

高速磁場変調下における $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶  
からのX線/核共鳴散乱の動的過程

三井隆也

①

平成8年度 博士論文

高速磁場変調下における $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶  
からのX線/核共鳴散乱の動的過程

指導教官 菊田惺志 教授

東京大学大学院工学系研究科物理工学専門課程

三井隆也

## 目次

序論	0
第1章 放射光利用核共鳴散乱	
1.1 核共鳴散乱	1
1.2 メスバウアー効果	2
1.3 メスバウアー回折	4
1.4 放射光利用核共鳴散乱	5
1.5 放射光利用の利点	6
1.6 核共鳴散乱を観測するための方法	7
参考文献	10
第2章 磁場変調がある場合の核共鳴散乱	
2.1 高周波磁場による共鳴効果	12
2.2 磁気弾性波による影響	14
2.3 位相変調理論	16
2.4 時間領域のメスバウアースペクトルによる研究	19
2.5 従来の核共鳴散乱の時間発展過程の研究	20
2.6 放射光利用の利点	20
2.7 本研究の目的	22
参考文献	23
第3章 摂動がある場合の核共鳴散乱線の放射特性	
3.1 核ゼーマン分裂	25
3.2 放射光によるコヒーレントな核共鳴散乱	28
3.3 定常系における核共鳴散乱線の放射特性	28
3.4 摂動下での核共鳴散乱線の放射特性	31
参考文献	38

第4章 反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶評価実験	
4.1 $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶構造	39
4.2 $^{57}\text{FeBO}_3$ の超微細構造	40
4.3 $^{57}\text{FeBO}_3$ の純核ブラッグ反射面	42
4.4 $^{57}\text{FeBO}_3$ の磁気的特性	45
4.5 $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶評価実験	48
参考文献	55
第5章 高周波磁場発生装置の開発	
5.1 装置の回路構成	58
5.2 高周波磁場発生装置の性能評価	62
5.3 評価結果のまとめ	65
第6章 パルス磁場発生装置の開発と評価	
6.1 パルス磁場発生装置の動作原理	68
6.2 パルス磁場発生装置の性能評価	71
6.3 評価結果のまとめ	75
参考文献	75
第7章 放射光施設についての概要	
7.1 放射光(AR)について	76
7.2 真空封止型X線アンジュレータ	77
7.3 ビームライン・X線光学系	79
7.4 核共鳴散乱実験用の精密ディフラクトメータ	81
7.5 高分解能モノクロメータ	85
7.6 共鳴エネルギーへのチューニング	86
参考文献	87

第8章 高周波磁場印加による追跡

8.1 はじめに .....	88
8.2 実験、及び結果 .....	89
8.3 実験のまとめ .....	99
参考文献 .....	99

第9章 パルス磁場印加による追跡

9.1 はじめに .....	101
9.2 内部磁場回転がある場合の核共鳴前方散乱 .....	102
9.3 実験 .....	107
9.4 実験結果 .....	110
9.5 実験結果のまとめ .....	116
参考文献 .....	116

第10章 今後の展望

10.1 展望、及び応用実験 .....	117
参考文献 .....	120

研究発表等

謝辞

## 序論

起強力なX線源である放射光を核共鳴散乱実験の線源に利用すると、回折実験や、時間領域でのメスbauerスペクトルの観測を容易に行うことが可能となる。さらに、放射光X線はパルス特性を持つため、これに同期させ、高周波磁場やパルス磁場変調を反強磁性体単結晶のような物質に印加することで、結晶の磁氣的性質が、核ブラッグ散乱や核共鳴前方散乱の放射特性に与える影響を調べることができる。このような放射光を利用した摂動下での核共鳴散乱の研究は、最近、国の内外で行われ始めたばかりであり、研究の手法は、未だ確立されたとはいえない状況にある。本研究では、放射光を利用した時間領域でのメスbauer一分光法による新たな研究手法開発の一環として、磁場変調下における核共鳴散乱の時間発展過程を調べることにした。本論文は、このような実験を行うための試料の準備、高周波磁場発生装置、パルス磁場発生装置の開発といった実験準備を含めた一連の研究成果をまとめたものである。第1章では、核共鳴散乱に関する基本的事項と、放射光を線源とした核共鳴散乱実験の現状、及び発展の動向についての概説を行い、代表的な分光法となっている純核ブラッグ反射、メスbauer時間スペクトル、高分解モノクロメータを利用した核共鳴前方散乱法について説明する。第2章では、散乱体の変動磁界中にある場合のメスbauerスペクトルの研究がこれまでどのように行われ、どのような点が問題とされてきたかを概説する。そして、この種の実験に対し、放射光を利用したメスbauer時間スペクトル法の持つ利点を明示した後、本研究の研究動機と目的について示す。第3章では、磁氣的摂動がある場合の核共鳴散乱の理論的側面を考える。特に、放射光により孤立核 $^{57}\text{Fe}$ が瞬間的に励起を受けた後の時刻 $t_0$ で、内部磁場が高速回転するような非定常系を量子力学的に取り扱う。第4章では、本研究用の試料に適した高速磁化特性を持つ良質の $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶に関して、その諸特性について紹介し、平成3年度より東京大学物性研究所でフラックス法により計4回育成された $^{57}\text{FeBO}_3$ のX線二結晶法による結晶評価実験結果をまとめる。第5-6章では、磁場変調用の高周波磁場発生装置とパルス磁場発生装置の基本構成についての説明と装置の性能評価実験結果についてまとめる。第7章では、本実験で利用された放射光施設(A-R-N-E3)の実験環境についての概説を行う。第8章では、高周波磁場印加に伴い共鳴励起された磁気弾性波が、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶性、核共鳴ブラッグ散乱の回折強度に与える影響を調べた実験について詳述する。第9章では、 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶中のメスbauer核 $^{57}\text{Fe}$ を核励起した後、パルス磁場発生装置を利用して散乱体の内部磁場の向きを $180^\circ$ 、 $90^\circ$ 高速回転した後放射されるコヒーレントな核共鳴散乱特性の時間的変化を核共鳴前方散乱法を利用して調べた実験について詳述する。第10章では、以上の結果を顧み、著者の見解を示しながら放射光利用核共鳴散乱による動的過程の研究に関して、応用の拡大について展望する。

## 第1章 放射光利用核共鳴散乱

第1章では、核共鳴散乱の基本的事項について説明を行い、近年盛んに行われるようになった放射光利用核共鳴散乱実験について、その特徴と利点、及び代表的な実験方法について概説する。

### 1.1 核共鳴散乱

原子によるX線散乱現象の内、標的となる原子核の基底準位と励起準位のエネルギー差に等しいエネルギーを持った光子が外部から入射すると、X線は一度原子により共鳴吸収され、その後、崩壊に伴う $\gamma$ 線として全方位に渡り再放出される。<sup>1</sup>[図1・1参照]

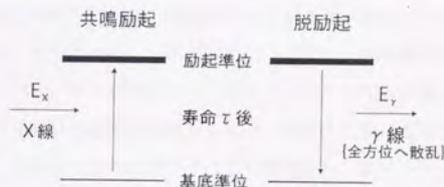


図1・1 核共鳴散乱の概念図

この現象は核共鳴散乱と呼ばれ、脱励起過程で生じる散乱線は、通常の原子中の電子によるトムソン散乱にはみられない以下のような特徴的な性質を持つ。

- ① 原子核に特徴的な崩壊時間を持つ。

例えば、鉄の同位元素 $^{57}\text{Fe}$ の第一励起準位[14.4KeV]から基底状態への崩壊時間 $\tau$ は、100ns程度となり、電子による散乱の場合<sup>2</sup>と著しく異なる。

- ② 極端に狭いエネルギー幅を持つ。

上述の鉄 $^{57}\text{Fe}$ 核の場合、第一励起準位の自然幅は、neV程度にも達する。

<sup>1</sup> 原子核による共鳴吸収現象の最初の指摘は、1929・Kuhnによりなされた。/1/

<sup>2</sup> 電子によるトムソン散乱は瞬間的に起こる。

## 1.2 メスバウアー効果

$\gamma$ 線は、エネルギーが大きいため、光やマイクロ波の場合と異なり、光子と原子核との反跳エネルギー<sup>3</sup> $\delta E$ が大きくなり、普通は共鳴吸収が起こらない。しかし、原子核が固体中であって格子点を占めている場合には、自由に動けず安定点を中心に格子振動(熱振動)を行うため状況が変わってくる。よく知られているように固体中の格子振動のエネルギーは、 $1/2 \cdot h\nu, 3/2 \cdot h\nu, 5/2 \cdot h\nu, \dots$ という具合に量子化されている。通常の結晶では、エネルギー間隔 $h\nu$ は、室温における $KT$ ( $k$ :ボルツマン定数、 $T$ :絶対温度)程度、すなわち $h\nu = 0.025\text{eV}$ であり、 $h\nu \gg \delta E$ が成り立つ。このような場合、反跳エネルギーにより、格子振動が励起される確率は非常に小さくなる。このため光子は、反跳エネルギーを原子核に与えることができなくなり、実質的に光子のエネルギー変化 $\delta E$ は零とみなされる。この様な条件下では、励起エネルギーと全く等しいエネルギーを持った光子が吸収、放出される。これが固体内における $\gamma$ 線の無反跳共鳴吸収現象と呼ばれるもので、格子振動(フォノン)によりエネルギーが変化して $\gamma$ 線の再放出が行われる非弾性散乱とは区別される。固体内における $\gamma$ 線の無反跳共鳴吸収現象は、1958年にメスバウアーにより発見され、現在メスバウアー効果としてよく知られている。<sup>2/3/</sup>この現象を利用したメスバウアー分光学では、再放射される $\gamma$ 線のエネルギー幅が極端に狭いため、極めて高い分解能が得られる。そのため、他の測定手段では得られない貴重な情報を得ることができる。特に磁性体や生体において重要な役割を演じている鉄元素<sup>57</sup>Feが容易に測定できることが幸いして、今日ではメスバウアー分光学は、物理、化学、生物だけ

<sup>3</sup> エネルギーが $E$ だけ高い励起状態から基底状態へ原子核が遷移した時放出される $\gamma$ 線のエネルギーを $E_\gamma$ とすると、原子核(質量 $M$ )は光子の運動量 $E_\gamma/c$ に相当する反跳を受けるため、 $\delta E = (2M)^{-1} \cdot (E_\gamma/c)^2$ の運動エネルギーが原子核に与えられ、 $E_\gamma$ は $E$ に比べて $\delta E$ だけ小さくなる。一方、基底状態にある原子核が光子を吸収する時も同様の反跳を受けるから、光子が吸収されるためには余分なエネルギー $\delta E$ をあらかじめ持っていないと行かない。よって $\gamma$ 線のエネルギーの広がり幅 $\Delta E$ が $2\delta E$ より大きくないと共鳴吸収は起こらない。

でなく冶金学、鉱物学、地質学、考古学など様々な分野で有効な研究手段となっている。<sup>4</sup>表1・1には、メスbauer効果の観測されている同位元素の内、代表的なものに関する諸特性を掲げておく。

核種	遷移エネルギー E (KeV)	反跳エネルギー $\delta$ E (meV)	半減期 $T_{1/2}$ (ns)	自然幅 $\Delta E$ (neV)	スピン量子数 励起状態	スピン量子数 基底状態
<sup>181</sup> Ta	6.25	0.159	6800	0.067	9/2	7/2
<sup>169</sup> Tm	8.42	0.225	3.9	120	3/2	1/2
<sup>57</sup> Fe	14.4	1.96	97.8	4.7	3/2	1/2
<sup>151</sup> Eu	21.6	1.659	9.5	51.84	7/2	5/2
<sup>149</sup> Sm	22.5	1.82	7.12	64	5/2	7/2
<sup>119</sup> Sn	23.9	2.57	17.8	24	3/2	1/2
<sup>161</sup> Dy	25.7	2.194	28.1	15.90	5/2	5/2
<sup>40</sup> K	29.4	11.60	4.26	117	3	4
<sup>125</sup> Te	35.5	5.407	1.56	308.3	3/2	1/2
<sup>121</sup> Sb	37.2	6.124	3.5	130.4	7/2	5/2
<sup>129</sup> Xe	39.6	6.521	1.01	463.2	3/2	1/2
<sup>127</sup> I	57.6	14	1.9	240	7/2	5/2
<sup>237</sup> Np	59.5	8.022	63	7.242	5/2	5/2
<sup>155</sup> Ge	60.0	12.47	0.24	1901	5/2	3/2
<sup>171</sup> Yb	66.7	13.98	0.8	912.5	3/2	1/2
<sup>73</sup> Ge	67	33.02	1.86	281.6	7/2	9/2
<sup>61</sup> Ni	67.4	40	5.06	9.0	5/2	3/2
<sup>67</sup> Zn	93.3	69.8	9150	4.8	3/2	5/2
<sup>195</sup> Pt	98.8	26.88	0.170	2851	3/2	1/2
<sup>182</sup> W	100.1	29.56	1.37	333	2	0
<sup>191</sup> Ir	129.5	47.13	0.094	4710	5/2	3/2

表1・1 代表的なメスbauer同位元素の諸特性

- <sup>4</sup> <sup>57</sup>Feの場合、励起状態(<sup>57</sup>Fe\*)から基底状態(<sup>57</sup>Fe)に原子核が遷移する時、エネルギー差 E=14.4KeVに相当する $\gamma$ 線が放出される。<sup>57</sup>Feの半減期は約100nsであるから、不確定性原理に基づくエネルギーの自然幅は $\Delta E$ =数neVとなり $E/\Delta E=3 \times 10^{12}$ と極めて大きな値になる。これは光の場合と比べても3桁以上も大きい。このため、メスbauer一分光学によって、光スペクトロスコーピーで分離できない超微細構造を解析することができ、これから原子やイオンに関する知見が得られる。また相対論から導かれる重力場の影響による赤方偏移等、極めて微小な量を検出することも可能である。

## 1.3 メスバウアー回折

メスバウアー効果の発見によって共鳴 $\gamma$ 線の固体結晶中における振る舞いが屈折、臨界反射、ブラッグ反射、ラウエ透過等の光学的概念によって記述できるようになったが、このことはごく初期から知られていた。/4/ 1960年Black、Moon達が鉄を濃縮していないモザイク結晶で $^{57}\text{Fe}$ 核によるメスバウアー共鳴散乱とレイリー散乱との干渉パターンをブラッグ角近くで観測して以来、非常に多数の研究がこの分野で行われて来た。/5/  $^{57}\text{Fe}$ や $^{119}\text{Sn}$ の濃縮単結晶を用いた回折実験も1965年以後、主に旧ソ連で行われており、結晶のモザイク構造のような不完全性や、Siのような不純物混入の効果が、それらの干渉パターンを際立たせるために積極的に利用することまで含めていろいろ調べられている。/6/7/ メスバウアー回折は、結晶構造の解析の観点からも価値があり、散乱振幅の位相の測定には特に重要である。/8/ また、理論的に見てもメスバウアー回折は、X線回折等と比較して独自性を持っている。第一に、メスバウアー散乱は、レイリー散乱のような[速い]ポテンシャル散乱と違って、[遅い]共鳴散乱であるためラム-メスバウアー因子が入射及び出射チャンネルに対して因数分解できる。/9/ そのため回折の問題が単純化されるばかりでなくラム-メスバウアー因子は、前方散乱に対しても1にはならない。これは熱的散漫散乱の異常をもたらすが、この異常は高次ブラッグ反射強度の積分強度の測定に有用である。/10/ 第二に、Afanasev-Kaganが非弾性チャンネルの抑制と名付けている効果/11/で、ブラッグ角における入射波と反射波とのDestructiveな干渉の結果、 $\gamma$ 線が基底準位にある核によって共鳴吸収されて励起準位になる振幅(非弾性チャンネル)が抑制され、X線の場合、ボルマン効果として知られている異常透過がより顕著に現れる。/12/ これは $\gamma$ 線の波動関数の節のきかたが、原子核が原子の電子雲の広がり比べて格段に小さいために、核全体に渡りより完全になるからである。第三に、メスバウアー核の近傍の結晶場との超微細相互作用、または外部磁場によるゼーマン分裂によって、共鳴線の各偏極成分を分離して取り出せるので、磁性体による磁氣的回折実験が可能で、通常の透過実験

では得られない磁氣的長距離秩序構造に関する情報を得ることができる。ブラッグ角から大きくはずれた方向でも $\gamma$ 線偏極成分による選択的な臨界反射、吸収、透過ファラデー回転等の磁気光学的効果を生じる。これらは $\gamma$ 線のポラリメトリやポーラライザーとして利用できる。

#### 1.4 放射光利用核共鳴散乱

核共鳴散乱実験の励起用線源に超強力なX線源である放射光を利用するという試みは、Rubyが1974年に初めて指摘した。<sup>/13/<sup>5</sup> 実験的には、Cohen達が1978年にSPEAR(アメリカ)の放射光で<sup>57</sup>Feの多結晶薄膜で14.4keVの核共鳴準位を励起し、寿命100nsで $\gamma$ 線と共に放出される内部転換電子を時間ゲート付きの電子検出器で初めて観測した。<sup>/14/</sup> 理論的研究に関しては、完全結晶による核共鳴ブラッグ散乱に関する研究が1965年からロシアのAfanasevとKagan達により<sup>15/16/17/</sup>、アメリカのHannonとTrammell達<sup>18/19/20/</sup>により行われている。これら研究では、初めメスバウアー $\gamma$ 線による散乱が扱われたが、その後、放射光を利用した場合の時間スペクトル等についても調べられた。放射光を利用</sup>

<sup>5</sup> 放射光の単色化には通常、分光結晶等が用いられ、そのエネルギー幅は従来のX線管の場合と大差がない[mVまでの分光が限度]。この壁を越えるものとして放射光のさらなる単色化を、核共鳴ブラッグ散乱を用いて行うという提案がなされた。普通のX線の分光あるいは単色化でよく用いられるのはバイロリティックグラファイト、LiF、水晶、シリコン等の分光結晶であり、得られるビームのバンド幅は10eV前後である。X線管との組み合わせで大きな積分強度が必要な場合には運動学的な回折効果が働くグラファイトやLiFのようなモザイク結晶が用いられ、指向性の高い放射光に対しては動力学的な回折効果が働くシリコンのような完全結晶が使用される。もっと荒い分光には多層膜が用いられる。これは原子番号が大きい物質と小さい物質を交互に積層したものである。バンド幅をさらに狭くするには完全結晶で垂直入反射に近い回折条件を利用するか、非対称反射の組み合わせを利用する。これらの特殊な回折条件によりバンド幅を極限的にはmeVぐらゐまでに単色化することができる。しかし結晶の大きさによる回折効果からくるビームの角度広がりや動力学的回折に固有の全反射幅が影響し、それがこの方法による単色化の限界となる。上述の分光法は全て電子によるトムソン散乱に基づいているが、核共鳴散乱を利用すれば単色性を桁違いに向上させることができ、共鳴順位幅に応じた $\mu$ eVからneVレベルのバンド幅を持つ超単色の散乱線を得ることができる。核モノクロメータとしては、共鳴核を含む完全結晶の他にGIAR膜や多層膜も用いられる。

した時間スペクトルの最初の観察は、Chechin達が1983年にVEEP-3(ロシア)の放射光を用いて、 $^{57}\text{Fe}$ をエンリッチしたヘマタイト結晶を用いた核共鳴ブラッグ散乱で行われている。/21/Gerdau達は、1985年HASYLAB(ドイツ)の放射光を用いて、 $^{57}\text{Fe}$ でエンリッチしたイットリウム鉄ガーネット(YIG)単結晶薄膜を2結晶平行配置にして約1 cpsの強度の核共鳴散乱線を取りだした。/22/その後、BNL、CHESS、SSRL(アメリカ)、PF、TRISTAN-AR(日本)等の放射光施設においてもこの分野の研究が進められている。

### 1.5 放射光利用の利点

核共鳴散乱実験の励起用線源に放射光を利用すると放射光の持つ多くの優れた特徴をそのまま実験に利用できるため放射性同位元素を利用する従来のメスバウアー分光法では困難であった実験が可能になる。表1・2には放射光の持つ特徴的性質とその性質を利用することで可能になる実験の幾つかを示しておく。[比較のため放射性同位元素の性質も示しておく。]

線源固有の性質	放射光	放射性同位元素	放射光利用に適する実験
エネルギー幅	本来、白色光でありフォノンスペクトル(meVオーダー)をエネルギーースキャンできる。	最初から超単色光( $\mu\text{eV}$ オーダー)でフォノンスペクトル(meVオーダー)をエネルギーースキャンできない。	核共鳴散乱の非弾性散乱成分の観測によるフォノン(格子振動)の研究。 /23/24/
指向性-単位立体角当たりの輝度-強度	高指向性を有し、単位立体角あたりの輝度は極めて高い。	全方位に放射されるため指向性は低く、単位立体角当たりの輝度は低い。	試料の微小部を利用する実験(高圧下での実験等)やX線光学実験に有利。 /25/26/
偏光特性	放射光は本来、直線偏光性を有する。また円偏光等も利用可能。	なし。	偏光解析を行う核共鳴散乱実験では非常に有利。
パルス特性	放射光X線は、入射に際して鋭いパルス特性を持つ。	放射性同位元素であるためX線の入射に規則性はない。	周期的な外部摂動下にある場合の核共鳴散乱の実験には極めて有利。

表1・2 核共鳴散乱の線源に放射光を利用した場合の特徴と可能になる実験

## 1.6 核共鳴散乱を観測するための方法

放射光を利用した核共鳴散乱実験で、入射X線は、あらかじめ分光結晶により数eV程度のカム幅に絞ってから試料に入射される。<sup>6</sup>ところが核共鳴散乱に寄与するのは、核の励起準位の $10^{-6}$ ~ $10^{-8}$ eV程度のエネルギー幅の部分だけであるため、このままでの核共鳴散乱線の計測は非常に困難となる。そこで電子の散乱の膨大なバックグラウンドを抑えるため以下のような核共鳴散乱と電子によるトムソン散乱の散乱機構の違いが利用される。

## (1) トムソン散乱に対する禁制反射の利用 [核ブラッグ散乱]

この方法では、放射光からのX線は、Si等の結晶モノクロメータであらかじめ標的となるメスバウアー核のエネルギー近傍に数eVまで分光され、電子のトムソン散乱に対し禁制で、核共鳴散乱に対しては許容な反射面[純核ブラッグ反射]を持つ核モノクロメータ<sup>7</sup>により分光される。図1・2には核ブラッグ散乱を利用した分光法の概念図を示しておく。

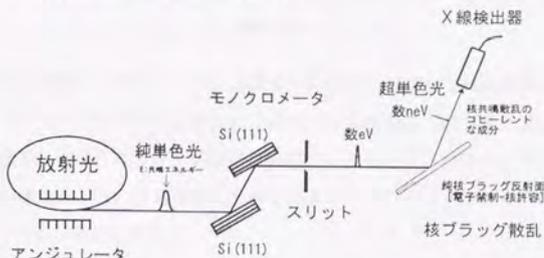


図1・2 核ブラッグ散乱を利用した分光法の概念図

<sup>6</sup> 近年、リングの直線部に置かれるウィグラーやアンジュレータのような挿入光源の利用によって放射光特性の一層の向上が計られている。これらは電子ビームを磁極列の周期的な磁場によって蛇行させる。ウィグラーは磁場を強くして放射光を短波長側へシフトさせ、蛇行のうねりの数だけ強度を増大させる。アンジュレータは蛇行する電子ビームから周期的に放射される電磁波の干渉を利用して高輝度の準単色光を得ることができる。

<sup>7</sup> 核モノクロメータとしては、反強磁性単結晶、G | A R膜、多層膜等が利用される。

## (2) 核共鳴散乱の時間遅れの利用 [メスbauer時間スペクトル法]

トムソン散乱が放射光パルスが入射後、瞬間的に起こるのに対し、核共鳴散乱は励起準位が固有の寿命を持つため散乱に時間遅れが生じる。この特性を利用して核共鳴散乱を分光する。放射光の単バンチモード運転時のパルス周期は典型的には、 $1\ \mu\text{s}$ 程度、パルス幅は $100\text{ps}$ 程度となる。これに対し、核共鳴散乱の崩壊時間は、例えば $^{57}\text{Fe}$ の場合、約 $100\text{ns}$ であるため、時間スペクトルの観測を可能にする条件 $T_{\text{SR}} \gg T_{\text{H}} \gg T_{\text{SR}}(\text{PW})$ が満たされる。[図1.3参照]



図1.3 放射光のパルス特性

観測される時間スペクトルには、X線の入射時刻に対応する時間原点で電子散乱によるプロンプトピークが現れ、その後、核共鳴散乱の時間遅れ成分が現れる。<sup>8</sup>[図1.4参照]このため検出器に時間ゲートをかけ、時間遅れ成分だけをカウントすることで、核共鳴散乱成分を電子のプロンプトノイズから分離して計測することが可能になる。

<sup>8</sup> 散乱体が超微細構造をもっている場合、崩壊に対応する減衰曲線上に超微細構造により分裂した各遷移エネルギーの差に対応する量子うなりが生じる。このうなりの周期を測定することでエネルギー領域でのメスbauer分光と同様に超微細構造を解析することが可能になる。また、時間領域でのメスbauer分光は、核共鳴散乱の時間発展過程を実時間で追跡でき、ターゲット原子核の周期的振動によるドップラー振動の影響を受けないため周期的振動下にある核共鳴散乱の時間発展過程を調べる場合は従来のメスbauer分光法に比べて非常に有利になる。[第2章参照]

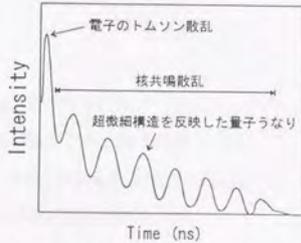


図1・4 時間スペクトルと量子うなり

(3) 高分解能モノクロメータの利用【核共鳴前方散乱】

1991年、Hastings 達により初めて実現された核共鳴前方散乱法では、結晶モノクロメータにより数eVまで分光された放射光X線をSiの高角の反射を利用し、さらに共鳴エネルギー近傍、数meVまで分光を行う。/27/これによりS/Nを十分抑えることで散乱体の前方方向でのコヒーレントな核共鳴散乱線を時間スペクトル法を併用して検出する。[図1・5参照]

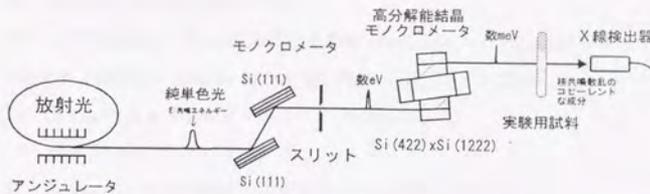


図1・5 核共鳴前方散乱の概念図

この方法は、核ブラッグ散乱を利用する場合に比べて実験に必要な光学系が容易にセットアップでき、散乱体に課せられる条件がゆるいため、広範囲の試料を実験に利用できる。この方法を利用した応用実験として、磁気光学効果や鉄多層膜の超微細構造の温度依存性、磁場変調下での核共鳴散乱の時間発展等が調べられている。/28/29/30/

## 参考文献

- /1/ W. Kuhn, *Phil. Mag.*, 8, 625 (1929)
- /2/ R. L. Mössbauer, *Z. Phys.*, 151, 124 (1958)
- /3/ R. L. Mössbauer, *Z. Naturforsch.*, 149, 211 (1959)
- /4/ A. Kastler: *Compt. Rend.* 250 (1960) p509
- /5/ G. S. Zhdanov, R. N. Kuzmin: *Acta Cryst.* B24 (1968) P10
- /6/ W. Renz: *Z. Physik.* 217 (1968) P63
- /7/ V. V. Sklyarevskii et al: *JETP. Lettrs.* 8 (1968) P181
- /8/ 細谷資明: *物理学会誌*, 25 (1970) P288
- /9/ R. L. Mössbauer, D. H. Sharp: *Rev. Mod. Phys.* 36 (1964) P410
- /10/ Yu. Kagan, A. M. Afanase'v: *JETP Letters*, 5 (1967) P40
- /11/ A. M. Afanase'v, Yu. Kagan: *JETP*, 21 (1965) P215
- /12/ V. K. Voitvetskii et al: *JETP, Letters*, 11 (1970) P91
- /13/ L. Ruby: *J. Phys.* C6, 209 (1974)
- /14/ R. L. Chohen, G. L. Miller and K. W. West: *Phys. Rev. Lett.* 41, 381 (1978)
- /15/ A. M. Afanase'v and Yu Kagan: *Sov. Phys. JETP*. 21, 215 (1965)
- /16/ Yu. Kagan A. M. Afanase'v and I. P. Perstnev  
: *Sov. Phys. JETP*. 27, 819 (1968)
- /17/ Yu Kagan A. M. Afanase'v and V. G. Kohn: *J. Phys.* C12, 615 (1979)
- /18/ J. P. Hannon and G. T. Trammell: *Phys. Rev.* 169, 315 (1968)
- /19/ J. P. Hannon and G. T. Trammell: *Phys. Rev.* 186, 306 (1969)
- /20/ J. P. Hannon, N. J. Carron and G. T. Trammell: *Phys. Rev.* B9, 2791 (1974)
- /21/ A. I. Chechin, N. V. Andronova, M. V. Zelepukhin, A. N. Artem'ev  
and E. P. Stepanov: *Sov Phys. JETP Lett.* 37. 633 (1983)
- /22/ Gerda, R. Ruffer, H. Winkler, W. Tolksdorf, C. P. Klages and  
J. P. Hannon: *Phys. Rev. Lett.* 54, 835 (1985)

