



# 論文内容要旨

## 第 I 章 序論—動的偏極陽子フィルター法による熱外中性子の偏極

本研究は動的偏極陽子フィルター法が熱外白色中性子の偏極に実用可能であることを実証することを目的とする。このため高エネルギー物理学研究所パルス中性子源に熱外白色中性子偏極装置 PEN を建設し、偏極陽子フィルターによる熱外白色中性子偏極実験を行なった。また一方、動的偏極過程自体の研究を目的として、中性子散乱による動的偏極陽子フィルターにおけるスピン・クラスターの観測を行なった。

中性子偏極法として採用した動的偏極陽子フィルター法は、 $Cr^{5+}$  錯体を含む有機物質などの水素原子核（陽子）を  $Cr^{5+}$  の常磁性電子 ( $d^1$ ) と陽子との間の双極子—双極子相互作用を通じてマイクロ波ポンピングによって偏極し、この偏極陽子をフィルターとして、陽子偏極方向に平行なスピンをもつ中性子のみを選択的に透過させる方法で熱外白色中性子偏極法としては現在唯一の方法である。第 I 章では偏極熱外中性子の必要性、その発生法さらに最適化条件について議論する。

## 第 II 章 動的偏極試料の開発の概括

動的偏極陽子フィルターに最も適した物質を得るために種々の物質（特に  $Cr^{5+}$  錯体を含むアルコール、ダイオール類）を用いて陽子偏極実験を行なった。この開発の結果、ビーズ状の ethylene glycol ( $Cr^{5+}$  錯体を含む) を用いて 80 % 程度の陽子偏極率を得ることは困難なことではなくなった。この過程で、第 VII 章でも用いられる EHBA- $Cr^{5+}$  錯体を含めて、偏極効率の良い  $Cr^{5+}$  錯体を合成し、偏極陽子フィルター用に形成し、動的偏極によって 0.5 K の温度、25 kOe の磁場で 80 % 程度の陽子偏極率を維持する技術を確立した。

## 第 III 章 縦偏極陽子フィルターによる中性子の偏極実験

動的偏極陽子フィルター法によって熱外白色中性子を偏極させる技術を確立し、また縦偏極（陽子偏極方向をビーム方向に平行とする）と横偏極（陽子偏極方向をビーム方向に垂直とする）構成の違いが中性子偏極効率に及ぼす影響を調べるために、既存の装置を組合わせて縦偏極構成による予備実験を行なった。中性子偏極率は  $Co_{0.92}Fe_{0.08}$  単結晶 (200) Bragg 反射による偏極解析と、非偏極状態に対する透過強度増大率の測定から求める 2 種類の方法を用いた。

実験の結果、厚さ 1 cm、面積  $0.6\text{ cm}^2$  のフィルター中の陽子を 43 % 偏極させ、100 meV の中性子で約 70 %、1 eV の中性子で約 40 % の中性子偏極率を得た。この実験によって、動的偏極陽子フィルター法による熱外白色中性子偏極の可能性を実証した。また、熱・熱外中性子領域では縦偏極と横偏極構成における中性子偏極率は実験誤差の範囲内では一致することが証明された。

## 第IV章 熱外中性子偏極装置 (PEN) の建設

第III章で述べた実験結果に基づいて、熱外中性子偏極装置を建設した。陽子偏極には横偏極方式を採用した。装置は25 kOeの鉛直磁場を発生する非対称ヘルムホルツ型超伝導マグネット(磁場均一度は $3\text{ cm } \phi \times 4\text{ cm } h$ の体積内で $5 \times 10^{-5}$ )、鉛直型 $^3\text{He}$ クライオスタット(約0.5 Kで運転)、70 GHzのマイクロ波源を備える。この超伝導マグネットは、動的偏極から要求される高い磁場均一度と、対称ヘルムホルツ型コイルでは不可避免的にビームパス上に現れる磁場ゼロ点を有効にシフトさせるという要求とを同時に満たすものである。

装置の性能試験として行なった陽子偏極実験においては、 $\text{Cr}^{5+}$ 錯体を含んだビーズ状のethylene glycol 試料約 $3\text{ cm}^3$ において約80%の陽子偏極率を得、陽子偏極装置が十分に高い性能をもつことが証明された。

