

令和 4 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K20601

研究課題名(和文) 磁気緩和現象解明のための偏極中性子スピンエコー分光法の研究

研究課題名(英文) Polarimetric neutron spin echo spectroscopy for the study of magnetic relaxation mechanism

研究代表者

小田 達郎(Oda, Tatsuro)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：70782308

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：中性子スピンエコー分光法とスピン偏極解析を組み合わせることで、磁性に関する異なる運動モードを識別したダイナミクス分光手法の確立を目指した研究を行った。具体的には、酸化鉄ナノ粒子分散溶液(磁性流体)における磁気緩和を対象に、スピNFLIP散乱と核散乱を分離したスピンエコー測定によるダイナミクス解析を行った。中性子ビーム実験は、大強度陽子加速器施設(J-PARC)の物質・生命科学実験施設(MLF)のBL06中性子共鳴スピンエコー分光器群にて行った。ヘリウムスピンフィルタの極性に依存した中性子小角散乱プロファイルおよびスピンエコーシグナルの解析を行い、異なる緩和モードに起因する違いについて議論した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

多くの物質のダイナミクスは様々な運動モードを反映したものであり、これらが混在した系を観測することになる。このような複雑な運動状態をモデル化し、系統的に理解するために、異なる運動モードを識別したダイナミクス測定が必要とされる。本研究によって開発された分光手法は、磁性に関する運動モードを抽出したダイナミクス測定につながる。

研究成果の概要(英文)：A combination of neutron spin echo spectroscopy and spin polarimetry was studied to establish a spectroscopic method that distinguishes different kinetic modes related to magnetism. Specifically, we analyzed the dynamics of magnetic relaxation in an iron oxide nanoparticles dispersed in solution (magnetic fluid) by neutron spin echo measurements separating spin flip scattering and nuclear scattering. Neutron beam experiments were performed at the BL06 neutron resonance spin echo spectrometer of the Material and Life Science Experimental Facility (MLF) at the Japan Proton Accelerator Research Complex (J-PARC). We analyzed the small angle neutron scattering profiles and spin-echo signals depending on the polarity of a helium spin filter and discuss the effects on the spin echo signal caused by different relaxation modes.

研究分野：中性子光学

キーワード：中性子散乱 中性子スピンエコー 偏極中性子 スピン偏極解析 磁性ナノ粒子 磁気緩和

1. 研究開始当初の背景

中性子ビームはその波動性から、サブナノメートルから数 100 ナノメートルの空間スケールの構造解析に用いられる。さらに試料で散乱された中性子のエネルギー変化を識別する(分光すること)ことで、どの空間スケールの構造がどの時間スケールで運動しているか調べることができる。磁性物質の新たな機能発現の解明には、静的な磁気構造はもとより、その動的な特性の理解が不可欠である。スピン偏極解析によって磁気的な性質のみに着目した静的・動的構造情報を得ることができるので、中性子は磁性研究のための強力なプローブとして利用されている。

中性子散乱分光法の中でも中性子スピンエコー法 [1] は、高いエネルギー分解能(遅い運動に対応)を有し、時間相関関数を直接観測可能であるため、緩和現象測定に適した分光法である。多くの物質のダイナミクスは様々な運動モードを反映したものであり、これらが混在した系を観測することになる。このような複雑な運動状態をモデル化し、系統的に理解するために、異なる運動モードを識別したダイナミクス測定が必要とされる。スピンの運動に起因する散乱は中性子のスピンフリップを伴うため、散乱中性子の偏極解析によって、原子構造に起因する散乱(核散乱)を分離した、磁気秩序の揺らぎ・緩和現象のみを識別したダイナミクス測定を行うことが可能となる。

共鳴型スピンエコー法のひとつである Modulation of intensity with zero effort (MIEZE) 型スピエコー分光法 [2] においては、試料に入射する中性子ビームは同一スピン固有状態にあるという特長があるため、試料後にスピン偏極アナライザを設置することで、散乱中性子の偏極解析が可能になる。本研究で開発を行う偏極解析中性子スピンエコー法では、偏極解析によるスピンフリップ散乱の分離によって、Neel 緩和成分を抽出することができ、それぞれの緩和機構の相対寄与を実験的に測定することができると考えられる。また、スピンエコー法では、交流磁化率測定のカバーする範囲 ($> \mu\text{s}$) よりもずっと短い緩和時間 ($< 0.1 \mu\text{s}$) を測定可能である。磁気緩和現象に対する偏極解析中性子スピンエコー法によるダイナミクス解析を確立することで、これまで実験的に詳しく研究されてこなかった未開拓な時間スケールにおける温度や粘度、粒子径に対する磁性ナノ粒子のそれぞれの緩和機構の振る舞いを明らかにすることにつながる。