- /23/ M. Seto, Y. Yoda, X. W. Zhang, M. Ando, S. Kikuta,  
Phys. Rev. Lett. 74, 19(1995)p3828
- /24/ W. Sturhahn, T. S. Toellner, E. E. Alp, X. W. Zhang, M. Seto, C. W. Kimball,  
B. Dabrowski, Phys. Rev. Lett. 74, 9(1995)p3832 /
- /25/ K. Izumi, Y. Yoda, T. Ishikawa, X. W. Zhang, M. Ando and S. Kikuta,  
Jpn. J. App. Phys, 34(1995)p4258
- /26/ K. Izumi, T. Mitsui, M. Seto, Y. Yoda, T. Ishikawa, X. W. Zhang, M. Ando and  
S. Kikuta, Jpn. J. App. Phys, 34(1995)p5862
- /27/ J. B. Hastings et. al. Phys. Lett. 66(1991)770
- /28/ S. Kikuta, Y. Yoda, Y. Hasegawa, K. Izumi, T. Ishikawa, X. W. Zhang,  
S. Kishimoto, H. Sugiyama, T. Matsushita, M. Ando, C. K. Suzuki, M. Seto,  
H. Ohno and H. Takei: Hyper-fine Interactions 71(1992)P1491
- /29/ S. Kikuta: Resonant anomalous X-ray scattering Theory and  
applications G. Materlik, C. J. Sparks, and Fischer (Eds.) 1994  
Elsevier science B. V.
- /30/ S. Kikuta, Hyperfine Interactions 90(1994)p335

## 第2章 磁場変調がある場合の核共鳴散乱

散乱体が磁場変調下にある場合のメスバウアースペクトルの研究は、観測の対象となる物理現象が外部印加磁場の周波数帯域により大きく2つに分類できる。その一つは、超微細分裂した基底、励起状態のサブレベルに対する共鳴効果を調べる実験で、強磁性体中の鉄の励起状態の場合、印加磁場周波数が2.6 MHz近傍の実験である。もう一つは、外場により磁性体に励起された磁気弾性波がスペクトルに与える影響を調べる実験で、その多くは印加磁場周波数が、数MHz程度で行われる。これらの研究は、これまで、理論的にも、実験的にも、時間領域のメスバウアースペクトル測定とは関わりを持たず、専ら、エネルギー領域でのメスバウアースペクトルについて調べられてきた。これは、従来の放射性同位元素を利用したメスバウアースペクトル測定の方法では、線源の強度や実験のための電子回路系に制約が大きくなり、この種の実験には不向きであったことが理由としてあげられる。しかし、放射光を線源に利用した核共鳴散乱実験法の発展とともに時間領域でのメスバウアースペクトルが容易に観測できるようになると、磁気変調下での核共鳴散乱の時間発展過程を実時間で追跡、研究することに興味を持たれるようになってきた。本章では、まず従来から行われてきた磁気変調下でのメスバウアースペクトルの実験について概説するとともに、この種の実験に対し、放射光を利用したメスバウアースペクトル法が、従来の放射性同位元素を利用するメスバウアースペクトル法に対し、持つ有利な点について明らかにする。そして最後に、本研究で行う実験について説明する。

### 2.1 高周波磁場による共鳴効果

高周波磁場印加により、基底・励起準位のサブレベル間に共鳴を起こさせる実験は、メスバウアースペクトルの発見の初期から議論されていた。高周波磁場印加が、メスバウアースペクトルに与える影響を調べた最初の実験は、1961年、HackとHamermeshによりなされた。彼らは、数百ガウス程度の定常磁場を $^{57}\text{Fe}$  フォイルに印加し、それに垂直な方向に鉄の第一励起準位の分裂幅に対応する周波数26MHzを持った振幅数ガウス程度の高周波磁場を印加させ、 $^{57}\text{Co}$ からの $\gamma$ 線の透過率の測定を行った。結果として、高周波磁場を印加した時の透過率が

顕著に増加することが観測された。<sup>1/</sup> また、Hack達は、実験を行うと共に励起準位のサブレベルに対する高周波磁場による共鳴効果(特に、Two-quantum transitions と呼ばれる。)がメスbauer共鳴吸収スペクトルに与える影響についての理論的考察<sup>1/2/</sup>もおこなっており、透過率増加の原因が、励起準位のサブレベル間の共鳴によるエネルギー準位の変化にあると結論した。ところで、このような共鳴効果を純粋にメスbauerスペクトルで観測することは、次項で説明する磁気弾性波励起のため非常に困難なものとなっている。Hack、Hamermeshの実験においても、印加磁場の周波数が共鳴周波数から、かなり離れている場合にも、透過率は少なからず変化することが観測されていた。(当時、この点についての適当な説明は与えられなかった。)磁気弾性波励起の影響を避け、共鳴効果を観測する方法としては、1968年、Matthiasにより提案されたメスbauer-NMR法がある。<sup>3/</sup> メスbauer-NMR法では、磁性体の磁化の向きを揃えるために、外部から定常磁場を印加し、この定常磁場に対し相対強度の小さな高周波磁場を試料に印加することで、磁化状態(特に向き)に変化を起こさせないようにして磁歪の影響(ドップラーブロードニング)を抑えるように工夫されている。[図2・1参照]

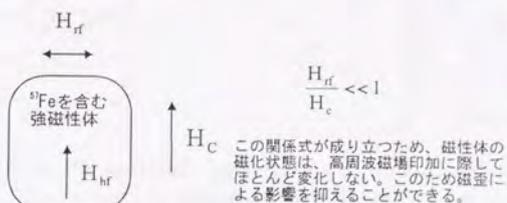


図2・1 メスbauer-NMR実験での高周波磁場の印加法

<sup>1</sup> 通常<sup>57</sup>Fe核を含む強磁性体に対するメスbauerスペクトルは、 $|\Delta m|=0, 1$ の遷移のみが許容となるが、励起、または基底状態のサブレベルに高周波磁場による共鳴が起きると $|\Delta m|=n$  [ $n$ は2以上の自然数]の遷移も許容な遷移となり、メスbauerスペクトルにはこれら遷移を反映したサテライトピークが現れることになる。

この手法は、現在、Two-quantum transitionsの実験で標準的に利用される方法<sup>2</sup>となっており、この方法を前提とした高周波磁場による共鳴効果の理論的研究も提出されている。/4/

## 2.2 磁気弾性波による影響

1968年、Perlowは、放射性同位元素<sup>57</sup>Coを拡散させた合金ディスクに振幅数ガウス、周波数4.2MHz程度の高周波回転磁場を印加し、吸収体にNaFe(CN)<sub>6</sub>を用いてメスバウアースペクトルの観測を行った。この時の実験配置図と得られたスペクトルを図2・2に示す。/5/

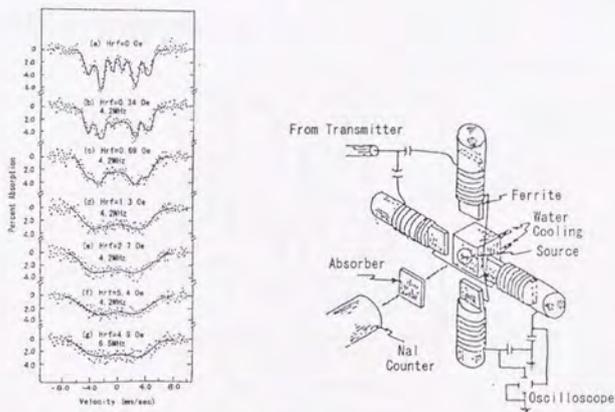


図2・2 [Perlowの実験] 実験配置図とメスバウアースペクトル

印加された回転磁場強度の増加につれスペクトルが  
ブロードなものへと変化していることがわかる。

スペクトルからは、高周波磁場の印加にともなうスペクトルの広がりが観測さ

<sup>2</sup> メスバウアー-NMR法においても、利用できる試料が限られ、磁性体の磁化の回転角が大きい場合の共鳴効果、ステップ状の高速の磁化回転がある場合のエネルギー準位のサブレベル間で起きる量子力学的振動効果等は観測することができない。

れ、この広がりが、印加磁場の周波数よりも、むしろ強度に依存して顕著に現れることが示された。Perlowは、このスペクトルの広がりの原因を磁壁の移動によるものだと考えた。この考えでは、試料に高周波磁場が印加されると核の位置で数多くの磁壁が激しく移動し、内部磁場の向きが崩壊時間に比べて十分短い時間でランダムに変化するため、結果的に核の受ける時間平均された磁場が零となり超微細分裂が消滅してスペクトルが広がると理解される。

一方、1968年、Heiman 達は、周波数13MHzの高周波磁場を印加した $^{57}\text{Co}$ 線源からのスペクトルとして、印加磁場の周波数に依存した複数のサイドバンドピークを持ったスペクトルを観測した。/6/ 図2・3には、この時得られたメスバウアースペクトルを示しておく。

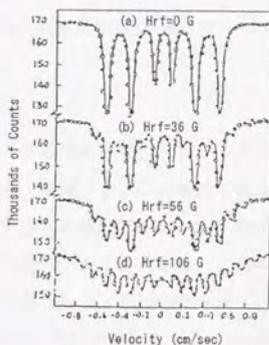


図2・3 Heiman 達の実験結果

線源に13MHzの周波数を持った高周波磁場を印加し、 $^{57}\text{Fe}$ フォイルを吸収体として観測されたメスバウアースペクトル。Solid-lineは、位相変調理論により計算された理論曲線で、モジュレーション指数は上から $X_m=0, 0.75, 1.13, 1.4$ となっている。

得られたスペクトルには、磁場の強度を増加させていくにつれてサイドバンドピークの数が増加し、徐々にブロードなスペクトルに近づいていくようすが示

されている。彼らは、この原因を磁歪振動による磁気弾性波の励起<sup>3</sup>にあると考え、ラジオ波域で駆動する水晶振動子上にマウントされた線源からの放射 $\gamma$ 線のメスバウアー吸収スペクトルを調べたRudyとBolefの実験<sup>7</sup>の説明で利用された位相変調理論<sup>4</sup>を用い、モジュレーションインデックス $X_m$ を適当にとることでスペクトル解析を行い十分満足のいくフィッティング結果を得ることができた。

さらに、1969年、Asti達は、鉄フォイルでメスバウアースペクトルの周波数変調を詳しく調べHeiman達同様、位相変調理論による解析を行い、サイドバンドピークの相対的強度がシングルモジュレーションインデックスでは説明できないこと等を示した。<sup>8</sup> Heiman、Astiの実験は、高周波磁場を磁性体に印加した場合のメスバウアースペクトルがブロードものになる原因が、Perlowの主張する磁壁の移動ではなく磁歪振動(磁気弾性波)によるドブプレー効果にあることを示している。

### 2.3 位相変調理論

位相変調理論とは、水晶振動子等にマウントされたメスバウアー線源からの放射 $\gamma$ 線の低エネルギー音響フォノンの実験で得られるメスバウアースペクトルを数学的に記述するための理論である。この理論では、核を角周波数 $\omega_0$ で有限時間振動する減衰振動子であるとみなし、この時、原子が基準位置から正弦波的に振動する場合に得られるメスバウアースペクトルについての考察がなされる。<sup>9/10</sup> この場合、核から放射される $\gamma$ 線の電場成分は、次式(2-1)のように表現される。

$$E(t) = E_0 \cdot \exp(i\omega_0 t) \cdot \exp(-\gamma t) \quad (2-1)$$

ここで、 $\gamma$ は、ダンピング係数で励起状態の崩壊時間や遷移の割合に関係した定数である。放射の強度分布は、(2-1)式のフーリエ変換で与えられ次式(2-2)

<sup>3</sup> 等方性をもつ磁性体では、印加した高周波磁場の二倍の周波数で原子が平均位置に対して振動を起こす。

<sup>4</sup> 次節で説明する。

で与えられる。

$$I(\omega) = \frac{|E_0|^2}{2\pi} \cdot \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} = I_0 \cdot \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} \quad (2-2)$$

この式は、原子が静止している場合のメスバウアースペクトルに相当し、 $\omega_0$ を中心とした半値幅 $\gamma$ のローレンツ曲線になっている。次に原子が連続的に速度変化を起こす場合について考察する。簡単のため電場ベクトルは一次元的変化のみを考えることにする。この場合、時刻 $t$ のある瞬間における放射電場はドップラーシフトによる相対論的エネルギーの変化を考慮すると次式(2-3)で与えられる。

$$E(t) = E_0 \cdot \exp(-\gamma t) \cdot \exp(i\omega_0 t) \cdot \exp\left(\frac{2\pi i x_t}{\lambda}\right) \quad (2-3)$$

ここで $\lambda$ 、 $X_t$ はそれぞれ放射電場の波長、時刻 $t$ での振動子の移動量を表している。今、原子の移動量が式(2-4)のように正弦波的なものであるとすると、得られる放射電場は、式(2-5)のように表すことができる。

$$x_t = x_0 \cdot \sin(\Omega t) \quad (2-4)$$

$$E(t) = E_0 \cdot \exp(-\gamma t) \cdot \exp(i\omega_0 t) \cdot \exp\left(\frac{2\pi i x_0 \cdot \sin(\Omega t)}{\lambda}\right) \quad (2-5)$$

関係式(2-6)を利用すると式(2-5)は式(2-7)に書き直すことができる。

$$\exp\left(\frac{2\pi i x_0 \sin(\Omega t)}{\lambda}\right) = \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} J_n\left(\frac{2\pi x_0}{\lambda}\right) \cdot \exp(in\Omega t) \quad (2-6)$$

$$E(t) = \sum_{n=-\infty}^{n=\infty} E_0 \cdot \exp(-\gamma t) \cdot [\exp i(\omega_0 \pm n\Omega)t] \cdot J_n\left(\frac{2\pi x_0}{\lambda}\right) \quad (2-7)$$

ここで、 $J_n\left(\frac{2\pi x_0}{\lambda}\right)$ は $n$ 次のベッセル関数である。

式(2-7)に従うと放射電場強度は、次式(2-8)で与えられることがわかる。

$$I(\omega) = \frac{|E_0|^2}{2\pi} \cdot \left[ \left\{ J_0 \left( \frac{2\pi x_0}{\lambda} \right) \right\}^2 \cdot \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2} + \dots \right. \\ \left. \dots \dots + \left\{ J_n \left( \frac{2\pi x_0}{\lambda} \right) \right\}^2 \cdot \frac{\gamma^2}{(\omega - \omega_0 \pm n\Omega)^2 + \gamma^2} \right] \quad (2-8)$$

この式は、核が正弦波的に振動する場合、その放射スペクトルが、 $\omega_0$ と $(\omega_0 \pm n\Omega)$ に中心をもつサイドバンドピークを持つことを意味している。ここで、 $\omega_0$ の最大ピークと1次のサイドバンドピークとの強度比は、次式(2-9)で与えられる。

$$f_0 = \left[ J_0 \left( \frac{2\pi x_0}{\lambda} \right) \right]^2 \\ \log f_0 = 2 \log J_0 \left( \frac{2\pi x_0}{\lambda} \right) = 2 \log \left( 1 - \frac{\pi^2 x_0^2}{\lambda^2} \right) \quad (2-9)$$

平均2乗移動量としてモジュレーションインデックス  $X_m$ を導入すると式(2-9)は式(2-10)で与えられる。

$$f_0 = \exp \left( -\frac{4\pi^2 \langle x_m^2 \rangle}{\lambda^2} \right) \quad (2-10)$$

位相変調理論の正しさは、1960年Rudy と Bolef達の実験で証明された。/7/ 彼らは、スピーカによる駆動が可能な線源( $^{57}\text{Co}$ を拡散した鉄ファイル)を水晶振動子にマウントし、ラジオ周波数帯で駆動させた。これにより、線源は、 $v_s = v_m \cdot \cos(qt)$ でファイルの質量中心に対して移動することが可能になる。吸収板にステンレスファイルを用い、測定された吸収スペクトルから位相変調理論が確かめられた。図2・4には、彼らの観測したメスバウアースペクトルを示しておく。スペクトルの解析は、メインピークと一次のサイドバンドピークとの比からパラメータ $X_m$ を求め、フッティングがなされた。その結果、理論曲線と実験結果は見事に一致を示し、位相変調理論の正しさが証明された。

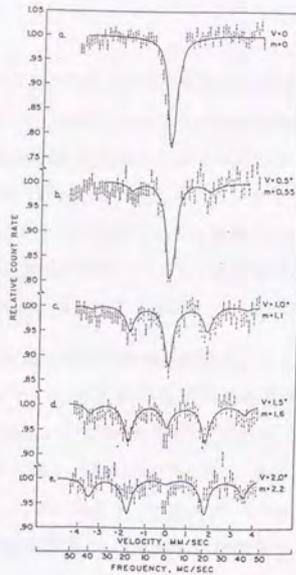


図2.4 Rudy 達の実験で得られたメスbauerスペクトル

## 2.4 時間領域のメスbauerスペクトルによる研究

これまでの経緯からわかるように、エネルギー領域でのメスbauerスペクトルの方法で散乱体(主に磁性体)に磁場変調がある場合の超微細構造の変化等を観察しようとする、磁歪により、磁気弾性振動が励起され、多くの場合、ドップラーシフトにより、スペクトルはブロードなものになってしまう。<sup>5</sup>このため、磁場変調に伴う摂動効果等が超微細構造に与える影響が完全にぼかされてしまい観測が困難となる。これに対し、時間領域でのメスbauer分光法では磁気弾性波の影響を避けることができる。これは、原子振動がある場合、エネルギースペクトルでは式(2-8)を観測するのにに対し、時間スペクトルでは式

<sup>5</sup> 散乱体に励起された磁歪振動が場所的な不均一性を持つとサイドバンドピークは現れず、ブロードなスペクトルとなり、もはや超微細構造をスペクトルから解析することができなくなる。

(2-3)の2乗を観測することになり、原子振動による位相項の変化に影響されないことによっている。ところで、このような有利な特徴があるにも関わらず、放射性同位元素を線源に利用した時間スペクトル法による磁場変調下でのメスバウアー実験は、これまでほとんど行われることがなかった。そこで、2.5節では、この実験を困難にしている理由について簡単な説明を行い、2.6節では放射光を線源に利用した場合の時間スペクトルの観測が磁場変調下の核共鳴散乱の研究にどのような利点を提供するかを明示することにする。

### 2.5 従来の核共鳴散乱の時間発展過程の研究

$^{57}\text{Fe}$ のメスバウアー $\gamma$ 線放射の時間発展過程を調べる研究は、Lynch、Holland、Hamermesh達により行われた最初の実験/11/以来、今日に至るまで継続して行われつづけている。/12/13/14/15/16/ これら実験では、放射性同位元素( $^{57}\text{Co}$ )からの122-14.4KeV間の $\gamma$ - $\gamma$ カスケードに放射される $\gamma$ 線に対し、Delaied Coincidenceを検出法として利用し、時間スペクトルの計測が行われる。しかしながら、この方法では、線源の(強さ)アクティビティーに関して重大な制限が生じる。つまり誤ったコインシデンスを取ってしまうという可能性を排除するため、線源には、 $10^6\text{Bq}$ 以下のものを使用しなくてはならない。このような理由のため、Delaied Coincidence 法は、入射ビームをコリメートして利用する $\gamma$ 線回折実験や、試料の微小領域を利用しなくてはならない実験には向かないものとなってしまう。さらに、磁場変調下でのメスバウアー実験を行う場合には、時間スペクトルの時間原点(放射性同位元素の不規則な $\gamma$ 線放射)と外場との間にタイミングが取られなくてはならないが、これを満足いく形で実現することは、電気回路的にかなり困難である。これまで、この種の実験の時間スペクトル法による研究があまり行われなかった理由は、主に線源強度、回路に対する制限にあったと考えてよい。

### 2.6 放射光利用の利点

放射光を核共鳴散乱実験用の線源として利用すると、放射光の指向性をそのまま利用できるため、前節での問題点の一つは克服される。また、放射光の

パルス特性を利用すると、簡単な測定回路を組むことでメスbauer時間スペクトル観測することができる。この新しい分光法は、ビームが指向性を持つこと以外にも以下に記す幾つかの優れた利点を提供する。このためメスbauer効果で長年興味のもたれていた摂動条件下での核共鳴散乱の時間に依存した超微細構造の変化の様子を磁気弾性波の影響を受けることなく実時間領域で追跡することが可能になる。/17/

#### 放射光利用メスbauer時間スペクトルの利点

- ① 異なる遷移間の干渉を時間スペクトルで強いコントラスト(量子うなり)として観測可能であり、エネルギースペクトルと同じ超微細構造の情報を得ることが可能である。
- ② 放射光は本来パルス特性を持つためこれと同期の取れた周期的摂動を核の励起に対してタイミングをとりながらステップ的に変化する磁場<sup>6</sup>を印加できる。
- ③ 指向性、偏光特性があるため回折の実験や偏光解析を行う実験が簡単にできる。
- ④ メスbauer時間スペクトルは、磁気弾性波等による原子振動に対して敏感ではない。/18/

これら、諸特性の内、①②③は、放射光の白色性、パルス特性、指向性、偏光性によるものであり、放射性同位元素を利用した従来の時間スペクトルの方法にはない有利な特徴となっている。

#### <sup>6</sup> パルス磁場による摂動効果

核共鳴吸収が起きた後、<sup>57</sup>Feを含む磁性体の内部磁場の向きが崩壊時間に比べて極めて高速にステップ的に変化する場合、第3章で詳述される量子力学的摂動効果が起き、核共鳴散乱のコヒーレントな電場成分の強度、周波数、偏光に変化が生じると予想される。このような内部磁場の向き的高速変化は、適当な磁性体試料(例えば、<sup>57</sup>FeB<sub>2</sub>O<sub>7</sub>)の磁化の向きを外部からパルス磁場を印加制御することで実現される。摂動効果の観測に対して、従来のメスbauerエネルギースペクトルは崩壊の実時間での変化が観測ができず、指向性、偏光性を持たない等の欠点がある。また、既に述べたように磁化状態の変化は磁気弾性波によるドップラーブロードニングを生じるため、観測が困難でありパルス磁場による摂動効果の観測は事実上不可能といえる。

## 2.7 本研究の目的

本研究では、放射光のパルス特性を利用し、磁場変動下での核共鳴散乱の時間発展過程に ①:高周波磁場印加による共鳴的な磁気弾性波励起、または、②:パルス磁場印加による量子力学的摂動の影響がどのように現れるかを調べることを目的としている。研究の具体的内容は、以下の通りである

### 実験内容

#### ① 高周波磁場印加による変化の追跡

高い完全性を有する $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶は、外部から0.5-10MHzの周波数を持った振幅数0e程度の高周波磁場を(111)面に印加する事で磁気弾性波が共鳴的に励起されることが知られている。[第4章参照]  $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶に磁気弾性波が共鳴的に励起された場合、結晶の完全性にどのような変化が生じるか、また、核共鳴ブラッグ回折強度にどのような影響が生じるかを調べることは、非常に興味深い問題である。本実験では、外部より印加された高周波磁場により磁気弾性波が共鳴励起された $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶表面の完全性を放射光のパルス特性を利用したX線ストロボトポグラフィの方法をブラッグ配置で用い、時分割像の記録を行う。一方、磁気弾性波励起による結晶変形が、核共鳴ブラッグ散乱の回折強度に与える影響を調べるため、磁気弾性波の励起時と非励起時における純核ブラッグ反射面 $^{57}\text{FeBO}_3$ (333)からの回折強度曲線の測定を行い、それらの比較から変化を調べる。[第8章参照]

#### ② パルス磁場印加による変化の追跡

放射光を利用した核共鳴散乱の時間スペクトル法ではステップ的に変化する外部摂動がある場合の核共鳴散乱の実験に適している。また、回折、偏光解析を行う実験に非常に有効である。本実験では、パルス磁場発生装置を用いて $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶の磁化状態を高速変化させた場合の核共鳴散乱特性の時間的発展過程を以下の

二つのケースについて調べることにした。

- 1 : 核の集団励起後、内部磁場の向きが高速で $180^\circ$ 回転した場合の核共鳴散乱線の位相の変化を実時間で追跡する。[第9章参照]
- 2 : 核の集団励起後、内部磁場の向きが高速で $90^\circ$ 回転した場合の核共鳴散乱線の偏光の変化を実時間で追跡する。[第9章参照]

③ 各種実験準備

これら実験を行うために必要な磁場発生装置、結晶の準備を合わせて行う。[第4、5、6章参照]

参考文献

- /1/ M. N. Hack, and M. Hamermesh, 1961 Nuvo Cemento, 10, 546
- /2/ M. N. Hack and M. Hamermesh, Nouvo Cimento 19, 546 (1961)
- /3/ E. Matthias, in Hyper Fine Structure and Nuclear Radiations edited by E. Matthias and D. A. Shirley (North-Holland Publishing Co. Amsteldam (1968) p. 815
- /4/ H. Gabriel Phys. Rev 184, 2 (1969) p. 359
- /5/ G. J. Perlow, 1968, Phys. Rev, 172, 319
- /6/ N. D. Heiman, L. Pfeiffer, and J. C. Walker, 1968, Phys. Rev. Lett., 21, 93.
- /7/ S. L. Ruby, and D. I. Bolef, 1960, Phys. Rev. Lett., 5, 5
- /8/ Asti, G., Albanase, C. and Bucci, C., 1969, Phys. Rev., 184, 260
- /9/ F. L. Shapiro, 1960 Uspekhi Fiz. Nauk, 72, 673
- /10/ J. V. Kranendonk 1961 in G. M. Graham and A. C. Hollis-Hallett (eds.) Proceedings of the VIIth International Conference on Low Temperature Physics, (University of Toronto Press, Toront pp9-20
- /11/ F. J. Lynch, R. E. Holland, and M. Hamermesh, Phys. Rev. 120, 513 (1960)
- /12/ C. S. Wu, Y. K. Lee, N. Benczer-Koller, and P. Smis, Phys. Rev. Lett. 5, 432 (1960)

- /13/ W. Neuwirth, Z. Phys 197, 473 (1966)
- /14/ P. Thieberger, J. A. Moragues, and A. W. Sunyar, Phys. Rev. 171, 425 (1968)
- /15/ H. Drost, H. V. v. Lojewski, D. Palow, R. Wallenstein, and G. Weyer,  
Proceedings of the 5th Int. Conf on Mössbauer  
Spectr., (1975), p713.
- /16/ R. Koch and E. Realo,  
Izv. Akad. Nauk Est. SSR, seriya fiz-mat., 30, 171 (1981)/
- /17/ J. K. Srivastava, in "Advanced in Mössbauer Spectroscopy", edited by  
B. V. Thosar, P. K. Iyengar, J. K. Srivastava and S. C. Bhargava  
(Elsevier, Amsterdam, 1983), p. 761
- /18/ Yu. V. Shvyd'ko, T. Hertrich, V. E. Sedov, G. V. Smirnov, U. van Burck,  
R. L. Mossbauer and A. I. Chumakov; Europhys. Lett, 19 (8), (1992) p723

## 第3章 摂動がある場合の核共鳴散乱線の放射特性

第2章でも述べたように、本研究では超微細場を持つ磁性体結晶中のメスバウアー核 $^{57}\text{Fe}$ が放射光により集団的な励起を受けた後、外場により超微細場の向きが高速回転する場合のコヒーレントな核共鳴散乱線の時間的发展を調べることを目的としている。[第9章参照]本章では、この実験で観測対象とすべき物理現象がどこにあるのかを判断する指針を得ることを目的に、磁場変動のない定常的な系と内部磁場が高速回転するような非定常的な系にあるメスバウアー核 $^{57}\text{Fe}$ からの核共鳴散乱線について量子力学的な考察を行い、摂動による励起準位のサブレベル間の粒子占有率の変化がコヒーレントな核共鳴散乱線の放射特性に与える影響を明らかにする。計算の簡単化のため、以下の議論は超微細場を持った磁性体結晶中にある孤立したメスバウアー核 $^{57}\text{Fe}$ に対して考えることにした。<sup>1</sup>

