを貼り付けてある。



図 2.12 佐藤システムでのメモリの足し合わせ

て GPIB ケーブルで制御 PC と接続されている。1 台の Motor Controller で最大 4 軸のモー タのコントロールが可能であり、全 28 軸のモーターを 7 台の Controller で制御している。 Current Supply には 1 台の PDS120-6, 2 台の PSR36-20M, 8 台の PSR36-10M を使用して いる。PDS120-6 はガイドコイルに用いている。残りの PSR36-20M, PSR36-10M を DC フ リッパーや位相シフタコイルに流す電流の電源として用いている。ファンクションジェネレー ターでは ch1 で Bootstrap の 3 つの振動磁場コイルに流す振動電流の生成を行い、ch2 では PSD のキッカーパルスを発生させている。ch1 と ch2 とで完全同期をとることで全ての振動 磁場と検出器の時間分解とは同期が取られる。検出された中性子は佐藤 module で処理され、 USB ケーブルにより制御 PC に転送される。

また、Bootstrap の静磁場コイルには 100A を超える電流を流すので、安全のためのイン ターロックを設けている。インターロックでは、水冷と空冷が共に作動していないと電流を流 せないように、かつ、静磁場コイルの表面温度が設定値(設定値は変更可)を超えると自動で 電流がオフになるようになっている。これらはモニターできるようになっている(図 2.13)。

MINE1 ポートの MIEZE の全体写真を図 2.15 に示す。top view と、それに沿った中性子 スピンの波数変化を概念図 2.16 に示す。

RSF は Bootstrap 型に配置されている。上流の Bootstrap1 では振動磁場コイルは片方の 静磁場コイル内のみに設置され、振動磁場コイルが設置されていない方の静磁場コイルは磁場 のフラックスを閉じ込めるために動作している。下流の Bootstrap2 では両方の静磁場コイル に振動磁場コイルが設置され、2 つの RSF 共に駆動している。3 つの DC フリッパー (DC1, DC2, DC3) が設置されており、それぞれ  $\pi/2$ ,  $\pi$ ,  $\pi/2$  条件での駆動となっている。一様な磁 場を発生させるガイド磁場コイルがポラライザの後からアナライザの後まで設置されており、 これは地磁気や環境磁場による中性子スピンの減極を防ぐためである。使用する中性子の波長 分解能は 10% と波長分散を持ったビームなので、ガイドコイルの磁場によってで位相分散が 生じる。この位相分散の効果をキャンセルするために以下の事を行った。Bootstrap1, 2 共に 駆動せずに、ガイドコイルと3 つの DC フリッパーで構成される体系は、典型的な Mezei 型 スピンエコー装置と同等である (図 2.17)。

ポラライザーは  $|-\rangle$  状態の中性子を反射するように磁化されている (図 2.17A)。反射され た中性子は  $\pi/2$  条件に設定された DC1 によって  $\pi/2$  だけ歳差回転する (図 2.17B)。これに より中性子スピンの向きはビーム進行方向を向く。まず位相シフタコイルが OFF の状態を考 える。ガイド磁場は垂直方向にかけられているので、図 2.17 下に示すように中性子はガイド 磁場周りに歳差回転を行う。中性子ビームに波長分散があるので、DC1~DC2 間で、歳差回







図 2.14 MINE1 ポートの制御系概念図



図 2.15 MINE1 ポートに設置された MIEZE の全体写真。こ の写真では中性子は右から入射される。



図 2.16 MINE1 ポートに設置された MIEZE の概念図と、フライトパスに沿っ たエネルギーダイアグラム。本図では中性子は左から入射される。

転により位相分散 (回転角のばらつき) が生じる。図 2.17 では単純のために 2 種類の波長とし て、これらに"1"、"2"と番号を付けている。"1"、"2"に対応する中性子速度をそれぞれ  $v_1$ 、 $v_2$ としたとき、 $v_2 < v_1$  として図示している (速度の遅い  $v_2$  の方が同じ距離進むのに時間がかか るので回転角が大きい)。C→D と進むにつれて"1"、"2"間の位相分散が大きくなる。次に  $\pi$ 条件に設定された DC2 により位相が反転される。位相が反転されているので DC2~DC3 間 では E→F と進むにしたがって、"1"と"2"の間の位相分散が小さくなり B の状態に戻ってい く。しかし DC1~DC2 間距離と DC2~DC3 間距離が異なる (DC1~DC2 間距離の方が長い) ので、完全に戻りきれない。そこで、位相シフタコイルでガイド磁場と逆向きに磁場を発生さ せる。DC1~DC2 間での磁場積分と DC2~DC3 間での磁場積分とが等しくなるように位相シ フタの磁場を設定すると、F のときに B と同じように中性子スピンの向きが揃って位相分散 がキャンセルされる。位相シフタコイルの電流値スキャンを行って得た Mezei 型のスピンエ コーシグナルを図 2.18 に示す。

Mezei シグナルの振幅が最大となるエコーポイントでガイド磁場で生じる位相分散がキャン セルされる。このときの位相シフタコイルの電流値は 2.37A であった。また、Mezei シグナル のビジビリティは 0.78 であった。以下、MIEZE シグナルを観測するときは、位相シフタコイ ルの電流値をエコーポイントにセットしてガイド磁場での位相分散のない状態であるとする。

今、ファンクションジェネレータの ch1 で生成される振動電流の周波数を  $\omega_s$  とする。この とき 3 つの振動磁場周波数は全て  $\omega_s$  であるので、先の MIEZE の原理の説明に当てはめると、  $\omega_1 = \omega_s, \omega_2 = 2\omega_s$  に相当し、 $\Delta \omega = \omega_s$  となる。したがって、Detector 位置での全位相差  $\Phi$ は次式で表される。

$$\Phi = -2\omega_s t_d - \frac{2\omega_s}{v}(-L_{12} + L_{2s} + L_{sd})$$
(2.14)

スピンエコー条件は  $L_{12} = L_{2s} + L_{sd}$  で与えられる。以下同様にしてスピンエコータイムは次のように表される。。

$$\tau_{\rm MIEZE} = \frac{2\hbar\omega_s L_{sd}}{mv^3} \tag{2.15}$$

今回開発した RSF を用いて、 $\omega_s = 0.5$ MHz で MIEZE をセットアップした (中性子ビーム サイズは縦 5mm、横 3mm であった)。したがって、検出されるシグナルは  $2\omega_s = 1.0$ MHz の 周波数、すなわち 1 周期 1 $\mu$ sec であるはずである。 $L_{12} = 0.9$ m,  $L_{2s} = 0.4$ m であったので、



図 2.17 全 RSF が OFF のとき、ガイドコイル、DC1, DC2, DC3 と 位相シフタコイルとで形成される体系は典型的な Mezei 型スピンエコー 装置と同等である。位相シフタ電流をスキャンすると Mezei 型のエコー シグナルが得られ、振幅最大となるエコーポイントでガイド磁場での位 相分散がキャンセルされる。位相シフタコイルの電流はこの点にセット される。



図 2.18 美際に得られた Mezer 型エコーシ グナル。位相シフタ電流は 2.37A にセットさ れた。



☑ 2.19 1MHz MIEZE signal

図 2.20 1MHz MIEZE signal の位相シフト

スピンエコー条件  $(L_{12} = L_{2s} + L_{sd})$  を満たすために  $L_{sd} = 0.5$ m となるように Detector を セットした。得られた MIEZE シグナルを図 2.19 に示す。

1MHz 周波数のシグナルは 1 周期 1 $\mu$ sec である。図 2.19 に示される本実験で得られたシグ ナルは 1 周期 0.99 ± 0.01 $\mu$ sec であった。このことから、理論値通りの 1MHz のシグナルが 得られたことが分かる。更に Detector position をビーム進行方向に対して 0.1mm ずつシフ トさせて観測した MIEZE シグナルを図 2.20 に示す。波長 0.81nm の中性子速度は 490m/s である。この中性子がシグナルの 1 周期である 1 $\mu$ sec の時間で飛行する距離は約 0.5mm であ る。したがって Detector position を 0.1mm ずつシフトさせたとき、シグナルの位相は 0.2 周期分ずつシフトするはずである。図 2.20 から、0.2 周期分ずつ位相がシフトした様子がわか る。この結果もまた、得られたシグナルが 1MHz の MIEZE シグナルであることを裏付けて いる。シグナルのビジビリティは 0.4 であった。これは、RSF 単体のスピン反転率が 0.86 で あり、RSF の漏れ磁場によるスピン反転率の低下が原因であると思われる。スピンエコータ イムは 1.7nsec と見積もられる。

これまでの実験によって、原理的には実効 1MHz の MIEZE が可能であることが示された。 しかしここで用いていた RSF ではフラットワイヤー間ギャップで漏れ磁場が生じて中性子が 減極することが分かった。これを回避するために 20mm 幅のフラットワイヤーを用いた RSF を開発した。ギャップ幅は 0.5mm である。しかし  $B_z$  電流を 155A 流したとき、ギャップか らの漏れ磁場の影響は、ギャップから上下  $\pm$ 5mm の範囲に及んでいた。そこで、ギャップ間 にエナメル線 (直径 0.3mm)を挿入して、エナメル線にフラットワイヤと同じ方向に電流を流 してギャップからの漏れ磁場を打ち消すことを試みた。図 2.21 にビーム窓部分の写真と、漏 れ磁場を打ち消す概念図を示す。この補正によりギャップの漏れ磁場の効果が、ギャップから 上下  $\pm$ 2mm の範囲に抑えられ、ビームの縦幅を 16mm まで取ることが可能となった。これに 伴い中性子強度も以前の縦幅 5mm のときに比べて 5 倍の強度になった。



図 2.21 幅 20mm フラットワイヤーを用いた RSF のビーム窓部の写真 (左) とエナメル線 を挿入してギャップの漏れ磁場を補正するための概念図 (右)

この新 RSF では  $B_z$  電流 155A のとき、 $\omega_s$  は 0.3MHz であった。250A 流して最大  $\omega_s = 0.5$ MHz 駆動は可能であるが、静磁場コイルでの発熱で表面温度が 50C° を超えたため、250A での長時間駆動は行わないことにした。 $B_z=155$ A では静磁場コイルの表面温度も 30C° 程度 に保たれており、数週間の安定駆動ができた。

実際にサンプル測定を想定したときに、長時間の測定になると想定されるので、長時間安定 駆動することは必須である。そのため、現時点での RSF では  $\omega_s = 0.3$  MHz 駆動が長時間安 定駆動できる最大周波数である。原理的には 0.5 MHz 駆動で実効 1 MHz のシグナルが得られ ることを確認でき、 $L_{sd} = 0.5$ m の元で 1.7 nsec のスピンエコータイムを実現できたが、実際 の測定ではこれは困難であるということを意味している。そこで、次に、試料 ~ 検出器間距 離  $L_{sd}$  を伸ばすことでスピンエコータイムを長くすることを試みた。MINE1 のシステムでは スピンエコー条件は  $L_{12} = L_{2s} + L_{sd}$  で与えられる。ポラライザ ~ アナライザ間での減極を 防ぐためのガイド磁場コイルの長さによって、ポラライザ ~ アナライザ間の距離が制限され、 これによって Bootstrap1~Bootstrap2 間の距離も制限されている。そこで、ガイド磁場コイ ルを 1700mm から 2000mm の長さのものにして、ポラライザ ~ アナライザ間距離を伸ばし、  $L_{sd}$  を 0.5m から 0.8m に伸ばす事ができた。このときスピンエコータイムは 1.6 nsec と計算 される ( $\omega_s = 0.3$  MHz、 $L_{sd} = 0.8$  m、 $\lambda = 0.8$  nm)。また、このとき得られた MIEZE シグナ ルを図 2.22 に示す。ビジビリティは 0.65 であった。

ここでは、新たに低周波に対してインピーダンス整合をとれる整合器を導入した。この整合 器の対応周波数帯は 0.05~0.7MHz の範囲である。これにより現在 MIEZE で長時間安定駆 動可能な周波数帯は 0.05~0.3MHz となった。この周波数帯に対応するスピンエコータイムは 0.3~1.6nsec である。