## 第V章 横偏極陽子フィルターによる中性子の偏極実験 (PEN)

前章に述べられた装置を用いて中性子偏極実験を行なった。偏極陽子フィルターの構造としては、 $0.24\text{ cm } w \times 2.5\text{ cm } h \times 1.5\text{ cm } t$ のセルにフィルター物質として $\text{Cr}^{5+}$ 錯体を含んだethylene glycol を注ぎ、 $2.4\text{ mm}$ の間隔をあけて4層並べ、液体 $^3\text{He}$ 中で冷却した。有効ビーム面積は $1.8\text{ cm}^2$ である。

中性子偏極率の測定法としては第III章の場合と同じく、 $\text{Co}_{0.92}\text{Fe}_{0.08}$ アナライザーによる偏極解析と透過強度増大率測定の方法によった。中性子スピン反転には超伝導Nb板によるnon-adiabatic 通過を利用したスピン・フリップperを用いた。

中性子偏極実験の結果、陽子偏極率は70%程度を常に維持し、陽子偏極率67%の偏極陽子フィルターによって、中性子偏極率は100 meV の中性子に対しては95%、1 eV では80%の値(透過強度増大率による)を得、熱外白色中性子偏極装置としては世界最高の性能を実現した。しかしながら、フィルター透過後のビーム・パス上での偏極率減少があることがわかったので、この部分の偏極保持が改善されなければならない。この中性子偏極実験の結果を図1に示す。

## 第VI章 $^3\text{He} / ^4\text{He}$ 熱交換による偏極陽子フィルター

前章の実験によって高度に偏極した熱外白色中性子を得たが、中性子散乱実験に実用するには強度的に十分でないので、より大面積の中性子ビームを透過させることの可能な、従って大きい体積の偏極陽子フィルターを実現する方法として、 $^3\text{He} / ^4\text{He}$ 熱交換型偏極陽子フィルターを開発した。この方法は他に液体 $^3\text{He}$ をビーム・パスから完全に排除すること、陽子偏極率を向上させることを目的としている。具体的方法としては、0.5 K付近の温度でも熱伝導率の非常に良い超流動 $^4\text{He} - \text{II}$ はAg微粉末焼結体を熱交換媒体として液体 $^3\text{He}$ に接し、 $^3\text{He}$ 減圧蒸発によって冷却される。

現在までに2台のフィルター容器を作成し、テスト実験として冷却能力の測定と陽子偏極実験を行なった。1号機は冷却能力約 $30\text{ mW}$ (0.6 K)であり、実質量約 $7\text{ cm}^3$ のビーズ状フィルター

物質を用いた陽子偏極実験においては陽子偏極率 60 %を得た。これをさらに改造した 2 号機においては、冷却能力は 0.5 K で 20 mW, 0.6 K では 60 mW と強化された。陽子偏極実験においては実質量約 13 cm<sup>3</sup> のビーズ状フィルター物質を用いて (厚さ 1.1 cm, ビーム透過面積 12 cm<sup>2</sup> に相当する), 50 % の陽子偏極率を得ることができた。残る課題は同量のフィルター物質に対して、陽子偏極率を 80 % 程度に向上させることであるが、マイクロ波強度を増大し、冷却能力を向上させることによって十分実現可能である。

この方式の成功により、動的偏極陽子フィルター法によって偏極された熱外白色中性子を中性子散乱実験に実用する見通しができたと言えよう。

## 第 VII 章 中性子小角散乱による動的偏極スピン・クラスターの観測

動的核偏極法は技術的には確立していると言えるが、その微視的過程の理解はあまり進んでいない。そこで、我々の装置が動的偏極と中性子散乱を組み合わせたものであることを利用して、動的偏極の微視的過程をよりよく理解することを目的として、中性子小角散乱によって動的偏極過程における陽子偏極率の分布を直接観測することを試みた。

水素核散乱は核の非偏極状態では非干渉性が強く核の空間的相関は見えないが、核を偏極させた場合には散乱断面積が、

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \sum_{ij} \exp [iK \cdot (R_i - R_j)] \left[ b_{\text{coh}}^2 + \frac{I}{I+1} P^2 b_{\text{inc}}^2 \right] + \sum_i b_{\text{inc}}^2 \left[ 1 - \frac{I}{I+1} P^2 \right]$$