### 3.1 核ゼーマン分裂

メスバウアー核 $^{57}\text{Fe}$ は基底状態[核スピン $J_g=1/2$ ]と励起状態[核スピン $J_e=3/2$ ]で核スピンの値に応じた磁気モーメント $\mu_g$ 、磁気モーメント $\mu_e$ を持つため、核外電子により $^{57}\text{Fe}$ 核の位置に生成された内部磁場 $H_{hf}$ と相互作用を起こし核ゼーマン分裂が生じる。この状態は量子力学的には以下のように説明される。数学的取り扱いを簡単にするために結晶の単位胞中の $n$ 番目のサイトにある核の位置での内部磁場を $H_{hf}(n)$ とし、個々の核の局所座標の $y$ 、 $z$ 軸を入射 $X$ 線の進行波ベクトル $k_0$ と内部磁場 $H_{hf}(n)$ にそれぞれ平行になるように導入する。[図3.1]

<sup>1</sup> 実際の結晶は、多くのメスバウアー核を含んだものであり、核同士の相互作用を考慮する必要があり、単結晶の場合は動力学的回折理論を含めた議論がなされなくてはならず計算は複雑なものとなる。/1/ しかしながら、摂動が核共鳴散乱の放射特性に与える影響の本質的な部分については結晶の単位胞中の数個の核についてのみを考慮することで導くことが可能である。

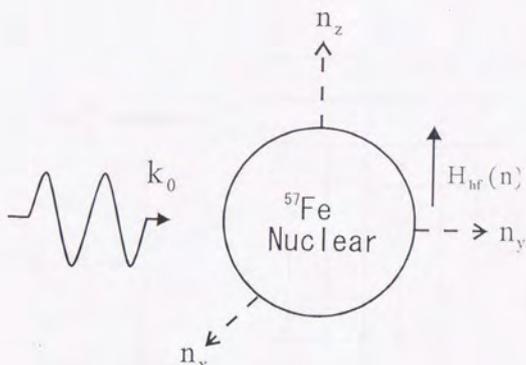


図3・1 座標軸の選定

この時、超微細磁場  $H(n)$  と、核の磁気双極子モーメント  $\mu_\lambda$  との相互作用の部分を含む全ハミルトニアンは次式の様に書き表すことができる。

$$H_n = H_0 - \mu_\lambda \cdot H(n) = H_0 - \varepsilon_\lambda \cdot J_{nz} \quad (3-1)$$

ここで、 $H_0, J_{nz}, \varepsilon_\lambda = \mu_\lambda \cdot H(n)/J_\lambda$  は、それぞれ内部磁場が無い場合の核のハミルトニアン、核のスピンの演算子の  $n_z$  軸に平行な成分、及び  $J_{nz}$  に対応する超微細磁気相互作用エネルギーを表している。

今、内部磁場  $H(n)$  の大きさと向きが、時間に依存して変化しない場合、(3-1) 式の第2項目を摂動項として取り扱うことができる。主量子数を  $n$ 、磁気量子数を  $m_\lambda$  とすれば、非摂動項  $H_0$  に対して得られた固有状態  $|n, m_\lambda\rangle$  は、同時に  $J_{nz}$  の固有状態にもなっており、簡単な計算から、全体の系の固有エネルギーは、 $E_{m_\lambda} = E_\lambda - \varepsilon_\lambda(n) \cdot m_\lambda$  と与えられ磁気量子数に従ってエネルギー準位が等間隔  $\varepsilon_\lambda(n)$  に核ゼーマン分裂することがわかる。 $^{57}\text{Fe}$  の場合には、M1タイプの遷移であるから条件  $\Delta m = m_e - m_g = 0, \pm 1$  を満たす6本の遷移のみが許容となる。[図3・2参照]

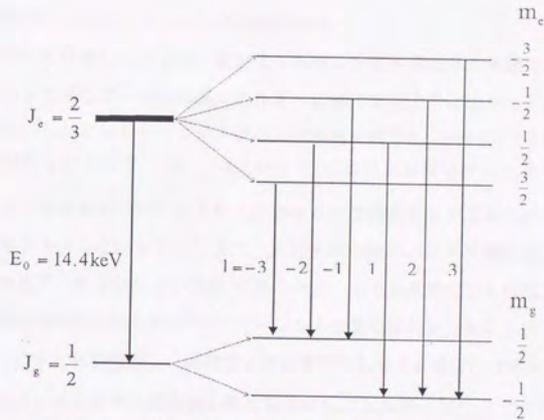


図3・2  $^{57}\text{Fe}$ の核ゼーマン分裂と許容な遷移  
 $l$ は各許容遷移を表す指数

この時、基底単位、励起単位の各状態に対応する、時間に依存する核の波動関数は次式(3-2)で与えられる。

$$\begin{aligned}
 |\Psi_{m_\lambda}(t, n)\rangle &= |n, m_\lambda\rangle \cdot \exp\left(-\frac{i}{\hbar} E_{m_\lambda}(n) \cdot t\right) \\
 &\times \begin{cases} \exp\left[-\frac{\Gamma_0}{2\hbar} \cdot t\right] & \text{for excited state} \\ 1 & \text{for ground state} \end{cases} \quad (3-2)
 \end{aligned}$$

図3・2で、許容な遷移の指数  $l$  は後の計算に利用できるように、 $l = -3m_g - m_e$  と定義し、各許容遷移に対応する遷移エネルギー  $\hbar\omega_{m_g m_e}$  を摂動項のない場合の共鳴エネルギー  $E_0 = \hbar\omega_0$  からのエネルギーのずれ  $\hbar\Omega_{m_g m_e}$  を用いて次式のように表現しておくことにする。

$$\begin{aligned}
 \hbar\omega_{m_g m_e}(n) &= \hbar\omega_0 + \hbar\Omega_{m_g m_e}(n) \\
 \hbar\Omega_{m_g m_e}(n) &= \varepsilon_g(n)m_g - \varepsilon_e(n)m_e \quad (3-3)
 \end{aligned}$$

## 3.2 放射光によるコヒーレントな核共鳴散乱

第1章でも説明したように、放射光を利用した核共鳴散乱の実験でX線は、あらかじめメスバウアー核の共鳴エネルギー近傍にまで十分にエネルギーが絞りこまれる。しかしながら、このX線のエネルギー幅 $\hbar\omega_{SR}$  [meV以上]は超微細分裂に特徴的なエネルギー $\hbar\Omega_{m,m_e}$  [ $\mu$ eV以下]に比べればはるかに大きな値となっているため放射光パルスの入射で許容な6本の遷移全てが同時に共鳴励起される確率をもつことになる。<sup>2</sup> また、放射光の一回のパルスX線には、せいぜい一つの光子しか含まれない状況<sup>3</sup>にあるため、ある基底準位から励起された状態は複数の励起準位の各状態<sup>4</sup>のコヒーレントな重ね合わせで表現されることになる。このため崩壊に際し、始状態と終状態が同じである成分には干渉が起こり再放出される電磁場に超微細分裂に特徴的なエネルギー $\hbar\Omega_{m,m_e}$ に依存した干渉効果<sup>5</sup>が生じる。これがメスバウアー時間スペクトルで量子うなりが観測できる理由である。今後の議論は、この放射光によるコヒーレントな核共鳴散乱線に絞って話しを進めることにする。

## 3.3 定常系における核共鳴散乱線の放射特性

実際の実験では超微細場を持つ磁性体結晶中にあるメスバウアー核 $^{57}\text{Fe}$ からの散乱線が観測される。このことを踏まえて、系が定常的な場合に、直線偏光( $e^s$ )した放射光により時刻  $t=0$  で集団的に励起された結晶の単位胞中の  $n$  個のメスバウアー核 $^{57}\text{Fe}$ により、 $k_y$ 方向へ再放出されるコヒーレントな核共鳴散乱線の放射特性について考察する。[図3・3参照]

この場合、時刻  $t$  における  $k_y$  方向へのコヒーレントな核共鳴散乱線の電場成分の数学的表現は、次式(3-4)で与えられる。

2 核のコヒーレントな励起。

3 1光子状態。

4 数学的には、式(3-2)で与えられる。

5 量子ビート。

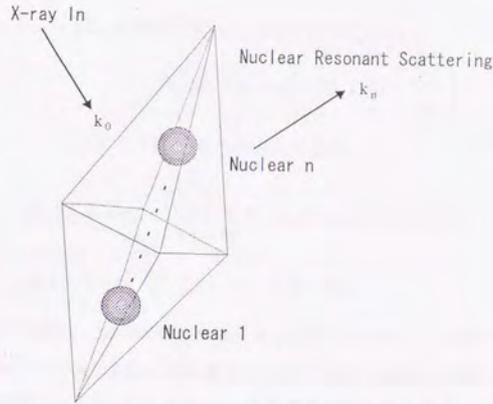


図3・3 n個のメスバウアー核 $^{57}\text{Fe}$ を含む結晶の単位胞からの核共鳴散乱

$$E_{\nu}(t) \propto \sum_{n, m_s, m_e} e^{iK_{\nu} \cdot \rho(n)} \cdot \langle \Psi_{m_s}(t, n) | j(\mathbf{k}_{\nu}) | \Psi_{m_e}(t, n) \rangle \langle \Psi_{m_s}(0, n) | j^{*}(\mathbf{k}_0) | \Psi_{m_e}(0, n) \rangle$$

$$j^{*}(\mathbf{k}_0) = \mathbf{j}^{*}(\mathbf{k}_0) \cdot \mathbf{e}^s \quad (3-4)$$

$\rho(n)$  ... 単位格子中のnサイト核の相対位置

$K_{\nu}$  ... 回折ベクトルで $\mathbf{k}_0, \mathbf{k}_{\nu}$ との間に $\mathbf{k}_{\nu} = \mathbf{k}_0 + \mathbf{K}_{\nu}$ が成り立つ。

式(3-4)の第一項目は単位胞中のn個の原子核の相対的な位置で決まる幾何学的位相因子で、第二、第三項目はそれぞれ励起後の許容な遷移に対応した核電流密度と時刻 $t=0$ で偏光した放射光により選択的に励起された遷移に対応する核電流密度の初期値を表現している。この第三項目の値が $t=0$ で瞬間的に決定されることが放射光利用核共鳴散乱の大きな特徴となっている。式(3-4)中の核電流密度演算子は次式(3-5)で与えられるので、式(3-5)を式(3-4)に代入することで、放射光により集団的に励起された単位胞中のn個の核からのコヒーレントな核共鳴散乱線の電場成分として、式(3-6)を得ることができる。

$$\begin{aligned}
 j_1(\mathbf{k}_\nu, t, n) &= \langle \Psi_{m_g}(t, n) | j(\mathbf{k}_\nu) | \Psi_{m_e}(t, n) \rangle \\
 &= j_1(\mathbf{k}_\nu, n) \cdot \exp\left(-i\Omega_1(n)t - \frac{\Gamma_0}{2\hbar}t\right) \quad (3-5)
 \end{aligned}$$

式(3-4)へ代入して整理

$$E_\nu(t) \propto \exp\left[-\frac{\Gamma_0}{2\hbar}t\right] \cdot \sum_{n,l} \mathbf{B}_\nu(n, l) \cdot \exp[-i\Omega_1(n)t] \quad (3-6)$$

$$\mathbf{B}_\nu(n, l) = e^{i\mathbf{K}_\nu \cdot \mathbf{r}(n)} \cdot j_1(\mathbf{k}_\nu, n) \cdot j_1^*(\mathbf{k}_0, n)$$

式(3-6)の第一項目は、通常の核の前壊を表している。また、 $\Sigma$ 以降に現れる項は、コヒーレントな核共鳴散乱線の電場成分が、可能な遷移 $l$ に固有な時間的变化を示す位相項 $\exp[-i\Omega_1(n)t]$ を持った電場の重ね合わせになることを意味している。 $\Sigma$ 内の第一項目のベクトル $\mathbf{B}_\nu(n, l)$ は、 $\mathbf{k}_\nu$ 方向へ放出される遷移 $l$ に対応する電場成分ベクトルを表しており、定常的な系では時間に依存しない項となる。<sup>57</sup>Feの場合、M1タイプの遷移であるため、核電流密度ベクトルは次式(3-7)で与えられる。

$$\begin{aligned}
 j_1(\mathbf{k}_\nu, n) &= \langle m_g, n | j(\mathbf{k}_\nu) | n, m_e \rangle = \left[ \frac{3(2J_e + 1)c^5 \Gamma_7}{4\omega_0^3} \right]^{\frac{1}{2}} \begin{pmatrix} J_g & l & J_e \\ -m_g & q & m_e \end{pmatrix} (-1)^q \mathbf{k}_\nu \times \mathbf{n}_{-q} \\
 q &= m_g - m_e = 0, \pm 1 \quad \mathbf{n}_{\pm 1} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (\mathbf{n}_x \pm i\mathbf{n}_y), \quad \mathbf{n}_0 = \mathbf{n}_z \quad (3-7) \\
 (\dots) &: \text{Wigner } 3j\text{-Symbols}
 \end{aligned}$$

$\Sigma$ 内の第二項目の存在から明らかのように、各遷移に対する電場成分の位相の変化率に相違があるため、核共鳴散乱線の強度 $[I_\nu(t) \propto |E_\nu(t)|^2]$ には、量子うなり<sup>6</sup>が生じることになる。

<sup>6</sup> 量子ビートの起源は、この節で見たように各遷移に対する波動関数[式(3-2)参]の位相の時間変化率の違いが本質である点には注意すべき。また、このビートの周期は、遷移エネルギーを反映したものとなっているため、時間スペクトルの観測から散乱体物質の超微細構造を調べる事が可能になる。

### 3.4 振動下での核共鳴散乱線の放射特性

3.4節では、第9章で詳述されるパルス磁場発生装置を利用した振動がある場合の核共鳴散乱実験に即して超微細構造を持った磁性体が放射光により集団励起された後の崩壊過程のある時刻  $t_0$  において、内部磁場  $H(n)$  がX線の進行方向のまわりに角度  $\beta$  だけ回転[switch]した場合の再放射X線の放射特性がどのように変化するかを考察する。計算を簡単化するために、X線の進行方向を  $n_y$  軸、内部磁場  $H(n)$  の回転前の内部磁場の向きを  $n_z$  軸とし、回転後の内部磁場の向きを  $n_{z'}$  軸と定義した。[図3・4参照]

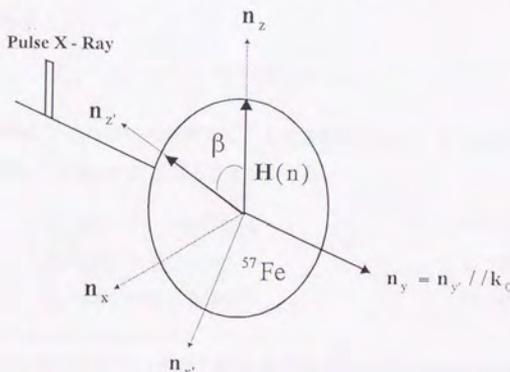


図3・4 計算のために導入された座標系

振動のある系のハミルトニアンは、 $J_{n_z}$  を核スピン演算子の  $z$  軸への射影、 $\theta(t)$  をステップ関数として次式(3-8)で与えられる。

$$H_n(t) = H_0 - \varepsilon_\lambda(n) [J_{n_z} \cdot \theta(t_0 - t) + J_{n_{z'}} \cdot \theta(t - t_0)] \quad (3-8)$$

今、回転角を  $\beta$  とすると、時刻  $t = t_0$  において、超微細磁場  $H(n)$  の回転前の系の固有状態  $|n, m_\lambda\rangle$  は、回転後の系の固有状態  $|n, m'_\lambda\rangle$  との間に回転行

列  $d_{m'_\lambda m_\lambda}^{(J_\lambda)}(\beta)$  を介して関係式(3-9)が成り立つ。

$$|n, m_\lambda\rangle = \sum_{m'_\lambda} |n, m'_\lambda\rangle \cdot d_{m'_\lambda m_\lambda}^{(J_\lambda)}(\beta) \quad (3-9)$$

ゆえに、 $t = t_0$ における波動関数  $\Psi_{m_\lambda}(t_0, n)$  は、次式(3-10)で得られる。

$$|\Psi_{m_\lambda}(t_0, n)\rangle = \sum_{m'_\lambda} |n, m'_\lambda\rangle \cdot d_{m'_\lambda m_\lambda}^{(J_\lambda)}(\beta) \cdot \exp\left[-\frac{i}{\hbar} E_{m_\lambda}(n)t_0\right] \quad (3-10)$$

一方、 $t > t_0$ における波動関数  $\Psi_{m_\lambda}(t, n)$  は、時間発展演算子  $U_n(t, t_0)$ <sup>8</sup> と時刻  $t = t_0$ での波動関数  $|\Psi_{m_\lambda}(t_0, n)\rangle$  との積で表され、次式(3-11)のように書き表すことができる。

$$|\Psi_{m_\lambda}(t, n)\rangle = U_n(t, t_0) \cdot |\Psi_{m_\lambda}(t_0, n)\rangle \quad (3-11)$$

以下の関係式(3-12)~(3-14)を利用し、上式を計算すると  $t > t_0$ での状態を表す波動関数として式(3-15)を得ることができる。

$$E_{m'_\lambda}(n) = E_\lambda - \varepsilon_\lambda(n) m'_\lambda \quad (3-12)$$

$$H_0 |n, m'_\lambda\rangle = E_\lambda |n, m'_\lambda\rangle \quad (3-13)$$

$$J_{n'_\lambda} |n, m'_\lambda\rangle = m'_\lambda |n, m'_\lambda\rangle \quad (3-14)$$

7 具体的に、回転行列  $d_{m'_\lambda m_\lambda}^{(J_\lambda)}(\beta)$  は  $\xi$  を  $\xi = \sin^2(\beta/2)$  とすると次式で与えられる。

$$d_{M,K}^{(J)}(\beta) = (-1)^{M-K} \cdot \frac{(J+M)!}{\sqrt{(J-M)!(J+K)!(J-K)!}} \cdot \xi^{-(M-K)/2} (1-\xi)^{-(M+K)/2} \left(\frac{d}{d\xi}\right)^{J-M} \cdot \xi^{J-K} (1-\xi)^{J+K}$$

この結果は、ヤコビの多項式  $F(-p, a+p; b|x)$  を用いて次式のようにも書き表すことができる。

$$d_{M,K}^{(J)}(\beta) = \frac{(-1)^{M-K}}{(M-K)!} \cdot \frac{(J+M)!(J-K)!}{\sqrt{(J-M)!(J+K)!}} \cdot \xi^{(M-K)/2} (1-\xi)^{(M+K)/2} \times F(-J+M, J+M+1; M-K+1|\xi)$$

8 時間発展演算子  $U_n(t, t_0)$  は、次式で与えられる。

$$U_n(t, t_0) = T \cdot \exp\left[-\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t dt H_n(\tau)\right]$$

$$\begin{aligned}
 |\Psi_{m_x}(t, n)\rangle &= \exp\left[-\frac{i}{\hbar} E_{m_x}(n)t\right] \cdot \sum_{m'_x} |n, m'_x\rangle \cdot d_{m'_x m_x}(\beta) \cdot \exp\left[-\frac{i}{\hbar} E_{m'_x}(n)(t-t_0)\right] \\
 &\times \begin{cases} \exp\left[-\frac{\Gamma_0}{2\hbar} \cdot t\right] & \text{for excited state} \\ 1 & \text{for ground state} \end{cases} \quad (3-15)
 \end{aligned}$$

ゆえに、時刻  $t$  における放射 X 線の特徴付ける核電流密度は、上の波動関数を使って次式 (3-16) で得られる。

$$\begin{aligned}
 \mathbf{j}(k_v, t, n) &= \langle \Psi_{m_x}(t, n) | \mathbf{j}(k_v) | \Psi_{m_x}(t, n) \rangle \quad (3-16) \\
 &= \exp\left[-i\Omega_l(n)t_0 - \frac{\Gamma_0}{2\hbar} \cdot t\right] \cdot \sum_{l'} \mathbf{j}_l(k_v, n) \cdot \exp[-i\Omega_l(n) \cdot (t-t_0)] \cdot \Delta_{l1}(\beta)
 \end{aligned}$$

ここで、スイッチングマトリックス  $\Delta_{l1}(\beta)$  は、次式 (3-17) で定義されている。

$$\Delta_{l1}(\beta) = d_{m'_x m_x}^{(l')}(-\beta) \cdot d_{m'_x m_x}^{(l)}(\beta) \quad (3-17)$$

スイッチングマトリックス  $\Delta_{l1}(\beta)$  が零でない値を持つ場合、単色核遷移  $l$  の放射は、複数の遷移  $\{l'\}$  に対応した X 線の重ね合わせへと変換される。ゆえに、内部磁場が回転した後の励起核によるコヒーレントな再放出放射光の時間に依存する電場ベクトル  $E_v(t)$  は次式 (3-18) で与えられる。

$$\begin{aligned}
 E_v(t) &= \exp\left[-\frac{\Gamma_0 t}{2\hbar}\right] \cdot \sum_{n, l'} \mathbf{B}_v(n, l') \cdot \exp[-i\Omega_l(n) \cdot (t-t_0)] \quad (t > t_0) \\
 \mathbf{B}_v(n, l') &= e^{ik_v \cdot r(n)} \cdot \mathbf{j}_l(k_v, n) \sum \Delta_{l1}(\beta) \cdot \exp[-i\Omega_l(n) \cdot t_0] \cdot \mathbf{j}_l^*(k_0, n) \quad (3-18)
 \end{aligned}$$

式 (3-18) から、内部磁場  $H(n)$  の回転後の再放射 X 線は、回転角  $\beta$  と Switch-time  $[t_0]$  に依存して、周波数、偏光状態に変化が生じる得ることがわかる。

以下にスイッチ行列が対称性を持つ回転角 ①  $\beta=90^\circ$ 、②  $180^\circ$  の場合について、内部磁場がある系にある  $^{57}\text{Fe}$  からの核共鳴散乱線についての具体的な計算を行う。

## ① 90° スイッチの場合

内部磁場を 90° 回転させる場合の効果を考える。この場合、スイッチ行列には以下の対称性が成り立つ。

$$\Delta_{l1} \left( -\frac{\pi}{2} \right) = (-1)^{l+1} \Delta_{l1} \left( \frac{\pi}{2} \right) \quad (3-19)$$

$$\Delta_{-l1} \left( \pm \frac{\pi}{2} \right) = (-1)^l \Delta_{l1} \left( \pm \frac{\pi}{2} \right) \quad (3-20)$$

$$\Delta_{l-1} \left( \pm \frac{\pi}{2} \right) = (-1)^l \Delta_{l1} \left( \pm \frac{\pi}{2} \right) \quad (3-21)$$

今、放射光パルスにより核の許容な遷移の内、 $\pm 1$  が励起されたとする。この時、スイッチ時刻として特に次のような時間を考える。

$$P \cdot \exp(-i\Omega_{s1} \cdot t_p) \cdot j_{s1}^*(k_0) = \exp(-i\Omega_{-1} \cdot t_p) \cdot j_{-1}^*(k_0) \quad (3-22)$$

ここで、スイッチ時刻と P には、 $t_0 = t_p$  ( $p = \pm 1$ ) の対応関係があるものとする。式 (3-18) (3-21) より、 $t_0 = t_p$  でのスイッチ後の遷移  $l'$  に対応する電場振幅は次式 (3-23) で与えられる。

$$B_v(l, l') = 2 \cdot K_{l'p} \cdot j_{l'}(k_v) \sum_{l=0}^{\infty} \Delta_{l1} \left( \pm \frac{\pi}{2} \right) \cdot \exp[-i\Omega_l \cdot t_p] \cdot j_l^*(k_0) \\ K_{l'p} = \frac{1}{2} (1 + (-1)^l P) \quad (3-23)$$

式 (3-22) から、 $P = 1$  の場合には  $l'$  が偶数、 $P = -1$  の場合には  $l'$  が奇数のとき  $K_{l'p} \neq 0$  となる事がわかる。このことから、 $\pm 1$  で励起された後 90° パルスが行われると、時刻  $t_0 = t_{+1}$  におけるスイッチでは  $l' = \pm 2$  の遷移に対応する電場が放射され、 $t_0 = t_{-1}$  におけるスイッチの場合は  $l' = \pm 1, \pm 3$  の遷移に対応した電場の放射が行われることがわかる。[図 3・5 参照]

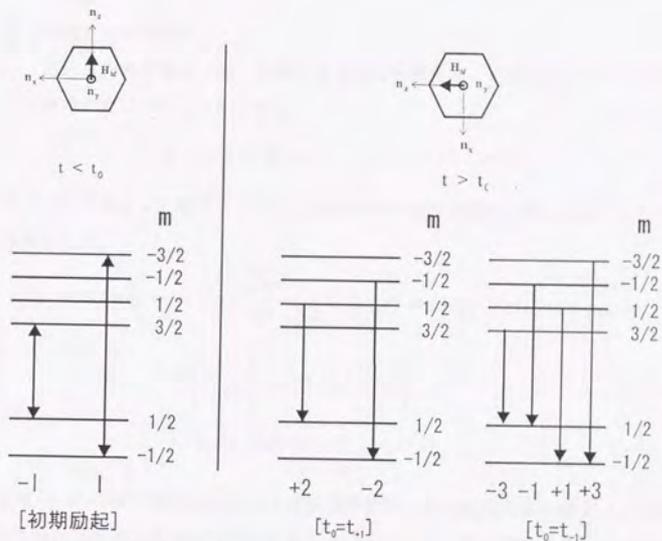


図3.5 90°スイッチがある場合の放出X線の変化

回転時刻 $t_0$ が $t_{+1}$ の場合には $l=\pm 2$ が許容遷移となり

$t_{-1}$ の場合には $l=\pm 1, \pm 3$ が許容な遷移となる。

式(3-23)のベクトルの向きまで含めて考慮すれば、条件を適当に選ぶことで90°スイッチ後の放射X線には摂動の効果として、以下の変化が起きると予想される。

90°パルス磁場スイッチングがある場合起こると予想される諸現象

- I 放出X線の振動数変化。
- II 電流密度ベクトル $\mathbf{j}_r(k_v)$ の空間的分布の変化による偏光状態の変化。

これら諸現象の内、IIについては核ブラッグ散乱を利用した実験でY. Shyvyd'ko達により観測されている。/2/ そこで本研究では、核共鳴前方散乱法により現象IIについて調べることにした。【この実験については第9章で詳述される。】

## ② 180スイッチの場合

次に、内部磁場を  $180^\circ$  回転させる場合を考える。この場合、スイッチング行列は次式 (3-24) で与えられる。

$$\Delta_{17}(\beta) = (-1)^l \cdot \delta_{r,-l} \quad (3-24)$$

式 (3-18) に代入して整理すると、磁化反転後の遷移核電流密度は次式 (3-25) で与えられる。

$$\begin{aligned} j_l(k_v, t, n) &= \exp\left[-i\Omega_l(n) \cdot t_0 - \frac{\Gamma_0}{2\hbar} \cdot t\right] \cdot \sum_{l'} j_{l'}(k_v, n) \cdot \exp[-i\Omega_{l'}(n) \cdot (t-t_0)] \cdot \Delta_{17}(\beta) \\ &= \left\{ (-1)^l \cdot \exp\left[-\frac{\Gamma_0 t}{2\hbar}\right] \cdot \exp[-i\Omega_{-l}(n) \cdot t_0] \right\} \\ &\quad \times \left\{ j_{-l}(k_v, n) \cdot \exp[-i\Omega_{-l}(n) \cdot (t-t_0)] \right\} \end{aligned} \quad (3-25)$$

上式 (3-25) の第1項目の {} 内は核崩壊の時間依存性と磁場の反転時刻  $t_0$  における核の波動関数の位相変化量を表している。一方、第2項目の {} 内は高速の磁化反転がある場合、核の遷移電流は  $l$  から  $-l$  の遷移に対応する核電流密度に変化し位相項に現れる周波数も  $\Omega_{-l}$  へと変化することを意味している。つまり  $180^\circ$  パルス後の放射 X 線に現れる摂動の効果として、粒子がそれまで占有していたスピに対応する励起準位のサブレベルとその許容遷移  $\{l\}$  から核の波動関数の位相変化の情報を保存<sup>9</sup> したままスピ反転した励起状態のサブレベルへ移り、新しい遷移  $\{-l\}$  に対応した周波数で X 線放射を行うため周波数変化が生じることがわかる。図 3・6 にはこの X 線再放射のプロセスを示しておく。