図 2.22  $\omega_s = 0.3 \text{MHz}$  駆動 (実効 0.6MHz) の MIEZE シグナル

## 2.4 結論

周波数 1MHz の MIEZE シグナルの観測を目指して、純アルミフラットワイヤーを用い て RSF を開発し、0.5MHz 駆動の RSF の開発に成功した。これと同時に効率よく高周波の 振動電流を振動磁場コイルに流すためのインピーダンス整合器も導入した。また、1MHz の MIEZE シグナルを観測するために、0.1µsec の時間分解能を持ち、検出面厚さが 0.2mm の 2 次元位置検出器を導入した。このように MIEZE の高エネルギー分解能化に伴い、各デバイス の導入も行い、総合的に MIEZE の開発を行った。その結果、周波数 1MHz の MIEZE シグ ナルの観測に成功した。しかしシグナルのビジビリティが 0.4 と低く、また RSF の発熱の問 題から数週間の長時間安定駆動には至っていない。更にフラットワイヤー間ギャップでの中性 子スピンの減極が生じ、中性子ビームの縦幅が 5mm であった。試料測定に適用するにはこの ような点に関する RSF の改良が必要である。しかしこのシグナルは、周波数では世界最高性 能であり、MIEZE-SANS の実現の可能性を示すことができた。

次に、ワイヤー間ギャップでの減極を軽減するために、20mm 幅フラットワイヤーを用いた RSF を開発した。更にギャップにエナメル線を挿入してギャップの漏れ磁場を補正して減極を軽減させることに成功した。これによりビームの縦幅を 16mm まで広げることに成功し、ビーム強度が 5 倍になった。発熱の問題から、長時間安定駆動できる周波数は 0.3MHz であった。そこで試料 ~ 検出器間距離  $L_{sd}$  を 0.5m から 0.8m に伸ばして、 $\omega_s$ =0.3MHz、 $\lambda$ =0.81nm において、最終的にスピンエコータイム 1.6nsec を達成した。

また、MIEZE 用に 0.05~0.7MHz の範囲でインピーダンス整合が可能な整合器を導入して 0.05~0.3MHz の周波数帯で MIEZE は長時間安定駆動が可能となった。これはスピンエコー タイムでは 0.3~1.6nsec に対応する。また、0.3MHz の駆動周波数において 0.65 という高い
ビジビリティの MIEZE シグナルを得ることができた。

今後の課題としては熱冷却を強化し、0.5MHz で長時間安定駆動する RSF を開発すること が挙げられる。

## 第3章

# 磁性流体ダイナミクスの測定

これまでの開発で MIEZE の高エネルギー分解能化に成功した。次に MIEZE 特有の問題で ある経路分散の影響を補正し、かつ MIEZE が磁気散乱の測定に対して有効性であることを示 すことを試みる。

磁性流体中の運動には大きく分けて (1) 微粒子の拡散運動 (2) 磁気モーメントの運動である超常磁性運動の 2 種類がある。超常磁性運動とは微粒子の持つ磁気モーメントの運動である。Lebedev らの研究で、直径 10nm の微粒子の拡散運動は 10nsec 程度と報告されている [48]。また、Dickison, Kilcoyne らの研究で、直径 10nm の微粒子では、室温において $\tau = 10^{-9} \sim 10^{-12}$ sec の緩和時間を持つと報告されている [32, 33]。これらのことと MIEZE のダイナミクスレンジが 0.3~1.6nsec であることから、MIEZE では超常磁性運動に由来する磁気散乱によってのみビジビリティの減衰が観測され、拡散運動に由来する核散乱ではビジビリティは減衰しないことが予想される。したがって、仮に核散乱でビジビリティが減衰すれば、それは経路分散の影響によるものと想定される。そこで、試料後にオプションとしてアナライザー(以後 2nd アナライザーと呼ぶ)を設置して両者を同様の実験配置で測定し、核散乱 でのビジビリティの減衰を経路分散の効果であるとして磁気散乱のビジビリティを補正することで、磁気散乱のみを精度良く観測できることが期待される。この手法により磁気モーメントの運動である超常磁性緩和の観測に成功すれば、経路分散の効果を補正でき、かつ磁気散乱を精度良く測定できるという MIEZE の有効性を示すことに繋がる。

本研究では試料としてマグネタイト磁性流体を用いた。以下、実験に用いた試料の説明、実 験手順、結果について述べる。



図 3.1 マグネタイト磁性流体の概念図

#### 3.1 試料

磁性流体は直径 10nm 程度の磁性微粒子に界面活性剤による表面処理を施して、磁性微粒 子が水などに安定して分散している一種のコロイド液である。液体でありながら磁性を持つ合 成液体であって天然には存在しない。今回サンプルとして用いたマグネタイト磁性流体では、 マグネタイトの磁性微粒子がオレイン酸でコーティングされている。この概念図を図 3.1 に示 す。マグネタイト磁性流体のマグネタイト微粒子は直径 10nm 程度とされている。マグネタ イトは強磁性体であり、キュリー温度以下では個々の微粒子は磁気モーメントを持つ。図 3.1 の微粒子中の矢印は磁気モーメントを示している。個々の微粒子の磁気モーメントはそれぞれ 任意の方向を向いており、磁性流体は常磁性の性質を示す。

本実験で使用した試料では、マグネタイト微粒子の重量パーセント濃度 40%、溶媒を重水 (D<sub>2</sub>O) に置換したものを用いた。

磁性流体中のダイナミクスとしては (1) 微粒子の拡散運動 (2) 超常磁性運動の 2 種類が主に 考えられる。超常磁性運動とは微粒子の持つ磁気モーメントの運動である。微粒子自身は強磁 性の性質を持っているが、時間経過とともに磁気モーメントの向きが変わるために、キュリー 点以下の温度であっても時間平均では常磁性のように振舞う。このような性質を超常磁性と呼 び、このときの磁気モーメントの動きが超常磁性運動である。超常磁性の緩和時間  $\tau$  は次式で 与えられる [46, 47]。

$$\tau = \tau_0 \exp\left[\frac{KV}{kT}\right] \tag{3.1}$$

K は磁気異方性エネルギー、V は微粒子の体積、k はボルツマン定数、T は絶対温度である。Dickison, Kilcoyne らの研究では直径 10nm の微粒子では、室温において  $\tau = 10^{-9} \sim 10^{-12}$ sec の緩和時間を持つ [32, 33]。また、Lebedev らの研究では、直径 10nm の微粒子の拡

散運動は 10nsec 程度と報告されている [48]。これらのことと MIEZE のダイナミクスレンジ が 0.3~1.6nsec であることから、MIEZE を用いた本実験では超常磁性緩和を観測することを 目的とする。

核散乱は磁性微粒子の拡散運動、磁気散乱は超常磁性運動を観測することに対応している。 MIEZEのエネルギーレンジにマッチしているのは超常磁性運動の方であるので、核散乱のシ グナルではビジビリティが減衰せず、超常磁性運動を捕らえることに成功すれば磁気散乱のシ グナルではビジビリティが減衰することが予想される。

#### 3.2 実験

磁性流体からの中性子の散乱には核相互作用による核散乱と磁気相互作用による磁気散乱と が含まれる。超常磁性運動は磁性微粒子の磁気モーメントの運動であり、中性子の磁気モーメ ントと磁気相互作用を行う。したがって、超常磁性運動を観測するためには磁気散乱を観測す る必要がある。今、入射中性子スピンの向きを P、磁気相互作用により散乱された中性子スピ ンの向きを P' とすると、P' は次のように表される [23]。

$$\mathbf{P}' = \frac{-\mathbf{Q}(\mathbf{P} \cdot \mathbf{Q})}{|\mathbf{Q}|^2} \tag{3.2}$$

*Q* は散乱ベクトルである。MINE1 ポートでは入射中性子は P = (0, 0, -z) で入射され、散 乱ベクトル *Q* は +*x* 方向を向いている (図 3.2)。このとき P' = (0, 0, 0) = (0, 0, +z/2) + (0, 0, -z/2) と表される。すなわち磁気散乱成分のうち半分はスピンフリップ成分となり残 リ半分はスピンノンフリップ成分となる。核散乱成分はスピンノンフリップであるので、磁 性流体からの散乱は、スピンノンフリップ成分 (核散乱 + 磁気散乱/2) とスピンフリップ成分 (磁気散乱/2) との和で表される。このような場合、試料後に 2nd アナライザーを設置するこ とでスピンフリップ成分とスピンノンフリップ成分とを分離することが可能となる。図 3.2 は MINE1 ポートの MIEZE 分光器に設置された 2nd アナライザーの概念図である。2nd アナラ イザーの設置と同時に試料前に  $\pi$  フリッパーを設置している。図 3.3 に実際の写真を示す。

π フリッパー設置の理由は、π フリッパーを ON/OFF することでスピンノンフリップ成分
とスピンフリップ成分両方を同じジオメトリで測定し、両者の比較を行うためである。以下に
その方法を説明する。

*π* フリッパー ON の場合

図  $3.2A \rightarrow B$  で中性子スピンが反転される (-z 方向から +z 方向に反転されるとする)。 サンプルでの散乱でスピンフリップ成分 (-z) とノンフリップ成分 (+z) とに別れる



図 3.2 2nd アナライザー設置体系の概念図 (上) と、 $\pi$  フリッパー ON/OFF 時における 測定される散乱成分の概念図 (下)。中性子は右から入射される。

(C)。C 以降の矢印で、縦縞がスピンノンフリップ成分 (+z)、横縞がスピンフリップ成 分 (-z)を示している。2nd アナライザーは +z 成分を透過し、-z 成分を反射するようにセットされている。したがってスピンフリップ成分 (-z) は 2nd アナライザーで 反射され、ノンフリップ成分 (+z) は 2nd アナライザーを透過する (D)。2nd アナライ ザーを透過したスピンノンフリップ成分のみが検出器で検出される。

*π* フリッパー OFF の場合

図  $3.2A \rightarrow B$  で中性子スピンは反転されない  $(-z \rightarrow -z)$ 。サンプルでの散乱でスピン フリップ成分 (+z) とノンフリップ成分 (-z) とに別れる (C)。スピンノンフリップ成 分 (-z) は 2nd アナライザーで反射され、スピンフリップ成分 (+z) は 2nd アナライ ザーを透過する (D)。2nd アナライザーを透過したスピンフリップ成分のみが検出器で 検出される。

このように π フリッパーを ON/OFF することで、スピンフリップ成分とスピンノンフリッ プ成分とを同じジオメトリで測定できるようにした。核散乱の成分はスピンノンフリップ成分 (核散乱 + 磁気散乱/2) からスピンフリップ成分 (磁気散乱/2) を引くことで求められ、これに より核散乱と磁気散乱とを比較することができる。

2nd アナライザーは、3Q 偏極スーパーミラーが 0.6mm 厚の Si 基板の両面にスパッタされ たものを用いた。2nd アナライザーのミラー長は 150mm であった。試料前スリット幅、2nd アナライザー後スリット幅共に 3mm、ビームに対するミラーの角度が 1.5deg.(ビーム実行幅



図 3.3 2nd アナライザー設置の全体写真 (左)。2nd アナライザー付近の全体写真 (右)。 両図共に中性子は右から入射される。



図 3.4 <sup>3</sup>He 検出器での散乱強度測定の実験配置概念図。中性子は右から入射される。

4mm をカバー可能)の条件において、πフリッパー ON/OFF としたときの中性子強度の比は 30:1 以上であった。

このようなジオメトリにおいて、まず<sup>3</sup>He 検出器で散乱強度を測定した。図 3.4 に示すように、検出器の回転角度 20 と試料の中心とは一致しており、2nd アナライザーと 2nd アナラ イザー後のスリットは固定されて検出器とともに 20 で回転する。 プリッパーを ON/OFF することで各散乱角方向のスピンノンフリップ成分とスピンフリップ成分の散乱強度を測定し た。試料のサイズは厚さ 2mm で、常温下においた。試料と同じ厚さ 2mm の重水からの散乱 強度も測定し、これをバックグラウンドとして磁性流体からの散乱強度から引いた値を図 3.5 に示す。スピンフリップ成分の散乱強度はスピンノンフリップ成分の散乱強度に比べて 1 桁小 さいが、長時間測定すれば十分に MIEZE での測定が可能であることが分かった。



図 3.5 <sup>3</sup>He 検出器での散乱強度測定結果

表 3.1 MIEZE 測定時の試料環境、試料サイズ、スリット条件等

試料厚み	2mm
試料温度	室温 (26 )
試料前スリット	幅 3mm、高さ 20mm
2nd アナライザー後スリット幅	3mm

MIEZE 測定

MIEZE 測定での測定点は、スピンエコータイム 0.3, 0.8, 1.6nsec の 3 点それぞれにおいて Q = 0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup> とした。これらの測定点に対して  $\pi$  フリッパー ON/OFF を行 い、スピンノンフリップ成分とスピンフリップ成分の測定を行った。また、バックグラウンド として、厚さ 2mm の重水を試料と同様の測定を行った。試料環境、試料サイズは <sup>3</sup>He 検出器 での散乱強度測定時と同じく、常温下で厚さ 2mm である。試料前スリット幅、2nd アナライ ザー後スリット幅も、散乱強度測定時と同じく 3mm である。これらの条件を表 3.1、3.2 にま とめる。