(ただし P が核偏極率,  $b_{\text{coh}}$  は干渉性散乱振幅,  $b_{\text{inc}}$  は非干渉性散乱振幅である) となって干渉性が増大するので水素原子配列あるいは偏極率分布の観測が可能になる。しかし散乱関数  $S(Q)$  を求めるにはフィルター物質の形状, 多重散乱, <sup>3</sup>He の存在, 強いバックグラウンドのため種々の実験条件の最適化, 補正が必要である。今回の実験では、第 1 段階として

- (a) 重水素化した propanediol (C<sub>3</sub>D<sub>8</sub>O<sub>2</sub>) に EHBA - Cr<sup>5+</sup> をドーブした試料
- (b) 重水素化 propanediol に EHBA - Cr<sup>5+</sup> とクラウンエーテルをドーブした試料
- (c) 部分重水素化 propanediol (C<sub>3</sub>D<sub>6</sub>H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) に EHBA - Cr<sup>5+</sup> をドーブした試料

のそれぞれについて非偏極状態, 定常的偏極状態の中性子小角散乱を測定し、散乱関数を求めた。このうち (b), (c) についての結果を図 2 に示す。

結論として、

- (1) 水素核スピンのクラスターが偏極すると、その大きさに対応した小角散乱強度が増大する (b)。
- (2) 動的偏極の定常状態においては水素核スピンの偏極率は空間的に一様である (c)。

の 2 点が得られた。

この実験は高い偏極率をもつ偏極陽子フィルターの中性子散乱による観測を初めて可能にしたものであり、また偏極コントラスト法による生体高分子などの構造解析の可能性を開いたものと

言える。

## 第Ⅷ章 総括

動的偏極陽子フィルター法による一連の中性子偏極実験および  $^3\text{He}/^4\text{He}$  熱交換方式による偏極陽子フィルターの開発によって、総合性能指数として（中性子偏極率）<sup>2</sup> × 透過率 × ビーム断面積をとれば、開発当初（第Ⅲ章の段階）に比べて約 2 桁の性能向上を得ることが射程内にはあった。これは高エネルギー研パルス中性子源の強度向上と相俟って強力な偏極熱外白色中性子源を実現させ、高エネルギー磁気励起研究などの実験手段を提供することを可能にするものと考えられる。