9 この位相の変化量が、回転時間  $t_0$  に依存するため、再放射 X 線の電場成分には  $t_0$  依存性が生じる。

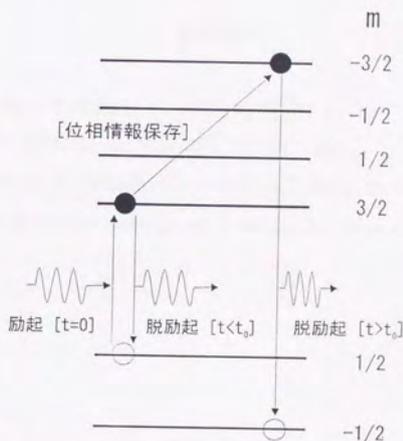


図3・6 180° スイッチした場合の放射X線の周波数変化

励起状態のサブレベルの粒子の占有率は核の波動関数の位相情報を保存して磁気量子数が $m$ から $-m$ の状態へと変化し、これに伴い対応する遷移は $1$ から $-1$ へと変化する。

$^{57}\text{Fe}$ のゼーマン分裂の場合のように $\Omega_{-1} = -\Omega_1$ がなりたつ場合には、上の電流密度は、次式のように表現することも可能である。

$$j(\mathbf{k}_\nu, t, n) = \exp\left[-\frac{\Gamma_0 t}{2\hbar}\right] \cdot \left\{ -j_i^*(\mathbf{k}_\nu, n) \cdot \exp[-i\Omega_1(n) \cdot (2t_0 - t)] \right\} \quad (3-26)$$

この立場から見ると、180° スイッチは遷移エネルギーではなく見掛け上、時間の方向と核の遷移電流のベクトルの向きを反転させるという理解も可能である。また、式(3-26)はスイッチ時刻  $t_0$  に依存した形をしており、核共鳴散乱の時間スペクトル波形が  $t_0$  の取りかたに依存して変化することを示唆している。本研究ではこの点についても核共鳴前方散乱法を利用したメスbauer-時間スペクトルの観測で実験的に明らかにすることにした。[この実験も第9章で詳述される。]

参考文献

- /1/ Yu. Kagan and A. M. Afanase'v;  
JETP 50, 271 (1966) Soviet Phys. JETP 23, 178 (1966)
- /2/ Yu. V. Shvydo'ko A. I. Chumakov, G. V. Smirnov, T. Hertrich, U. V. Bärck,  
H. D. Ruffer, O. Leupold, J. Metzger and E. Gerdau: Europhys. Lett. 26 (1994)

## 第4章 反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶評価実験

反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶は、外部からの高周波磁場の印加に対しては、磁気弾性波が共鳴的に励起され、パルス磁場の印加に対しては、nsオーダーの高速な磁化応答を示す。このような優れた磁化特性を持つ $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶は、磁場変動がある場合の核共鳴散乱実験用の試料に非常に適する。本章では、反強磁性完全単結晶 $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶構造、超微細構造、純核ブラッグ反射面、及び外場に対する高速の磁化応答についての概説を行い、実験用試料としてフラックス成長させた $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶のX線二結晶法による結晶性の評価実験の結果について報告する。

### 4.1 $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶構造

$^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶は、透明な緑色をしたネール温度348 K/1/2/の反強磁性体である。その結晶構造は、菱面体・方解石構造をしており、単位胞中の2つの鉄原子は結晶学的に同等なサイトに存在し、原子スピンは(111)面に平行に反強磁性的に秩序づけられている。/3/ 図4・1には、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶構造とパラメータを示しておく。

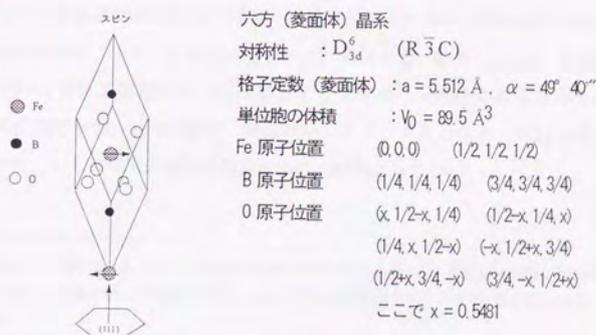


図4・1  $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶構造

ところで、単位胞中の2つの鉄の原子スピンは、(111)面で見ると完全に反平行とはなっておらず、わずかに傾きを持つ。このため $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶は、弱強磁性的性質(寄生磁性)を示し、それぞれの原子スピに対して垂直な向きに自発磁化をもつことになる。<sup>1</sup> [図4.2参照]



M : 自発磁化を表すベクトル  
 $S_1, S_2$  : 単位胞中の2つのFeの原子スピ  
 が作る磁気モーメント

図4.2  $^{57}\text{FeBO}_3$ の弱強磁性的性質 [(111)面を見た場合]

このため室温で、結晶の磁気困難軸[111]の向きに結晶の磁気モーメントを揃えるには、外部磁場として62500ガウス以上が必要になるのに対し、容易磁化面(111)内では、数ガウス程度外場を印加するだけで結晶の磁化は飽和(単磁区構造)され、磁気モーメントを一方向に揃えることができる。<sup>2</sup>

#### 4.2 $^{57}\text{FeBO}_3$ の超微細構造

反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶は、約318KG程度の内部磁場を持つため、 $^{57}\text{Fe}$ の第一励起レベルの基底状態と励起状態は、磁気双極相互作用により核ゼーマン分裂を起しそれぞれ、4本、2本のサブレベルに分裂する。図4.3には、磁気双極相互作用と電気四重極相互作用が存在する場合の $^{57}\text{Fe}$ の超微細構造のエネルギー準位図を示す。 $^{57}\text{Fe}$ の場合、遷移がM1タイプであるため、可能な遷移は $\Delta m=0, \pm 1$ の6本の遷移に限られることが知られている。

<sup>1</sup> 室温では、磁気モーメントは(111)面内で等方向的に分布するため、外部から磁場が印加されない限り、結晶の個々の領域での磁化の向きは乱雑な方向を向いた状態(複合磁区構造)になる。

<sup>2</sup>  $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶中の $^{57}\text{Fe}$ の内部磁場は、原子スピンの逆向きに生じていることが知られている。このため、外部磁場で結晶磁化Mを一方向に揃えると、 $^{57}\text{Fe}$ の内部磁場は、外場に対してほぼ垂直な方向に向きが揃うことになる。

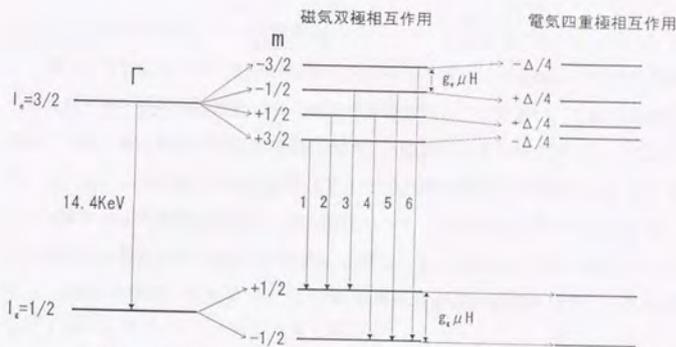


図4・3 磁気双極相互作用、電気四重極相互作用がある場合の $^{57}\text{Fe}$ の超微細構造のエネルギー準位図

表4・1には、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の超微細構造のパラメータを示しておく。一般に、磁気双極相互作用以外にアイソマーシフト、電気四重極相互作用が存在すると、超微細構造を反映したエネルギー準位図の分裂の対称性は崩れる傾向にあるが、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の場合、電気四重極相互作用による分裂が磁気双極相互作用による分裂に比べて小さいのでエネルギー準位の対称性は維持されると考えてよい。<sup>3</sup>

超微細構造パラメータ	対応するエネルギー
励起準位自然幅： $\Gamma$	$4.67 \times 10^{-9}$ (eV)
磁気双極分裂	
励起準位： $g_e \mu H$	$0.96 \times 10^{-7}$ (eV)
基底準位： $g_g \mu H$	$1.74 \times 10^{-7}$ (eV)
電気四重極分裂： $\Delta$	$-1.65 \times 10^{-8}$ (eV)
アイソマーシフト： $d$	$1.33 \times 10^{-8}$ (eV)

表4・1  $^{57}\text{FeBO}_3$ の超微細構造のパラメータ

<sup>3</sup> この対称性がたもたれていると第9章での実験の解析が容易になる。

### 4.3 $^{57}\text{FeBO}_3$ の純核ブラッグ反射面

通常のX線散乱では、散乱パラメータとして、電子による散乱パラメータのみが考慮され、核による散乱パラメータは無視されることが多い。これは通常の散乱では電子散乱振幅が核散乱振幅に比べて圧倒的に大きな値を持つことによる。しかしながら、入射X線のエネルギーと核の励起エネルギーが一致するような場合には共鳴が起きるため核の散乱パラメータを考慮しなくてはならない。今、結晶にs偏光したX線がi方向から入射し、s'偏光でj方向へ散乱される場合【図4・4参照】を考えると電子-核共鳴散乱の回折強度のパラメータである $g_{ij}^{ss'}$ (E)は、式(4-1)~(4-5)で与えられる。<sup>4</sup>

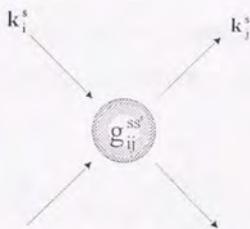


図4・4 X線回折と散乱パラメータ

$$g_{ij}^{ss'}(E) = \frac{\lambda^2}{\pi V_0} \cdot \left\{ F_{eij} + \sum_{\Gamma} F_{n\Gamma}^{(l)ss'} \right\} \quad (4-1)$$

ここで、 $\lambda$ と $V_0$ は、それぞれX線の波長、結晶の単位胞体積を表している。{}内の第1項目のパラメータ $F_{eij}$ は、結晶の電子散乱振幅の成分を表しており、次式(4-2)で与えられる。

<sup>4</sup> 式(4-1)のような散乱パラメータは、一回の散乱過程が終了するまでの間、系が定常的な場合にのみ有効となる。磁氣的摂動がある核共鳴散乱のような一回の散乱過程が非定常的な系にある散乱を記述するためには第3章で示したように散乱X線の電場成分を時間に依存する形で記述する必要が生じる。

① 電子散乱振幅

$$F_{eij} = -r_e \cdot \sum_{\gamma} \{ f_{e\gamma} + f'_{\gamma} - i \cdot f''_{\gamma} \} \\ \times \left\{ \exp(-M_{\gamma}) \cdot \exp(i \cdot [\mathbf{k}_j - \mathbf{k}_i] \cdot \mathbf{r}_{\gamma}) \right\} \cdot P_{eij} \quad (4-2)$$

$\Sigma$  : 単位胞全ての原子についての和を取ることを表す。

$r_e$  : 古典電子半径       $\exp(-M)$  : デバイワラー因子

$f_0$  : 原子散乱因子       $f'$ ,  $f''$  : 異常散乱因子

$P_{eij}$  : 電子散乱の偏角因子で次式(4-3)で与えられる。

$$P_{eij} = (\mathbf{e}_i \cdot \mathbf{e}_j) \quad (4-3)$$

$\mathbf{e}_{i,j}$  :  $i, j$  方向へ進行するX線の電場成分に平行な単位ベクトル

また、{}内の第2項目のパラメータ $F_{nij}^{(1)ss}$ は、核散乱振幅の成分を表しており、次式(4-4)で与えられる。ここで $l$ は、中間状態の $l$ 番目の遷移を表している。

② 核散乱振幅

$$F_{nij}^{(1)ss} = \sum_p \frac{3\lambda}{4\pi} \cdot \frac{\eta}{(2I_0 + 1) \cdot (1 + \alpha)} \cdot \frac{\left(\frac{\Gamma}{2}\right)}{\hbar\omega - \hbar\omega_l + i \cdot \left(\frac{\Gamma}{2}\right)} \cdot [C(I_0, l, I; M_0, \Delta m)]^2 \\ \times f(\mathbf{k}_i) \cdot f(\mathbf{k}_j) \cdot \left\{ \exp(i \cdot [\mathbf{k}_j - \mathbf{k}_i] \cdot \mathbf{r}_{\rho}) \right\} \cdot P_{nij}^{ss} \quad (4-4)$$

$l_0$  : 基底単位のスピン量子数

$\alpha$  : 内部転換係数<sup>5</sup>

$\eta$  : 共鳴核の富化率

$\hbar\omega_l$  :  $l$  番目の遷移エネルギー

$C$  : クレブシュゴルダン係数<sup>6</sup>

$\Gamma$  : 自然幅

$f(\mathbf{k}_i) \cdot f(\mathbf{k}_j)$  : ラムメスバウアー因子<sup>7</sup>

$\lambda$  : 波長

$\rho$  : 単位胞中のメスバウアー核を示す指数。

$P_{nij}^{ss}$  : 核共鳴散乱の偏角因子で次式(4-5)で与えられる。

<sup>5</sup> <sup>57</sup>Feの場合、 $\alpha=8.21$

<sup>6</sup> 超微細分裂した<sup>57</sup>Feの場合、許容な6本の各遷移に対してクレブシュゴルダン係数の二乗はそれぞれ、 $C^2=1, 1/2, 1/3, 1/3, 1/2, 1$ で与えられる。

<sup>7</sup>  $f(\mathbf{k}_0) = f(\mathbf{k}_1) = 0.9327$  for <sup>57</sup>FeBO<sub>3</sub> [ $\lambda=0.86\text{\AA}$ ]

$$P_{nij}^{ss'} = \begin{cases} (\mathbf{h}_i^s \cdot \mathbf{u}_z) \cdot (\mathbf{h}_j^{s'} \cdot \mathbf{u}_z) & \text{for } \Delta m = 0 \\ \frac{1}{2} \left\{ \begin{aligned} & (\mathbf{h}_i \cdot \mathbf{h}_j) - (\mathbf{h}_i^s \cdot \mathbf{u}_z) \cdot (\mathbf{h}_j^{s'} \cdot \mathbf{u}_z) \\ & \mp i \cdot [(\mathbf{h}_j^{s'} \times \mathbf{h}_i^s) \cdot \mathbf{u}_z] \end{aligned} \right\} & \text{for } \Delta m = \pm 1 \end{cases} \quad (4-5)$$

$\mathbf{u}_z$  : 内部磁場に平行な単位ベクトル

$\mathbf{h}_{i,j}$  : 入射、回折線の磁場成分に平行な単位ベクトル

これらの式と結晶構造パラメータに基づき、<sup>57</sup>FeBO<sub>3</sub> (hhh) 面からの回折について考えると簡単な計算から、hが奇数の場合、幾何学因子が打ち消し合うため電子散乱振幅 $F_{ej}$ が零となり、核散乱振幅は、式(4-6)のようにパラメータ $V_{ij}^{(1)ss'}$ に比例した値をとることがわかる。<sup>8</sup> {純核ブラッグ条件}

$$g_{ij}^{(1)ss'}(E) \propto \begin{cases} V_{ij}^{(1)ss'} = (P_{ij}^{(1)ss'} - [P_{ij}^{(1)ss'}]^*) & \text{for } i \neq j \\ V_{ij}^{(1)ss'} = (P_{ij}^{(1)ss'} + [P_{ij}^{(1)ss'}]^*) & \text{for } i = j \end{cases} \quad (4-6)$$

表4・2には、<sup>57</sup>FeBO<sub>3</sub> (111)面に平行、散乱面に垂直な向きに外場を印加し、結晶全体の磁化の向きを揃えた場合の散乱パラメータ $V_{ij}^{s's(1)}$ の値を示しておく。

反射面	外部磁場	偏光状態	$\Delta m = \pm 1$				$\Delta m = 0$			
			$V_{00}$	$V_{11}$	$V_{10}$	$V_{01}$	$V_{00}$	$V_{11}$	$V_{10}$	$V_{01}$
(111)	↑		$V_{00}$	$V_{11}$	$V_{10}$	$V_{01}$	$V_{00}$	$V_{11}$	$V_{10}$	$V_{01}$
		$\sigma_0 - \pi_1$	$c^2$	1	-ic	ic	$c^2$	1	ic	-ic
		$\pi_0 - \sigma_1$	1	$c^2$	ic	-ic	1	$c^2$	-ic	ic

表4・2 <sup>57</sup>FeBO<sub>3</sub> (111)面に平行に、散乱面に垂直に外場が印加された場合の(111)面からの回折に対する散乱パラメータ。  
表中の定数s, cは、それぞれsin $\theta$ 、cos $\theta$ を意味している。

<sup>8</sup> この場合、式(4-6)の()内の第2項目の核共鳴散乱に対する偏光因子が共役複素数の形になっているのは、単位胞中の<sup>57</sup>Fe原子核の内部磁場の向きが反強磁性体であるためお互いに逆を向いていることに起因している。

一方、対称ブラッグケースにおける十分厚い結晶からの核ブラッグ散乱の反射率は、次式(4-7)で与えられる。

$$R^{(s)}(E, \alpha) = \frac{4 \cdot |g_{10}^{(s)}|^2}{\left| \alpha - g_{00}^{(s)} \cdot g_{11}^{(s)} \pm \sqrt{(\alpha - g_{00}^{(s)} - g_{11}^{(s)})^2 - 4 \cdot g_{01}^{(s)} \cdot g_{10}^{(s)}} \right|^2} \quad (4-7)$$

式(4-7)中 $s$ は、固有偏光を表しており、 $\alpha$ はブラッグ角からのずれを表すパラメータで次式(4-8)で与えられる。

$$\alpha = -2 \cdot \left\{ \sin(2\theta_B) \right\} \cdot (\theta - \theta_B) \quad (4-8)$$

式(4-7)は、散乱パラメータ $V_{10}^{(1)ss'} \propto g_{10}^{(1)ss'}$ が零でない値を持つ場合、ブラッグ方向にコヒーレントな核共鳴散乱を観測することが可能になることを示している。[核ブラッグ散乱可能な遷移に対する条件]以上の2つの条件より、 $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶を用いた核ブラッグ散乱の実験では、 $^{57}\text{FeBO}_3$ (hhh)面の内、 $h$ が奇数である反射面で、 $^{57}\text{Fe}$ の許容な6本の遷移の内、核共鳴散乱に対する偏光因子が虚数成分を持つ $\Delta m = \pm 1$ の遷移のみが観測可能となることがわかる。また、上述のような核共鳴散乱の回折を利用する実験では結晶に高い完全性が要求されるが、 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶は、フラックス法により非常に完全性の高い結晶を育成することが出来ることが知られている。/4/5/6/7/8/9/10/11/

#### 4.4 $^{57}\text{FeBO}_3$ の磁気的特性

ここでは、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の持つ幾つかの優れた磁気特性/12/13/14/の内、パルス磁場に対する高速磁化応答と、高周波磁場による結晶の磁気弾性波の共鳴的な励起について説明する。

##### ① 高速磁化応答

$^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶は、容易磁化面である(111)面に平行に、外部から比較的弱い磁場(約5.00e)をパルスの的に印加することにより1ns程度で磁化状態を複合

磁区状態から単磁区状態へと変化、又は単磁区状態のまま磁化の向きを高速変化させることが可能である。[高速磁化特性]/15/ これら結晶の磁化状態の変化に要する時間は、 $^{57}\text{Fe}$ の崩壊時間約100nsよりも十分短く、核スピンのラーモア一回転周期約10nsに比べても十分短い。この性質を利用すると、磁氣的摂動下の核共鳴線に生じる量子力学的摂動効果を放射光を利用した核共鳴散乱時間スペクトル法により実時間観測する事が可能になる。<sup>9</sup> 図4・5には、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の磁化の向きを $90^\circ$ だけ回転させる場合の概念図を示す。

パルス磁場の回転時間:  $\tau_0$   
 結晶磁化の向き回転に要する時間[1ns以下]  
 $\ll$   $^{57}\text{Fe}$ の崩壊時間[約100ns]

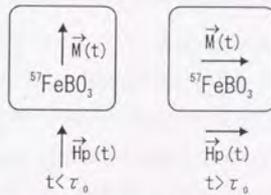


図4・5  $^{57}\text{FeBO}_3$ の高速磁化スイッチ[ $90^\circ$  スイッチの場合]

② 磁気弾性波の共鳴励起

一般に磁性体に外部から磁界を印加したとき、磁性体の磁化の状態が変化するのに伴い磁歪が生じ、わずかに変形することが知られている。磁歪の大きさは磁歪定数 $\lambda$ で表され、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の場合、 $\lambda_{//}=2.5 \times 10^{-6}$ で $\lambda_{\perp}=-1.0 \times 10^{-6}$ となっており、磁化される方向にわずかに伸び、垂直な方向にわずかに縮むことが知られている。/21/ この時、結晶には、この弾性変形に応じた応力が働くことになる。高速磁化特性を持つ $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶に外部から周波数 $f$ で変化

<sup>9</sup> 放射性同位元素を利用した従来のメスバウアー分光法においても $^{57}\text{FeBO}_3$ の高速磁化特性と核共鳴散乱の偏光特性を利用し、二枚の $^{57}\text{FeBO}_3$ を用いた $\gamma$ 線シャッターにより核ブラッグ散乱特有の現象である崩壊のスピードアップ等が観測されている。  
 /16/17/18/19/20/

する磁場を容易磁化面(111)に平行に印加した場合、磁化状態の変化が外場の  
変化に追従するため、結晶が等方的であると仮定すると、周波数 $2f$ で応力  
が加わり、磁気的な弾性波が結晶に励起される。〔図4・6参〕

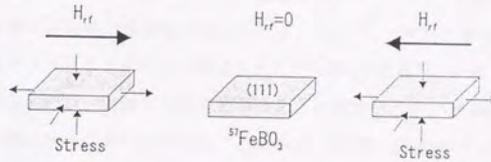


図4・6 高周波磁場印加に伴う $^{57}\text{FeBO}_3$ に生じる磁気弾性波  
容易磁化面(111)に平行に高周波磁場 $H_{rf}$ を印加した時、  
結晶に加わる応力が磁気弾性波の起振力になる。

最近、Co線源を用いたメスbauer透過、回折実験により、高品位な $^{57}\text{FeBO}_3$   
完全結晶は、外部から0.5~10MHzの周波数を持った振幅数0eの高周波磁場を  
(111)面に印加する事で共鳴的に磁気弾性波が励起されることが指摘された。  
/22/23/ 図4・7には、この実験の配置図と得られたメスbauerスペクトル  
を示す。スペクトルには、周期を0.985MHzに固定し、外場の強度を上げてい  
くに従い、磁気弾性波励起に伴ったドップラーブロードニングが生じスペク  
トルが広がっていく様子が示されている。〔磁気弾性波の共鳴励起〕

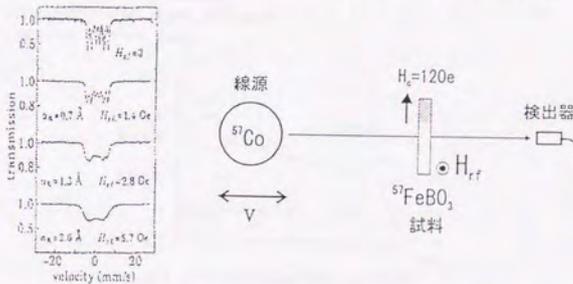


図4・7 高周波磁場印加による磁気弾性波の励起〔磁場の周波数=0.985MHz〕  
高周波磁場強度の増加に従い、スペクトルがブロードに変化してゆく様子が観測されている。

4.5  $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶評価実験

## ① 実験の目的

後述の実験では、光学系にブラッグ配置を利用するため、実験で使用する結晶には表面付近の高い完全性が求められる。そこで、(東京大学物性研究所)武居研究室でフラックス法により育成された $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶<sup>10</sup>のX線二結晶法による結晶評価を行い、実験で利用可能な結晶の選定を行った。結晶の育成にあたっては、鉄の同位元素 $^{57}\text{Fe}$ が高価であるため、最初に自然鉄 $^{56}\text{Fe}$ をそのまま使用して結晶成長させ、その評価結果が良好であれば $^{57}\text{Fe}$ をエンリッチし、実際の実験で使用する結晶を育成することにした。育成は、 $^{57}\text{Fe}$ をエンリッチしたものの、しなかったものを含め、これまでに計4回行われ、それぞれに対し結晶評価を行った。/24/25/

- 10 ここでは、平成5年度に作成され、実際の実験で使用された結晶の作成に関する育成条件と相図を示しておく。

 $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶の育成条件

- 育成法：PbO-PbF<sub>2</sub>-B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を溶媒に用いたフラックス法
- 試薬：PbO (三井金属超高純度) 99.99%  
酸化鉛：PbF<sub>2</sub> (ジョンソンマッセイ, Spec Pure Grade) 99.995% (公称)  
酸化ホウ素：B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (高純度科学) 99.99%相当  
PbO:29.31[g] PbF<sub>2</sub>:13.73[g] B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:51.23[g] FeBO<sub>3</sub>:5.73[g]
- るつぼ：容積100[cc] 白金製
- 炉：縦型(2分割)管状炉、SiC発熱体
- 加熱冷却プログラム(相図)

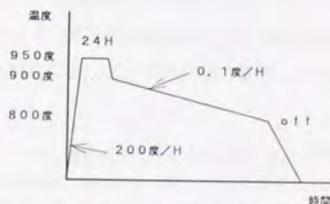


図2 平成5年度作成成分の結晶成長の相図

- 結晶取出しは1対1硝酸でポイルして行われる。(～1日)
- 結果：るつぼ底部に小さい板状結晶が得られる。

## ② 実験方法

フラックス法により育成された単結晶は、一回の作成で数個得ることができ、結晶の大きさは育成条件にもよるが、典型的には直径数mm、厚さ数十 $\mu\text{m}$ 程度の板状で、結晶表面はいずれも(111)面に平行であった。育成された複数の結晶の内、実験で評価される試料は、結晶が全体的にフラットで、肉眼で見た時、結晶表面にクラック等があまり見られないものを選び評価実験を行った。完全性の評価法としては、X線二結晶法<sup>11</sup>((+)平行、及び非平行配置)を利用し、ロッキングカーブの形状、半値幅、及びトポグラフにより行った。実験は、恒温室で行われ、X線発生装置には理学製RU-200を用い、Moターゲット、ノーマルフォーカスをポイントで使用した。実験配置の模式図を図4・8に、測定回路図を図4・9に示す。X線発生装置からの入射ビームサイズはスリット1で決定され、 $1.2 \times 20 \text{mm}^2$ 程度に設定された。第1結晶のSiモノクロメータには、作成された試料( $^{57}\text{FeBO}_3$ )に対して全面照射可能で試料の反射面に対し、(+)平行配置とみなせるような対称、及び非対称反射面が利用された。<sup>12</sup>第2結晶(評価用の試料)は、ステッピングモータにより駆動可能な高精度ゴニオメータ<sup>13</sup>上にセットされたサンプルホルダーに蜜蝋でマウントされ、X線の入射角を僅かずつ変化させることができるようになっている。第2結晶のあおり調整後、試料の回折面から反射されたX線は、NaIシンチレーションディテクターにより検出される。この時、ゴニオメータの制御と回折強度の計測は、PCによりなされ、数秒程度の回折強度曲線の半値幅を計測することが可能となっている。トポグラフの撮影時には、回折強度曲線の所望の角度位置でX線の入射角を固定し、X線フィルムを図4・8に示された位置に配置して露光が行われた。

<sup>11</sup> X線回折顕微法の一つで、複結晶分光計を用い、第1結晶で平行性の良いビームを作り、これを試料である第2結晶に照射する。特に、(+)平行配置を用いると、第2結晶表面に転位等による格子歪に対して高い角度分解能( $10^{-5}$ – $10^{-7}$ rad)を持つので、完全に近い結晶の評価等に利用できる。