3.3 データ解析

実際に得られたデータの解析手順を説明する。 $\pi$ フリッパー ON/OFF で得られた磁性流体 からの散乱強度をそれぞれ  $I_{\text{FON}}$ ,  $I_{\text{FOFF}}$ 、測定時間を  $T_{\text{FON}}$ ,  $T_{\text{FOFF}}$  とする。同様に、重水か らの散乱強度と測定時間をそれぞれ  $I_{\text{DON}}$ ,  $I_{\text{DOFF}}$ ,  $T_{\text{DON}}$ ,  $T_{\text{DOFF}}$  とする。このとき、重水か

スピンエコータイム [nsec]	$Q[nm^{-1}]$
0.3	0.41
	0.54
	0.68
0.8	0.41
	0.54
	0.68
1.6	0.41
	0.54
	0.68

表 3.2 MIEZE 測定時の測定スピンエコータイムレンジ、測定 Q レンジ。これらそれぞれ に対して  $\pi$  フリッパー ON/OFF を測定。

らのバックグラウンド補正を行った  $\pi$  フリッパー ON/OFF 時の散乱強度  $I_{1_{\rm ON}}, I_{1_{\rm OFF}}$  は

$$I_{1_{\rm ON}} = I_{\rm F_{ON}} - I_{\rm D_{ON}} \times \frac{T_{\rm F_{ON}}}{T_{\rm D_{ON}}}$$

$$(3.3)$$

$$I_{1_{\rm OFF}} = I_{\rm F_{OFF}} - I_{\rm D_{OFF}} \times \frac{T_{\rm F_{OFF}}}{T_{\rm D_{OFF}}}$$
(3.4)

 $I_{1_{ON}}$ はスピンノンフリップ成分であるので、核散乱成分と磁気散乱成分の半分を含んでいる。また、 $I_{1_{OFF}}$ はスピンフリップ成分であるので、磁気散乱成分の半分である。したがって、 核散乱成分を  $I_{N}$  とすると

$$I_{\rm N} = I_{1_{\rm ON}} - I_{1_{\rm OFF}} \tag{3.5}$$

によって核散乱成分が求められる。ここで、 $I_{\rm M}\equiv I_{1_{\rm OFF}}$ として $I_{\rm M}$ を磁気散乱成分とする。 厳密には磁気散乱成分の半分であるので $I_{\rm M}=2I_{1_{\rm OFF}}$ であるが、単に2倍することは統計精度の観点からは変わらないので、ここでは $I_{\rm M}=I_{1_{\rm OFF}}$ とする。

このようにして得られた  $I_N$ ,  $I_M$  に対して、sin 関数  $f(x) = a \times sin(2\pi(x/T + p)) + b$  で フィッティングを行う。ここで、T は MIEZE シグナルの周期、p は位相である。フィッティ ングの結果、ビジビリティが  $P \equiv |a/b|$  により求められる。核散乱成分と磁気散乱成分のビジ ビリティをそれぞれ  $P_N$ ,  $P_M$  とする。 以上の手順で得られた結果を図 3.6~ 図 3.26 に示す。これらの図中で左上に示した  $P_{\rm N}$  および  $P_{\rm M}$  は、シグナルをフィッティングすることで得られた核散乱、磁気散乱のビジビリティである。 $\tau$ =0.3nsec に対する結果が図 3.6~ 図 3.12 に、 $\tau$ =0.8nsec に対する結果が図 3.13~ 図 3.19 に、 $\tau$ =1.6nsec に対する結果が図 3.20~ 図 3.26 にそれぞれ示されている。

まず  $\tau$ =0.3nsec(図 3.6~図 3.12)の結果に対して説明する。図 3.6 は Q=0nm<sup>-1</sup>(ダイレク トビーム)の結果である。図 3.7, 3.9, 3.11 はそれぞれ Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の核散乱の 結果である。また、図 3.8, 3.10, 3.12 はそれぞれ Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の磁気散乱の結果 である。ダイレクトビームのビジビリティは 0.758±0.002 である。これに対して、核散乱で は Q=0.41nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.762±0.023, Q=0.54nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.749±0.013, Q=0.68nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.756±0.021 となっており、ダイレクトビームと比べてビジビリティの減衰がみられな い。これは、0.3nsec の時間レンジでは中性子速度の変化が検出されなかったためである。す なわち、Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の領域 (それぞれ実空間では 15.3, 11.6, 9.24nm のサイズに 対応する)に対応する 0.3nsec オーダーの粒子の揺らぎが存在していないことを意味している。 一方磁気散乱では Q=0.41nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.392±0.030, Q=0.54nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.347±0.030, Q=0.68nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.279±0.033 となっており、各 Q レンジでビジビリティの減衰がみら れる。これは各 Q レンジにおいて、磁性微粒子内の磁気モーメントとの相互作用による準弾 性散乱により、中性子の速度が変化し、これが検出されたためである。このことは、Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup> の領域 (それぞれ実空間では 15.3, 11.6, 9.24nm のサイズに対応する)では、 0.3nsec の時間レンジに対応する磁気モーメントの運動が存在することを意味している。

次に  $\tau$ =0.8nsec(図 3.13~図 3.19)の結果に対して説明する。図 3.13 は Q=0nm<sup>-1</sup>(ダイレ クトビーム)の結果である。図 3.14, 3.16, 3.18 はそれぞれ Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の核散乱 の結果である。また、図 3.15, 3.17, 3.19 はそれぞれ Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の磁気散乱の 結果である。ダイレクトビームのビジビリティは 0.757±0.003 である。これに対して、核散乱 では Q=0.41nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.666±0.023, Q=0.54nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.679±0.033, Q=0.68nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.669±0.021 となっている。ダイレクトビームと比べて 0.1 程度のビジビリティの 減衰がみられる。この核散乱での減衰は経路分散によるものと思われる。経路分散に関する 考察は後で述べる。一方磁気散乱では Q=0.41nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.464±0.036, Q=0.54nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.346±0.042, Q=0.68nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.269±0.045 となっており、 $\tau$ =0.3nsec のときと同 様、各 Q レンジでビジビリティの減衰がみられる。このことから、Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup> の領域 (それぞれ実空間では 15.3, 11.6, 9.24nm のサイズに対応する)では、0.8nsec の時間レ ンジに対応する磁気モーメントの運動が存在することが分かる。 最後に  $\tau$ =1.6nsec(図 3.20~ 図 3.26)の結果に対して説明する。図 3.20 は Q=0nm<sup>-1</sup>(ダ イレクトビーム)の結果である。図 3.21, 3.23, 3.25 はそれぞれ Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>のの核散乱の結果である。また、図 3.22, 3.24, 3.26 はそれぞれ Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の磁気散乱の結果である。また、図 3.22, 3.24, 3.26 はそれぞれ Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の磁気散乱の結果である。また、図 3.22, 3.24, 3.26 はそれぞれ Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の磁気散乱の結果である。ダイレクトビームのビジビリティは 0.613±0.002 である。これに対して、核散乱では Q=0.41nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.451±0.016, Q=0.54nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.416±0.012, Q=0.68nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.332±0.021 となっている。ダイレクトビームと比べてビジビリティの減衰が、 $\tau$ =0.8nsec のときよりも大きくなっている。ダイレクトビームと比べてビジビリティの減減意が、 $\tau$ =0.8nsec のときよりも大きくなるほど)顕著に現れる傾向があり、このため $\tau$ =0.8nsec のときよりも大きく減衰していると思われる。一方磁気散乱では Q=0.41nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.123±0.021, Q=0.54nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.124±0.024, Q=0.68nm<sup>-1</sup> で  $P_{\rm N}$ =0.129±0.034 となっており、シグナルがほぼつぶれていることが分かる。核散乱のビジビリティの減衰から、経路分散の効果が多く含まれていることが予想されるが、これを考慮に入れても磁気散乱でのビジビリティの減衰は明らかである。このことから、Q=0.41, 0.54, 0.68nm<sup>-1</sup>の領域 (それぞれ実空間では 15.3, 11.6, 9.24nm のサイズに対応する)では、1.6nsec の時間レンジに対応する破気モーメントの運動が存在することが分かる。



図 3.6  $\tau = 0.3$  nsec, Q=0 nm<sup>-1</sup> での核散乱



図 3.7  $\tau$ =0.3nsec, Q=0.41nm<sup>-1</sup> での核散乱



図 3.8 <sub>τ</sub>=0.3nsec, Q=0.41nm<sup>-1</sup> での磁気散乱



図 3.9  $\tau=0.3$ nsec, Q=0.54nm<sup>-1</sup> での核散乱



図 3.10 <sub>τ</sub>=0.3nsec, Q=0.54nm<sup>-1</sup> での磁気散乱





図 3.11 *τ*=0.3nsec, Q=0.68nm<sup>-1</sup> での核散乱 図 3.12 *τ*=0.3nsec, Q=0.68nm<sup>-1</sup> での磁気散乱



図 3.13 τ=0.8nsec, Q=0nm<sup>-1</sup> での核散乱





 $P_{\rm M} = 0.464 {\pm} 0.036$ 

 $P_{M} = 0.346 \pm 0.042$ 

400 -

300

200

図 3.14  $\tau$ =0.8nsec, Q=0.41nm<sup>-1</sup> での核散乱

図 3.15 τ=0.8nsec, Q=0.41nm<sup>-1</sup> での磁気散乱



図 3.16  $\tau$ =0.8nsec, Q=0.54nm<sup>-1</sup> での核散乱



図 3.17  $\tau$ =0.8nsec, Q=0.54nm<sup>-1</sup> での磁気散乱



図 3.18 τ=0.8nsec, Q=0.68nm<sup>-1</sup> での核散乱 図 3.19  $\tau=0.8$ nsec, Q=0.68nm<sup>-1</sup> での磁気散乱



図 3.20  $\tau$ =1.6nsec, Q=0nm<sup>-1</sup> での核散乱





図 3.21 τ=1.6nsec, Q=0.41nm<sup>-1</sup> での核散乱

図 3.22  $\tau$ =1.6nsec, Q=0.41nm<sup>-1</sup> での磁気散乱

 $P_{\rm M} = 0.124 \pm 0.024$ 

10

250

200

150

100

50

0

0

5

 $I_{\rm M}$  (94000sec) / a.u.



図 3.23 *τ*=1.6nsec, Q=0.54nm<sup>-1</sup> での核散乱

図 3.24 *τ*=1.6nsec, Q=0.54nm<sup>-1</sup> での磁気散乱

15

Elapsed time / 0.1µsec

20

25

30



図 3.25  $\tau$ =1.6nsec, Q=0.68nm<sup>-1</sup> での核散乱 図 3.26  $\tau$ =1.6nsec, Q=0.68nm<sup>-1</sup> での磁気散乱

経路分散の評価 MIEZE では実際の試料測定時には、試料での散乱位置の違いから生じる 経路差によって、弾性散乱でもビジビリティが崩れる。図 2.20 は、視点を変えると検出器位 置をビーム進行方向にシフトさせて試料 ~ 検出器間距離が変わることでシグナルの位相がシ フトすることを実験で確認したと解釈することができる。実際の試料測定時には検出器位置を ビーム進行方向にシフトさせることはしない。しかし図 3.27 のように角度を振った場合、例 えば  $L_A$ ,  $L_B$  のように、試料内での散乱位置の違いや検出器上での検出位置の違いから試料 ~ 検出器間距離に差が生じる。試料 ~ 検出器間距離に差が生じると、それぞれの経路を通っ たシグナルは位相の異なっている。しかし実際に検出されるシグナルはこれらの足し合わせで あるので、中性子エネルギー変化のない弾性散乱でもビジビリティが減衰する。

経路差は試料前スリット幅(縦横)、試料厚み、検出器前スリット幅(縦横)、検出器厚み、散 乱角など、ジオメトリのみから生じる影響である。また、高い駆動周波数では経路差に対して 敏感になる。そこで、この経路分散によるビジビリティの減衰も補正する必要があり、モンテ カルロシミュレーションにより経路分散によるビジビリティの減衰を計算し、これによって補 正を試みた[49]。以下に計算法の説明を行う。

計算法 試料  $\sim$  検出器間距離  $L_{sd}$  からの経路分散を  $\delta L_{sd}$  とする。今弾性散乱のみを仮定 して経路分散の効果が MIEZE シグナルに与える影響を計算する。全位相差  $\Phi$  は

$$\Phi = -2\omega_s t_d - \frac{2\omega_s}{v} (-L_{12} + L_{2s} + L_{sd} + \delta L_{sd})$$
(3.6)



図 3.27 試料測定時に検出器角度を振ったときの概念図。L<sub>A</sub>, L<sub>B</sub>のように、試料内での 散乱位置の違いや、検出器上での検出位置の違いから試料 ~ 検出器間距離に差が生じる。