2. 研究の目的

本研究の目的は、中性子スピンエコー分光法と偏極解析を組み合わせることで、異なる緩和機構を明確に分離した、高精度な磁性ダイナミクスの観測手法を確立することである。具体的には、磁性ナノ粒子を均一分散させた溶液(磁性流体)における、磁気モーメントのランダム運動に起因する緩和と粒子自体の回転運動に起因する緩和を分離し、それぞれの緩和時間を測定する。これによって、バイオテクノロジーなどの分野で応用が期待される磁性ナノ粒子のダイナミクス解明に貢献するとともに、偏極解析中性子スピンエコー法の応用展開を目指す。試料の原子レベルの運動状態を調べることができる「中性子スピンエコー分光法」とスピン偏極解析を組み合わせることで、異なる緩和機構を識別した高精度な磁気緩和現象の観測手法に関する研究開発を行う

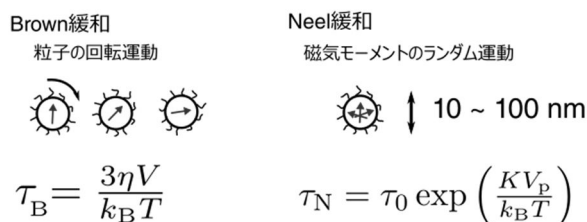


図 1. 磁性ナノ粒子の磁気緩和機構 (Brown, Neel 緩和). τ : 緩和時間, η : 粘度, V : 流体力学的体積, V_p : 粒子体積, K : 異方性因子, k_B : ボルツマン定数, T : 温度.

3. 研究の方法

磁性ナノ粒子についてヘリウムスピンフィルタによるスピン偏極解析を用いた MIEZE 型中性子スピンエコー分光測定を行った。具体的には、酸化鉄ナノ粒子分散溶液(磁性流体)における磁気緩和を対象に、スピンフリップ散乱と核散乱を分離したスピンエコー測定によるダイナミクス解析を行った。

中性子ビームを利用した実験は、茨城県東海村にある大強度陽子加速器施設 (J-PARC) 物質・生命科学実験施設 (MLF) の BL06 中性子共鳴スピンエコー分光器 [3] にて行った。試料下流に

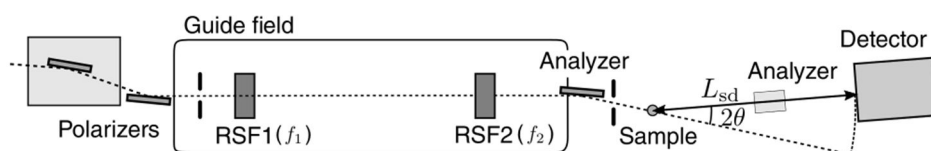


図 2. ヘリウムスピン偏極アナライザを設置した J-PARC MLF BL06 MIEZE 型スピンエコー分光器の配置

ヘリウムスピンフィルタを設置することで、散乱中性子に対して偏極解析を行った。試料は、溶

媒を重水置換した酸化鉄ナノ粒子分散溶液を用いた。実行振動数 200kHz および 400kHz の MIEZE スピンエコー体系において試料からの小角散乱を測定した。ヘリウムのスピン偏極の時間緩和の影響を抑えるため、長時間の測定中に定期的にスピン極性を切り替えながら測定を行った

4. 研究成果

(1) MIEZE スピンエコーシグナル

駆動振動数 400kHz, 800kHz の 2 つの $1/2$ -共鳴スピンフリップャーを用いて調整された実効振動数 400 kHz の MIEZE スピンエコーシグナルを図 3 に示す。MIEZE シグナルの位相は中性子の経路に依存するため、平面検出器においては図 4 (左下) のように同心円上のパターンとなる。同じ運動量遷移 Q について足し合わせる際には、この位相変化を補正する必要がある。傾きを考慮した大面積検出器に対して位相補正を行い、図 4 (右下) のように一様な位相分布になることが確認できた [5]。また、ヘリウムスピンフィルタとその磁気シールド、ガイド磁場を設置した状態でも、MIEZE シグナルのコントラストがほとんど変化せず、偏極解析 MIEZE 型スピンエコー測定が可能であることが確認できた。