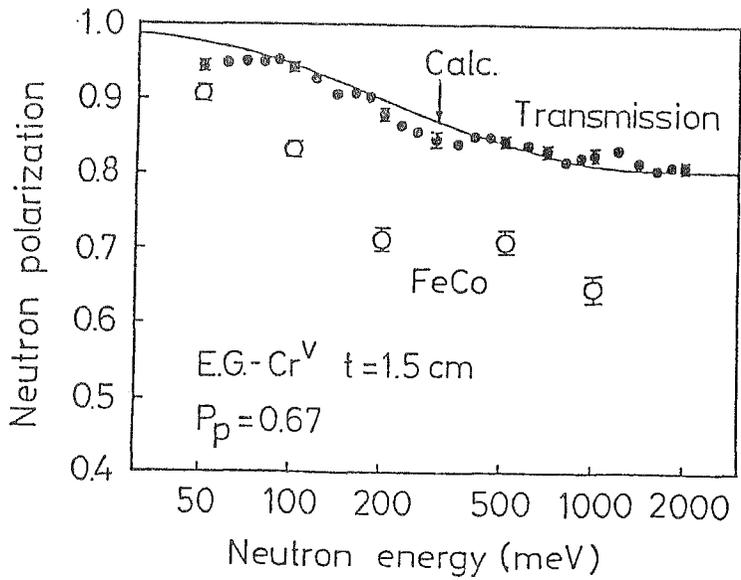


図1 横偏極陽子フィルターによる中性子の偏極実験結果

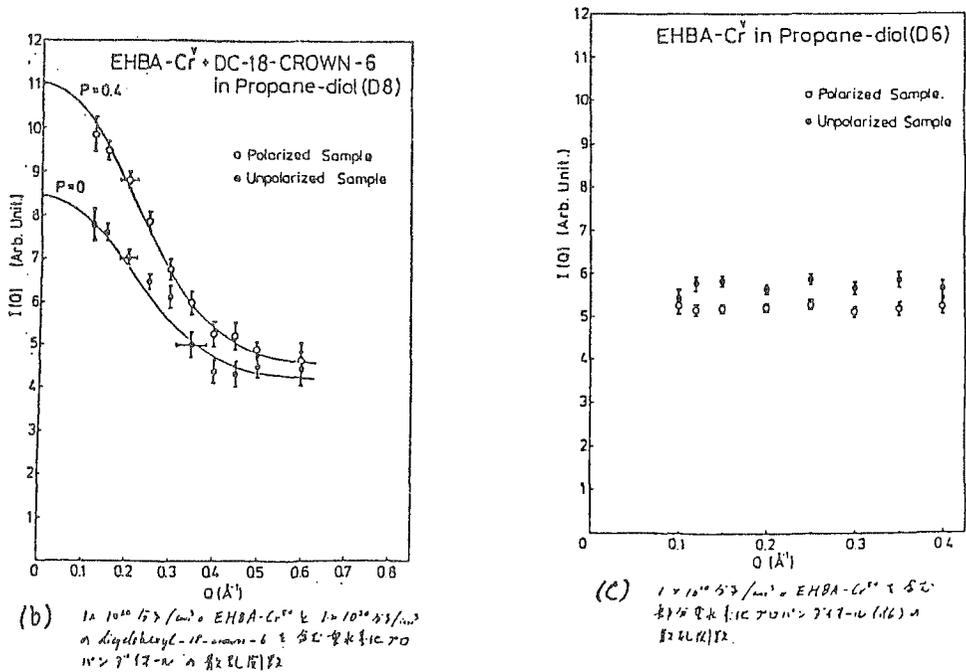


図2 偏極陽子フィルターの中性子小角散乱

## 論文審査の結果の要旨

石田昌義提出の博士論文は、動的偏極陽子フィルター法により熱外中性子を偏極するための装置を高エネルギー物理学研究所の中性子散乱施設 KENS に設置し、数々の技術開発を行った結果を議論したものである。

著者は先ずフィルター物質の開発を行い、 $Cr^{5+}$ を含む種々の有機化合物を自ら合成し、動的偏極法で陽子を偏極し、エチレングリコールと  $Cr^{5+}$  の錯体がフィルター物質として最適である事を見出した。

次に、予備装置として中性子を進行方向に偏極させる（縦偏極）装置 PREPEN を KENS に設置し、フィルター法で中性子を偏極させ、その偏極度を透過強度の測定、Co-Fe 偏極度解析装置による直接測定及び NMR から求めた陽子偏極度から推定する方法で決定し、この3方法が同一結果を与える事を示し、透過強度測定が中性子偏極度解析に用いる事が出来る事を示した。又同実験により、この縦偏極法でも従来から行なわれて来た横偏極法と同等の中性子偏極が実現出来る事も判明した。

以上の結果に基き、最終装置として横偏極法による装置 PEN を設計し、KENS に設置した。同装置は偏極中性子の偏極度減少をさけるために、非対称ヘルムホルツ型の超伝導磁石を採用しフィルター位置に 2.5 T の磁場を  $5 \times 10^{-5}$  の均一度で発生させるのに成功した。これによりエチレングリコールフィルター陽子スピンを 70 % まで偏極させる事が出来、最終的には熱外中性子 (1 eV) を 80 % まで偏極させる事に成功した。

然しながら、上記の方法は、 $^3He$  を冷却媒体として用いるため、それによる中性子の吸収を避るためフィルターをスリット状の配置で冷却する必要があり、偏極中性子の強度を著しく低くするという欠点があった。これを改善するため著者は、液体  $^3He$  で先ず液体  $^4He$  を 0.4 K まで冷却し、この  $^4He$  を用いてフィルターを冷却する方法を開発し、最終的には前回と比較して著しく冷却効率を高め偏極中性子強度を向上させる事が出来るようになった。これにより偏極陽子フィルター法の実用性は高まったと言えよう。

著者は又、PEN に小角散乱装置を取付け、フィルター中に存在するプロトン核スピクラスターからの中性子小角散乱の観測の成功し、この方法で核スピクラスターの空間的拡りを決定出来る事を示した。これにより動的偏極方法による核スピンの偏極過程を中性子散乱により研究する基盤が出来たと言えよう。

以上本研究は中性子偏極法の中で最も困難と考えられているが、熱外中性子偏極にとって最も望ましい偏極陽子フィルター法を実用段階にまで開発した事で、この方面への貢献は大なるものとする。よって石田昌義提出の博士論文は、本人が自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有する事を示しているものであり、理学博士の学位論文として合格と認める。