<sup>12</sup> 試料への照射サイズを小さくする時は、スリット2で入射ビームは切られる。

<sup>13</sup> ゴニオメータはステッピングモータの250パルスに対して $1^\circ$ の変化を生じる。

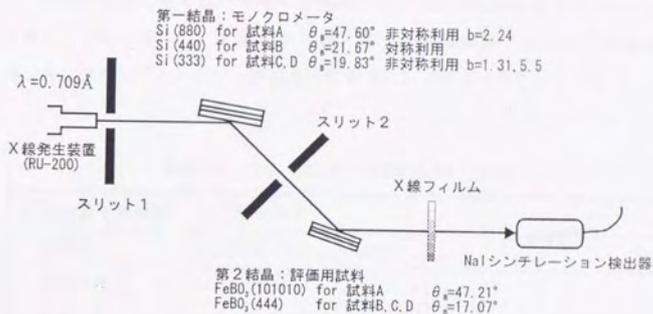


図4・8 FeBO<sub>3</sub>の結晶評価実験配置図

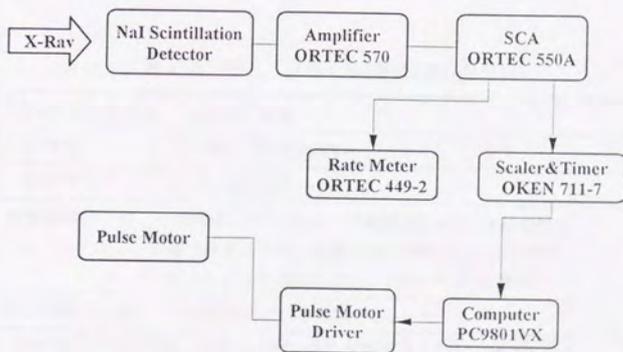


図4・9 測定系回路図

## ③ 実験結果

数回の育成で得られた $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶に対する評価結果を表4・3 (A-D)にまとめた。また、図4・10 (a)~(d)には、各々の評価実験で得られた典型的なロッキングカーブとそのピーク位置で撮影されたトポグラフを示しておく。

表4・3 (A) 試料：A [平成3年4月分]

$^{57}\text{Fe}$ の富化の有無	自然鉄で育成
光学系	Si (880) $\times$ $^{56}\text{FeBO}_3$ (101010)
試料サイズ	9.0 $\times$ 5.0 $\text{mm}^2$
全面照射R, C	理論値0.55"に対し、X線照射サイズ9.0 $\times$ 2.7 $\text{mm}^2$ で半値幅4.50"。
部分照射R, C	X線照射サイズ1.2 $\times$ 0.58 $\text{mm}^2$ で半値幅2.31"。
トポグラフからの情報	結晶中にインクルージョンが見られる。部分的に完全性の良い所が存在する。[図4・10 (a)参照]
評価結果	比較的良好

表4・3 (B) 試料：B [平成3年10月分]

$^{57}\text{Fe}$ の富化の有無	自然鉄で育成
光学系	Si (440) $\times$ $^{56}\text{FeBO}_3$ (444)
試料サイズ	12.0 $\times$ 6.5 $\text{mm}^2$
全面照射R, C	理論値3.60"に対し、半値幅は4.20"。複数のサブピークがみられ、結晶は幾つかのグレーンに別れているといえると考えられる。[図4・10 (b)参照]
部分照射R, C	この実験では行わなかった。
トポグラフからの情報	結晶中央に大きな欠陥が見られた。幾つかのグレーンが存在していた。部分的な完全性は良好。
評価結果	全面照射R, C、トポグラフ共に良好な結果が得られた。

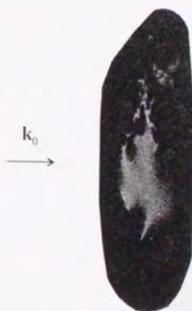
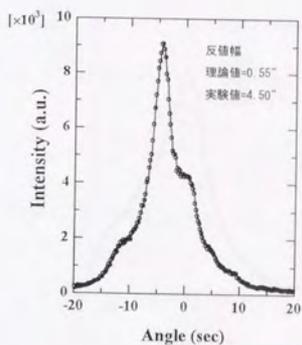
表4・3 (C) 試料：C[平成4年分] 複数個の結晶に対し評価を行った。

$^{57}\text{Fe}$ の富化の有無	95%エンリッチして育成
光学系	Si (333) $\times$ $^{57}\text{FeBO}_3$ (444)
試料サイズ	a: 9.0 $\times$ 4.5 $\text{mm}^2$ , 測定せず。 b: 6.2 $\times$ 2.7 $\text{mm}^2$ , 63.9 $\mu\text{m}$ c: 4.0 $\times$ 2.5 $\text{mm}^2$ , 47.3 $\mu\text{m}$
全面照射 R, C	理論値約5.5"に対し、a: 半値14.4" b: 半値18.66" c: 半値幅26.05"。全てサブピークは見られなかった。 理論値からのずれは、主に結晶の湾曲によるものと思 われる。[図4・10 (c)参照]
部分照射 R, C	a: 2.0 $\times$ 3.4 $\text{mm}^2$ 照射で、反値幅11.0"でサブピークは 見られない。b: 測定せず。c: 測定せず。
トポグラフからの情報	ロッキングカーブ同様、トポグラフからも結晶全 体がわずかに湾曲していることがわかる。 実験で使用可能な程度の完全性はある。
評価結果	全面照射 R, C、トポグラフ共に比較的良好な結果が得られた。

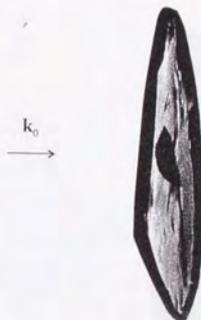
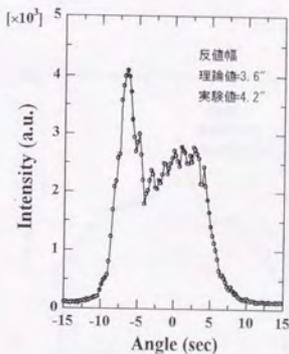
表4・3 (D) 試料：D[平成5年分] 複数個の結晶に対し評価を行った。

$^{57}\text{Fe}$ の富化の有無	95%エンリッチして育成
光学系	Si (333) $\times$ $^{57}\text{FeBO}_3$ (444)
試料サイズ	a: 15.0 $\times$ 8.0 $\text{mm}^2$ b: 15.5 $\times$ 11.0 $\text{mm}^2$
全面照射 R, C	a: 半値幅80.0"で2つのピークが見られた。b: 半値幅 50.0"でサブピークは見られない。どちらの結晶の反 値幅も理論値5.5"に比べ大きな値を示した。
部分照射 R, C	R, Cピーク位置に対応する部分にビームの照射域を 絞り測定。 a: 3.0 $\times$ 1.0 $\text{mm}^2$ 半値幅11.9" b: 2.5 $\times$ 1.0 $\text{mm}^2$ 半値幅8.0"
トポグラフからの情報	R, Cの複数の位置でトポグラフを測定したが、結晶 性が悪く、実験で使用可能なサイズでの完全性の良い 部分は見つからなかった。[図4・10 (d)参照]
評価結果	全面照射 R, C、トポグラフからこれら結晶は、実験に利用 可能な完全性を持っていないことがわかる。

表4・3 フラックス法で育成された $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶の評価実験結果

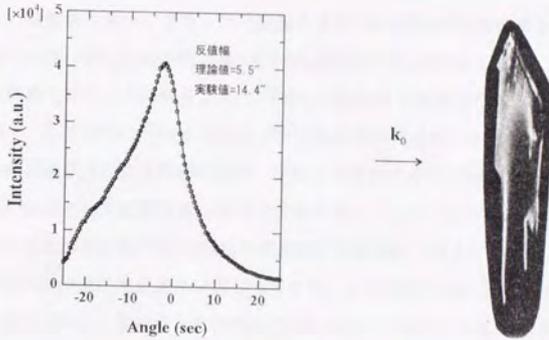


(a) 試料Aの全面照射ロックカーブ ピーク位置でのトポグラフ  
 (+, -) 平行配置の二結晶法による $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_3$  (101010) のトポグラフ. 対称ブラッグケース.

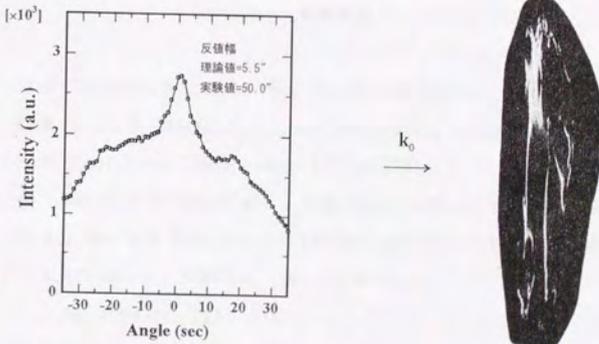


(b) 試料Bの全面照射ロックカーブ ピーク位置でのトポグラフ  
 (+, -) 平行配置の二結晶法による $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_3$  (444) のトポグラフ. 対称ブラッグケース.

図4.10 観測されたロックカーブとトポグラフ (A~B)



(c) 試料C-aの全面照射ロックカーブ ピーク位置でのトポグラフ  
 (+, -) 平行配置の二結晶法による $^{57}\text{FeBO}_3$  (444) のトポグラフ. 対称ブラッグケース.



(d) 試料D-bの全面照射ロックカーブ ピーク位置でのトポグラフ  
 (+, -) 平行配置の二結晶法による $^{57}\text{FeBO}_3$  (444) のトポグラフ. 対称ブラッグケース.

図4.10 観測されたロックカーブとトポグラフ (C-D)

## ④ 評価結果のまとめ

自然鉄を用いてフラックス成長させた $\text{FeBO}_3$ 結晶の評価結果をもとに、 $^{57}\text{Fe}$ をエンリッチした完全性の良い $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶の作成が試みられた。平成3年度に自然鉄でフラックス成長させた $^{57}\text{FeBO}_3$ の評価結果が良好であったことから、平成4、5年度には $^{57}\text{Fe}$ をエンリッチした試料の作成が行われた。これら試料のX線二結晶法による評価の結果、平成4年度作成成分の $^{57}\text{FeBO}_3$ が核共鳴散乱実験用の結晶として使用可能な結晶完全性を有していることがわかった。一方、平成5年度作成成分の $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶の結晶完全性はあまり良くなかった。これは、それぞれの結晶の育成条件が異なっていたことが原因であると思われる。(平成5年度作成成分は、平成4年度作成成分のものに比べてかなり大型の結晶であった。)実際の核共鳴散乱の応用実験では、試料C-bが、ストロボトポグラフによる磁気弾性波の共鳴励起による結晶変形の観測、及び摂動がある場合の核共鳴前方散乱の実験に使用された。[第8、9章参照]

## 参考文献

- /1/ M. Eibschütz, M. E. Lines: Phys. Rev. B7, 4907 (1973)
- /2/ M. Pernet, D. Elmaleh, J. C. Joubert: Solid State Commun. 8, (1970) 1593
- /3/ R. Diehl: Solid State Commun. 17 (1975) 743
- /4/ I. Bernal, C. W. Struck and J. G. White, Acta Cryst. 16 (1963) 849
- /5/ A. J. Kurzig, R. Wolf and R. C. Lecraw, Appl. Phys. Letters 14 (1969) 350
- /6/ M. Eibschütz, L. Pfeiffer and J. W. Nielsen,  
J. App. Phys. 41, (1970) 1276
- /7/ H. Makram, L. Tournon and J. Loriers, J. Crystal Growth 13/14 (1972) 585
- /8/ R. L. Lecraw, R. Wolfe and J. W. Nielsen:  
J. App. Phys. Letters 14, (1969) 352

- /9/ A. G. Waise and J. Chadwick, Brit. Patent 1, 267, 817  
1922; Chem. Abstr. 84P137961t
- /10/ G. V. Smirnov, V. V. Mostovoi, Ju. V. Shvydko, V. N. Seleznev and  
V. V. Rudenko, Zh. Eksperim. Teor. Fiz. 78 (1980) 1196
- /11/ M. Kotrbova, S. Kadeckova, J. Novak, J. Bradler, G. V. Smirnov and  
Yu. V. Shvydko Journal of Crystal Growth 71 (1985) 607
- /12/ R. Wolfw, A. J. Kurtzig and R. C. Lecraw, J. Appl. Phys. 41 (1970) 1218
- /13/ D. E. Lacklison, J. Chadwick and J. L. Page,  
J. Phys. D (Appl. Phys) 5 (1972) 810
- /14/ G. B. Scott J. Phys. D: Appl. Phys, 7 (1974)
- /15/ O. S. Kolotov, V. A. Pogochev, R. V. Telesnin, G. V. Smirnov, Yu. V. Shvydko,  
S. Kadeckova, M. Kotrbova and J. Novak,  
Phys. Status. Solidi (a) 72 (1982) K197
- /16/ G. V. Smirnov, et. al: Sov. Phys JETP 59 (1984) 875
- /17/ G. V. Smirnov, et. al: Sov. Phys JETP Lett 39 (1984) 41
- /18/ G. V. Smirnov, et. al: Sov. Phys JETP Lett 44 (1986) 556
- /19/ G. V. Smirnov, et. al: Sov. Phys JETP Lett 53 (1991) 69
- /20/ G. V. Smirnov, et. al: Sov. Phys JETP Lett 53 (1991) 231
- /21/ A. M. Kadomtseva, R. Z. Levitin, Yu. F. Popov, V. N. Seleznev, and  
V. V. Uskov: Sov. Phys. Solid State 14, No1 (1972) 172
- /22/ Yu. V. Shvydko, T. Hertrich, V. E. Sedov, G. V. Smirnov, U. Van. Burck,  
R. L. Mossbauer and A. I. Chumakov: Europhys. Lett, 19 (8). (1992) 723
- /23/ M. Kopcewicz, H. Engelmann, S. Stenger, G. V. Smirnov, U. Gonser  
and H. G. Wagner Appl. Phys. A44, (1987) 131
- /24/ 三井隆也、依田芳卓、泉弘一、菊田惺志、武居文彦、松下正  
強力X線実験室レポートNo. 6, 平成元-2年度, p29-34,  
東京大学工学部総合試験所強力X線実験室

/25/ 三井隆也、依田芳卓、泉弘一、伊藤幸仙、菊田愷志、武居文彦  
強力X線実験室レポートNo. 7, 平成3-4年度, p26-30,  
東京大学工学部総合試験所強力X線実験室

## 第5章 高周波磁場発生装置の開発

反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶に外部から数ガウス程度の振幅を持ったラジオ波領域[0.5-10MHz程度]の高周波磁場を容易磁化面(111)に平行に印加すると、結晶には周期的な磁歪の変動に起因した磁気弾性波が共鳴的に励起される。[第4章参照]既に第2章で述べたように、本研究では、この機械的な共鳴が起きている時、共鳴モードの一つに対応した結晶変形が結晶性に与える影響を放射光の大強度X線を利用したストロボグラフィの方法で可視的に観察すると共に、核共鳴散乱の回折強度にどのような影響を与えるかを明らかにする事を目的の一つとしている。このような実験を行うためには、 $^{57}\text{FeBO}_3$ に磁気弾性波を励起するため、以下の条件を満たす高周波磁場発生装置が必要となる。

- ① ストロボ的な観測を行う必要性から、装置より発生させられる高周波磁場の周波数が、放射光パルスの周波数に対し、正確に整数倍でなくてはならない。
- ② 装置は、 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶の磁化状態に変化を与えるに十分な磁場15(Oe)程度を結晶全体に渡り、一様に印加できなくてはならない。
- ③ トポグラフを撮影する際、散乱体の周囲の温度変化の影響を避けるため装置各部における発熱が十分抑えられていなくてはならない。

[結晶付近に配置される磁場発生用コイル部の発熱は特に抑えられる必要がある。]

本章では、このような要求を満たす磁場発生装置の原理を説明し、実際に作製された高周波磁場発生装置の性能評価実験の結果を示す。

### 5.1 装置の回路構成

実際の実験では、プラグ配置での実験が予定されている。このための幾何学的要請から、結晶に印加される磁場は、2つの空芯コイルからなるヘルムホルツコイルにより発生させることにした。空芯コイルのサイズは、使用する試料のサイズとX線の試料に対する入射角度により決定されるが、フラックス成長した $^{57}\text{FeBO}_3$ の結晶は、典型的には $5 \times 5 \text{mm}^2$ 程度のサイズであることを考慮し、本装置では、内径20mmの空芯コイルを利用することにした。一方、このサイズのコイルで結晶磁化の飽和磁場強度150eを達成しようとする、コイルに流れる最大電流値は10A程度に達すると予想される。そこで、装置各部の発熱をでき

るだけ避け、かつ大電流を流せるようにするため、本装置では、R L C直列共振回路を利用することにした。図5・1には、装置の回路構成図を示す。<sup>1</sup>

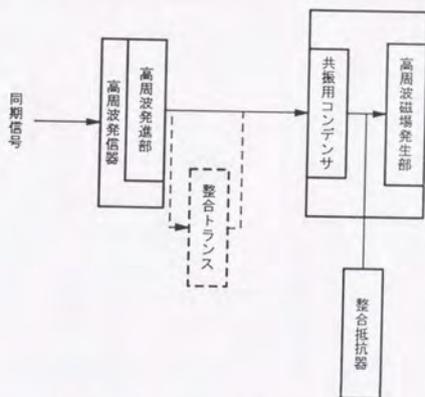


図5・1 装置の回路構成図

高周波電源部は、切り替えスイッチにより、外部トリガー信号[ TTL ]の周期 [ AR のパルス周期  $1.2 \mu \text{sec}$  ] に対し  $1/2$ 、 $1$ 、 $2$ 、 $3$  倍の周期で正弦的に変化する電力を後段の R L C 共振回路に供給することが可能となっており、入出力信号の同期は、水晶振動子を利用した回路により極めて正確とすることができるようになっている。図5・2に高周波電源部の回路図を示しておく。このように装置を外部トリガー駆動で運転できるようにすることで放射光パルスの基準信号との同期を容易にすることが可能となる。また、R C L 共振回路部は、高周波電源の周波数の設定変更に対し、それぞれの周波数で共振条件が満たされるように外付けコンデンサー、外付け抵抗、及び外付けトランスを組みかえることで対処できるように設計されている。回路各部の発熱防止対策としては

<sup>1</sup> 装置の作成は東京電子( I D X )に依頼、一部自作。

- ① 磁場発生コイル部に温度調整が可能なサーキュレータを利用した水冷を行い、
  - ② 抵抗部の発熱には空気冷却装置による空冷を行うことで対処することにした。
- 図5・3には、磁場発生部の装置外観図を、図5・4には空気冷却装置の外観図を示しておく。

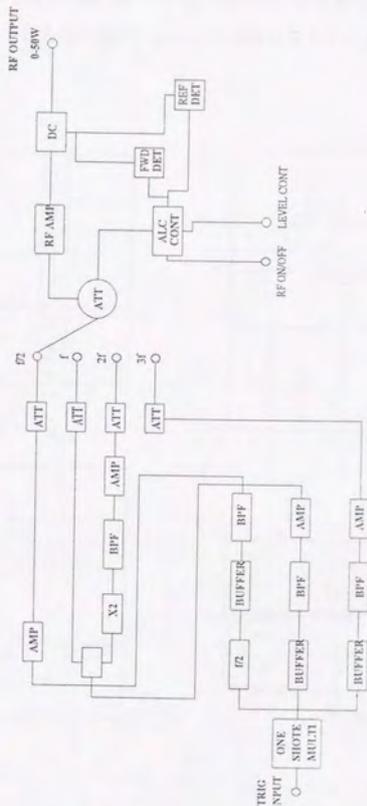


図5・2 高周波電源回路図

空気冷却装置の外壁は、熱の拡散をよくするため銅板を用い、内壁は熱が外へ伝わらないように発泡スチロールを用いた。冷却装置内部では、4個のCPU冷却用の扇風機で空気循環を行い抵抗部を冷却する。また、排気口から熱を持った空気を直接排気すると、散乱体に熱が伝わることを避けるため、排気口に厚めのビニールで作った管を取り付け、熱を持った空気を漏らさないようにして、散乱体からできるだけ離れたところで排気することにした。

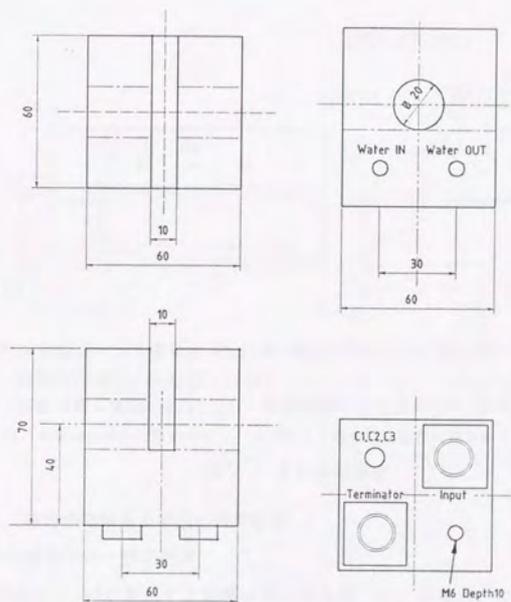
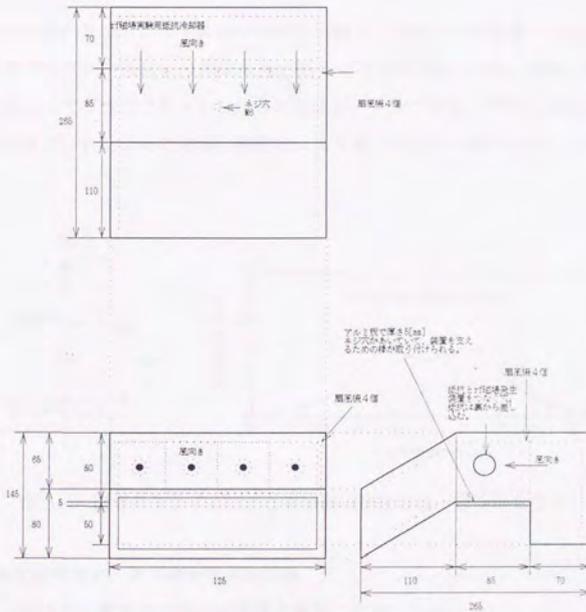


図5・3 磁場発生コイル部の外観図



CPU冷却ファン：製品名 UC FUN MODEL F614-D12L-02 UCE LTD. JAPAN  
 装置動作電圧：DC12[V] 12[V]  
 装置外壁：銅板 厚さ1[mm] 装置内壁：発泡スチロール 厚さ10[mm]  
 注 [排気口の後ろに厚めのビニールで作った長さ1[m]程度の管を取り付けられる。]

図5.4 空気冷却装置

## 5.2 高周波磁場発生装置の性能評価

### ① 発生磁場の均一性の評価

空芯コイル<sup>2</sup>が発生する磁場の均一性を調べた。評価は、コイルに電流2.

<sup>2</sup> 磁場発生部は、二つの銅性のコイルからなり、中心部で一定の磁場を発生できるようにヘルムホルツコイルを構成するように配置した。また、大電流を流すため、コイルの外郭はシリコンでモールドされており、発熱防止のために水冷ができるようにデザインされている。{図5.3参照}

5 A を定常的に流し、コイルの中心軸を z 軸として軸上の各位置での発生磁場強度をガウスメータにより測定した。図 5・5 には横軸を z [mm] 縦軸を発生磁場強度としてグラフプロットしたものである。グラフから、 $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_3$  結晶の典型的なサイズ  $z = [-5 \sim 5] \text{mm}$  で磁場の強度は、 $\pm 4\%$  の精度で一定であることがわかる。

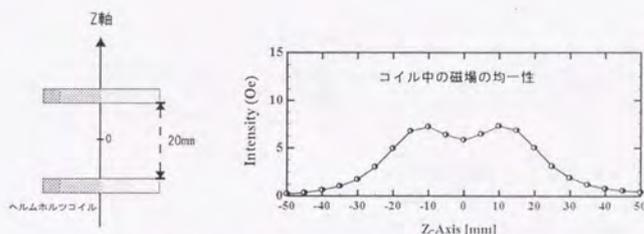


図 5・5 磁場発生コイルによる発生磁場強度の均一性を示すグラフ

#### ② 発生磁場波形、及び運転状況の評価

作製された高周波磁場発生装置が実験に必要な条件を満たしているかどうか調べるために、運転時の周波数を  $f_{AR}/2$ 、 $f_{AR}$ 、 $2f_{AR}$ 、 $3f_{AR}$  に設定し、高周波磁場発生装置の磁場発生部にサーチコイル [エナメル性、内径: 4mm] を差し込み、サーチコイルに生じる誘導電圧を演算機能付きのオシロスコープ [HP 54522] で積分波形の観測を行い、発生磁場強度、波形の揺らぎ、長時間運転時の回路の異常な発熱の有無について評価を行った。この時、運転時の周波数に応じて、外付けのコンデンサーや抵抗等は、図 5・6 (a)~(d) のように組み替えて使用された。表 5・1 には、各周波数での磁場波形、及び、その運転状況に対して得られた評価結果を示す。また、一例として、図 5・7 には周波数  $3f_{AR}$  の場合に対して得られた磁場波形を示す。

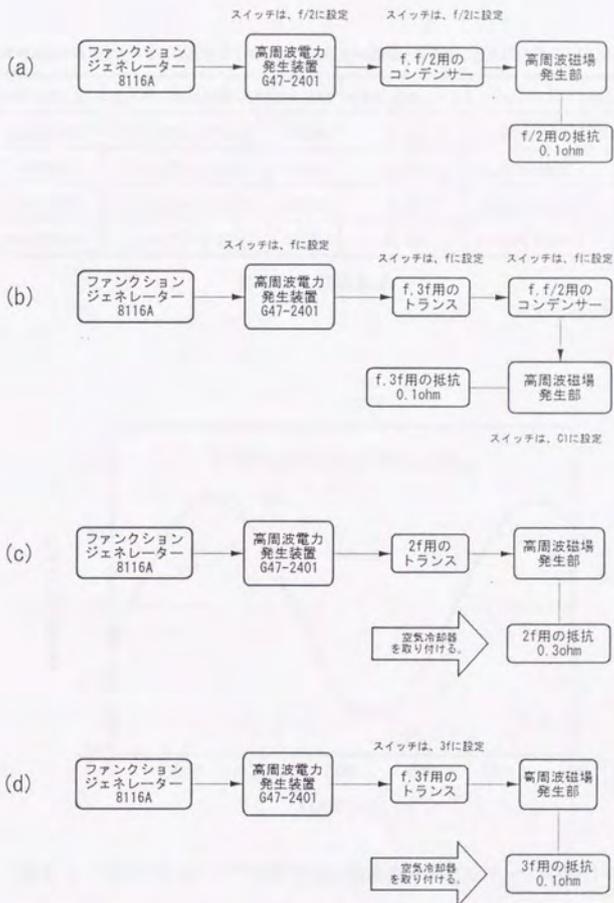


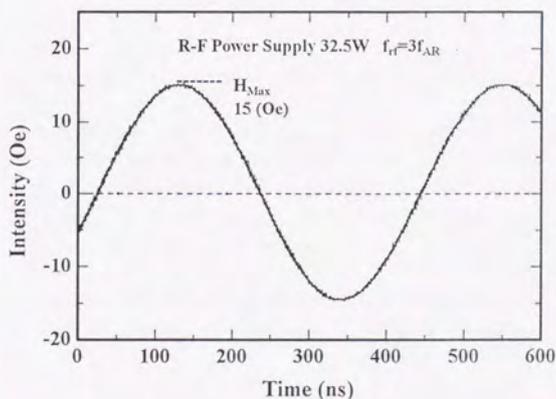
図5.6 各周波数に対する装置回路構成図

- (a) 周波数 $f_{AR}/2$ の場合、(b) 周波数 $f_{AR}$ の場合  
 (c) 周波数 $2f_{AR}$ の場合、(d) 周波数 $3f_{AR}$ の場合

[高周波電力発生装置への入力基準信号は、放射光[A R]の周期とほぼ同じ周波数[794kHz]とした。]

運転時の周波数	電力[W]-磁場強度[Oe]	運転時間	冷却水温度[ $^{\circ}$ C]	ジッター	抵抗部空冷
$f/2=397\text{kHz}$	20.0[W]-18.0[Oe]	30[分]	10.0[ $^{\circ}$ C]	1ns以内で安定	不要
$f=794\text{kHz}$	20.0[W]-18.0[Oe]	30[分]	10.0[ $^{\circ}$ C]	1ns以内で安定	不要
$2f=1568\text{kHz}$	32.5[W]-15.7[Oe]	30[分]	10.0[ $^{\circ}$ C]	1ns以内で安定	必要
$3f=2362\text{kHz}$	32.5[W]-16.0[Oe]	30[分]	10.0[ $^{\circ}$ C]	1ns以内で安定	必要

表5・1 評価結果

図5・7 オシロスコープで観測された高周波磁場波形 [ $f_{rf}=2.38\text{MHz}$ ]

### 5.3 評価結果のまとめ

反強磁性体 $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_3$ に高周波磁場変調を加えた時のX線・核共鳴散乱の動的過程の研究を行うことを目的に、高周波磁場発生装置の開発を行った。評価実験