図 3.28 ビーム経路計算の概念図

で表される。スピンエコー条件下では

$$\Phi = -2\omega_s t_d - \frac{2\omega_s}{v} \delta L_{sd} \tag{3.7}$$

である。検出される中性子強度 $I_d$ は

$$I_d \propto \frac{1 + \cos \Phi}{2} \tag{3.8}$$

で表され、検出される MIEZE シグナルは  $I_d$  を用いて

$$P_{\text{MIEZE}} \propto \frac{\int S(\boldsymbol{Q}, \ \omega) I_d \ d\omega}{\int S(\boldsymbol{Q}, \ \omega) \ d\omega} \propto \frac{\int S(\boldsymbol{Q}, \ \omega) \cos \Phi}{\int S(\boldsymbol{Q}, \ \omega)} d\omega$$
(3.9)

と表される。ここで、 $\omega$  は準弾性・非弾性散乱による中性子の遷移エネルギーの周波数である。  $\delta L_{sd}$  は試料での散乱により生じる経路分散であり、試料のないときのダイレクトビームの経 路と試料により散乱されたビームの経路との差により計算される。x, z 方向の中性子ビーム の発散角を  $\delta \theta_x, \delta \theta_z$  とする。また、試料前スリットサイズを  $x_s, z_s$ 、試料厚みを  $y_s$ 、検出器 前スリットサイズを  $x_d, z_d$ 、検出器実効厚みを  $y_d$  とする。

図 3.28 にビーム経路の概念図を示す。ダイレクトビームの経路を  $L_{sd0}$  とする。 $L_{sd0}$  に対する検出器スリットは次式で定義される。

$$x_{d0} = L_{sd} \,\,\delta\theta_x + x_s \tag{3.10}$$

$$x_{d0} = \begin{cases} x_{d0} & \text{for } x_{d0} < x_d \\ x_d & \text{for } x_{d0} > x_d \end{cases}$$
(3.11)

$$z_{d0} = L_{sd} \ \delta\theta_z + z_s \tag{3.12}$$

$$z_{d0} = \begin{cases} z_{d0} & \text{for } z_{d0} < z_d \\ z_d & \text{for } z_{d0} \ge z_d \end{cases}$$
(3.13)

MINE1 ポートの実際の装置では、x方向のビームの発散角  $\delta\theta_x$  は、ポラライザの見込み幅 と $x_s$  によって定義され、この値は 5mrad である。また、z方向の発散角  $\delta\theta_z$  は、Bootstrap1 入り口と Bootstrap2 出口に設置された縦幅 16mm のスリットで定義され、この値は 20mrad である。そのため試料がない場合のダイレクトビームでは、プログラム上で設定した検出器ス リット  $x_d$ ,  $z_d$  が、発散角から計算される検出器位置でのビームサイズ  $x_{d0}$ ,  $z_{d0}$  よりも大きけ れば検出器スリットは  $x_{d0}$ ,  $z_{d0}$  となり、小さいときは  $x_d$ ,  $z_d$  となる。式 (3.11)~(3.13) はこ のことを意味している。試料が設置されている場合は、試料でビームが散乱されて広がってく るので検出器スリットはプログラムで設定する  $x_d$ ,  $z_d$  となる。

試料により散乱されたビームの経路を  $L_{sd1}$ ,  $L_{sd2}$  とする。 $L_{sd1}$  は散乱角  $\theta = 0$  のとき で、 $L_{sd2}$  は散乱角  $\theta \neq 0$  のときのビーム経路とする。散乱角  $\theta \neq 0$  のとき、検出器は  $2\theta$  方向にあるのでこのときの検出器面上の点  $(x_{d2}, y_{d2}, z_{d2})$  は、 $\theta = 0$  のときの検出器上の点  $(x_{d1}, y_{d1}, z_{d1})$  に回転行列を掛けて計算される。

$$\begin{pmatrix} x_{d2} \\ y_{d2} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos 2\theta & -\sin 2\theta \\ \sin 2\theta & \cos 2\theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x_{d1} \\ y_{d1} \end{pmatrix}, \quad z_{d2} = z_{d1}$$
(3.14)

経路差 $\delta L_{sd}$ は次式によって計算される。

$$L_{sdi} = \sqrt{(x_{di} - x_s)^2 + (y_{di} - y_s)^2 + (z_{di} - z_s)^2}, \quad i = 0, \ 1, \ 2$$
(3.15)

$$\delta L_{sd} = L_{sd2} - L_{sd0} \tag{3.16}$$

試料上の点  $(x_s, y_s, z_s)$  と検出器上の点  $(x_d, y_d, z_d)$  はそれぞれ乱数によって与えられる。 まず 1 点の  $(x_s, y_s, z_s)$  が乱数で与えられ、これに対して  $(x_d, y_d, z_d)$  が乱数で与えら れ、 $L_{sdi}, \delta L_{sd}$  が計算される。更に続いて  $(x_s, y_s, z_s)$  が乱数で与えられ、これに対して  $(x_d, y_d, z_d)$  が乱数で与えられ、 $L_{sdi}, \delta L_{sd}$  が計算される。このようにして試料上の各点と検 出器上の各点との経路が計算され、経路分散が求められる。

ここで弾性散乱のみを考える場合、 $P_{\text{MIEZE}}(t=0)$ は次式で表される。

$$P_{\text{MIEZE}}(t=0) \propto \int S(\boldsymbol{Q}) \cos \Phi dV$$
 (3.17)

V は検出面の体積である。

経路分散  $\delta L_{sd} = 0$  のとき、 $P_{\text{MIEZE}}(t = 0) = 1$  となるので、経路分散  $\delta L_{sd}$  により位相が シフトする項を計算すればよい。

$$P_{\text{MIEZE}}(t=0) \propto \int S(\boldsymbol{Q}) \cos\left(\frac{2\omega_s}{v}\delta L_{sd}\right) dV$$
(3.18)

この式から分かるように、 $\mathrm{RSF}$  駆動周波数  $\omega_s$  が大きいほど、同じ経路分散  $\delta L_{sd}$  の値に対し ても分散の効果が相対的に大きく現れる。 以上のようなアルゴリズムにおいて経路分散の効果を計算した。計算時の試料前スリット は  $x_s = 4$ mm,  $z_s = 20$ mm、試料厚みは  $y_s = 2$ mm とした。実際のジオメトリでは試料前ス リットと試料とは 200mm 程度離れている。このとき x 方向のビーム発散角から試料位置にお ける x 方向のビーム幅を計算すると 4mm となった。同様に、z 方向も発散角から試料位置で のビームサイズを計算すると 20mm となった。このような理由で実際の測定では  $x_s = 3$ mm であるが、計算においては  $x_s = 4$ mm で計算を行った。検出器スリットは、実際の測定にあ わせて  $x_d = 15$ mm,  $z_d = 10$ mm とした。

本実験で使用した磁性流体では拡散運動のダイナミクスレンジは MIEZE のダイナミクス レンジとはマッチしておらず、したがって核散乱のビジビリティ  $P_N$  は減衰しないはずであ る。しかし実際には  $P_N$  には減衰が見られたが、これが経路分散から生じる効果による減衰 と仮定して、上記のスリット条件は固定して検出器厚み  $y_d$  を変数として計算した。この結 果、 $y_d = 0.15$ mm でシミュレーションによるビジビリティと  $P_{Nucl}$  とが一致した。実際の検 出器では検出器厚みは <sup>6</sup>Li シンチレーターの厚みで決まり、MIEZE では厚さ 0.2mm のシン チレーターを使用している。計算結果から得られた  $y_d = 0.15$ mm という値はこれに矛盾しな い値が得られている。

このシミュレーション結果と、 $P_{\text{Nucl}}$ ,  $P_{\text{Magn}}$ を図 3.29, 3.31, 3.33 に示す。図 3.29 がスピ ンエコータイム 0.3nsec の結果、図 3.31 がスピンエコータイム 0.8nsec の結果、図 3.33 がス ピンエコータイム 1.6nsec に対する結果である。シミュレーションによる計算結果のビジビ リティは  $P_{\text{calc}}$ として示している。ここで、 $P_{\text{Nucl}}$ ,  $P_{\text{Magn}}$ はそれぞれ  $P_{\text{N}}$ ,  $P_{\text{M}}$ に対してダイ レクトビームのビジビリティでの補正を行ったものである。現実には RSF のスピン反転率は 0.9 程度で、ポラライザー、アナライザーの性能の影響により、試料がない場合においてもエ コーシグナルのビジビリティが減衰してしまう (ダイレクトビームのビジビリティが 1 でない のはそのためである)。したがってこの効果を補正する必要がある。本実験では Q = 0(散乱角 0deg.) のとき、磁性流体を透過したビームのビジビリティを  $P_s$ とし、これによる補正を行っ た。Q = 0 のときも  $\pi$  フリッパー ON/OFF の測定を行い、先と同様に核散乱成分みを分離 して、これからビジビリティを求めて  $P_s$ とした。 $P_s$ により補正された核散乱成分、磁気散乱 成分のビジビリティをそれぞれ  $P_{\text{Nucl}}$ ,  $P_{\text{Magn}}$ として、

$$P_{\rm Nucl} = \frac{P_{\rm N}}{P_s} \tag{3.19}$$

$$P_{\text{Magn}} = \frac{P_{\text{M}}}{P_s} \tag{3.20}$$

と求められた。

シミュレーションによって核散乱のビジビリティの減衰が良く再現されていることが分かる。ここで、*P*<sub>Nucl</sub>, *P*<sub>Magn</sub>には次のような成分が含まれていると考えられる。

 $P_{\text{Nucl}}$ : 弾性散乱 + 経路分散  $P_{\text{Magn}}$ : 準弾性散乱 + 経路分散

経路分散の効果はジオメトリのみから生じるものであり、今、核散乱と磁気散乱とは全く同様 のジオメトリで測定を行っている。したがってシミュレーションによって得られたビジビリ ティ $P_{\text{calc}}$ によって $P_{\text{Nucl}}$ と $P_{\text{Magn}}$ とを補正することが可能である。経路分散により補正し たビジビリティを、核散乱、磁気散乱それぞれ $P_{\text{Nuclear}}$ ,  $P_{\text{Magnetic}}$ とすると、

$$P_{\rm Nuclear} = \frac{P_{\rm Nucl}}{P_{\rm calc}} \tag{3.21}$$

$$P_{\text{Magnetic}} = \frac{P_{\text{Magn}}}{P_{\text{calc}}} \tag{3.22}$$

と求められる。これにより経路分散の効果を補正でき、散乱のみの情報を得ることができた。

P<sub>Nuclear</sub> : 弹性散乱 P<sub>Magnetic</sub> : 準弾性散乱

これにより求められた  $P_{\text{Nuclear}}$ ,  $P_{\text{Magnetic}}$  を図 3.30,3.32, 3.34 に示す。図 3.30 は 0.3nsec のとき、図 3.32 は 0.8nsec のとき、図 3.34 は 1.6nsec における結果である。これらの結果から、経路分散の効果を補正した上で、改めて磁気散乱でビジビリティの減衰が観測されていることが分かる。

0.3, 0.8, 1.6nsec において  $P_{\text{Nuclear}}$  は1近傍であり、減衰は見られない。これは核散乱過程に おける中性子の速度変化が検出されなかったことを意味している。 $Q = 0.41, 0.54, 0.68 \text{nm}^{-1}$ は実空間サイズではそれぞれ 15.3, 11.6, 9.24nm に対応する。このような実空間領域で、0.3, 0.8, 1.6nsec の時間レンジの粒子の拡散運動が存在しないことが分かった。

ー方磁気散乱のビジビリティは 0.3, 0.8, 1.6nsec の全時間レンジで減衰がみられた。まず 0.3nsec についてであるが、実空間サイズが 15.3, 11.6, 9.24nm と小さくなるにつれて、ビジビ リティはそれぞれ 0.518±0.039, 0.463±0.040, 0.374±0.044 と減衰している。これは 0.3nsec に対応する超常磁性による磁気モーメントの揺らぎの数が、実空間サイズが小さくなるにつれ て多く存在し、速度の変化した中性子が数多く検出されたことを意味している (Q 依存が見ら れる)。 0.8nsec でも 0.3nsec のときと類似しており、実空間サイズが 15.3, 11.6, 9.24nm と 小さくなるにつれて、ビジビリティはそれぞれ 0.495±0.039, 0.377±0.046, 0.302±0.051 と減衰し、Q 依存がみられた。実空間サイズが小さくなるにつれて、0.8nsec の時間レンジ