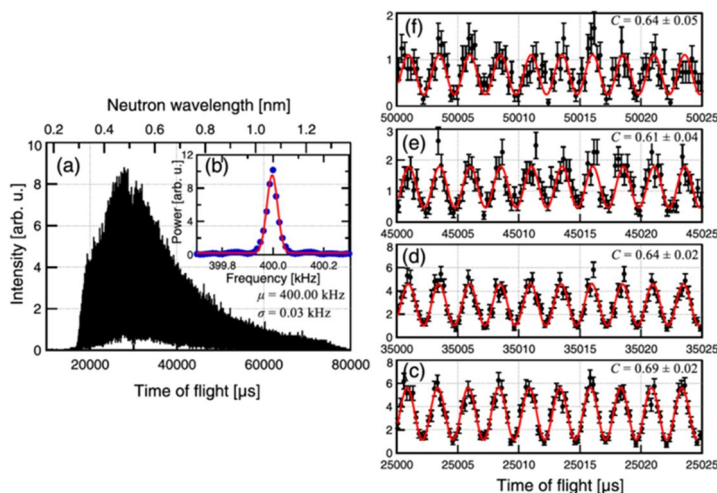


図 3. 実効振動数 400kHz の MIEZE スピンエコーシグナルの例 (文献[4]より引用)。中性子強度の時間的振動のコントラスト減少が試料の運動情報 (中間散乱関数) を反映する

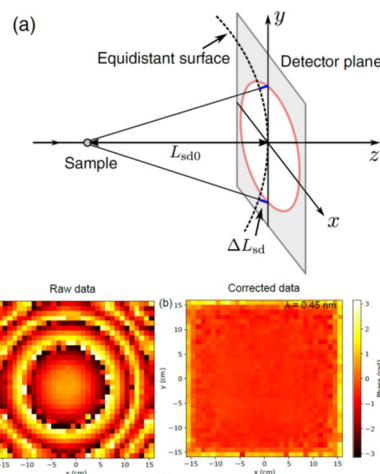


図 4. 大面積検出器における MIEZE スピンエコーシグナルの位相補正後の位相分布 (右下図) [5]

(2) 小角散乱測定

MIEZE 型スピンエコーシグナルが観測される状態の中性子ビームを用いて試料からの小角散乱を偏極解析することで得られたスピンフリップおよびノンスピンフリップ成分の散乱プロファイルを図 5 に示す。ヘリウムスピンフィルタのスピン極性に依存した中性子小角散乱プロファイルおよびスピンエコーシグナルの解析を行い、スピンフリップ、ノンスピンフリップ成分を分離した。これらの小角散乱データについて MIEZE スピンエコーシグナルの時間振動のコントラストを解析することで、異なる緩和モードに起因する違いについて議論した。

