

学 位 審 査 報 告 書

(ふ り が な) 氏 名	さいとう まきな 齋 藤 真 器 名
学位 (専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	理 博 第 号
学位授与の日付	平成 年 月 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	理学研究科 物理学・宇宙物理学専攻
(学位論文題目) Development of Time-Domain Interferometry Method Using Nuclear Resonant Scattering and Its Applications (核共鳴散乱を用いた時間領域干渉計法の開発と応用)	
論 文 調 査 委 員	(主査) 瀬戸 誠 教授 中家 剛 教授 大久保 嘉高 教授

理 学 研 究 科

(続紙 1)

京都大学	博士（理学）	氏名	齋藤真器名
論文題目	Development of Time-Domain Interferometry Method Using Nuclear Resonant Scattering and Its Applications		
（論文内容の要旨） 励起寿命 141 ns の ^{57}Fe 原子核の第一励起状態が基底状態に崩壊する際に放射される γ 線の波長は 0.086 nm であるが、放射光でこの励起状態に共鳴励起することによって高指向性を有した γ 線を取り出す事が可能となる。このような γ 線を用いると、分子運動等による準弾性散乱により変調を受けた γ 線と基準となる γ 線の干渉現象を時間領域で測定することによって、緩和現象等を観測することが可能となる。γ 線を高効率に検出可能な 1 ns 程度の分解能の検出器を用いて分光法を構築する場合、0.1～6 nm 程度の電荷密度の相関の緩和現象を 1 ns～10 μs 程度の時間スケールで観測できる。この方法は時間領域干渉計法と呼ばれる。 これまでに時間領域干渉計による測定法は実証されているが、測定効率の問題から本格的な研究展開は実施されていない。既存の方法では干渉による時間領域のうなりを実現するために γ 線のエネルギーをドップラー効果によりシフトさせているが、その際に速度エラーが発生し、分解能の劣化を生じさせている。また、励起に使用している放射光の線幅が meV オーダーであるにもかかわらず、わずか neV オーダーの線幅の成分のみをプローブ光としているため大部分が使われていない。本研究では、このような問題を解決するための新しいアプローチとして、基準となる γ 線を複数用いることによって放射光をより有効に利用する方法と、基準 γ 線と準弾性散乱を受けた γ 線のエネルギー差を超微細相互作用により生成することでドップラー効果を用いない方法を研究・開発することで測定効率の向上を目指した。この研究の第 1 ステップとして、既存の方法に準弾性散乱用の γ 線生成用散乱体を 1 つ追加する測定系を構築することでこれまでの 2 倍の測定効率向上が達成され、応用研究に用いる事が出来た。次のステップとして、超微細相互作用によるエネルギー準位の分裂を利用した方法の研究を実施した。これは原子核位置に磁場が存在する場合、原子核のエネルギー準位が超微細分裂することにより複数の異なるエネルギーでの核励起が可能となる事を利用したものである。さらに磁場の向きと直線偏光した入射光の磁場成分方向に依存して核励起が起こる遷移を選択できることから、様々なケースについてシミュレーションおよび実測により最適条件の探索を実施した。その結果、準弾性散乱用の γ 線生成散乱体と基準 γ 線生成用散乱体にかかる磁場の条件を最適化することで、試料を駆動させなくとも干渉を起こす事が出来ると同時に測定効率の向上も実現出来る事が分かり、これまでの時間領域干渉計法に比べて約 2 桁の測定効率の向上の可能を示した。 時間領域干渉計の応用研究として、(i) 過冷却状態にあるイオン液体 1-butyl-3-methylimidazolium iodide (BmimI) の緩和過程、(ii) 過冷却状態の分子液体 o-terphenyl の微視的ダイナミクス、(iii) 典型的シアノビフェニル液晶 8CB とシアノビフェニル液晶の炭化水素鎖の水素の一部をフッ素に置換した両親媒性液晶 BI のスメクティック相状態の分子ダイナミクスについての研究を実施した。特に(iii)の液晶の			

(続紙 2)

研究において、スメクティック相状態の BI においてフッ素鎖とフッ素鎖、炭化水素鎖と炭化水素鎖同士が会合している構造をとる場合には、層間の分子の緩和時間は、8CB に比べて数倍程度遅いことが示唆されていたものの、測定の結果、層内、層間ともに分子間の緩和時間は 8CB と BI で殆ど変わらなかったことから、BI の場合はスメクティック相状態で分子の会合はあまり起きていないことを示唆している。