では、表5・1からわかるように、長時間の運転に対し、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の磁化状態を飽和するのに十分な磁場強度を出力できることが示された。装置の発熱は、 $f_{rf}=2f_{AR}$ 、 $3f_{AR}$ の場合には、抵抗部を空気冷却することで回避できることも確認できた。発生磁場波形は、図5・7に見られるように整った正弦波となっており、運転中、極めて安定した出力を得ることが可能であることも確認できた。これら評価結果から本装置は、実験で要求される仕様を完全に満たしていると結論できる。

## 第6章 パルス磁場発生装置の開発と評価

放射光を利用したメスbauer時間スペクトル法により、振動がある場合の核共鳴散乱の時間発展過程を調べる実験[第9章参照]では、散乱体に高速の磁化特性を持つ反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ が利用される。この実験では、系に加えられる振動は、散乱体の磁化状態の変化により引き起こされる。従って、実験を行うためには、放射光の入射から $^{57}\text{Fe}$ の核共鳴散乱の崩壊寿命約144[ns]の間に散乱体の磁化状態を変化させるためのパルス磁場発生装置が必要不可欠とされ、その性能には、以下の条件を満たすことが要求される。

①：放射光パルスとのタイミングとデューティー

放射光パルスと印加磁場の間に同期を取る必要性から、放射光パルスの周期 $T_{AR}$ とパルス磁場の発生周期 $T_p$ の間には、 $T_p = n \cdot T_{AR}$  [ $n$ は自然数で $T_{AR}$ は放射光[AR]の周期で約1.25 $\mu\text{s}$ である。]の関係が正確に成り立たなくてはならない。また、測定の迅速化を計るため、 $n$ はできるだけ小さい値でなくてはならない。例えば、印加パルス磁場波形のパルス幅が400nsであるとすれば、デューティー比10%程度での運転は最低限実現する必要がある。

②：パルス幅

パルス幅は、50ns~500nsで可変であることが望ましい。

③：立ち上がり、立ち下がり時間

発生磁場波形の立ち上がり、立ち下がり時間は、共に $^{57}\text{Fe}$ のメスbauer準位[14.4Kev]の崩壊時間144nsに比べて十分短い時間[20ns以内]でなくてはならない。

④：発生磁場の強度

発生磁場は、散乱体 $^{57}\text{FeBO}_3$ の磁化を飽和するに十分な強度[200e以上]を入射線の照射サイズ[最大:2.0x2.0mm<sup>2</sup>]の空間に一様に発生できなくてはならない。

⑤：装置の安定性

装置は、長時間[10時間程度]の運転に際し、磁場波形の変形、磁場発生部の著しい発熱等があってはならない。

第6章では、このような要求を満たす磁場発生装置の原理を解説し、これまでに作成されたパルス磁場発生装置の性能試験<sup>1)</sup>の結果を示す。

<sup>1)</sup> 装置のパルス電流増幅部は、実験に合わせて数台の作製が行われた。[核ブラッグ・前方散乱実験用x2台[改良型を含む]、干渉計実験用x4台]

## 6.1 パルス磁場発生装置の動作原理

## ① 装置全体の構成

前述した条件を満たす磁場波形を得るための磁場発生方式として、源パルス信号を信号発生装置[HP8116A]で発生させ、この信号をパルス電流増幅部により増幅した電流をヘルムホルツコイルに流し、磁場を発生させるという方式/1/を採用した。装置の概念図を図6・1に示す。この装置系では、源パルス信号が、信号発生装置から発生されるので、出力パルス波形を可変[パルス幅変更等]にできるだけでなく、装置を外部トリガー駆動モードで動作させることで、放射光パルスの基準信号との同期を容易にとることができる。[装置への条件①はこの方法でクリアされる。]

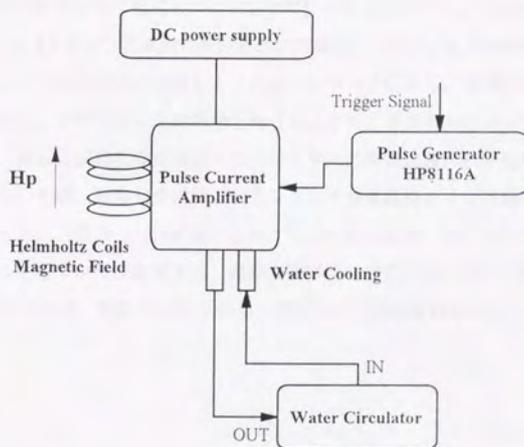
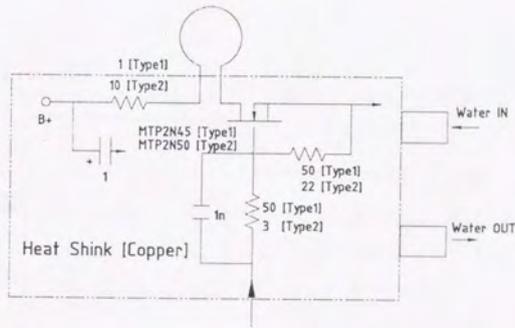


図6・1 パルス磁場発生装置の概念図

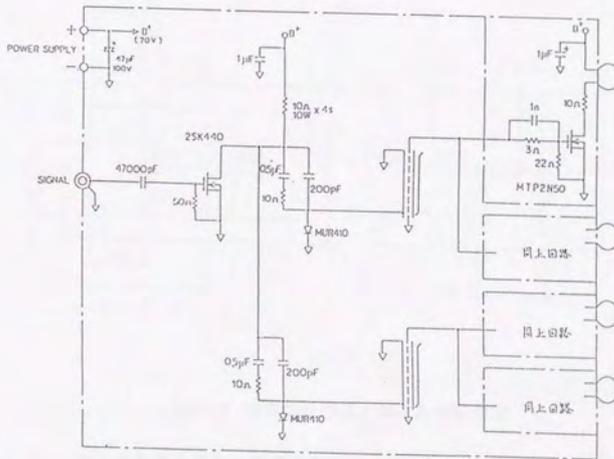
## ② トランジスタ増幅式電流増幅装置

源パルス信号に対する電流増幅には、外部に電流増幅用の電源を用意し、高速トランジスタをスイッチングモードで動作させ、源パルス信号を増幅する方法を採用した。初期型(Type1)の装置にはMTP2N45を、改良型(Type2)にはMTP2N50を利用した。[図6・2(a)参照]増幅された電流のrise-time、及びfall-timeは、パルス電流増幅部の回路[特に磁場発生用のコイル部]のインダクタンス $L$ と回路に特有な抵抗 $R$ との間に $\tau \propto L/R$ の関係が成り立つため、rise-time、fall-timeをできるだけ小さくするように磁場発生用のコイルには、銅でできた1巻きの空芯コイルを用い、内径を可能な限り小さくすることで $L$ の値を抑えることにした。実際の装置では、初期型(Type1)で、コイル内径10mm、抵抗1 $\Omega$ 、改良型(Type2)で、コイル内径7mm、抵抗10 $\Omega$ として作製を行った。[rise-time、fall-timeをより高速に行うため、トランジスタ増幅回路へ源パルス信号が入力される前に抵抗とコンデンサにからなるスイッチング回路<sup>2</sup>を通すようにした。]トランジスタ動作時の発熱の問題は、トランジスタ増幅回路を銅でできたヒートシンク上に配置し、そのヒートシンクに対し、温度調整可能な循環水を流し、冷却することで解決を計った。また、単体のトランジスタ増幅回路では、欲しい磁場強度が高速トランジスタの耐電流値の制限[5A前後]から得られないため、磁場発生部は、トランジスタ増幅回路を4つ並列に配置することにした。[図6・2(b)参照]このようにすることで、コイルがヘルムホルツコイルを成すように配置され、結晶に磁場を一様に印加することも可能になる。図6・3には、装置(Type2)の外形、及びコイルの配置図を示す。

<sup>2</sup> スwitchング時間を改善する回路で、ベース抵抗 $R$ と並列に配置されるコンデンサ $C$ から構成される。スイッチの立ち上がりの時、コンデンサを通して電流がバイパスされ大きな電流が流れる。立ち下がりの時には、コンデンサに蓄えられた電荷により強制的に逆バイパスされるため、立ち上がり、立ち下がり時間がそれぞれ改善される。



(a)



(b)

図6・2 電流増幅部回路図

(a) : トランジスタ増幅部 (b) : 電流増幅部全回路図 [Type2]

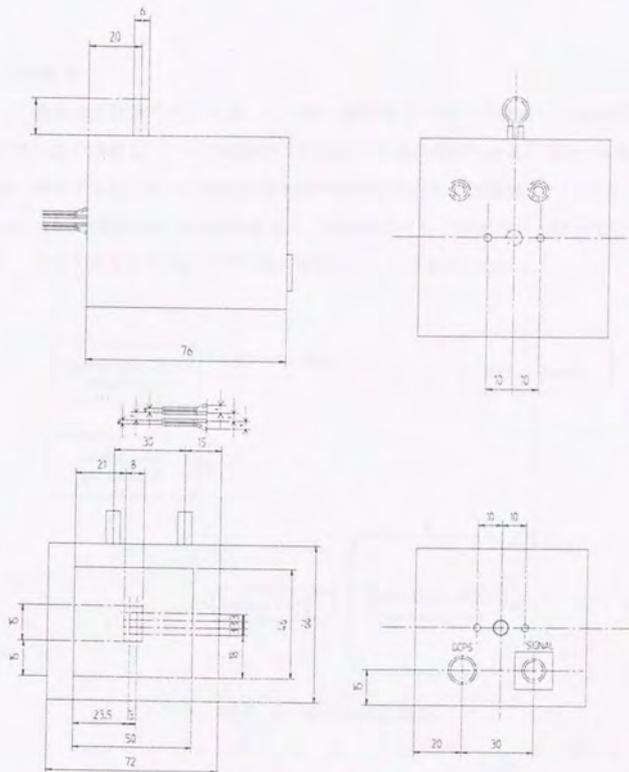


図6・3 装置の外観図とコイルの配置図

## 6.2 パルス磁場発生装置の性能評価

作製されたパルス磁場発生装置[作製は、東京電子(1DX)に依頼]の波形が実験に必要な条件を満たしているかどうかを調べるために、パルス磁場発生装置の磁場発生部にサーチコイルを差し込み、サーチコイルに生じる誘導電圧を演算機能付きの高速オシロスコープ[HP54522A]で積分波形の観測を行った。

## ① 測定法

波形発生装置でパルス幅、くり返し周波数を決定した源パルス信号を電流増幅装置で増幅し、パルス磁場を4つのコイル中に発生させる。[図6・4参照]サーチコイルは、コイルの中心軸上の中点付近での発生磁場強度、rise-time、fall-timeを観測するように配置した。サーチコイルで検出された誘導電圧信号は、デジタルオシロスコープで積分波形 $I(t)$ として観測される。<sup>3</sup>

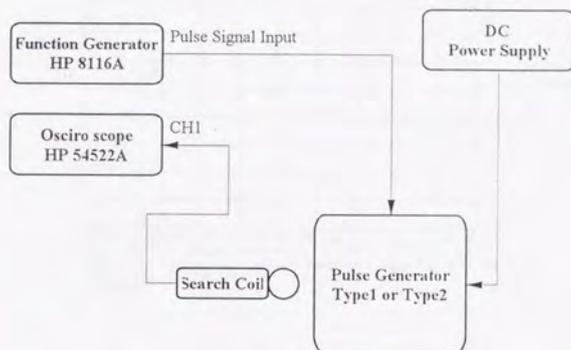


図6・4 測定時の回路系

## ② 評価の結果

装置の評価結果を、初期型(Type1)[1992年度完成分]と改良型(Type2)[1994年度完成分]二つの装置について示す。

1：初期型(Type1)の評価 [MTP2N45使用、コイル内径=10mm、抵抗=1Ω]

<sup>3</sup> サーチコイルの半径  $r$  [m]、オシロと発生磁場強度  $H(t)$  [Oe] と間に式(1)が成り立つことを利用し、磁場強度波形へと変換された。

$$H(t)[\text{Oe}] = \frac{I(t)}{\pi r^2} \cdot 10^4 \quad (1)$$

ここで、 $I(t)$ は誘導電圧  $V(t)$  [V]の積分値であり、 $I(t) = \int_0^t V(t) dt$ である。

装置パラメータとして、直流電源電圧25.5V、入力パルスには、HIL=5V、LOL=0V、パルス幅400ns、くり返し周波数132KHzとし、トランジスタ増幅部に流す冷却水はAR-NE3 [第7章参照] 備え付けの冷却水を利用した。[温度調整はできない。]サーチコイルには、エナメルでコーティングされた銅線 [内径=8.00mm] を利用して測定した。図6・5に観測された磁場波形を、表6・1に評価結果を示す。

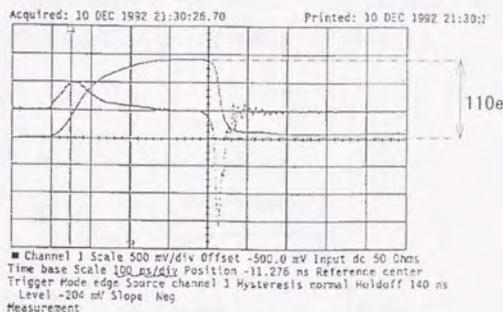


図6・5 サーチコイルで観測された磁場波形

最大磁場強度	Rise Time	Fall Time	使用可能なデューティー比
11 Oe	180ns	25ns	5%以内

表6・1 評価結果

表6・1の結果から分かるように、この装置では、Fall-Timeを利用した実験が辛うじて可能な程度にしかなかった事が分かる。この原因は、磁場発生用のコイルの内径を大きく取りすぎたことと、抵抗値が小さすぎたことであると考えられる。そこで、この評価結果を基にコイルの内径を7mmまでに絞り、抵抗値を10Ωへと改良を加えることにした。

2：改良型[1994年完成分]の評価[MTP2N50使用、コイル内径=7mm、抵抗=10Ω]

装置パラメータとして、直流電源電圧を65Vに設定し、入力パルスには、HIL=8V、LOL=0V、パルス幅200ns、くり返し周波数200kHzとし、トランジスタ増幅部に流す冷却水には温度調整の可能なサーキュレータを利用して水冷を行った。サーチコイルにはエナメルコーティングされた銅線[内径=3.90mm]を利用して測定した。図6・6に観測された磁場波形を示す。表6・2に評価結果を示す。なお、表6・2の使用可能なデューティー比は、くり返し周波数を変化させた時、増幅部に発熱が0.5h以上起こらないことが確認できた時の値を示した。

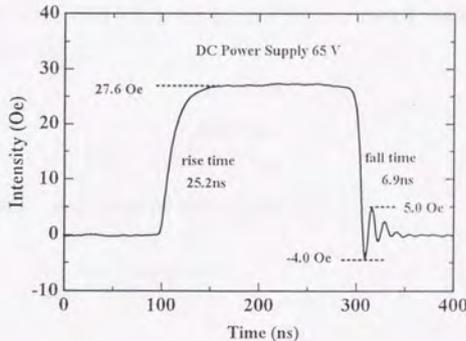


図6・6 観測された改良型装置の磁場波形

最大磁場強度	Rise Time	Fall Time	使用可能なデューティー比
27.6 Oe	25.2ns	6.9ns	10%以内まで安定動作確認 [水冷温度50°]

表6・2 評価結果

表6・2の結果からも分かるように、この装置は、磁場強度27.60e、rise-time=25.2ns、fall-time=6.9nsとなっており、コイル部のインダクタンスの低

減化と抵抗の増加の効果が顕著に現れたといえる。また、冷却水を温度調整可能にすることで使用可能なデューティー比を10%程度にまで引き上げることにも成功した。

### 6.3 評価結果のまとめ

反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ に磁気的変調を加えた場合のX線核共鳴散乱の時間発展過程を研究するために必要なパルス磁場発生装置の開発、及び、装置の性能評価を行った。その結果、[改良型]パルス磁場発生装置の発生磁場波形の立ち上がりは、25.2nsと若干遅いものの、立ち下がり時間は6.9nsとなっており、 $^{57}\text{Fe}$ の崩壊時間[約144ns]よりも十分速く、核スピンのラーモア回転周期[約10ns]に比べても速い特性を持っており、散乱体の磁化を $180^\circ$ 反転することにも十分な強度を持ったパルス磁場を発生できることが示され、本装置が実験に使用可能であることが示された。

### 参考文献

/1/ O. S. Kolotov, et. al: Instrum. EXP. Tech. 26 (1983) 347

## 第7章 放射光施設についての概要

第7章では、放射光ARと核共鳴散乱の実験用ビームラインU#NE3に関して、真空封止型アンジュレータ装置、X線光学系、精密ディフラクトメータ、及び高分解能モノクロメータについて概説する。また、入射X線波長を核共鳴エネルギーへチューニングする方法についても簡単に説明する。

### 7.1 放射光(AR)について

ARは本来、高エネルギー実験用メインリング(トリスタン)への入射粒子を加速するために作られたもので、加速エネルギーは6.5 GeVにも達する。1990年秋より、この加速リングの放射光利用が行われており、放射光利用モードにおいては6.5 GeVで電子を加速し、恒常的にシングルバンチモードで運転されている。その放射光パルス周期は、1.26  $\mu$ sでパルス幅は、100ps程度となっている。実験中、直線加速器からの入射は約2時間おきで行われ、電流は入射直後約30mA、ビームダウン時で15~13mA程度になる。表7.1にはARのリングパラメータを示す。

加速エネルギー	$E$	6.5 [GeV]
リング蓄積電流	$i$	30 [mA]
水平方向エミッタンス	$\epsilon_x$	$1.6 \times 10^{-7}$ [mrad]
垂直方向エミッタンス	$\epsilon_y$	$1.6 \times 10^{-7}$ [mrad]
ビーム内電子のエネルギー広がり	$\sigma E/E$	$1.15 \times 10^{-3}$
水平方向の電子ビーム径	$\sigma_x$	1.24 [mm]
垂直方向の電子ビーム径	$\sigma_y$	0.12 [mm]
水平方向の電子ビームの発散	$\sigma'_x$	0.258 [mrad]
垂直方向の電子ビームの発散	$\sigma'_y$	0.0179 [mrad]

表7.1 ARのリングパラメータ値

## 7.2 真空封止型X線アンジュレータ

ARは、実験的に即した数本のビームラインで構成されている。ここでは本実験で利用したビームラインAR-NE3の特徴について解説する。ビームラインAR-NE3は、主に核共鳴散乱と、表面界面の分析を目的とした約5~25KeVの光子を利用できる真空封止型準単色高輝度アンジュレータ光源となっている。/1/ 表7.2にはこのアンジュレータの装置パラメータを示す。

Period Length	4 [cm]
Number of Periods	90
K	0.13~3.1
$B_0$	360~8200 [G]
Minimum gap	1.0 [cm]
Maximum gap	5.0 [cm]
Magnet Structure	Pure Type
Magnet material	NdFeB (Ni plated)
Total surface area of magnet	$3.7 \times 10^4$ [cm <sup>2</sup> ]
Vacuum chamber size	60 [cm] (inner diameter) x 410 [cm] (Length)
Total surface area inside	$30 \times 10^4$ [cm <sup>2</sup> ]
Pumping speed	
Nonevaporable getter pumps	3600 [l/s]
Sputter ion pumps	900 [l/s]

表7.2 アンジュレータU#NE3のパラメータ

アンジュレータ放射の光子エネルギーは、一般に(7-1)式で与えられるため、光子エネルギーを大きくするためには電子の相対論的エネルギー $\gamma$ を大きくし、アンジュレータの磁場の周期 $\lambda_0$ を短くすればよい事が分かる。/2/

$$n \text{ 次の放射エネルギー: } E_n = 2.48 \times 10^{-7} \cdot \frac{n\gamma^2}{\lambda_0[\text{cm}] \cdot \left(1 + \frac{K^2}{2}\right)} \quad (7-1)$$

ここで、 $K$  (偏光定数)は  $K=0.934 \times B_0(\text{T}) \times \lambda_0(\text{cm})$  [ $B_0$ は周期磁場のピーク値]で定義される放射特性を決めるパラメータであり、準単色高輝度放射を行わせる場合、 $K$ の値は1に近い値を取られなければならない。上式から、ARの6.5 GeVの高加速エネルギーがX線領域の放射を得るために非常に有効であることがわかる。例えば、 $\lambda_0=4\text{cm}$ としたとき、 $K=1.47$ の場合、3次光として $^{57}\text{Fe}$ の核共鳴エネルギー14.4KeVが得られる。図7・1には計算されたAR-N E3のブリリアンスを示すが、偏光電磁石より発生されるX線より約2桁強くなるのがわかる。

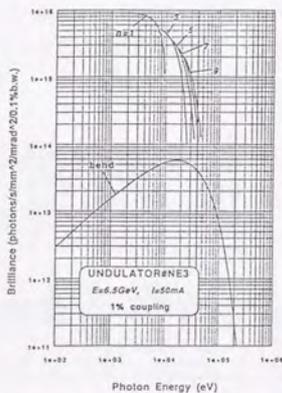


図7・1 計算されたアンジュレーターU#NE3のブリリアンス/3/

ところで、このように短い周期長でアンジュレータ放射として意味のある $K$ 値(0.5~3.0程度)を得るためには、近年永久磁石の性能が向上したとはいえ、アン

ジュレータ磁石列ギャップ<sup>1</sup>を非常に狭くする必要がある。 $B_0=4\text{KG}$ で $K=1.47$ を達成するためには、ギャップを20mm程度にまで閉めねばならず、これを真空ダクトの外に磁石列を配置する従来型のアンジュレータで実現しようとする、蓄積リング電子に許される開口を5mm程度に固定しなくてはならず、ARの運転が困難になる。この問題を解決するために、アンジュレータU#NE3では真空封止した永久磁石列を真空槽内に収納する方式[インバキューム方式]を採用している。この方式では電子ビームに対するアンジュレータの開口を運転の状態に応じて自由に変更できるので、入射、及びトリスタン運転時にはギャップを広げて開口を大きくとり放射光利用時にはギャップを閉じて必要なエネルギーの放射を取り出すようになっている。

### 7.3 ビームライン・X線光学系

アンジュレータU#NE3の放射を導くビームラインBL-NE3の構成を図7.2に示す。/4/

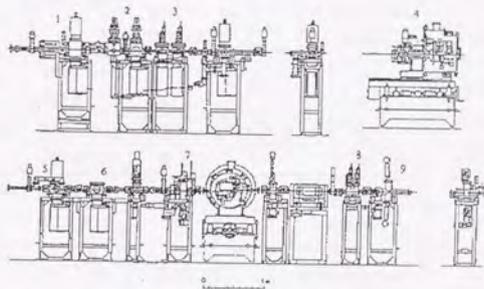


図7.2 ビームラインBL-NE3の構成図

- 1 : 固定マスク、ポジションモニター 2 : 放射光アブソーバー 3 : 放射光シャッター  
4 : 二結晶モノクロメータ 5 : グラファイト吸収板 6 : ベリリウム窓  
7 : 水冷部 8 : X線シャッター 9 : XYスリット

<sup>1</sup> 永久磁石には住友特殊金属社製NEOMAX33SHを用い、リングを超高真空に保つために $25\mu\text{m}$ のNiメッキが施されている。また、磁石列ギャップは、50mm [ $K=0.13$ ] から10mm [ $K=3.1$ ] まで変更可能であり、それのともない5-25KeVのX線が生成可能となっている。

主なビームライン素子は上流より、固定マスク、放射光アブソーバー、グラフィットアブソーバー、ベリリウム窓、XYスリット、ビームラインモノクロメーターで構成されている。固定マスクは輸送路最上流にあり放射光の受け入れ角を制限する。これにより輸送路は放射光の直射より保護され、放射光による熱負荷で下流の素子が加熱破損することを防いでいる。グラフィットアブソーバーは数KeV以下の低エネルギーフォトン吸収することでアンジュレータ放射の高い熱負荷よりベリリウム窓及びモノクロメータを守っている。ベリリウム窓は実験ステーションの比較的真空度の低い環境条件が、超高真空を維持しているリングの真空に悪影響を与えないために設置されている。XYスリットはビームサイズを制限し、実験に必要なサイズのX線を実験ステーションに提供している。表7・3には各ビームライン素子の熱負荷及びビームサイズを示す。

Elements	Total power (W)	Peak power density (kW/mrad <sup>2</sup> )	Distance from source point (m)	Peak heat flux on the element (W/mm <sup>2</sup> )	Beam size hori. x verti. (mmxmm)
Fixed Mask	740 (K=1.47)	8.5	9.0	105	4.9x0.8
	2500 (K=2.7)	27.3		337	
Synchrotron absorber	740 (K=1.47)	8.5	9.5	94	9.5x0.9
	2500 (K=2.7)	27.3		302	
1st Graphite absorber (t=0.1mm)	86 (K=1.47)	0.99	17.5	3.2 (32W/mm <sup>3</sup> )	9.5x1.6
	165 (K=2.7)	1.8		5.9 (59W/mm <sup>3</sup> )	
1st Beryllium Window (t=0.2mm)	25 (K=1.47)	0.28	18	0.88 (4.4W/mm <sup>3</sup> )	9.7x1.7
	38 (K=2.7)	0.41		1.3 (6.4W/mm <sup>3</sup> )	
XY slits	560 (K=1.47)	6.4	19.5	17	10.5x1.8
	2160 (K=2.7)	24		62	
Monochromator 1st crystal	560 (K=1.47)	6.4	20.5	15	11.1x1.9
	2169 (K=2.7)	24		56	

表7・3 ビームライン素子の熱負荷およびビームサイズ(6.5GeV, 50mA)

第一モノクロメータはアンジュレータの下流2.1 mの位置に設置され、分光は(+-)に配置した2枚のSi(111)の入射角を変化させて行う。一枚目の分光結晶であるサイズ40x50mm<sup>2</sup>のSi(111)は温度の上昇を抑えるためSiへの直接水冷を行っている。ビームラインモノクロメータ全体はヘリウムを満たしたチェンバーで覆われ、第一結晶と第二結晶の平行はレーザーによるオートコリメーターで絶えずモニターされている。図7.3にNaIシンチレーションカウンターを用いて測定されたアンジュレータ光のスペクトルを示す。この時のアンジュレータギャップは19.6 mmであり、三次のピークが<sup>57</sup>Feの共鳴エネルギー14.4 KeVとなる条件となっている。<sup>2</sup>

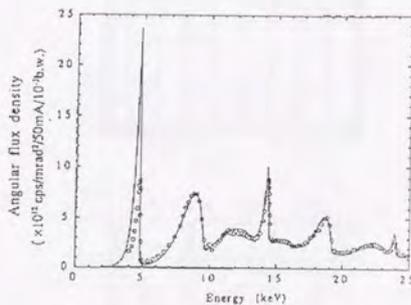


図7.3 測定されたアンジュレータ光のスペクトル

#### 7.4 核共鳴散乱実験用の精密ディフラクトメータ

核共鳴散乱の実験では、様々なタイプの実験が行われるため、回折計は標準化されたものでなくてはならない。このためNE3に設置されたディフラクトメータには工夫がなされている。/5/ここではディフラクトメータを構成する定盤、及び精密ゴニオメータについて説明しておく。

<sup>2</sup> 14.4KeVへのより正確なエネルギーチューニングはSi(840)面を利用したボンド法により行われる。

## ① 定盤

実験テーブルに取り付けられた標準的なXYステージ上にマウントされたゴニオは全てZ軸移動できるものとなっている。実験テーブルの外形を図7・4に示す。ゴニオメータをマウントするための4組のxy移動ステージ(A、B)が鉄製のベースの上にマウントされている。テーブルの傾斜、高さは、8個のスクリュー(D)で調整が可能となっている。テーブルの回転中心軸は(E)である。また、スクリュー(F)により入射ビームとの平行化が計れるように設計されている

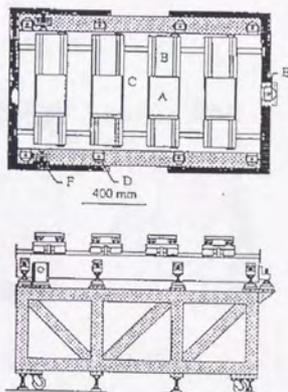


図7・4 実験テーブル外観図

A: X軸ステージ B: Y軸ステージ(ビームの方向) C: 鑄鉄製のベース  
D: 高さ調整用のスクリュー E: ピボット F: ビームとの平行調整用スクリュー

## ② 精密ゴニオメータ

ゴニオメータは、ステッピングモータで移動可能<sup>3</sup>なZ軸ステージにXステー

<sup>3</sup> ゴニオメータの移動、回転用に各部に配置されたステッピングモータはチャンバーからPCにより制御が可能となっており、ロッキングカーブの測定等の自動化が計られている。