図 3.30  $\tau=0.3$ nsec での  $P_{\text{Nuclear}}, P_{\text{Magnetic}}$ 



図 3.31  $\tau=0.8$ nsec での  $P_{Nucl}$ ,  $P_{Magn}$ ,  $P_{calc}$ 

図 3.32  $\tau=0.8$ nsec での  $P_{\text{Nuclear}}, P_{\text{Magnetic}}$ 



⊠ 3.33  $\tau$ =1.6nsec  $\mathcal{CO} P_{\text{Nucl}}$ ,  $P_{\text{Magn}}$ ,  $P_{\text{calc}}$  ⊠ 3.34  $\tau$ =1.6nsec  $\mathcal{CO} P_{\text{Nuclear}}$ ,  $P_{\text{Magnetic}}$ 

に対応する磁気モーメントの揺らぎの数が多く存在していると解釈される。一方、1.6nsec では実空間サイズが15.3,11.6,9.24nmと小さくなるにつれて、ビジビリティはそれぞれ 0.260±0.045,0.289±0.056,0.336±0.088となり、誤差の範囲内で変化が見られない。こ れは、15.3,11.6,9.24nmの実空間サイズ領域おいては、1.6nsecの時間レンジに対応する磁 気モーメントの揺らぎの数がほぼ等しことを意味している。

次に横軸をスピンエコータイム表記にしたグラフを図 3.35 に示す。この図から、核散 乱のビジビリティがほぼ1 であることが改めてよく分かる。一方磁気散乱において、Q =



図 3.35 横軸スピンエコータイムで表示した P<sub>Nuclear</sub>, P<sub>Magnetic</sub>

0.68nm<sup>-1</sup>(9.24nm)では 0.3, 0.8, 1.6nsec になるにつれて、ビジビリティがそれぞれ 0.374± 0.044, 0.302±0.051, 0.336±0.088 となり、誤差の範囲内で差が見られない。これは、0.3, 0.8, 1.6nsec の時間レンジに対応する磁気モーメントの運動が、9.24nm サイズの領域ではほぼ 同じ数だけ存在していることである。一方、Q = 0.54nm<sup>-1</sup>(11.6nm)のレンジでは、0.3, 0.8, 1.6nsec となるにつれて、ビジビリティはそれぞれ 0.463±0.040, 0.377±0.046, 0.289±0.056 と徐々に減衰している。これは 11.6nm サイズの領域では、0.3nsec よりも 0.8nsec、0.8nsec よりも 1.6nsec の時間レンジで動く磁気モーメントの数が徐々に多くなっていることを示している。また、Q = 0.41nm<sup>-1</sup>(15.3nm)ではそれぞれ 0.518±0.039, 0.495±0.039, 0.260±0.045 となっており、1.6nsec でビジビリティが急に減衰している。このことから、15.3nmのサイズの領域においては、0.3, 0.8nsec の時間レンジで動く磁気モーメントの数はほぼ等しく、これらの時間レンジよりも 1.6nsec で動く磁気モーメントの数は更に多いことが分かった。

超常磁性運動の緩和時間の詳細な物性研究には、測定するスピンエコータイムの点数を増や したり、温度を変化させた測定などが必要である。しかし本実験では 2nd アナライザーを設 置して MIEZE の特長を生かした測定を行い、経路分散効果を補正し、かつ MIEZE の磁気散 乱に対する有効性を示すに十分な結果を得ることができた。

#### 3.4 結論

試料後に 2nd アナライザーを設置することで、スピンフリップ散乱とスピンノンフリップ 散乱とに分離して、MIEZE で磁性流体のダイナミクス測定を行った。これから核散乱成分と 磁気散乱成分とに分離してそれぞれビジビリティを求めることができた。また、経路分散の評 価も行い、ビジビリティの補正を行った。 これから得られた結果で、0.3, 0.8, 1.6nsec の時間レンジで、15.3, 11.6, 9.24nm の実空間 サイズに対応するレンジでは核散乱のビジビリティは1であった。このことから、今回用いた 試料において、15.3, 11.6, 9.24nm の実空間サイズで 0.3, 0.8, 1.6nsec の時間に対応する粒子 の拡散運動が存在しないことが分かった。

ー方磁気散乱のビジビリティは 0.3, 0.8, 1.6nsec において、全ての実空間サイズで減衰が見 られた。0.3, 0.8nsec では Q 依存が見られ、実空間でのサイズが小さい (Q が大きい) ほどビ ジビリティの減衰が大きくなった。これは、0.3nsec に対応する超常磁性による磁気モーメン トの揺らぎの数が 15.3, 11.6, 9.24nm となるにつれて多く存在していることを意味している。 1.6nsec では Q 依存は見られず、15.3, 11.6, 9.24nm の領域では 1.6nsec に対応する磁気モー メントの揺らぎの数が変わらないことを意味している。

次に Q レンジに着目してみると、Q = 0.68nm<sup>-1</sup>(9.24nm) では、0.3, 0.8, 1.6nsec の時間レンジに対応する磁気モーメントの運動がはほぼ同じ数だけ存在していることが分かった。Q = 0.54nm<sup>-1</sup>(11.6nm) のレンジでは、0.3nsec よりも 0.8nsec、0.8nsec よりも 1.6nsec の時間レンジで動く磁気モーメントの数が徐々に多くる傾向にあることが分かった。また、Q = 0.41nm<sup>-1</sup> では、0.3, 0.8nsec の時間レンジで動く磁気モーメントの数よりも 1.6nsec で動く磁気モーメントの数が多いことが分かった。

超常磁性運動の緩和時間に関する詳細な物性研究には、更にスピンエコータイムの測定点を 増やすことや低温状態での測定などが必要である。しかし本研究では 2nd アナライザーを設 置してスピンフリップ成分とノンフリップ成分とを分離し、かつこれらを同じジオメトリで測 定できるという、これまでになされていない新たな手法に着手し、MIEZE で超常磁性運動の 観測に成功した。これにより MIEZE の有効性を実証するとができた。

## 第4章

# 高周波 RSF のパルス中性子への適応

これまでは MIEZE の高分解能化のために高周波駆動 RSF を開発し、これを用いて高エ ネルギー分解能の MIEZE を開発し、超常磁性運動を観測してその有効性を示すことに成功 した。

一方で、MIEZE は J-PARC への設置を目指している。J-PARC はパルス中性子源であり、 MIEZE を J-PARC へ設置するためには (1)RSF のパルス中性子対応、(2) ポラライザ、アナ ライザのスーパーミラー化、(3) 検出器に波長分解能を取り入れる、という開発項目が必要で ある。(2) の偏極スーパーミラーの開発は Hino が中心になって行っており [50]、(3) の波長分 解能を持った検出器については Kitaguchi が KEK の佐藤節夫氏と共同で開発を進めている。 ここでは (1) の RSF のパルス中性子対応の部分を行った。

RSF のパルス中性子対応は、101kHz の周波数において Maruyama らが成功しており、 原理的に RSF がパルス中性子対応可能であることが実験によって実証された [51]。更に Maruyama らはパルス中性子でのスピンエコーシグナルの観測にも成功している [52]。これ を受けて RSF のパルス中性子対応化の手法は Maruyama らと同じ手法で行うが、今回は原 理実証ではなく、J-PARC 設置を見据えて実際に MIEZE に使用予定の 0.5MHz という実用 レベルでの高周波駆動の RSF をパルス中性子に対応させることを目的とした [41]。この実験 に必要なことは (1)0.5MHz 駆動の RSF の開発 (2) 高周波振動電流を効率よく振動磁場コイル に流すためのインピーダンス整合器の開発、の 2 点である。第 2 章で述べた幅 8mm のフラッ トワイヤーを用いた RSF(図 2.7, 2.8) を用い、インピーダンス整合器は図 2.9 に示した、最初 に開発した 0.4~2MHz まで整合が可能なインピーダンス整合器を用いた。

#### 4.1 時間に反比例する高周波交流電流の生成

共鳴条件が成り立つとき、RSF によるスピン反転率は次式で与えられる。

$$P_{\rm RSF} = \sin^2 \left( \frac{|\mu_n| B_r l}{\hbar v} \right) \tag{4.1}$$

即ち、RSF によるスピン反転率は、振動磁場の振幅  $B_r$ 、RSF のビーム進行方向の長さl、中 性子の速度v に依存する。今、l は固定であるので、振動磁場の振幅 $B_r$ が一定であればこれ に伴ってスピン反転される中性子速度vもある一定の値をとる。これは RSF は原理的に単色 中性子のみに機能するフリッパーであることを意味する。したがって、RSF をパルス中性子 に適応させるためには、中性子の速度vの変化に対して

$$\frac{|\mu_n|B_r l}{\hbar v} = C \tag{4.2}$$

が満たされるようにすればよい。ここで C は定数である。即ち、RSF に入射する中性子の 速度 v の変化に合わせて  $B_r/v$  が一定となるように振動磁場の振幅  $B_r$  を変調させてやれば よい。今、パルス中性子源から RSF までの距離を L、飛行時間を t とすると、中性子速度は v = L/t で与えられる。したがって振動磁場振幅  $B_r$  は

$$B_r(t) = C \frac{\hbar L}{|\mu_n|l} \cdot \frac{1}{t}$$
(4.3)

と与えられる。このように振動磁場の振幅を 1/t に比例して変調させることで RSF をパルス 中性子に適応させることが可能となる。

式 (4.3) で表される振動磁場を発生させるには、振幅が時間に反比例する交流電流を RSF の振動磁場コイルに流せばよい。本研究では市販のファンクションジェネレーター (NF ELECTRONIC INSTRUMENTS, Wave Factory 1946B) と任意波形作成ソフトウェア (NF ELECTRONIC INSTRUMENTS, 0105 Arbitrary Waveform Editor) を用いた。これらを 用いて時間に反比例する交流電流の生成手順と、振動磁場コイルに高周波電流を流すまでの過 程を以下に示す [51]。この過程の概念図を図 4.1 に示す。

まずパーソナルコンピュータ上で機能する任意波形作成ソフトウェアで次式に示される
 関数を入力し、時間 t に反比例する波形データを作成する。

$$y = \begin{cases} 1 & 0 \ge t \ge t_0 & \text{sec} \\ t_0/t & t_0 \ge t \ge t_1 & \text{sec} \end{cases}$$
(4.4)



Arbitrary Waveform Editor

図 4.1 時間に反比例する交流電流生成と、これが振動磁場コイルに流れるまでの概念図。

但し、 $t_0$ ,  $t_1$  はそれぞれ時間に反比例の減衰開始時刻とパルス中性子源の周期である。 式 (4.4) に従う波形データをファンクションジェネレーターに転送し、図 4.2 に示され る時間に反比例する波形を生成する。

- ファンクションジェネレーターのもう一つのチャンネルで、図 4.3 に示される振幅が一定の正弦波(通常の交流電流)を生成する。
- 本実験で用いたファンクションジェネレーターには外部入力により矩形波、正弦波などの振動電流を変調する機能がある。これを利用して、最初の手順で生成した時間に反比例する波形を外部入力し、2番目の手順で生成した振幅が一定の正弦波を変調する。これによって得られた交流電流を図 4.4 に示す。
- •3番目までの手順で得られた交流電流は電力増幅器で増幅されて振動磁場コイルに流れるが、効率よく高周波の交流電流を流すためにはインピーダンス整合を取る必要がある。コンデンサーを用いてインピーダンス整合を取って高周波の交流電流を効率よく流れるようにされている。電力増幅器には株式会社エヌエフ回路設計ブロック、HSA4014を用いた。

#### 4.2 パルス中性子スピンフリップ実験

実験は京都大学原子炉実験所、CN3 ポートで行われた。図 4.5 に実験配置を示す。原子炉 から出た定常中性子をチョッパーでパルス化した。したがって本実験ではチョッパーがパルス 中性子源の代わりとなる。チョッパーの周期が 36msec であったので、図 4.2 に示す波形の周 期も 36msec とした。





図 4.4 パルス中性子対応させた正弦波の振幅

RSF を ON にして、RSF によってスピン反転された中性子はアナライザで反射されず、計数が減少する。RSF が OFF のときはスピン反転されないのでアナライザで反射されて計数 される。これらの中性子計数をそれぞれ I<sub>ON</sub>, I<sub>OFF</sub> とすると、RSF のスピン反転率は次式で 表される。

$$P_{\rm RSF} = \frac{I_{\rm OFF} - I_{\rm ON}}{I_{\rm OFF}} \tag{4.5}$$

図 4.6 に結果を示す。横軸が中性子波長 [nm]、左縦軸が中性子の計数、右縦軸にスピン反 転率を示す。この結果から、0.3nm 以上の波長の中性子のスピン反転率が 0.93 以上であり。 RSF0.516MHz 駆動でのパルス中性子適応に成功した。これは単色中性子に対しても 0.5MHz 駆動可能な RSF の開発が出来たことを意味する。波長 0.3nm 以下でのスピン反転率が減衰 している理由は、短波長の速い中性子をフリップさせるためには大きな振幅 *B<sub>r</sub>* が必要である が、本実験で用いた電力増幅器では出力が足りずにこの波長領域の中性子を反転させるのに必



