中性子スピネコー分光器 iNSE の検出器大面積化

山田悟史¹, 長尾道弘², 川端庸平³, 武田隆義⁴,
瀬戸秀紀⁵, 遠藤 仁⁶, 大坂 昇⁶, 柴山充弘⁶(高エネ研¹, インディアナ大², 首都大理³, 広大総科⁴, 京大理⁵, 東大物性研⁶)

Detector Area Expansion at iNSE Neutron Spin Echo Spectrometer

N. L. Yamada¹, M. Nagao², Y. Kawabata³, T. Takeda⁴, H. Seto⁵,
H. Endo⁶, N. Osaka⁶ and M. Shibayama⁶(KEK¹, Indiana U.², Tokyo Metropolitan U.³, Hiroshima U.⁴, Kyoto U.⁵, U. of Tokyo⁶)

ABSTRACT

A 2D-detector and an analyzer had been installed on iNSE neutron spin echo spectrometer for wide-area data acquisition. Since the areas of the 2nd $\pi/2$ spin flipper and the last Fresnel coil were not wide enough for a full area measurement, only the center area of the detector had been used. In 2006, we renewed the spin flipper and the Fresnel coils to expand the detection area. To improve the efficiency of the data acquisition, we proposed a novel method for phase correction of NSE signals. Finally, the efficiency of the NSE measurement increased by approximately one order of magnitude.

Keywords: *neutron spin-echo (NSE), detector area expansion, phase correction*

1. はじめに

中性子は meV 程度のエネルギーで数Å程度の波長をもつため、原子・分子スケールの動的構造観測に広く用いられてきた。例えば、三軸分光器やチョッパー分光器等の装置では、試料入射前後の中性子をそれぞれエネルギー分解することによって、動的構造因子 $S(q, \omega)$ の観測を行う。このような分光法は格子振動やスピン波のように、エネルギー準位が明確なモードのダイナミクスを観測するのに適している。

一方、Mezei によって提唱された中性子スピネコー分光法 (Neutron Spin-Echo Spectroscopy; NSE) では、試料入射前後のラーモア歳差運動による位相差を利用することによって、わずかなエネルギー変化を検出することができる[1]。これにより、低い波長分解能で高いエネルギー分解能が実現できると共に、中間相関関数 $I(q, t)$ を直接観測できる。 $I(q, t)$ は拡散や変形のような構造緩和のモードを観測するのに適しているため、NSE はソフトマターやガラスといった非晶質のダイナミクス測定に用いられている。

iNSE は JRR-3 (日本原子力研究開発機構) に設置されている東京大学物性研究所所有の NSE 分光器である[2]。我々は、2006 年度に様々なハードウ

ェアの更新を行い、有効な検出面積を 10 倍程度に拡張した。一方、広い検出面積を有効利用するためには、ビーム経路の差によって生じる位相差が問題となる。これを解決するために、我々は検出位置に対する位相差を補正する新しいデータ処理法を考案した。

本稿では、iNSE で検出面積増大のために行ったハードウェアの更新と、それに伴う位相補正の問題、およびその解決法について報告する。

2. iNSE の概要

iNSE は JRR-3 の C2 導管末端に設置された Mezei 型の NSE 分光器である (Fig.1)。C2 導管により輸送された中性子は、中性子速度選別機で単色化された後、ベンダー型のポラライザを通すことで偏極される。得られた偏極中性子のスピンは、 $\pi/2$ フリッパーにより磁場に対して垂直になるため、プリセッションコイルの磁場によって歳差運動が開始する。試料で散乱された中性子は π フリッパー、プリセッションコイルを通り、 $\pi/2$ フリッパーによって歳差運動が終了する。このとき、 π フリッパーにより位相が反転するため、前後のプリセッションコイルにより生じる歳差運動の位相は互いに打ち消し合う。完全にキャンセルされなかった位

Fig.1 Schematic illustration of iNSE spectrometer. An attenuator, a beam narrower, a Fresnel coil, and a $\pi/2$ flipper (colored dark) have been renewed in 2006.