ジを固定した形でマウントされる。Z軸ステージは最少 $0.5\mu\text{m}$ 刻みで $25\text{mm}$ の移動が可能となっている。大きな高さ調整が必要な場合は、z軸移動ステージとゴニオのx軸ステージとの間にロッドを入れて調整することができる。また重いゴニオメータをスムーズに上下移動できるようにZ軸ステージにはspiral-springが使用されている。

一般的目的のために、高精度ゴニオメータと $\omega$ - $\theta$ ゴニオメータが準備された。この内、高精度ゴニオメータとして一軸と二軸で回転可能なものが準備された。ここでは、これらゴニオメータについて説明する。

a : 一軸精密ゴニオメータ

一軸精密ゴニオメータの外観図を図7・5に示す。

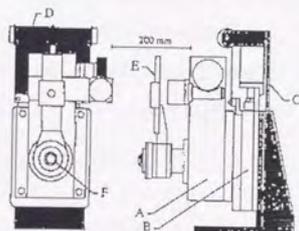


図7・5 タンジェンシャルタイプの高精度ゴニオメータの外観図

A : 高精度ゴニオメータ B : Z軸ステージ C : サポート板  
D : スパイラルスプリング E : ディテクターアーム F : 回転テーブル

高精度ゴニオメータはマイクロメータヘッドで固定されたタンジェンシャルバー機構を介し、ステッピングモータで移動可能なウォームギアで一軸に対し回転が可能になっている。回転は最少で $0.005$ 秒で $\pm 3^\circ$ の範囲で可能となっている。このゴニオメータは主にシリコン結晶の高角の反射を利用したバンド幅のコントロール装置や完全結晶を利用したデバイス、核共鳴散乱の後に配置されたX線干渉計等で使用される。

b : 二軸精密ゴニオメータ

二軸精密ゴニオメータの外観図を図7・6に示す。

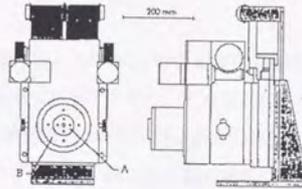


図7・6 タンジェンシャルタイプの二軸高精度ゴニオメータの外観図

A : 回転テーブル (内側) B : 回転テーブル (外側)

二軸高精度ゴニオメータはマイクロメータヘッドで固定されたタンジェンシャルバー機構を介し、ステッピングモータで移動可能なウォームギアで二軸に対し回転が可能になっている。回転は、最少で0.0025秒で $\pm 3^\circ$ の範囲で可能となっている。このゴニオメータは主に後述の高分解能モノクロメータ等で使用される。

c :  $\omega$ - $\theta$ ゴニオメータ

$\omega$ - $\theta$ ゴニオメータの外観図を図7・7に示す。

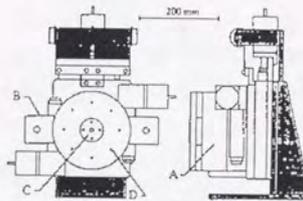


図7・7  $\omega$ - $\theta$ ゴニオメータの外観図

A : 二軸ゴニオメータ B : デテクターアーム C : 回転テーブル D : 固定テーブル

このゴニオは、ステッピングモータにより両軸とも全周回転が可能である。最少の回転角は、 $\omega$ が $0.0001^\circ$ 、 $2\theta$ が $0.0002^\circ$ となっている。このゴニオメー

々は、核共鳴散乱の実験で一度の実験で異なる反射面を利用したい場合のような大きな角度変化が必要な実験で使用される。

### 7.5 高分解能モノクロメータ

核共鳴散乱の実験では、入射光をmeVの程度に単色化することに非常にメリットがある。電子散乱のバックグラウンドを劇的に減少できるからである。meVオーダーの分解能を実現するためには、Siの高次の反射が利用されることが多いが、ブラッグ角が $90^\circ$ に近い高次の反射の場合はそのままでは、ビームの受け入れ発散角が非常に小さくなる。そこで現在AR-NE3では $^{57}\text{Fe}$ 核励起用プリモノクロメータとして、一枚目に(420)面の非対称反射を利用し、二枚目に(1222)面の対称反射を利用した2枚のSiチャンネルカットモノクロメータ<sup>4</sup>が使用されている。[(+n, -m, -m, +n)配置を利用して高エネルギー分解能を達成している。]このモノクロメータの特徴は、(420)非対称反射が広い受入発散角を持ち、狭い発散角で出射できる事を利用し、このビームを高次反射(1222)に入射することで入射ビームを無駄なく利用できる所にある。発散の抑えられたビームは最終的には(420)の非対称反射でもとの発散角度に戻される。図7・8には、このプリモノクロメータの外形図を示す。このモノクロメータで、入射ビームの受け入れ角約5秒取れると同時に6meV程度までの分光が可能になる。

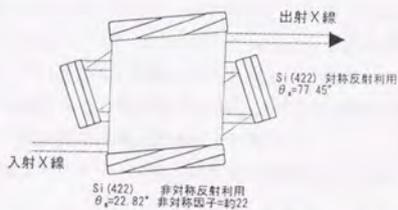


図7・8 広い受け入れ角を持つ高分解能モノクロメータ

<sup>4</sup> 最近では、分光用結晶にSi、Ge以外の元素利用を可能とし、自由な結晶配置をとることのできる分離型4結晶モノクロメータが開発されつつある。

本研究では高分解能モノクロメータは、核共鳴前方散乱の実験で使用された。

### 7.6 共鳴エネルギーへのチューニング

実際の実験では、入射X線の波長を共鳴エネルギーに合わせる作業を行わなくてはならない。ここでは高分解能モノクロメータを利用した核前方散乱の場合について $^{57}\text{Fe}$ の共鳴エネルギー14.4KeVに入射X線の波長を合わせる方法を簡単に説明する。/6/波長合わせは以下の手順で行われる。

- ① アンジュレータの3次の高調波が14.4KeVでピークを持つように磁石列ギャップが閉じられる。 $^{57}\text{Fe}$ の場合ギャップパラメータは20mm前後に設定される。
- ② ハッチ内に(十一)平行配置した2枚のSi(111)からなる上流モノクロメータを14.4KeVのエネルギーに対して、およその回折角度位置に合わせた後、Si(840)反射面を利用したボンド法<sup>5</sup>によりエネルギーチューニングの微調整を行う。この時、ゴニオメータのビームに対する平行出し、Si(840)のあおり調整を正確におこなっておく。
- ③ 高分解能モノクロメータSi(422)xSi(1222)をそれぞれ一軸高精度ゴニオメータと二軸高精度ゴニオメータ上にマウントし、各反射面を探す。この場合もゴニオメータのビームに対する平行出しと各モノクロメータのあおりの調整を正確におこなっておく。
- ④ 高分解能モノクロメータから出射X線について、再度Si(840)によるボンド法により、エネルギーチューニングの微調整を行う。
- ⑤ この後、 $^{57}\text{Fe}$ を含んだ試料をビームパス上に配置し、試料後方に高時間分解能をもつ検出器(例えば、APD:時間分解能200ps)を配置、核共鳴の時間遅れ成分を計測する。
- ⑥ 高分解能モノクロメータの入射角度を相関をとりながら少しずつ

5 ボンド法は、通常、入射X線の波長を精密に決定されているとして、単結晶の格子定数を精密測定する方法を指すが、ここでいうボンド法では、室温でのSiの格子定数が既知のものであると考え、屈折率の補正を加えた時、Si(840), Si(480)反射の回折角度差が $^{57}\text{Fe}$ 共鳴エネルギー( $\lambda=0.86025\text{\AA}$ )に対し、736秒となることを利用し、入射X線の波長の決定に利用している。/7/

変化させ、核共鳴散乱が検出されるまで出射X線のエネルギーを  
スキャンしてゆく。

- ② 核共鳴散乱の時間遅れ成分を観測した後、再度ハッチ内のSi  
(111)に対するX線の入射角度を微調整し最適な角度位置を探す。

#### 参考文献

- /1/ S. Yamamoto, X. Zhang, H. Kitamura, T. Shioya, T. Mochizuki, H. Sugiyama,  
M. Ando, Y. Yoda, H. Takei and S. Kikuta: J. Appl. Phys. 74 (1) 1 (1993) 500  
/2/ 菊田惺志 X線回折-散乱技術(上)(物理学実験1992)東京大学出版会  
/3/ 北村英男 放射光実験施設挿入光源ハンドブック('90) KEK Report 89-24  
/4/ X. W. Zhang, T. Mochizuki, H. Sugiyama, M. Ando, Y. Yoda, C. K. Suzuki,  
T. Ishikawa and Kikuta Rev. Sci. Instrum. 63 (1992) 404  
/5/ T. Ishikawa, Y. Yoda, K. Izumi, C. K. Suzuki, X. W. Zhang, M. ando  
and S. Kikuta: Rev. Sci. Instrum. 63 (1) (1992) 1015  
/6/ 正田光広 東京理科大学(基礎工学-材料工)修士論文(平成4年)  
/7/ W. L. Bond, Acta Crystallog. 13, 814 (1960)

## 第8章 高周波磁場印加による追跡

第8章では、高周波磁場印加に伴う反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶への磁気弾性波の共鳴励起が結晶性に与える影響と、この結晶性が核共鳴ブラッグ散乱に与える影響を調べた実験について詳述する。この実験では、結晶性の变化を放射光のパルス特性を生かしたX線ストロボグラフィにより時分割観測した。また、高周波磁場が印加された場合と印加されなかった場合の核ブラッグ散乱の回折強度曲線の比較により、回折強度への影響が調べられた。結果的に、磁気弾性波が励起された場合の $^{57}\text{FeBO}_3(444)$ 面のトポグラフィには、周期性を持った2次元のパターンを持つコントラストが観察され、そのコントラストが外場の2倍周期で変化することが初めて視覚的に示され、共鳴モードが、Plane-Modeの一つであることが明らかとなった。また、純核ブラッグ反射面 $^{57}\text{FeBO}_3(333)$ からの回折強度曲線の測定では、高周波磁場が印加された場合の核ブラッグ散乱線の回折強度が定常磁場のみが印加された場合の回折強度に比べて著しく増加することが示された。

### 8.1 はじめに

メスパウアー核 $^{57}\text{Fe}$ を含む高品位な反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶は、放射光を超単色化するための核モノクロメータとして非常に有益な光学素子の一つである。一方、既に第4章で述べたように、この結晶は、外部から0.5–10MHzの周波数を持った振幅数0e程度の高周波磁場を(111)面に平行に印加する事で磁気弾性波<sup>1</sup>が共鳴的に励起される。そこで、我々は、 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶に磁気弾性波が共鳴的に励起された場合、結晶の完全性にどのような変化が生じ、核共鳴ブラッグ回折強度にどのような影響を与えるかを調べることにした。実験では、外部より印加された高周波磁場により磁気弾性波が共鳴励起された $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶の完全性を調べるために、放射光のパルス特性を利用したX線ストロボグラフィ

<sup>1</sup>  $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶は、高周波磁場が印加されると磁歪変形を起こす。/2/この結晶変形に伴う結晶への周期的な応力変化が磁気弾性波の起振力になる。

フィー<sup>2</sup>の方法をブラッグ配置で用い、時分割像の記録を行った。一方、磁気弾性波励起による結晶変形が、核共鳴ブラッグ散乱の回折強度に与える影響を調べるため、磁気弾性波が励起されている場合と励起されていない場合の純核ブラッグ反射面<sup>57</sup>FeB<sub>3</sub>O<sub>3</sub> (333)からの回折強度曲線の測定を行い、比較を行った。

## 8.2 実験、及び結果

実験は、高エネルギー研究所、トリスタンAR-NE 3の高エネルギー分解能スペクトロメーターを利用して行った。〔第7章参照〕この蓄積リングは、インバキューム式のアンジュレーターで、恒常的に単バンチモードで運転されている。パルスの周期は、1.2584  $\mu$ sでパルス幅は、100ps程度と非常に短く、放射光パルスに周期的な励起信号の位相をロックさせることで、794.6575KHzの整数倍の周波数を持った現象に対し、パルス幅に対応する時間分解能を持ったX線ストロボトポグラフィの実験が可能となる。<sup>3</sup> 実験で使用したサンプルである<sup>57</sup>FeB<sub>3</sub>O<sub>3</sub>単結晶は、物性研究所武居研究室においてフラックス法で育成された。育成された<sup>57</sup>FeB<sub>3</sub>O<sub>3</sub>単結晶は、<sup>57</sup>Fe同位体を95%エンリッチされており、縦横4.2x6.2mm<sup>2</sup>、厚さ63.9  $\mu$ mの平板で、結晶表面は(111)面に平行であった。〔第4章参照〕

最初に、ブラッグ配置でのX線トポグラフィによる結晶評価を行った。実験配置を図8.1に示す。アンジュレータからの入射X線の波長<sup>4</sup>は、磁石列ギャップを調節することで $\lambda=0.86\text{\AA}$ に同調された<sup>5</sup>。X線の散乱面に平行な発散角は、Si(111)対称反射(+)平行配置の二結晶モノクロメーターにより、4"程度に抑

<sup>2</sup> 高周波現象下にある結晶性研究の非常に有効な実験方法で、これまでに、ATクオーツの弾性波やLiNbO<sub>3</sub>の表面弾性波等の音響波について研究がなされている。/3/4/高周波磁気弾性波は、ストロボトポグラフィの一連の研究の対象として取り上げられたことがない。この点からも本実験は興味深い。(低周波数帯域での磁壁移動を調べる研究がMilitat達により報告されている。/5/)

<sup>3</sup> ストロボトポグラフィの時間分解能は放射光X線のパルス幅で決まる。

<sup>4</sup> 入射X線は、この実験での光学系に対して $\sigma$ 偏光している。

<sup>5</sup> この波長は、このアンジュレーターの3次の高調波として得られる。

えられ平行化がなされた<sup>6</sup>。サンプルは、高周波磁場の影響を受け難いアクリル性のサンプルホルダーにマウントされ、外部から結晶の磁化を飽和させるに十分な定常磁場150eが(111)面に平行に、散乱面に垂直に印加された。サンプルホルダーからのバックグラウンドノイズを避けるため、スリット1、2を調節することによりクロスセクションのサイズは、 $3.0 \times 7.5 \text{ mm}^2$ に制限された。<sup>7</sup>X線は、 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶に入射した後、電子散乱の許容な $^{57}\text{FeBO}_3(444)$ によりブラッグ反射される。<sup>8</sup>実験では、放射光の大強度による破壊を避けることを目的に、PINダイオードを検出器として利用した。<sup>9</sup>トポグラフ撮影時には、PIN検出器の前にX線フィルム(フジ80番)を配置した。トポグラフは、ロッキングカーブの3つの角度位置 1)ピーク位置 2)高角側の半値位置 3)低角側の半値位置で撮影された。図8・2には、観測されたロッキングカーブとトポグラフをそれぞれ示す。

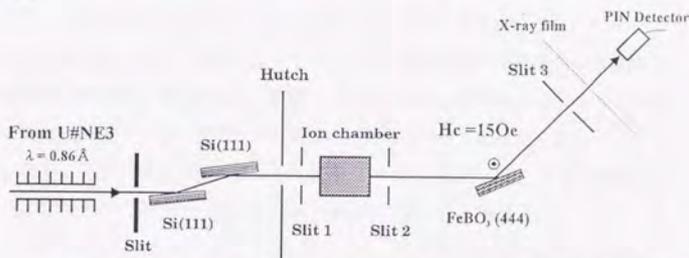


図8・1 定常磁場下での $^{57}\text{FeBO}_3(444)$ 面のトポグラフ撮影時の実験配置図

- <sup>6</sup>  $\lambda = 0.86 \text{ \AA}$ の高調波を避けるため、二結晶モノクロメータは、わずかにデチューンされた。  
<sup>7</sup> このビームは、本実験の幾何学的配置で、結晶全体を照射するに十分なサイズであった。  
<sup>8</sup>  $^{57}\text{FeBO}_3(444)$ のブラッグ角は、 $\theta_B = 20.857^\circ$   
<sup>9</sup> PIN検出器は、検出可能な入射X線強度に対し、広いダイナミックレンジを与える。  
 [NaIシンチレーション検出器の飽和限界が $10^4 \text{ cps}$ に対し、PIN検出器は、 $10^9 \text{ cps}$ 以上のダイナミックレンジを与える。]

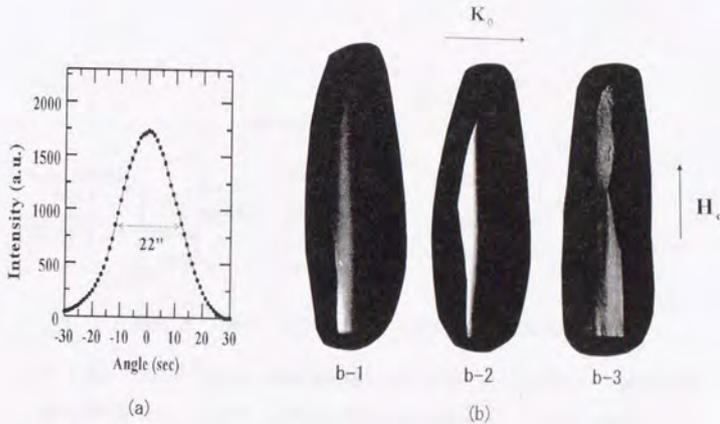


図8・2  $^{57}\text{FeB}_0_3(444)$ 面からのロッキングカーブとX線トポグラフ

(a): 全面照射ロッキングカーブ (b):  $^{57}\text{FeB}_0_3(444)$ 面のトポグラフ  
b-1: ピーク位置 b-2: 高角側半値位置 b-3: 低角側半値位置で撮影

図8・2 (a)からわかるように、ロッキングカーブは、対称的な形をしており、その半値幅は、約22"程度となっていた。この実験配置での理論的な半値幅が約5-6"である事を考慮すると、実験で得られた値は比較的良好な値となっており、この結晶がストロボトポグラフの実験を行うのに十分な結晶性を有しているといえる。一方、得られたトポグラフ図8・2 (b-1)、(b-2)から、X線の結晶から強く回折される部分は、幾つかの小さな領域に限られる事が分かる。また、図8・2 (b-3)から分かるように、ロッキングカーブの低角側の半値位置で撮影されたトポグラフは、比較的低い反射率ながら、結晶のかなり広い領域からの回折像を得ることができる事が分かる。<sup>10</sup> 続いて、X線ストロボトポグラフの実験を行った。実験配置を図8・3に示す。実験配置は、X線入射と印加される高周波磁場との間の位相ロッキングの調整用装置の追加を除いて、定常磁場下での実験と同じである。

<sup>10</sup> このことは、結晶の広い範囲に僅かな歪曲があることを意味している。また、ストロボトポグラフの実験で、結晶変形の全体像を観察したい場合、ロッキングカーブ低角側反値位置でのトポグラフを撮影すればよいこともわかる。

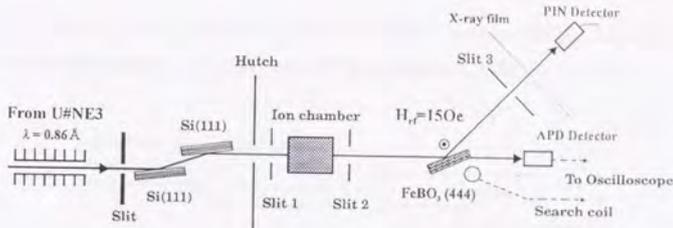


図8・3 X線ストロボトポグラフ撮影時の実験配置図

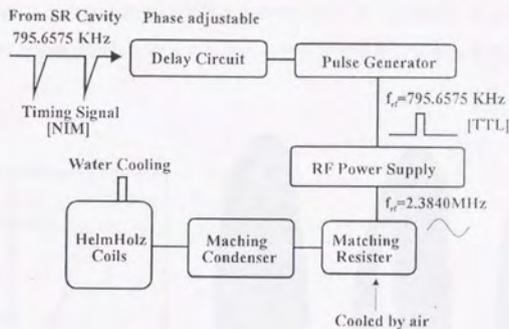
図8・4 (a), (b)に $^{57}\text{FeBO}_3$ に高周波磁場を印加するために利用された電気回路と磁場波形を示す。この時、高周波磁場発生装置のタイミング用の信号として、蓄積リングのキャビティーの794.6575KHzのラジオ周波数が用いられた。キャビティーからのタイミング用の信号は、位相ロッキングを可能にするため遅延回路を経由させ、パルスジェネレーターにより、NIM信号からTTL信号へと変換された後、高周波電力発生装置のタイミング信号として利用される。<sup>11</sup>磁場は20mmの直径を持つヘルムホルツコイルにより発生させ、サンプルの表面に平行、散乱面に垂直に印加された。この時、コイル部での磁場の発生に伴い生じる発熱は、水冷法により抑えられた。図8・4 (b)に見られる様に、高周波磁場は、最大振幅150eの正弦波の波形で、その周波数は、約2.384MHzであった。(この値は、ARパルス周波数 $f_{AR}=794.6575\text{MHz}$ の正確に3倍になっている。)位相ロッキングの調整については、X線の入射時間の原点を決定するために、散乱体を透過してくる電子によるプロンプト散乱が利用された。<sup>12</sup>電子散乱によるプロンプト信号は、高速の時間分解能を持ったAPD検出器<sup>13</sup>により検出された。同時に、結晶に印加された高周波磁場の変化をサーチコイルに

<sup>11</sup> この高周波電力発生装置は、高周波磁場発生用のRLC共鳴回路にタイミング信号の3倍の周波数に正確に同期した電力を供給できる。

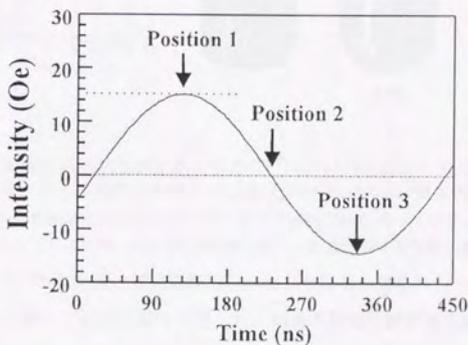
<sup>12</sup> 電子散乱は、瞬間的に起こるため、サンプルを透過してきたプロンプト散乱をX線の入射時間を決定することに利用できる。

<sup>13</sup> APD検出器の時間分解能は、100psで検出効率は約3%程度

より検出し、これらの信号をオシロスコープでモニターし、遅延回路を調節する事で高周波磁場を入射X線に対して所望の位相関係に位相ロックさせた。



(a)



(b)

図8・4 位相ロックの調整

(a) 磁場発生装置の電気回路 (b) 磁場波形とX線入射時刻の位相関係

この位相関係は、ストロボトポグラフの撮影中、十分正確に安定していた。14  
磁場波形と入射X線との位相関係を図8・4 (b)のPosition1に固定し、ロッキング  
カーブの観測とロッキングカーブの3つの角度位置 1)ピーク位置 2)高角側  
の半値位置 3)低角側の半値位置でストロボトポグラフが撮影された。図8・5  
には、このとき観測されたロッキングカーブとトポグラフをそれぞれ示す。

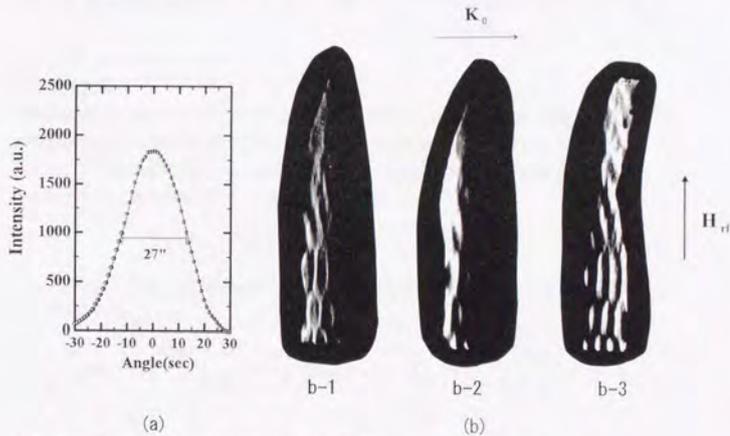


図8・5 高周波磁場が印加された場合の $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_7$  (444) 面からのロッキング  
カーブとX線ストロボトポグラフ (Position1でX線入射)  
(a): 全面照射ロッキングカーブ (b):  $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_7$  (444) のトポグラフ  
b-1: ピーク位置 b-2: 高角側半値位置 b-3: 低角側半値位置で撮影

得られたトポグラフには、定常磁場のみ印加した場合に得られたトポグラフ [図  
8・2 (b)] と比較して劇的な変化が見られ、結晶下部の外形が長方形をした部分  
に、像のコントラストの二次元的な分布が非常に鮮明に観察できた。このこと  
は、 $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_7$  結晶が、高周波磁場により磁気弾性波が共鳴的に励起され、結晶が、  
共鳴のモードに応じた変形を起こしていると考えられることで理解できる。また、  
トポグラフの像から、この機械的共鳴が、結晶を薄い板版と考えた時の共鳴

<sup>14</sup> トポグラフの撮影に必要な露光時間は、1sec以下であった。

モード<sup>15</sup>の一つであることもわかった。一方、ストロボトポグラフに見られる像のコントラストの原因としては、①ブラッグ角からのずれ ②歪んだ結晶場の効果<sup>16</sup>/6/7/が考えられる。前者の場合は、像のコントラストの時間的変化は結晶が等方的であるとすると外場の2倍の周期で変化するため、図8・4 (b)の Position 1, 2, 3でコントラストの反転が起きると予想され、後者の場合、回折ベクトル $\vec{g}$ が結晶表面に垂直で、X線の入射角が小さい[ $\theta_B=20.857^\circ$ ]とすると、

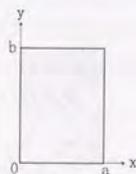
### 15 矩形膜の振動

矩形膜の両辺の長さを $a, b$ とし、下図の様に座標を取るとする。この時、座標位置 $x, y$ の面に垂直な方向への変位を表す関数 $v(x, y)$ は、振動がある場合、一般的に二重級数で表される。矩形膜の面に垂直方向への2次元的な変化の分布は、無数の共鳴モードの重ねあわせとして次式で与えられる。[縁が固定の場合]

$$v(x, y) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=1}^{\infty} \varphi_{mn}(t) \cdot \sin \frac{m\pi x}{a} \cdot \sin \frac{n\pi y}{b}$$

ここで、 $\varphi_{mn}(t)$ は、次式の微分方程式の解で与えられ、 $m, n$ を指数とする基準振動数 $f_{mn}$ で振動する。

$$\frac{w}{g} \frac{ab}{4} \ddot{\varphi}_{mn} + S \frac{ab\pi^2}{4} \left( \frac{m^2}{a^2} + \frac{n^2}{b^2} \right) \varphi_{mn} = 0 \quad f_{mn} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{gS}{w} \left( \frac{m^2}{a^2} + \frac{n^2}{b^2} \right)}$$



共鳴前の矩形膜



→ 共鳴後の矩形膜 [m=4, n=3, a=2, b=3]

- 16 通常、完全結晶からのX線回折は、動力学的な散乱により説明されるが、結晶に無視できない歪みがある場合、その部分からの散乱は運動学的な散乱をおこし、その回折X線の強度は動力学的な散乱の場合に比べ大きくなりこれがトポグラフの明暗像の原因となる。(消費効果の減少)/8/

像は、 $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶表面の磁気弾性波による結晶表面に垂直方向の歪みの分布を反映し、像の明るい部分ほど大きな歪みが生じていると考えられ、コントラストの変化は、Position1, 2, 3で同じものになると予想される。<sup>17</sup>この点を明らかにするため、X線の入射角度をロッキングカーブの低角側の半値幅の位置で固定し、位相関係を図8・4のPosition1-3で変化させた場合のストロボトポグラフの撮影を行った。図8・6(1)~(3)に撮影されたストロボトポグラフをそれぞれ示す。トポグラフから、Position2でX線が入射した場合の像のコントラストは、Position1で撮影された場合に得られた像と反転し、Position3で得られたトポグラフの像は、position1で観察された場合に得られた像に復元されることが分かった。このことは、外場周波数の倍の周波数で結晶変形が起きていることと、トポグラフのコントラストの主な原因が磁歪変形により生じた結晶変形によるブラッグ条件からのずれにあることを示唆していると考えられる。<sup>18</sup>