図 4.5 パルス中性子フリップ実験配置。京都大学原子炉実験所 CN3 ポート。



図 4.6 0.5MHz 駆動 RSF のパルス中性子フリップ結果

要な振動磁場振幅 $B_r$ が生成できなかったためである。

#### 4.3 結論

MIEZE の J-PARC への設置を見据えて、RSF0.5MHz 駆動でのパルス中性子への適応実 験を行った。RSF のパルス中性子対応の実験は Maruyama らによって周波数 0.101MHz で なされている。本研究では実際に 0.5MHz で駆動する RSF を開発し、更に高周波電流を効 率よく振動磁場コイルに流すためのインピーダンス整合器を導入した。これらの開発により、 0.5MHz でのパルス中性子のスピンフリップに成功した。0.3nm~0.75nm の波長域に渡って、 0.93 という高いスピン反転率を得た。

今回得られた結果により、MIEZE の J-PARC への設置に必要な開発項目の内の1つが達 成された。

### 第5章

# 結論

MIEZE は中性子共鳴スピンエコー法 (NRSE)の一種であり、中性子準弾性散乱装置である。観測量は中間散乱関数  $I(Q, \tau)$ である。3軸分光器やチョッパー分光器などで代表される中性子非弾性散乱装置では、試料との相互作用による中性子のエネルギー遷移を観測するには入射中性子のエネルギー幅を測定したいエネルギー遷移よりも小さくする必要がある。入射中性子のエネルギー幅を絞ることは中性子強度を犠牲にすることを意味しており、エネルギー高分解能になるほど中性子強度が減少する。そのため、3軸分光器やチョッパー分光器で  $10\mu eV$ 以下のエネルギー遷移を測定することは中性子強度的に困難とされている。

一方、MIEZE、NRSE のような共鳴スピンエコー装置では、中性子スピンの自由度を導入 することで、入射中性子のエネルギー幅と測定する中性子エネルギー遷移とを独立に扱うこと ができる。そのため、入射中性子のエネルギー幅を絞ることなく、大強度で高エネルギー分解 能が実現される。NRSE では試料前の領域において、まず RSF により中性子アップとダウン の2エネルギー固有状態間に波数差を生じさせ、この状態で一定区間を飛行させることで位相 差を生じさせ、試料後でこの位相差を取り戻す。試料との相互作用により中性子のエネルギー 変化が生じるとこの位相差が取り戻されなくなり、これを検出することで試料のダイナミクス を調べる。このため、試料後に位相差を取り戻すための RSF とスピンアナライズのためのア ナライザーが置かれ、この後に検出器が設置される。このため、磁性体などによるスピンフ リップ散乱を測定する場合、試料でのスピンフリップの影響から、準弾性散乱とは別にシグナ ルのコントラストが低下してしまう。この点において、MIEZE では試料の下流で位相差が取 り戻される位置に検出器を設置することで、試料をアナライザーの下流に設置することが可能 となり、磁気散乱によるシグナル低下の問題から開放される利点がある。

これらの MIEZE のメリットを以下にまとめる。

3軸分光器、チョッパー分光器に対するメリット、デメリット

- 非弾性散乱装置 (チョッパーや3軸分光器) が中性子強度的に苦手とするエネルギー領域 (10µeV 以下) をカバーできる。
- チョッパーや3軸分光器より大強度、高エネルギー分解能である。
- 試料 ~ 検出器間の配置がチョッパー分光器と同じであるが、チョッパー分光器よりも 大強度で高エネルギー分解能である。
- 準弾性散乱に適している。
- 非弾性散乱の測定に対してはチョッパーや3軸分光器の方が適している。

NSE, NRSE に対するメリット、デメリット

- 試料 ~ 検出器間に一切の光学素子を必要としない。
  - ー 中性子スピンフリップを伴う磁気散乱によるビジビリティの減衰がなく、磁性体の
     ダイナミクス測定、インコヒーレント散乱によるダイナミクス測定に向いている。
  - 試料に外部磁場をかけることができ、磁場環境下での磁性体ダイナミクスの測定が可能である。
  - オプションとして試料後に偏極デバイス (例えば磁気ミラーなど)を設置することで、スピンフリップ散乱とスピンノンフリップ散乱とを分離した測定が可能である。
  - 小角散乱測定、反射率測定にそのまま適用可能である。
- エネルギー分解能に関しては NSE, NRSE の方が高分解能である (MIEZE :  $1 \text{meV} \sim 1 \mu \text{eV}$ , NSE & NRSE :  $100 \mu \text{eV} \sim 10 \text{neV}$ )。

このように MIEZE は他の分光器にない特長を有しており、1990 年代半ばに Laboratoire Léon Brillouin(LLB) において開発が進められ、グリセロールのインコヒーレント散乱による 動的構造解析の成果が報告されている。しかしこれまでに報告されている MIEZE による研究 成果はこの1例のみである。この理由は、MIEZE では試料での散乱位置の違いから生じる経 路分散により、弾性散乱であってもビジビリティが減衰してしまうという問題点があったため である。この経路分散の効果はエネルギー分解能が高くなるほど顕著になり、エネルギー分解 能に限界を与えた。また、MIEZE では高エネルギー分解能になればなるほど高い時間分解能 を持ち、かつ検出面の薄い検出器が必要となる。経路分散の問題と合わせて高エネルギー分解 能化には限界があり、MIEZE を用いた散乱実験はなされてこなかった。 しかし、やはり MIEZE は有効な装置であることから、現在我々のグループ、FRM-II、 Argonne のグループで MIEZE の開発が進められている。Argonne のグループでは MIEZE-SANS を見据えた高エネルギー分解能化を目指している。FRM-II のグループでは主に磁性体 研究への応用を見据えて現在試料環境(温度、磁場)の整備を進めている。我々のグループで は J-PARC 設置を目指し、磁性体研究、ソフトマター研究を目指して開発を行っている。い ずれにおいても経路分散の影響を解決する手段が必要不可欠であるが、未だ決定打となる手法 は報告されていない。

本研究ではまず、磁性研究に応用できる nsec オーダーのスピンエコータイムを有する MIEZE を開発することを目的とする。これと平行して MIEZE-SANS への実用も期待できる 装置の開発を目指す。更に、経路分散の影響を解決するための一手法を提案し、これを実証す ると共に磁性流体の超常磁性運動を観測し、MIEZE の磁性体研究への有効性を実証すること も目的とする。

実効周波数 1MHz の MIEZE シグナルの観測を目指して、純アルミフラットワイヤーを用 いて RSF を開発し、0.5MHz 駆動の RSF の開発に成功した。1MHz の MIEZE シグナルを 観測するために、0.1µsec の時間分解能を持ち、検出面厚さが 0.2mm の 2 次元位置検出器を 導入した。また、効率よく高周波の振動電流を振動磁場コイルに流すためのインピーダンス整 合器も導入した。このように総合的に MIEZE の開発を行い、実効周波数 1MHz の MIEZE シグナルの観測に成功した。しかしビジビリティが 0.4 と低く、さらにビジビリティをあげる ために、静磁場コイルからの漏れ磁場を少なくし、RSF の反転率を上げるなどの改良が必要 である。しかしこの成果により、MIEZE の高分解能化が達成できたため、MIEZE-SANS の 実用可能性を示すことができた。

RSF のワイヤー間ギャップの影響を軽減するために、幅 20mm のフラットワイヤーを用 い、更にワイヤー間ギャップにエナメル線を挿入することでギャップでの減極を軽減させるこ とに成功した。その結果、 $\omega_s = 0.3$ MHz 駆動で MIEZE の長時間安定駆動を実現した。また、 ビームの縦幅を広げ、5 倍のビーム増強を行った。更に、試料 ~ 検出器間距離  $L_{sd}$  を 0.5m から 0.8m に伸ばし、 $\omega_s = 0.3$ MHz、 $\lambda = 0.81$ nm において、最終的にはスピンエコータイム 1.6nsec を達成した。このとき 0.65 という高いビジビリティの MIEZE シグナルを得ること ができ、磁性流体の物性研究に使用できる装置を開発することができた。

63

次に、MIEZE の有効性を実証するために磁性流体の超常磁性運動の観測を試みた。今回使 用した磁性流体では、微粒子の拡散運動のダイナミクスレンジは 10<sup>-8</sup>sec のオーダーで、微粒 子内の磁気モーメントの運動である超常磁性緩和のダイナミクスレンジは 10<sup>-9</sup> ~ 10<sup>-12</sup>sec のオーダーである。現在の MIEZE のダイナミクスレンジは 0.3~ 1.6nsec であり、前者はこ れにマッチせず後者はマッチする。拡散運動は核散乱 (主にノンフリップ成分) となり、超常 磁性緩和は磁気散乱 (スピンフリップ成分) となる。そこで、試料後にアナライザーを設置し てスピンフリップ成分 (超常磁性緩和に起因する) とノンフリップ成分 (拡散運動に起因する) とを分離し、かつこれらを同じ測定配置で測定できるという、これまでにない新手法を試みた。 現在の MIEZE では、ノンフリップ成分は弾性散乱と経路分散の効果であり、スピンフリップ 成分は準弾性散乱と経路分散の効果が含まれることになる。ジオメトリのみから生じる経路分 散の効果は両者に等しく影響を及ぼすため、核散乱のビジビリティの減衰から経路分散を見積 もり、この効果を補正して精度良く磁気散乱を測定することを目指した。一方で、経路分散の 効果をシミュレーションによって計算し、核散乱のビジビリティの減衰がシミュレーションに よって良く再現されることも確認した。

本実験により得られた結果から、まず 0.3, 0.8, 1.6nsec の時間レンジで、15.3, 11.6, 9.24nm の実空間サイズに対応するレンジでは核散乱のビジビリティは 1 であり、今回用いた試料にお いて、15.3, 11.6, 9.24nm の実空間サイズで 0.3, 0.8, 1.6nsec の時間に対応する粒子の拡散運 動が存在しないことが分かった。

ー方磁気散乱のビジビリティは 0.3, 0.8, 1.6nsec において、全ての実空間サイズで減衰が見 られた。0.3, 0.8nsec では Q 依存が見られ、実空間でのサイズが小さい (Q が大きい) ほどビ ジビリティの減衰が大きくなった。これは、0.3nsec に対応する超常磁性による磁気モーメン トの揺らぎの数が 15.3, 11.6, 9.24nm となるにつれて多く存在していることを意味している。 1.6nsec では Q 依存は見られず、15.3, 11.6, 9.24nm の領域では 1.6nsec に対応する磁気モー メントの揺らぎの数が変わらないことが分かった。

次に Q レンジに着目してみると、Q = 0.68nm<sup>-1</sup>(9.24nm) では、0.3, 0.8, 1.6nsec の時間レンジに対応する磁気モーメントの運動がはほぼ同じ数だけ存在していることが分かった。Q = 0.54nm<sup>-1</sup>(11.6nm) のレンジでは、0.3nsec よりも 0.8nsec、0.8nsec よりも 1.6nsec の時間レンジで動く磁気モーメントの数が徐々に多くる傾向にあることが分かった。また、Q = 0.41nm<sup>-1</sup> では、0.3, 0.8nsec の時間レンジで動く磁気モーメントの数よりも 1.6nsec で動く磁気モーメントの数が多いことが分かった。

超常磁性運動の緩和時間に関する詳細な物性研究には、更にスピンエコータイムの測定点を

増やすことや低温状態での測定などが必要である。しかし本研究では 2nd アナライザーを設 置してスピンフリップ成分とノンフリップ成分とを分離し、かつこれらを同じジオメトリで測 定できるという、これまでになされていない新たな手法に着手し、MIEZE で超常磁性運動の 観測に成功した。これにより MIEZE の有効性を実証するとができ、研究の目的を達成するに 十分な成果が得られた。

また、シミュレーションによって経路分散の効果を再現でき、今回用いた試料以外に対して もこの手法が有効であることが期待される。

MIEZE は J-PARC への設置を目指している。J-PARC はパルス中性子源であり、MIEZE を J-PARC へ設置するためには (1)RSF のパルス中性子対応、(2) ポラライザ、アナライザの スーパーミラー化、(3) 検出器に波長分解能を取り入れる、という開発項目が必要である。こ こでは (1) の RSF のパルス中性子対応の部分を行った。