相 ϕ_{net} は、アナライザによって強度が $(1 + \cos[\phi_{\text{net}}])/2$ で変調されることにより検出される。

ここで最も重要なのは、 π フリッパー前後の磁場積分（プリセッションコイルの電流値に比例）が等しい（エコー条件）とき、弾性散乱の場合は $\phi_{\text{net}} = 0$ 、準弾性散乱の場合には $\phi_{\text{net}} = \omega t$ となることである。（ただし、 t はフーリエ時間と呼ばれる時間の次元を持つ物理量で、中性子波長の3乗、及び磁場積分の大きさに比例する。また、 ω は試料での遷移エネルギーを表す。）準弾性散乱のNSEでは強度が $\cos[\omega t]$ で変調されるため、 $S(q, \omega)$ が自動的にフーリエ変換されて $I(q, t)$ が観測される。実際のNSE測定での中性子強度 I_{NSE} は $I(q, t)$ を用いて次式で表される[1]。

$$I_{\text{NSE}}(q, t, \Delta\phi) = A \{ P_0 P I(q, t) \cos[\Delta\phi] \exp[-(\Delta\phi/\sigma)^2] / I(q, 0) + 1 \} \quad (1)$$

q は運動量遷移、 $\Delta\phi$ はエコー条件からの位相のずれ、 A は散乱強度の係数、 P_0 は装置のNSE分解関数、 P は中性子の偏極率、 σ は波長分散による減衰を表すパラメータである。このことは、 $I_{\text{NSE}}(q, t, \Delta\phi = 0)$ から $I(q, t)/I(q, 0)$ を観測できることを意味している。

ただし、厳密なエコー条件で測定を行うことは困難である。よって、実際にはシンメトリコイルを用いて $\Delta\phi$ を走査し、 $I_{\text{NSE}}(q, t, \Delta\phi)$ を式(1)でフィッティングすることで $I(q, t)/I(q, 0)$ を評価する。また、 q と t はそれぞれ散乱角、プリセッションコイルの電流値に依存するため、これらを走査することにより $I(q, t)/I(q, 0)$ の変化が観測される。

3. ハードウェアの更新

iNSEでは測定効率の向上を目指して、これまでも大面積の検出器（320 × 320 mm²）とアナライザ（270 × 270 mm²）を使用していた。しかし、検出器直前の $\pi/2$ フリッパー（80 mmφ）の面積が十分でないため、実際には検出面の一部しか用いることができなかった。また、ラーモア歳差運動による位相は磁場中の飛行距離と共に増加するため、ビーム経路による位相差が生じる。一方、位相は磁場の強さにも依存しているため、この経路による位相差は、プリセッションコイルの内部に設置されたFresnelコイルで中心部を通過する経路の磁場積分を増大させることにより、補正することができる。しかし、検出器直前のFresnelコイルの大きさ（70 mmφ）が不十分だったため、広い面積での位相差を補正することができなかった。

これらの問題を解決するために、2006年度は大面積のスピンフリッパー（250 mmφ）とFresnelコイル（150 mmφ）を導入した。これらの更新により、有効な検出面積が85 mmφから240 mmφに増大し、一度に0.05 Å⁻¹程度（波長7.3 Åの場合）の q 領域を同時に測定できるようになった。また、検出面積の増大に伴って計数率が劇的に上昇するため、ホウケイ酸ガラスを用いたアッテネータを設置し、中性子の数え落としを防いでいる。

Fig.2 Two-dimensional intensity profile near an echo center. Dependence of the intensity on the detector position is attributed to a neutron path difference.

4. 検出位置による位相の補正

以上の更新による検出面積の増大は $I_{\text{NSE}}(q, t, \Delta\phi)$ の積算強度の増大につながるため、単純には面積に比例した測定効率の向上が見込まれる。その一方、検出面積の増大に伴い、より発散角の大きな中性子ビームを取り込むことになり、飛行経路の違いより生じる磁場積分の不均一がさらに大きくなる。試料からの散乱による磁場積分の不均一は検出位置での位相ムラとして現れるが、主に検出器直前に設置されたFresnelコイルによって補正することができる。ただし、広い検出面積の位相を完全に補正するのは困難であるため、単純な円環平均のように q で積算すると位相ムラによって $\Delta\phi$ の情報が失われてしまい、正しいエコーが得られない。これは位相ムラを無視できる狭い範囲でのみデータを積算することで回避できるが、この方法では検出面積の増大によるメリットが少なく、大面積化における測定効率の向上を妨げる大きな要因となっている。