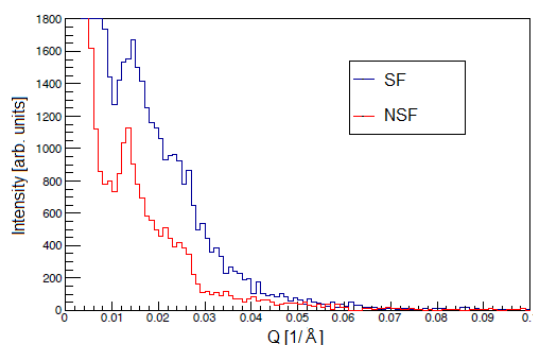


図 5. 偏極解析によって得られた小角散乱プロファイルのスピンフリップ、ノンスピンフリップ成分

<引用文献>

- [1] F. Mezei, Z. Phys. A 255 (1972) 146-160
- [2] R. Gähler, R. Golub, and T. Keller, Physica B 180&181 (1992) 899-902.
- [3] H. Endo, T. Oda, M. Hino, T. Hosobata, Physica B 564 (2019) 91-93.
- [4] T. Oda, M. Hino, H. Endo, N. L. Yamada, Y. Kawabata, H. Seto, JPS Conf. Proc. 22 (2018) 011029.
- [5] T. Oda, H. Endo, H. Ohshita, T. Seya, Y. Yasu, T. Nakajima, M. Hino, Y. Kawabata, Nucl. Instrum. Methods A, 1012 (2021) 165616.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Nakajima Taro, Oda Tatsuro, Hino Masahiro, Endo Hitoshi, Ohishi Kazuki, Kakurai Kazuhisa, Kikkawa Akiko, Taguchi Yasujiro, Tokura Yoshinori, Arima Taka-hisa	4. 巻 2
2. 論文標題 Crystallization of magnetic skyrmions in MnSi investigated by neutron spin echo spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 43393
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevResearch.2.043393	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Oda Tatsuro, Hino Masahiro, Endo Hitoshi, Seto Hideki, Kawabata Yuji	4. 巻 14
2. 論文標題 Tuning Neutron Resonance Spin-Echo Spectrometers with Pulsed Beams	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Applied	6. 最初と最後の頁 54032
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/physrevapplied.14.054032	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Okudaira T., Oku T., Ino T., Hayashida H., Kira H., Sakai K., Hiroi K., Takahashi S., Aizawa K., Endo H., Endo S., Hino M., Hirota K., Honda T., Ikeda K., Kakurai K., Kambara W., Kitaguchi M., Oda T., Ohshita H., Otomo T., Shimizu H.M., Shinohara T., Suzuki J., Yamamoto T.	4. 巻 977
2. 論文標題 Development and application of a ³ He Neutron Spin Filter at J-PARC	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment	6. 最初と最後の頁 164301 ~ 164301
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nima.2020.164301	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Funama Fumiaki, Hino Masahiro, Oda Tatsuro, Endo Hitoshi, Hosobata Takuya, Yamagata Yutaka, Tasaki Seiji, Kawabata Yuji	4. 巻 33
2. 論文標題 A Study of Focusing TOF-MIEZE Spectrometer with Small-angle Neutron Scattering	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 JPS Conference Proceedings	6. 最初と最後の頁 11088
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSCP.33.011088	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 H. Endo, T. Oda, M. Hino, T. Hosobata	4. 巻 564
2. 論文標題 Current status of the neutron resonance spin echo spectrometer on BL06 "VIN ROSE" at MLF, J- PARC	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physica B	6. 最初と最後の頁 91-93
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.physb.2018.11.069	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Hayashida, M. Hino, H. Endo, T. Oku, T. Okudaira, K. Sakai, T. Oda	4. 巻 1316
2. 論文標題 Experimental test of ³ He neutron-spin filter in MIEZE spectrometer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Conference Series	6. 最初と最後の頁 12013
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-6596/1316/1/012013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Funama F., Tasaki S., Hino M., Oda T., Endo H.	4. 巻 1010
2. 論文標題 Double-focusing geometry for phase correction in neutron resonance spin-echo spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment	6. 最初と最後の頁 165480 ~ 165480
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nima.2021.165480	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Oda Tatsuro, Endo Hitoshi, Ohshita Hidetoshi, Seya Tomohiro, Yasu Yoshiji, Nakajima Taro, Hino Masahiro, Kawabata Yuji	4. 巻 1012
2. 論文標題 Phase correction method in a wide detector plane for MIEZE spectroscopy with pulsed neutron beams	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment	6. 最初と最後の頁 165616 ~ 165616
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nima.2021.165616	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 小田達郎, 日野正裕, 遠藤仁, 大下英敏, 瀬谷智洋, 安芳次, 瀬戸秀紀, 川端祐司
2. 発表標題 J-PARC MLF BL06MIEZE型スピネコー分光器の現状と今後の開発
3. 学会等名 日本中性子科学会第20回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 T. Oda, M. Hino, H. Endo, F. Funama, Y. Kawabata, H. Seto
2. 発表標題 Neutron Resonance Spin-Echo Spectrometers at BL06 VIN ROSE at J-PARC MLF
3. 学会等名 European Conference on Neutron Scattering (ECNS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小田達郎, 日野正裕, 遠藤仁, 船間史晃, 川端祐司
2. 発表標題 J-PARC MLF BL06 VIN ROSE のMIEZE スピネコー分光器の現状
3. 学会等名 日本原子力学会2019年秋の大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Oda, M. Hino, H. Endo, F. Funama, H. Ohshita, T. Seya, Y. Yasu, Y. Kawabata, H. Seto
2. 発表標題 Current status and perspective of the MIEZE spin echo spectrometer of BL06 at J-PARC MLF [poster]
3. 学会等名 J-PARC Symposium 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Oda, M. Hino, H. Endo, F. Funama
2. 発表標題 Current status of the MIEZE spin echo spectrometer at BL06 at J-PARC MLF [poster]
3. 学会等名 Asia-Oceania Conference on Neutron Scattering (AOCNS2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小田達郎、日野正裕、遠藤仁、瀬戸秀紀、川端祐司
2. 発表標題 パルス時間幅の観点からみた中性子スピネコー分光法の特徴
3. 学会等名 日本原子力学会2021年春の年会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関