RSF のパルス中性子対応は、101kHz の周波数において Maruyama らが成功しており、原 理的に RSF がパルス中性子対応可能であることが実験によって実証された。これを受けて RSF のパルス中性子対応化の手法は Maruyama らと同じ手法で行うが、今回は原理実証では なく、J-PARC 設置を見据えて実際に MIEZE に使用予定の 0.5MHz という実用レベルでの 高周波駆動の RSF をパルス中性子に対応させることを目的とした。この実験に必要なことは (1)0.5MHz 駆動の RSF の開発 (2) 高周波振動電流を効率よく振動磁場コイルに流すためのイ ンピーダンス整合器の開発、の 2 点である。開発した 0.5MHz 駆動の RSF とインピーダン ス整合器を用いて、パルス中性子への適応実験を行った。0.3nm~0.75nm の波長域に渡って、 0.93 という高いスピン反転率を得た。

今回得られた結果により、MIEZE の J-PARC への設置に必要な開発項目の内の 1 つが達 成された。

## 参考文献

- [1] J. Chadwick, Nature 129 (1932) 312.
- [2] A. Serebrov, V. Varlamov, A. Kharitonov, A. Fomin, Yu. Pokotilovski, P. Geltenbort,
   J. Butterworth, I. Krasnoschekova, M. Lasakov, R. Tal'daev, A. Vassiljev and O.
   Zherebtsov, Phys. Lett. B 605 (2005) 72-78.
- [3] D. J. Hughes, *Neutron Optics*, Interscience Publishers, Inc., 1945.
- [4] Kurt Sköld and David L. Price ed., Neutron Scattering, Methods of Experimental Physics, Vol. 23, Academic Press (1986).
- [5] Particle Data Group, K. Hagiwara et al., Phys. Rev. D 66 (2002) 0100001.
- [6] A. J. Dianoux, G. Lander, Neutron Data Booklet Second Edition, ILL Neutrons for Science (2003).
- [7] Institute Laue-Langevin, http://www.ill.fr/.
- [8] ISIS, The UK Rutherford Appleton Laboratory, http://www.isis.rl.ac.uk/.
- [9] The Spallation Neutron Source, http://www.sns.gov/.
- [10] T. E. Mason, R. K. Crawford, G. J. Bunick, A. E. Ekkebus, D. Belanger, Appl. Phys. A 74 Supple. (2002) S11.
- [11] The European Spallation Source, http://neutron.neutron-eu.net/n\_ess/.
- [12] D. Richter, Appl. Phys. A 74 Suppl. (2002) S18.
- [13] Japan Proton Accelerator Research Complex, http://j-parc.jp/.
- [14] S. Ikeda, Appl. Phys. A 74 Suppl. (2002) S15.
- [15] J. C. Cook, W. Petry, A. Heidemann, J-F. Barthelemy, Nucl. Instr. and Meth A 312 (1992) 553.
- [16] M. T. F. Telling, S. I. Campbell, D. D. Abbley, D. A. Cragg, J. J. P. Balchin, C. J. Carlile, Appl. Phys. A 74 Suppl. (2002) S61.
- [17] F. Mezei, Z. Phys. 255 (1972) 146.

- [18] R. Gähler, R. Golub, Z. Phys. B65 (1987) 269.
- [19] F. Mezei, C. Pappas, T. Gutberlet, Lecture Notes in Physics Vol. 601, Neutron Spin Echo Spectroscopy, Springer (2002).
- [20] R. Gähler, R. Golub and T. Keller, Physica B 180-181 (1992) 899-902.
- [21] M. Hino, M. Kitaguchi, H. Hayashida, Y. Kawabata, S. Tasaki, T. Ebisawa, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Tanaka, N. Torikai, R. Inoue, T. Kanaya, Physica B 385 (2006) 1125.
- [22] M. Bleuel, et al., Physica B 356 (2005) 213.
- [23] F. Mezei, Lecture Notes in Physics Vol. 128, Neutron Spin Echo, Proceedings of a Laue-Langevin Institut Workshop Grenoble (1979).
- [24] W. Besenböck, R. Gähler, P. Hank, R. Kahn, M. Köppe, C.-H. de Novion, W. Petry, J. Wuttke, J. Neutron Res. 7 (1998) 65-74.
- [25] Laboratoire Léon Brillouin, http://www-llb.cea.fr/
- [26] R. Georgii, P. Böni, M. Janoschek, C. Schanzer, S. Valloppilly, Physica B 397 (2007) 150-152.
- [27] Forschungsneutronenquelle Heinz Maier-Leibnits(FRM II), http://www.frm2.tum.de/en/science/diffractometer/mira/index.html
- [28] Argonne National Laboratory, http://www.pns.anl.gov/instruments/sasi/
- [29] T. Ebisawa, S. Tasaki, D. Yamazaki, G. Shirouzu, M. Hino, T. Kawai, T. Kanaya,
   K. Soyama, N. Achiwa, Physica B 276-278 (2000) 144-145.
- [30] D. Yamazaki, Nucl. Instr. and Meth. A 488 (2002) 623-633.
- [31] M. Bleuel, et al., Physica B 371 (2006) 297.
- [32] D. P. E. Dickson, N. M. K. Reid, C. Hunt, H. D. Williams, M. El-Hilo and K. O'Grady, J. Magn. Magn. Mater. 125 (1993) 345-350.
- [33] S. H. Kilcoyne, R. Cywiski, J. Magn. Magn. Mater. 140 (1995) 1466.
- [34] R. Weissleder, P. Reimer, Eur. Radiol. 3 (1993) 198-212.
- [35] P. Oswald, O. Clement, C. Chambon, E. Schouman-Claeys and G. Frua, Magnetic Resonance Imaging 15 (1997) 1025-1031.
- [36] C. Poeckler-Schoeniger, J. Koepke, J. Sturm and M. Georgi, Magnetic Resonance Imaging 17 (1999) 383-392.
- [37] J. Giri, P. Pradhan, V. Somani, H. Chelawat, S. Chhatre, R. Banerjee, D. Bahadur,

Journal of Magnetism and Magnetic Materials in press.

- [38] Y. Kawabata, M. Hino, M. Kitaguchi, H. Hayashida, S. Tasaki, T. Ebisawa, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Seto, M. Nagao, T. Kanaya, Physica B 385 (2006) 1122.
- [39] 丸山龍治, 博士論文 付録 A, (2005).
- [40] H. Hayashida, M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, R. Maruyama, T. Ebisawa, Nucl. Instr. Meth. A 574 (2007) 292.
- [41] H. Hayashida, M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, T. Ebisawa, Physica B 397 (2007) 144.
- [42] T. Keller, R. Golub, F. Mezei, R. Gähler, Physica B 241 (1998) 101.
- [43] M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, H. Hayashida, S. Tasaki, R. Maruyama, D. Yamazaki, T. Ebisawa, N. Torikai, Physica B 385 (2006) 1128.
- [44] M. Köppe, M. Bleuel, R. Gähler, R. Golub, P. Hank, T. Keller, S. Longeville, U. Rauch, J. Wuttke, Physica B 266 (1999) 75.
- [45] K. Hirota, et al., Phys. Chem. Chem. Phys. 7 (2005) 1836.
- [46] L. Néel, Ann. Geophys. 5 (1949) 99.
- [47] W. F. Brown, Jr., Phys. Rev. 130 (1963) 1677.
- [48] V. T. Lebedev, G. P. Gordeev, E. A. Panasiuk, L. Kiss, L. Rosta, Gy. Török, B. Farago, J. Magn. Magn. Mater. 122 (1993) 83-89.
- [49] H. Hayashida, M. Hino, M. Kitaguchi, Y. Kawabata and N. Achiwa, Measurement Science and Technology in press.
- [50] M. Hino, H. Hayashida, M. Kitaguchi, Y. Kawabata, M. Takeda, R. Maruyama, T. Ebisawa, N. Torikai, T. Kume and S. Tasaki, Physica B, 385-386 (2006) 1187-1189.
- [51] R. Maruyama, T. Ebisawa, S. Tasaki, M. Hino, M. Takeda, T. Kawai, Y. Kawabata, K. Sakai, Physica B 335 (2003) 238.
- [52] R. Maruyama, S. Tasaki, M. Hino, M. Takeda, T. Ebisawa, Y. Kawabata, Nucl. Instr. and Meth. A 530 (2004) 505.
# 発表論文

## 主著

- <u>H. Hayashida</u>, M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, R. Maruyama and T. Ebisawa, Development of a resonance spin flipper for NRSE/MIEZE on a pulsed neutron beam with an oscillating frequency of 500 kHz, Nucl. Instrm. Meth. A 574 (2007) 292-296.
- <u>H. Hayashida</u>, M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata and T. Ebisawa, Observation of MIEZE signal with an effective frequency of 1 MHz, Physica B 397 (2007) 144-146.
- <u>H. Hayashida</u>, M. Hino, M. Kitaguchi, Y. Kawabata and N. Achiwa, *A study of resolution function on MIEZE spectrometer*, Measurement Science and Technology in press.

## 共著

- Y. Kawabata, M. Hino, M. Kitaguchi, <u>H. Hayashida</u>, S. Tasaki, T. Ebisawa, D. Yamazaki, R. Maruyama, H. Seto, M. Nagao and T. Kanaya, *Neutron resonance spin echo and MIEZE spectrometer development project in Japan*, Physica B 385-386 (2006) 1122-1124.
- M. Hino, M. Kitaguchi, <u>H. Hayashida</u>, Y. Kawabata, S. Tasaki, T. Ebisawa, D. Yamazaki, R. Maruyama, K. Tanaka, N. Torikai, R. Inoue and T. Kanaya, *A test of MIEZE-reflectometer for study of surface and interface*, Physica B 385-386 (2006) 1125-1127.
- M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, <u>H. Hayashida</u>, S. Tasaki, R. Maruyama,
  D. Yamazaki, T. Ebisawa and N. Torikai, *Development of neutron resonance spin*

flipper for high resolution NRSE spectrometer, Physica B 385-386 (2006) 1128-1130.

- M. Hino, <u>H. Hayashida</u>, M. Kitaguchi, Y. Kawabata, M. Takeda, R. Maruyama, T. Ebisawa, N. Torikai, T. Kume and S. Tasaki, it Development of large-m polarizing neutron supermirror fabricated by using ion beam sputtering instrument at KURRI, Physica B 385-386 (2006) 1187-1189.
- M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, <u>H. Hayashida</u>, S. Tasaki, R. Maruyama and T. Ebisawa, *Correction for beam divergence effect in NRSE spectrometer with high resolution*, Measurement Science and Technology in press.

# 学会·研究会発表、英文紀要

## 国際学会アブストラクト

- M. Hino, M. Kitaguchi, <u>H. Hayashida</u>, Y. Kawabata, S. Tasaki, D. Yamazaki, T. Ebisawa, N. Achiwa, *Performance test and perspective for MIEZE spectrometer at C3-1-2-2(MINE1) port at JAEA*, 4th European Conference on Neutron Scattering 2007, Lund, Sweden, 2007 W112.
- S. Tasaki, M. Kageyama, Y. Kawabata, M. Hino, <u>H. Hayashida</u>, *Preliminary study* of spin-phase contrast imaging of neutrons, 4th European Conference on Neutron Scattering 2007, Lund, Sweden, 2007 M87.
- <u>H. Hayashida</u>, M. Hino, M. Kitaguchi, Y. Kawabata, D. Yamazaki, R. Maruyama, T. Ebisawa and N. Achiwa, *Development of MIEZE spectormeter in JRR-3M*, 7th Japan-Korea meeting on Neutron Science, Seoul, Korea, 2007 P03.

#### <u>ベストポスター賞受賞</u>

- M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, <u>H. Hayashida</u>, S. Tasaki, R. Maruyama, D. Yamazaki, T. Ebisawa, *Development of resonance spin flipper with high frequency*, Polarized Neutron in Condensed Matter Investigations 2006, Berlin, Germany, 2006 B-4.
- <u>H. Hayashida</u>, M. Kitaguchi, M. Hino and Y. Kawabata, *Performance test of high frequency resonance spin flipper for pulsed source on MIEZE and NRSE*, 6th Korea-Japan meeting on Neutron Science, Tokai, Japan, 2006, NSL News Letter 2006-1 (2006) 168-171.