これを解決するために、我々は実際の位相差 ($\Delta\phi$) をシンメトリコイルによる位相差 ($\Delta\phi_{\text{sym}}$) と検出器位置による位相差 ($\Delta\phi_{\text{det}}$) に分離し、位相ムラの補正を試みた。まず、 $\Delta\phi_{\text{det}}$ の分布を評価するために、エコー中心付近でGrafoil（黒鉛のシート）の弾性散乱による二次元プロファイルを観測した。ただし、位相分布を明確にするために、検出器直前のFresnelコイルの電流値を最適値からずらした状態で観測を行う。得られた強度プロファイルは位相情報を抜き出すために式(1)を用いて規格化し、 $P_0 P I(q, t) \cos[\Delta\phi] \exp[-(\Delta\phi/\sigma)^2] / I(q, 0)$ に変換した。ただし、 A および P は $\pi/2$ フリッパーを off にした偏極解析より、次式を用いて求めている。

$$A = (I_{\text{on}} + I_{\text{off}})/2 \quad (2)$$

$$P = (I_{\text{off}} - I_{\text{on}})/(I_{\text{off}} + I_{\text{on}}) \quad (3)$$

$I_{\text{on}}, I_{\text{off}}$ はそれぞれ π フリッパー on, off にした際の中性子強度である。Fig.2 は検出器の中心が $q = 0.055$ Å⁻¹、プリセッションコイルの電流値が1 A で得られたデータで、経路差による位相ムラ（強度に対応）が明確に現れている。

理想的には $\Delta\phi_{\text{det}}$ はプリセッションコイルの磁場中心からの距離の自乗に比例する。ただし、本来の中心位置と Fresnel コイルの中心位置がずれていると、位相の中心が2カ所でできてしまうため、偏平した位相差が観測される。よって、我々は位相差の広がり真円状ではなく楕円状に広がっていくとして次式で $\Delta\phi_{\text{det}}$ を近似し、フィッティングを行った。

$$\Delta\phi_{\text{det}} = k_{\text{det}}\{(x-x_0)^2 + a(y-y_0)^2 + b(x-x_0)(y-y_0)\} \quad (4)$$

ただし、 k_{det} は中心からの距離に対する位相変化の割合を、 x, y は検出器上の座標を、 x_0, y_0 は位相ムラの中心座標を、 a, b は偏平に関するパラメータを表す。式(4)を用いたフィッティングは Fig.2 の等高線で示す通り、良好であった。

一方、シンメトリコイルによる位相変化 $\Delta\phi_{\text{sym}}$ は単純に磁場の強さに比例する。よって、検出位置による位相ムラの影響が最も少ない (x_0, y_0) 付近の数ピクセルを積算し、そのコイル電流依存性を次式を用いてフィッティングを行った。

$$\Delta\phi_{\text{sym}} = k_{\text{sym}}(i - i_0) \quad (5)$$

ただし、 k_{sym} は電流値に対する位相変化の割合を i はコイルの電流値を、 i_0 はエコー条件での電流値を表す。結果は Fig.3 に示す通りで、こちらもフィッティングの結果は良好であった。

以上の解析により、検出位置とシンメトリコイルの電流値を考慮した位相差 $\Delta\phi (= \Delta\phi_{\text{det}} + \Delta\phi_{\text{sym}})$ が一意に決定する。Fig.4 は q 分解能 ($\pm 0.005 \text{ \AA}^{-1}$ 程度) の範囲に含まれる各ピクセルにおける $P_0 I(q, t) \cos[\Delta\phi] \exp[-(\Delta\phi/\sigma)^2] / I(q, 0)$ を、 $\Delta\phi$ に対してプロットしたものである (ただし、 $\Delta\phi \pm 0.25 \text{ rad.}$ の範囲で積算してある)。得られた結果は良好で、位相変化による振幅がはっきりと現れている。また、これをフィッティングすることにより、それぞれの q における $P_0 I(q, t) / I(q, 0)$ を見積もることができる。 t はプリセッションコイルの電流値に比例するため、これを走査しながら測定したデータに対して同様の解析を行い、 $P_0 I(q, t) / I(q, 0)$ を求めた (Fig.5)。Grafoil からの散乱は全て弾性散乱であるため、 $I(q, t) = I(q, 0)$ より Fig.5 は NSE 分解能関数 P_0 に対応する。よって、実際の試料における測定ではこの P_0 で規格化することで、 $I(q, t) / I(q, 0)$ を算出する。(これは NSE における分解能補正に相当する。)