以上のような装置開発研究とその応用研究の結果、過冷却液体とソフトマターという測定対象に対して時間領域干渉計法が有効であることを実証し、多くの新しい知見を得ることが出来た。さらに桁違いの測定効率向上の可能性が示唆されており、開発を進展させることで、さらに様々な凝縮系中のスローダイナミクスの理解が可能になるものと考えられる。

(論文審査の結果の要旨)

申請者齋藤真器名は、放射光を用いて共鳴励起した ^{57}Fe 原子核からの高指向性 γ 線を極めて有効に利用することによって、0.1~6 nm 程度の電荷密度の相関の緩和現象を 1 ns~10 μs 程度の時間スケールで観測できる時間領域干渉計を応用研究に利用出来るレベルに到達させ、過冷却状態にあるイオン液体、分子液体および液晶のダイナミクスについての研究を実施したことは大変高い評価に値する。

これまで時間領域干渉計法は実証されているが、その測定効率は低く、応用研究に適用できるレベルにまで達していなかった。そのような既存の時間領域干渉計についての分析を行い、ドップラーシフトに起因する速度エラーおよび放射光の meV という広いエネルギーレンジが neV という大変狭い領域の測定において有効に利用されていないという問題に申請者は着眼した。そしてこのような問題を克服するための新しいアプローチとして、基準となる γ 線を複数用いることによって放射光をより有効に利用するという方法と基準 γ 線と準弾性散乱 γ 線のエネルギー差を超微細相互作用により生成させることによりドップラー効果を用いなくても測定を可能とする方法についての開発研究を実施した。これらの方法は全く新しい提案であり独創的なものであると言える。また研究を実施するにあたり、シミュレーション、理論的考察および実験的な測定を駆使して総合的に取り組んだ。このとき、 γ 線生成用の散乱体に与える外部磁場の向きと直線偏光した入射光の磁場成分方向に依存して核励起が起こる遷移を選択できることに着目し、最適条件を詳細に探索した。その結果、準弾性散乱用の γ 線生成散乱体と基準 γ 線生成用散乱体にかかる磁場の条件を互いに変えることで、散乱体を駆動させなくとも、干渉を起こす事が出来ると同時に測定効率の向上も実現出来る事を見出した。これらの研究の結果、これまでの時間領域干渉計法に比べて約 2 倍の測定効率向上を達成したことは高く評価出来るが、それだけでなく約 2 桁の測定効率向上の可能性を示したことは今後の

研究の発展という観点から大変重要なものであると考えられる。

さらに、申請者は分光法の開発・研究だけに止まらず、開発を行った時間領域干渉計を用いた応用研究も実施した。(i)過冷却状態にあるイオン液体に関する研究では、イオン液体 **BmimI** の微視的ダイナミクスの測定を行い、比較的高温の過冷却状態(250 K)においては分子内・分子間スケールでの分子の運動は比較的自由に行われていることをはじめて見出した。(ii) 過冷却状態の分子液体に関する研究では、温度依存性から緩和時間と運動性についての関係を明らかにしている。(iii)液晶に関する研究においては、スメクティック相状態の両親媒性液晶 **BI** と典型的液晶の **8CB** で、層内、層間ともに分子間の緩和時間はほとんど変わらないことを明らかにし、**BI** の場合はスメクティック相状態で分子の会合はあまり起きていないことを示唆している。

これまでソフトマターのダイナミクス研究は、誘電緩和分光法や動的光散乱法などにより研究されてきたが、これらの方法では測定された分子緩和の起きている空間スケールを同定することは極めて難しかった。しかし申請者が開発を行った γ 線を用いる時間領域干渉計による測定は、比較的短時間にそのような測定が可能であることを初めて実証した。また、申請者の行った研究は、**X** 線により相関長 6 nm 程度のメソスコピックな空間スケールに対して数 100 ns の緩和現象を測定した初めてのものであり、放射光による核共鳴散乱法の可能性をさらに広げたという意味でも大変価値があるものといえる。

以上のように、本論文は博士(理学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成 24 年 1 月 18 日論文内容及び関連事項についての口頭試問を行った。その結果合格と認めた。