### 英文紀要

- M. Hino, M. Kitaguchi, <u>H. Hayashida</u>, Y. Kawabata, S. Tasaki, D. Yamazaki, R. Maruyama, T. Ebisawa, K. Tanaka, N. Torikai, T. Kanaya, A test of MIEZE-Reflectometer for study of surface and interface, Activity Report on Neutron Scattering Research: Experimental Report 14 (2007) Report Number: 97.
- M. Hino, M. Kitaguchi, <u>H. Hayashida</u>, Y. Kawabata, T. Ebisawa, T. Kume, S. Tasaki, A new layer structure for large-m polarizing neutron supermirror, Activity Report on Neutron Scattering Research: Experimental Report 14 (2007) Report Number: 89.
- M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, <u>H. Hayashida</u>, S. Tasaki, T. Ebisawa, *Development of resonance spin flipper with high frequency*, Activity Report on Neutron Scattering Research: Experimental Report 14 (2007) Report Number 36.
- M. Hino, <u>H. Hayashida</u>, M. Kitaguchi, Y. Kawabata, M. Takeda, R. Maruyama, T. Ebisawa, N. Torikai, T. Kume and S. Tasaki, *Development of m=5 polarizing neutron supermirror fabricated by using ion beam sputtering method*, Activity Report on Neutron Scattering Research: Experimental Report 13 (2006) nact06-33417.pdf.
- <u>H. Hayashida</u>, M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata and T. Ebisawa, *Observation of MIEZE signal with an effective frequency of 1 MHz*, KURRI Progress Report (2006) 172.
- M. Hino, M. Kitaguchi, <u>H. Hayashida</u>, Y. Kawabata, T. Ebisawa, R. Maruyama, T. Kume and S. Tasaki, *Study of new layer structure for large-m polarizing neutron spectrometer*, KURRI Progress Report (2006) 171.
- M. Hino, Y. Kawabata, <u>H. Hayashida</u>, T. Kume, S. Tasaki, T. Ebisawa and R. Maruyama, *Development of m=5 polarizing neutron supermirror fabricated by using ion beam sputtering technique*, KURRI Progress Report (2005) 110.
- M. Kitaguchi, M. Hino, Y. Kawabata, <u>H. Hayashida</u>, S. Tasaki, R. Maruyama, D. Yamazaki and T. Ebisawa, *High frequency resonance spin flipper for pusled neutron*, KURRI Progress Report (2005) 124.

### 国内学会発表

- 林田洋寿、日野正裕、北口雅暁、川端祐司、阿知波紀郎、"MIEZE 型分光器による磁性 流体超常磁性ダイナミクスの観測"、日本中性子科学会第7回年会、九州大学、2007年、 P2-27.
- 日野正裕、北口雅暁、<u>林田洋寿</u>、阿知波紀郎、川端祐司、田崎誠司、山崎大、丸山龍治、 海老沢徹、"MIEZE/NRSE 中性子スピンエコー分光器開発の現状"、日本中性子科学 会第7回年会、九州大学、2007年、P3-29.
- 北口雅暁、日野正裕、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、海老沢徹、"高分解能共鳴スピン エコー装置のための位相補正デバイスの開発"、日本中性子科学会第7回年会、九州大 学、2007年、P3-32.
- 川端祐司、田崎誠司、<u>林田洋寿</u>、影山将史、"中性子磁気位相イメージングの試み"、日本非破壊検査協会、平成19年度秋期講演大会講演概要集 339-342.
- 林田洋寿、日野正裕、北口雅暁、川端祐司、阿知波紀郎、"MIEZE 型共鳴スピンエコー装置による磁性流体ダイナミクス測定の観測"、日本原子力学会、2007 年秋の大会、C61.
- 日野正裕、北口雅暁、<u>林田洋寿</u>、川端祐司、田崎誠司、阿部豊、山崎大、丸山龍治、海 老澤徹、阿知波紀朗" J-PARC MIEZE/NRSE 中性子スピンエコー分光器開発の現状"、
   日本原子力学会、2007 年秋の大会、C60.
- 北口雅暁、日野正裕、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、海老澤徹、"中性子共鳴スピン エコー装置の高分解能化のための要素開発"日本物理学会、第 62 回年次大会、2007 年 秋、21aTC4.
- 北口雅暁、日野正裕、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、松岡清吉、田崎誠司、丸山龍治、海老澤 徹、"高分解能共鳴スピンエコー装置のためのビーム発散補正法の開発"、日本原子力学 会、2007 年春の年会、A03.
- 林田洋寿、日野正裕、北口雅暁、川端祐司、松岡清吉、阿知波紀郎、"MIEZE 型共鳴ス ピンエコー装置での磁性流体ダイナミクス測定の試み"、日本原子力学会、2007 年春の 年会、A05.
- 松岡清吉、北口雅暁、<u>林田洋寿</u>、日野正裕、川端祐司、田崎誠司、"高分解能共鳴スピン エコー装置のための多段型共鳴スピンフリッパーの開発"、日本原子力学会、2007 年春 の年会、A04.
- 日野正裕、北口雅暁、林田洋寿、川端祐司、田崎誠司、丸山龍治、海老澤徹、"低磁場駆

動中性子偏極子のための軟磁性多層膜開発"、日本原子力学会、2007年春の年会、A07.

- 日野正裕、北口雅暁、<u>林田洋寿</u>、川端祐司、田崎誠司、松岡清吉、山崎大、海老澤徹、 阿知波紀郎、"MIEZE 型中性子共鳴スピンエコー分光器開発の現状"、日本物理学会、 2007 年春季大会、19aXA10.
- 北口雅暁、日野正裕、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、松岡清吉、田崎誠司、海老澤徹、"高分解 能中性子共鳴スピンエコー装置のための共鳴スピンフリッパーの高周波化"日本物理学 会、2007 年春季大会、19aXA11.
- 林田洋寿、北口雅暁、日野正裕、川端祐司、海老澤徹、"実効 1MHz MIEZE シグナルの観測"、日本中性子科学会第6回年会、水戸、2006年、P50.
- 北口雅暁、日野正裕、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、海老澤徹、"J-PARC 共鳴スピンエコー装置のためのデバイス開発 共鳴スピンフリッパーの改良 "、日本中性子科学会第6回年会、水戸、2006年、P61.
- 日野正裕、北口雅暁、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、丸山龍治、海老澤徹、"5Qc 中 性子偏極スーパーミラーの開発と低磁場駆動化の試み"、日本中性子科学会第6回年会、 水戸、2006 年、P61.
- 海老澤徹、山崎大、丸山龍治、曽山和彦、田崎誠司、安部豊、日野正裕、北口雅暁、 林田洋寿、川端祐司、鳥飼直也、仁井田浩二、"高曲率極導管を用いた J-PARC 冷中 性子ビームポートの設計と遮蔽計算"、日本中性子科学会第6回年会、水戸、2006年、 P56.
- 日野正裕、北口雅暁、<u>林田洋寿</u>、川端祐司、田崎誠司、海老澤徹、丸山龍治、山崎大、"MIEZE 型中性子共鳴スピンエコー装置の開発: その概念と様相技術開発の現状"、日本原子力学会、2006 年春の年会、J17.
- 林田洋寿、日野正裕、北口雅暁、川端祐司、杉山正章、田崎誠司、海老澤徹、山崎大、丸山龍治、"MIEZE 型中性子共鳴スピンエコー装置の開発: 物性測定の試み"、日本原子力学会、2006 年春の年会、J18.
- 日野正裕、北口雅暁、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、山崎大、丸山龍治、海老澤徹、阿 知波紀朗、"中性子共鳴スピンエコー分光器の開発 I"日本物理学会、2005 年秋季大会、 21aYM2.
- 北口雅暁、日野正裕、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、丸山龍治、山崎大、海老澤徹、鳥 飼直也、"高性能中性子共鳴スピンエコー装置のための高周波共鳴スピンフリッパーの 開発"日本物理学会、2005 年秋季大会、21aYM3.

### 国内研究会発表

- <u>林田洋寿</u>、"MIEZE 型分光器開発とダイナミクス測定の試み"、中性子デバイス研究会、 北海道大学、2007.
- 林田洋寿、北口雅暁、日野正裕、川端祐司、海老澤徹、"MIEZE 型共鳴スピンエコー装置における実効周波数 1MHz シグナルの観察"、第 41 回京都大学原子炉実験所学術講演会、熊取、2007 年、講演報文集 98-103.
- 北口雅暁、日野正裕、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、松岡清吉、田崎誠司、丸山龍治、海老澤 徹、"J-PARC 共鳴スピンエコー装置のための高周波共鳴スピンフリッパーの開発 - 性 能向上と安定化 - "第41回京都大学原子炉実験所学術講演会、熊取、2007年、講演報 文集 110-114.
- 日野正裕、北口雅暁、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、海老澤徹、阿知波紀郎、"超高性能多層膜偏極ミラーの開発 II"第41回京都大学原子炉実験所学術講演会、熊取、2007年、講演報文集 115-118.
- 林田洋寿、"MIEZE 測定結果及び今後の試料環境について"、中性子スピンエコー法の
  発展と応用 (VI)、京都大学原子炉実験所、2007 年、研究会報告書 35-42.
- 林田洋寿、日野正裕、北口雅暁、杉山正明、川端祐司、"MIEZE 型スピンエコー装置による SANS 測定の試み"、第40回京都大学原子炉実験所学術講演会、京都大学原子炉 実験所、2006年、講演報文集 163-168.
- 北口雅暁、日野正裕、川端祐司、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、丸山龍治、海老澤徹、"J-PARC 共鳴スピンエコー装置のための高周波共鳴スピンフリッパーの開発"、第40回京都大学 原子炉実験所学術講演会、京都大学原子炉実験所、2006年、講演報文集 169-173.
- 日野正裕、北口雅暁、川端祐司、久米哲也、<u>林田洋寿</u>、田崎誠司、丸山龍治、武田全康、 鳥飼直也、"超高性能多層膜偏極ミラーの開発 I"第 40 回京都大学原子炉実験所学術講 演会、京都大学原子炉実験所、2006 年、講演報文集 174-177.
- 林田洋寿、川端祐司、田崎誠司、"中性子磁気位相イメージングの提案"中性子ラジオグラフィ専門研究会、京都大学原子炉実験所、2006年、研究会報告書 217-222.
- 林田洋寿、"NR-MIEZE 測定結果の報告"、中性子スピンエコー法の発展と応用 (V)、 京都大学原子炉実験所、2006 年、研究会報告書 73-80.

# 謝辞

まず、本研究を通して変わらぬご指導、ご鞭撻いただきました川端祐司教授に感謝の意を申 し上げます。

伊藤秋男教授、田崎誠司准教授には博士論文をまとめるにあたり、多忙にもかかわらずご指 導いただきましたことに感謝いたします。

日野正裕准教授、北口雅暁助教には、私が本研究室に配属されて以来、中性子スピンエコー 法に関して基礎から懇切丁寧なご指導いただき、論文執筆の際にも適切なご指導を賜りました ことに深く感謝の意を申し上げます。また長期間にわたる日本原子力研究開発機構での実験に 際しまして、基礎からの丁寧なご指導に始まり、私の体調面や精神面にもお気遣いいただきま したことに深く感謝いたします。

九州大学名誉教授阿知波紀郎博士には本研究を行うにあたり、磁性流体試料の基礎的なこと からご指導いただき、試料作成でも多大なるご協力を賜りました。更にデータ解析でも貴重な ご意見を賜りましたことに厚くお礼申し上げます。

海老沢徹博士、山崎大博士、丸山龍治博士には本研究に関する貴重なご意見、ご指導いただ き、日本原子力研究開発機構での実験でも、ご多忙にもかかわらずご協力いただきましたこと に深く感謝いたします。

杉山正明准教授には、私の博士課程入学時の相談に始まり、研究へのご協力、ご助言いただ きましたことに深く感謝の意を申し上げます。

東京大学物性研究所助教遠藤仁博士には試料に関するご助言を賜り、真にありがとうござい ました。

京都大学原子炉実験所粒子線基礎物性研究部門において、共に研究を行いました松岡清吉氏 に感謝の意を申し上げるとともに、将来のご活躍を祈願いたします。また、同研究部門の鶴田 八千代氏、中尾恵子氏、阿部真琴氏には日々の研究室での生活で数々の励ましのお言葉をいた だきましたことに深く感謝いたします。同志社大学講師平山朋子博士には研究において数々の 激励のお言葉を賜りました。真にありがとうございました。 最後に、会社を退職して博士課程に進むという私の希望を受け入れ、物心両面で援助し、常 に私を支え続けて下さいました両親、兄に深く感謝いたします。

本研究は科学技術振興機構先端計測分析技術・機器開発事業「中性子スピン干渉原理に基づ く中性子スピンエコー装置開発」により行われました。偏極ミラーの作成は文部科学省科学研 究補助金 (No. 19560841)による援助を受けました。共鳴スピンフリッパーの開発には明昌機 工株式会社のご協力をいただき、インピーダンス整合器の開発には株式会社ノダ RF テクノロ ジーズのご協力をいただきました。実験の実施に当たって、京都大学原子炉実験所、東大物性 研付属中性子散乱研究施設、日本原子力研究開発機構等、中性子散乱実験のための諸研究機関 の支援は不可欠でした。ここに謝意を表します。