5. 非イオン性界面活性剤／水系を用いた検証

以上の解析により、検出位置、およびシンメトリコイルの電流値に対する位相差 $\Delta\phi$ が一意に決定できることが確認された。これらのパラメータはビームパス中の磁場条件にのみ依存するため、分解能測定用の試料を用いて決定した $\Delta\phi$ の値は他の試料でも適用できる。次に、本解析手法を用いて評価される $I(q, t) / I(q, 0)$ の妥当性を検証するために、準弾性散乱への適用を試みた。

用いた試料は C_{12}E_5 と呼ばれる非イオン性界面活性剤の 10 wt.% 水溶液で、57℃付近で二分子膜のラメラ構造を形成する[3]。このようなラメラ構造

Fig.3 Echo signal of a detector-center area. The phase of the echo signal is proportional to the symmetry coil current.

Fig.4 Corrected echo signals with taking the phase shift due to a detector position into account. All the data in the same- q region can be simultaneously analyzed by this data reduction method.

Fig.5 NSE resolution functions of iNSE P_0 obtained from the elastic scattering of a Grafoil.

は膜間距離が十分大きいとき、 $I(q, t) / I(q, 0)$ を次式で表される Zilman-Granek の理論[4]で記述することができる。

$$I(q, t) / I(q, 0) = \exp[-\Gamma(q)t^{2/3}] \quad (6)$$

$$\Gamma(q) \sim 0.025(k_B T)^{3/2} \kappa^{-1/2} \eta^{-1} q^3 \quad (7)$$

ただし、 κ は膜の曲げ弾性係数、 η は溶媒の粘性係数である。

Fig.6 に検出中心が $q = 0.055 \text{ \AA}^{-1}$ となる散乱角で測定したデータを解析し、分解能関数で規格化して得られた $I(q, t)/I(q, 0)$ を示す。得られたデータは Zilman-Granek の理論で示された式(6)でうまくフィッティングすることができた。また、他の散乱角でも同様の解析を行い、緩和係数 $\Gamma(q)$ の q 依存性を計算した。結果は Fig.7 に示すとおりで、Zilman-Granek の理論に従い q^3 でスケールされている。また、得られた $\Gamma(q)$ の値は以前の結果[5]と良く一致しており、我々が提唱した位相補正がうまく機能していることが確認された。

6. おわりに

我々は、iNSE の測定効率向上を目指し、 $\pi/2$ フリッパー、および Fresnel コイルの大面积化を行った。また、検出位置での位相補正を行う上で有効な解析方法を提案し、 $\Delta\phi$ と q の分離を効率的に行うことが可能になった。これにより 1 桁程度面積が増加した検出面をまとめて解析できるため、測定効率も 1 桁程度向上していると考えられる。

以上の一連の解析は自作の Igor (WaveMetrics 社) 用マクロ Echo-Signal Analyzer 2007 (ESA2007) を用いることで簡便に行えるようになっている。ただし、式(2)、および式(3)におけるバックグラウンドの影響を無視しているため、今回のデータ処理には若干の問題が残っている。この問題については、今後の課題としたい。

最後に、東大物性研の川村義久氏、渡辺聡氏、浅見俊夫氏らの技術職員をはじめ、様々な方々に iNSE のアップグレードをサポートして頂いた。この場を借りて深く感謝の意を表したい。

参考文献

- [1] F. Mezei (Ed.), Neutron Spin Echo, Lecture Notes in Physics, vol.128, Springer, Berlin, 1980.
- [2] M. Nagao, N. L. Yamada, Y. Kawabata, H. Seto, H. Yoshizawa, and T. Takeda, *Physica B*, **385-386** (2006) 1118.
- [3] R. Strey, R. Schomacker, D. Roux, F. Nallet and U. Olsson, *J. Chem. Soc. Faraday. Trans.*, **86** (1990) 2253.
- [4] A. G. Zilman and R. Granek, *Phys. Rev. Lett.*, **77** (1996) 4788.
- [5] N. L. Yamada, T. Takeda, K. Kato, M. Nagao, and H. Seto, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **74** (2005) 875.

Fig.6 Intermediate correlation function of a 10 wt.% aqueous solution of $C_{12}E_5$. All the data are fitted by the stretched exponential function predicted by Zilman and Granek [4].

Fig.7 q -dependence of a relaxation rate, $\Gamma(q)$, of a 10 wt.% aqueous solution of $C_{12}E_5$. This also follows the theory given by Zilman and Granek, and the obtained value well agrees with the previous work [5].