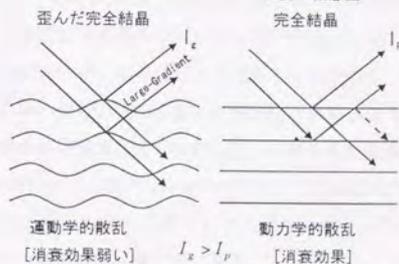
- 17 回折ベクトル $\vec{g}$ が結晶表面に垂直で、入射角が小さい場合の回折強度の式は、次式で与えられる。

$$I_g \propto (\vec{g} \cdot \vec{u}) \left[ u_f \cdot (\cos \theta_B)^2 - u_l \cdot (\sin \theta_B)^2 \right] \quad (\text{Haruta, 1967})$$

$\vec{u}$  : 格子面のずれ  $u_f$  : 格子面の歪み  $u_l$  : 格子間隔のずれ

この式から、ストロボトポグラフの像は、 $^{57}\text{FeBO}_3$ 磁気弾性波により生じた結晶表面に垂直な方向の歪みの大きさを反映することがわかる。

完全結晶のわずかに歪んだ部分での回折の概念図



- 18 このことから、結晶に励起された磁気弾性波の波長は、x、y方向でそれぞれ約1.2mm、1.9mm程度であることがわかる。  
(結晶の形状が完全な長方形ではないため、精度のよい値を知ることはできなかった。)

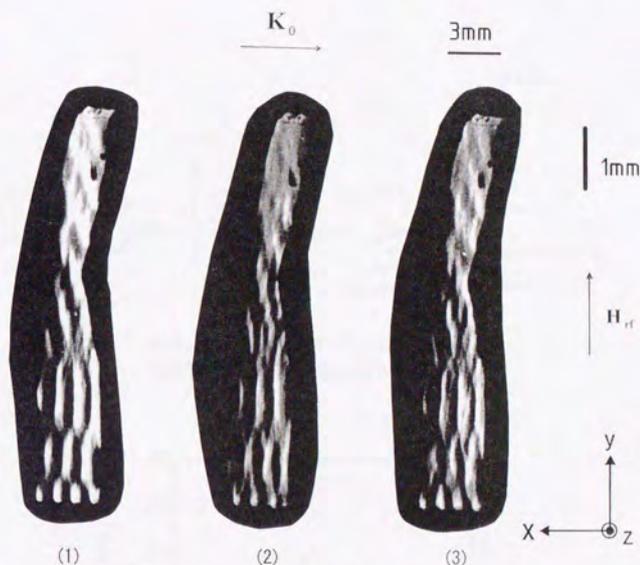


図8・6 ロッキングカーブの低角側半値位置で位相関係を変化させ、撮影された $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_7$  (444)面からのX線ストロボトポグラフ

(1) : Position 1 (2) : Position 2 (3) : Position 3で撮影

最後に、磁気弾性波励起による結晶の変形が核ブラッグ散乱の回折強度に与える影響を調べた。実験配置は、図8・1とほぼ同じで、反射面には核許容、電子禁制の $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_7$  (333)面を利用し、検出器には高時間分解能をもつAPDを用いた。実験配置図を図8・7に示す。電子散乱によるノイズを避けるため時間遅れ成分(約20ns以降)の部分だけを信号としてカウントした。定常磁場を結晶表面と散乱面に平行に180e印加し、同時に、高周波磁場を面に平行、定常磁場に垂直に最大磁場強度150eで印加して、入射X線と高周波磁場の位相関係を図8・4 (b) Position 2に固定しロッキングカーブを測定した。比較のため高周波磁場を印加しなかった場合に得られたロッキングカーブも観測した。<sup>19</sup>ロッキングカーブの測定結果を図8・8に示す。

<sup>19</sup> この時、見掛け上の磁場の掛かり方は同じになる。

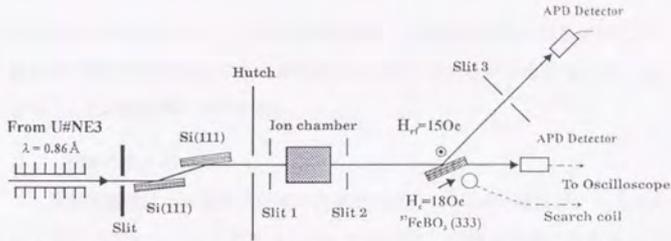


図8・7 純核ブラッグ反射 $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_3$ (333)面からの核共鳴散乱線の観測時の実験配置図

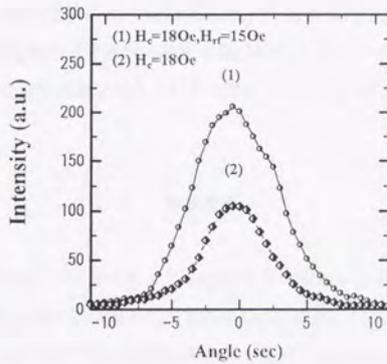


図8・8 観測された $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_3$ (333)面からの回折強度曲線

- (1) : 定常磁場と高周波磁場が共に印加された場合
- (2) : 定常磁場のみ印加された場合

図8・8から分かるように、磁気弾性波が励起された時の $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_3$ (333)からの核ブラッグ散乱線の回折強度は、定常磁場のみを印加して得られた時の回折強度に比べて2倍以上に増加する事が分かった。この回折強度の増加の原因は、高周波磁場が印加された時、 $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_3$ ストロボグラフに見られたような結晶変形が生じているため、①結晶表面の各部分が異なる速度で移動変化しながら共鳴

吸収を行う事からくるドップラー効果の影響、②集団励起後の結晶変形に伴う結晶中の電場分布の変化による影響の2つが考えられるが、現段階では、はっきりとした結論を得られていない。

### 8.3 実験のまとめ

高周波磁場により磁気弾性波が共鳴励起された $^{57}\text{FeBO}_3$ 結晶が、X線ストロボトポグラフィにより観察された。その結果、結晶の表面に垂直な方向に、薄板の共鳴モードの一つに対応する二次元的な分布を持った微小な変形が生じることが初めて視覚的に示された。また、磁気弾性波励起時の $^{57}\text{FeBO}_3$ が結晶変形を起こしている場合、核ブラッグ散乱の回折強度は、定常磁場のみを印加して得られた時の回折強度に比べ倍以上に増加する事が示された。この現象は、反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶を放射光単色化用の核モノクロメータとして利用する場合、より多くの回折強度を得るための方法として利用できるかもしれない。

### 参考文献

- /1/ Yu. V. Shvydo'ko, T. Hertrich, V. E. Sedov, G. V. Smirnov, U. Van. Bärck, R. L. Mössbauer and Chumakov *Europhys. Lett.* 19 (8), 723 (1992)
- /2/ A. M. Kadomtseva, R. Z. Levitin, Yu. E. Popov, V. N. Seleznev and V. V. Uskov *Soviet. Physics Solid State*, 14, No. 1, 172 (1972)
- /3/ P. A. Goddard, G. F. Clark, B. K. Tanner and R. W. Whatmore *Nucl. Inst. and Meth.* 208, 701 (1983)
- /4/ C. C. Gluer, W. Graeff and H. M. Løer: *Nucl. Instrum and Meth.* 208 (1983) 701
- /5/ J. Miltat and J. Kleman: *J. Appl. Phys.* 50 (1979) 7695
- /6/ Kato : *J. Phys. Soc. Japan*, 18, 1785 (1963) ; 19, 67 (1964) ; 19, 971 (1964)
- /7/ U. Bonse: *Z. Phys* 177 (1964) 385

/8/ R. W. James: (1942)

"The Optical Principles of the Diffraction of X-Rays" Bell, London.

## 第9章 パルス磁場印加による追跡

高分解能モノクロメータを利用した核共鳴前方散乱法により、代表的なメスbauer核 $^{57}\text{Fe}$ を含む反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ を集团的に核励起した後、散乱体の内部磁場の向きを $180^\circ$ 、または、 $90^\circ$ 高速回転した場合のコヒーレントな核共鳴散乱特性を実時間観測した。得られたメスbauer時間スペクトルには、 $180^\circ$ の磁場回転の場合には、磁場の回転時刻 $t_0$ に依存したスペクトル波形の変化が観測され、 $90^\circ$ の磁場回転の場合には、磁場回転後に放出される核共鳴散乱線の偏光状態が変化することが初めて観測された。

### 9.1 はじめに

放射光のパルス特性を利用した時間領域のメスbauerアースペクトロスコピーは、周期的に変化する摂動がある場合の超微細相互作用の研究を行うための強力な手段となる。この新しい観測法は、以下のような特徴を持つため、伝統的なメスbauerエネルギースペクトルでは観測が困難であった実験が可能となる。[詳しくは、第2章を参照]

#### メスbauer時間スペクトルの特徴

- ① 放射光パルスによるメスbauer核の励起時刻と散乱体に印加される外場との間で回路的に、容易にタイミングをとることができる。
- ② 磁性体のような物質に外部から変動磁場が印加される場合、磁歪の影響で散乱体には、弾性的振動が発生する。通常、この振動によるドップラー効果は、メスbauerエネルギースペクトルをブロードなものとし、超微細構造の観測を困難にする。一方、メスbauer時間スペクトルでは、このような原子の振動の影響を受けることがないため、磁気弾性振動下にある物質の超微細構造の研究が可能となる。
- ③ 放射光の偏光特性を利用し、偏光アナライザー結晶を組み合わせて使用することで、偏光解析の実験を容易に行うことができる。/1/

最近、磁気変調下にある、メスbauer核 $^{57}\text{Fe}$ を含む反強磁性体単結晶からの核共鳴ブラッグ散乱線に生じる摂動効果を調べる研究が、Y. V. Shvyd'ko等

(1994)/2/により行われた。しかし、このような核ブラッグ散乱による方法では、最初に放射光パルスで励起できる遷移が、 $^{57}\text{Fe}$ の許容な6本の遷移の内 $\Delta m = \pm 1$ の4本の遷移に限られてしまう[第4章参照]だけでなく、研究対象となる散乱体が、純核ブラッグ反射面を有する結晶完全性の高い反強磁性体でなくてはならないという重大な制約を受けることになる。一方、高分解能モノクロメータを利用した核共鳴前方散乱法を用いると、観測の対象となる散乱体は、上記の制約を受けることがないため、劇的に増大する。 $(^{57}\text{Fe}$ を含む磁性薄膜等は、ほとんど全て観測対象になると思われる。)さらに、この方法では、外場の向きを適当に選ぶことで、初期励起として $\Delta m = \pm 1$ だけでなく、 $\Delta m = 0$ の遷移も利用でき、実験の自由度においても核ブラッグ散乱法に比べて優れている。そこで今回、最初の試みとして散乱体に $^{57}\text{FeBO}_3$ を利用し、核共鳴前方散乱の方法を利用し、初期励起として $\Delta m = 0$ を励起した後、結晶中の原子の内部磁場の向きが、高速の磁化回転( $180^\circ$ 、 $90^\circ$ )した時、コヒーレントな核共鳴散乱線の特性がどのような変化を示すか、偏光状態の変化も含めて実時間領域での観測を行うことにした。

## 9.2 内部磁場回転がある場合の核共鳴前方散乱

第3章で既に説明したように、磁性体物質が、瞬間的なメスバウアー励起を受けた後、原子核の内部磁場が、時刻 $t_0$ で角度 $\beta$ だけ回転する場合、励起核により、前方方向へコヒーレントに再放射されるX線の電場ベクトルは、式(9-1)で表される。

$$E_0(t) \propto \exp\left[-\frac{\Gamma_0 t}{2\hbar}\right] \cdot \sum_l B_0(l') \cdot \exp[-i\Omega_{l'}(t-t_0)] \quad t > t_0$$

$$B_0(l') = j_l(k_0) \cdot \sum_{\beta} \Delta_{l'l}(\beta) \cdot \exp[-i\Omega_{l'} \cdot t_0] \cdot j_l^{\text{start}}(k_0) \quad (9-1)$$

$j_l^{\text{start}}(k_0)$ : 放射光パルス入射の瞬間に決まる初期励起核電流密度

$j_l(k_0)$ : 磁場回転後、再量子化した時の遷移 $l'$ に対応する核電流密度

$\Delta_{l'l}(\beta)$ : スイッチマトリックスの成分

$\Omega_{l'}$ : 各遷移エネルギーの超微細構造がない時の共鳴エネルギーからのずれ

式(9-1)から、前方方向への再放射X線の電場ベクトル $E_0(t)$ を特徴付ける電場振幅成分 $B_0(1')$ は、内部磁場回転後の新しい座標系(X線の入射方向を $y'$ 軸、回転後の内部磁場の向きを $z'$ 軸とした系)で再量子化して得られる許容な6本の遷移に対応した核電流密度ベクトル $j_{\nu}(k_0)$ の重ね合わせで与えられることがわかる。<sup>1</sup>具体的例として、放射光パルスにより、初期電流密度として、 $^{57}\text{Fe}$ の許容な遷移の内、 $\Delta m=0$ の2本が選択的に励起された後、時刻 $t_0$ で内部磁場が、 $180^\circ$ 、または、 $90^\circ$ 回転する場合について考察してみる。図9-1には、計算を行うために導入された座標系を示しておく。

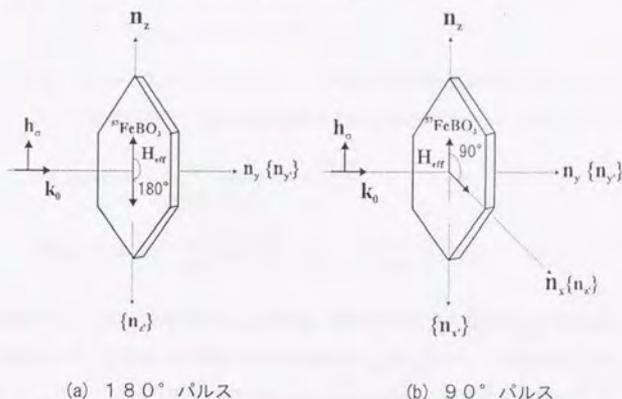


図9-1 導入された座標系

内部磁場の向きが、放射光からの直線偏光( $\sigma$ 偏光)した入射X線に対し、図9-1の様な配置であったとすると、結晶中の $^{57}\text{Fe}$ 超微細構造の許容な6本の遷移の内、可能な遷移は $\Delta m=0$ の2本のみとなる。この時、各遷移に対応する核電流密度は、以下の行列で表現できる。

<sup>1</sup> これは量子力学的摂動計算から得られる結果で、 $j_{\nu}(k_0)$ の重み関数は、回転角 $\beta$ と回転を行う時間 $t_0$ に依存する。

$$j_{1i}^{\text{start}} = \begin{pmatrix} j_3 \\ j_2 \\ j_1 \\ j_{-1} \\ j_{-2} \\ j_{-3} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ \sqrt{2} \\ 0 \\ 0 \\ \sqrt{2} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (9-2)$$

● 180° パルスの場合

時刻 $t_0$ で内部磁場が180°だけ回転したとすると、スイッチマトリックス $\Delta_{11}(\beta)$ の成分は式(9-3)で与えられる。[詳しくは、第3章参照]

$$\Delta_{11}(\pi/2) = (-1)^l \cdot \delta_{l,-l} \quad (9-3)$$

式(9-2)、(9-3)を式(9-1)に代入し、 $^{57}\text{FeBO}_3$ の超微細構造の対称性 $\Omega_1 = -\Omega_{-1}$ を利用して整理すると、核共鳴散乱の電場成分は次式(9-4)で与えられる。

$$\begin{aligned} E_{180}(t) &= a(k_0) \cdot \sum_{l=-2,2} \exp\left[-i\Omega_1 \cdot t - \frac{\Gamma_0 \cdot t}{2\hbar}\right] \quad t < t_0 \\ E_{180}(t) &= a(k_0) \cdot \sum_{l=-2,2} \exp\left[-i\Omega_1 \cdot (2t_0 - t) - \frac{\Gamma_0 \cdot t}{2\hbar}\right] \quad t > t_0 \quad (9-4) \end{aligned}$$

式(9-4)は、180°磁場回転がある場合、核共鳴散乱線の電場成分の位相項の時間的変化が、回転前の時間的変化と逆向きの変化を示すことを表している。<sup>2</sup> 図9・2には、核前方散乱で初期励起に $\Delta m=0$ を選び、崩壊中の時刻 $t_0$ で180°磁場回転が起きた場合の時間スペクトルの波形変化を式(9-4)を基にして、計算した結果を示す。図9・2に見られるように、180°磁場回転後の時間スペクトルは、磁場反転に伴う量子うなりの周期変化<sup>3</sup>は見られないものの、スイッチ時刻

<sup>2</sup> 核共鳴線の強度は、 $I(t) = |E(t)|^2$ で表されるため、時間スペクトル法でこの位相の時間的変化率逆転は、観測可能である。

<sup>3</sup> 実際の散乱過程では、周波数変化は生じているが、放射光による集団的励起の場合、摂動が起きた時の核の励起状態の各サブレベル間の占有率の変化の対称性から、見かけ上、周波数変化が起こらないように見える。[第3章参照]

に依存してスペクトル波形に変化<sup>4</sup>が生じることがわかる。[時間スペクトルは、磁場の回転時刻を境に左右を折り返したような波形になる]

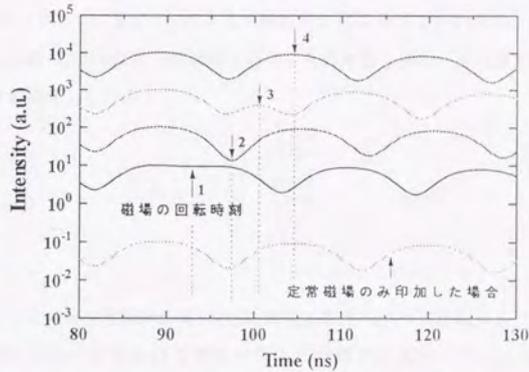


図9.2  $\Delta m=0$ で励起された後、磁場反転がある時の時間スペクトル  
 $180^\circ$  磁場反転は、1-4のスイッチ時刻で引き起こされている。  
 曲線を並べて表示したため、y軸は今の場合、ほとんど意味をなさない。

④  $90^\circ$  パルスの場合

磁場が $90^\circ$  回転する場合、スイッチマトリックスは、(9-5)式で与えられる。

$$\Delta_{11}(\pi/2) = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} 1 & -\sqrt{3} & \sqrt{3} & -\sqrt{3} & \sqrt{3} & -1 \\ \sqrt{3} & -1 & -1 & -1 & -1 & \sqrt{3} \\ \sqrt{3} & 1 & -1 & 1 & -1 & -\sqrt{3} \\ -\sqrt{3} & 1 & 1 & -1 & -1 & \sqrt{3} \\ -\sqrt{3} & -1 & 1 & 1 & -1 & -\sqrt{3} \\ -1 & -\sqrt{3} & -\sqrt{3} & \sqrt{3} & \sqrt{3} & 1 \end{pmatrix} \quad (9-5)$$

<sup>4</sup> この変化の実験的観測には、 $180^\circ$  スイッチ後の約10ns程度の範囲での観測を可能にする1~2ns程度の高速磁場回転の実現が要求される。

特別な場合として、 $\exp[-i\Omega_1 \cdot t_0] = \exp[-i\Omega_{-1} \cdot t_0]$ を満たす時刻 $t_0$ に磁化回転が起こると仮定すると、式(9-1)中のパラメータ  $\Delta_{F1}(\pi/2) \cdot j_1^{\text{Starr}}$  は、(9-6)式で与えられ、時刻 $t_0$ 以降、新しい $(x', y', z')$ 座標系での遷移核電流密度ベクトル  $j_{F'}(\mathbf{k}_0)$ として、 $j_{2'}$ 、 $j_{-2'}$ によるX線放射が起こることがわかる。このことは、時刻 $t_0$ 以降も $\Delta m=0$ の2つの遷移に対応した周波数を持ったX線が放射され続けることを意味している。

$$\Delta_{F1}(\pi/2) \cdot j_{F'} = \begin{pmatrix} 0 \\ -\sqrt{2}/2 \\ 0 \\ 0 \\ -\sqrt{2}/2 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (9-6)$$

一方、この放出電磁波の偏光状態[核電流密度のベクトルの向き]は、 $\beta=90^\circ$ の回転に対し、回転を行う前後で考えた座標系の基底ベクトルの間に $n_{x'} = n_z$ 、 $n_{y'} = n_y$ 、 $n_{z'} = n_x$ の関係が成り立ち、また、 $\Delta m=0$ の遷移に対応する核電流密度ベクトルが、 $j_{l(\Delta m=0)}(\mathbf{k}_0) \propto (\mathbf{k}_0 \times \mathbf{n}_z)$ の性質を持つため、内部磁場の回転の前後で核電流密度のベクトルの向きは、(9-7)式のように変化すると考えられる。

$$\begin{aligned} j_{l(\Delta m=0)}(\mathbf{k}_0) &\propto (\mathbf{k}_0 \times \mathbf{n}_z) \propto \mathbf{n}_x & t < t_0 \\ j_{l(\Delta m=0)}(\mathbf{k}_0) &\propto (\mathbf{k}_0 \times \mathbf{n}_z) \propto \mathbf{n}_z & t \geq t_0 \end{aligned} \quad (9-7)$$

式(9-6)、(9-7)から、放射光により、 $^{57}\text{Fe}$ の許容な6本の遷移の内、 $\Delta m=0$ に対応する2つの核電流密度を最初に励起した後瞬間的に $90^\circ$ だけ内部磁場が回転する場合に観測される時間スペクトルは、以下のような特徴を示すと予想される。

- ① 式(9-6)より、磁氣的摂動により再構成される核電流密度が、回転前と同じ振動数を持った2つの成分で表されることから、時間スペクトルに見られる量子うなりの周期は、見かけ上、内部磁場の回転の前後で変化しない。
- ② 式(9-7)より、放出される偏光状態は、回転の前後で $\sigma$ 偏光から $\pi$ 偏光へと変化するため、偏光解析を行って、時間スペクトルを観測すると、内部磁場

の回転の前後で強度的変化が生じる。

以下、これらの理論から導かれる予想が実際に起きるのか実験的に示す。

### 9.3 実験

実験は、高エネルギー研究所、トリスタンAR-NE3の高エネルギー分解能スペクトロメーターを利用して行った。ビームラインAR-NE3は、インバキューム式のアンジュレーターで、恒常的に単バンチモードで運転されており、パルスの周波数は、 $f_{AR}=794.657\text{KHz}$ であった。[詳細は、第7章参照]

実験で使用したサンプル $^{57}\text{FeBO}_3$ 単結晶は、物性研究所、武居研究室において、フラックス法で作成された。[第4章参照] このサンプルは、 $^{57}\text{Fe}$ 同位体が、95%エンリッチされており、約 $4.2\text{mm}\times 6.2\text{mm}$ 、厚さ $63.9\mu\text{m}$ の平板で、結晶表面は(111)面に平行であった。

本実験では、放射光により $^{57}\text{Fe}$ の許容な遷移の内、 $\Delta m=0$ の2つの遷移を放射光により集団的に励起させ、その後のある時刻 $t_0$ で、内部磁場を $180^\circ$ 、または、 $90^\circ$ 回転させた時の時間スペクトルを観測する。このための実験配置図を図9.3に示す。

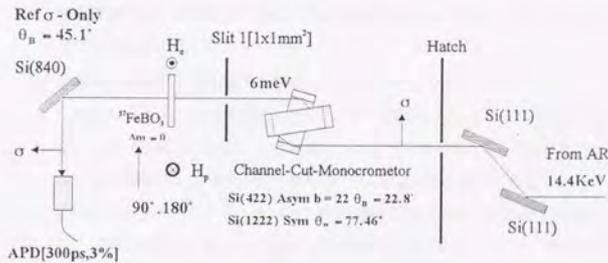


図9.3 実験配置図

## 光学系(図9・3)の説明

## ① 高分解能モノクロメータによる分光

放射光からの直線偏光した(この実験配置では、 $\sigma$ 偏光)パルス入射X線は、Si(111)の対称反射を利用した二結晶モノクロメータにより、 $^{57}\text{Fe}$ の基底準位と第一励起準位の共鳴エネルギー(14.4keV)の近傍に粗く分光され、さらに、Si(420)XSi(1222)のチャンネルカットを利用した高分解能モノクロメータ[第7章参照]により、6meV程度にまでエネルギーが絞こまれた後、厚さ63.9 $\mu\text{m}$ の $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_7$ 結晶に縦横1.0x1.0mm<sup>2</sup>以下のビームサイズで結晶表面に垂直に入射される。

② 散乱体 $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_7$ への磁場の印加方法

結晶には、放射光による最初の励起を $\Delta m=0$ で行わせ、その後、180°、90°パルス磁場回転を行わせるため、定常磁場が、結晶表面に平行に、散乱面に垂直に印加され<sup>5</sup>、パルス磁場発生装置は、発生磁場が結晶表面に平行に、散乱面に垂直[180°パルス]、または、平行[90°パルス]に印加できるように配置された。パルス磁場発生装置のタイミング用のトリガー信号には、放射光の基準信号( $f=794.657\text{kHz}$ )を3分周したものが用いられ、パルス幅120ns、最大磁場27(0e)のパルス磁場が発生できるように駆動させた。パルス磁場の印加の方法として、① 180°磁場反転の実験では、定常磁場150e、パルス磁場強度270eの立ち下がり(6.9ns)が利用され、② 90°磁場回転の実験では、定常磁場7.30e、パルス磁場強度270eの立ち上がり(25.2ns)を利用することにした。

## ③ X線の入射時刻と磁場発生装置のタイミングの取り方

時間スペクトルの時間原点に対するパルス磁場印加のタイミングをとる方法として、散乱体を透過してくる電子プロンプトを利用した。<sup>6</sup>この方法では、電子散乱によるプロンプト信号は、 $^{57}\text{FeB}_2\text{O}_7$ 結晶の後方に配置されたアバランシエ・フォトダイオード(APD:時間分解能300ps、検出効率3%)で検出され、同時に結晶に印加される高周波磁場波形をサーチコイルにより検出する。

<sup>5</sup> 図9・3の実験配置では、パルス磁場が印加されていない状態で、 $\sigma$ 偏光したパルスX線が入射すると、 $^{57}\text{Fe}$ の許容な6本の遷移の内、 $\Delta m=0$ の2本の遷移が励起される。この時、集束的崩壊に際して放出される散乱X線の偏光は、 $\sigma$ 偏光したX線となる。

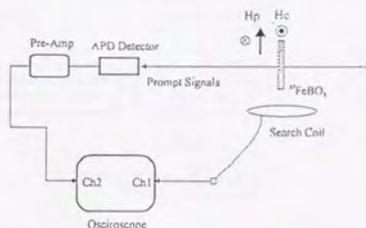
<sup>6</sup> 電子の散乱は瞬時に起きるため、この信号をX線が散乱体に入射した時刻を知ること利用できる。

これら2つの信号をオシロスコープでモニターしながら、X線入射時刻に対する所望の時刻でパルス磁場の立ち上がり、立ち下がりを行わせ、磁場の回転を引き起こすことにした。<sup>7</sup> [基本的にストロボポグラフィの実験で用いた方法と同じ。]

④ 時間スペクトルの計測

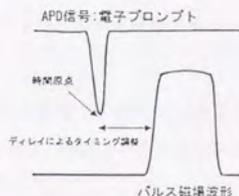
集団崩壊過程のある時刻 $t_0$ でパルス磁場を印加し、 $180^\circ$  磁化反転、及び、 $90^\circ$  [実際には、約 $73^\circ$ ]の磁化回転を行った場合の時間スペクトルの観測を行った。計測は、検出器に、APDディテクター(時間分解能0.2ns、検

<sup>7</sup> 以下にX線入射時刻と磁場印加のタイミング調整で使用された回路系を示す。



タイミング調整回路系

サーチコイル、APD等の回路特有の信号の遅れと、試料からAPDに光が到達するのに必要な時間をあらかじめ測っておくことで、電子プロンプト信号とパルス磁場波形との間の正確なタイミングをとることができる。タイミングの微調整は、パルス磁場発生装置に入力されるトリガー信号を一度遅延回路に経由させ、ディレイをオシロスコープで波形をみながら調整することで実現される。[下図参照]



オシロスコープによるX線入射時刻とパルス磁場波形のタイミングの微調整

出効率3%)を用い、検出された信号を、図9.4に示されるような検出回路系で処理し、時間スペクトルの観測が行われる。また、特に90°パルスの実験では、偏光状態の変化に興味もたれるため、 $^{57}\text{Fe}\text{O}_3$ の後ろに配置した $\sigma$ 偏光成分のみを反射する偏光解析用の結晶Si(840) ( $\theta=45.1^\circ$ )の前後にAPDを配置し、時間スペクトルを測定することにした。

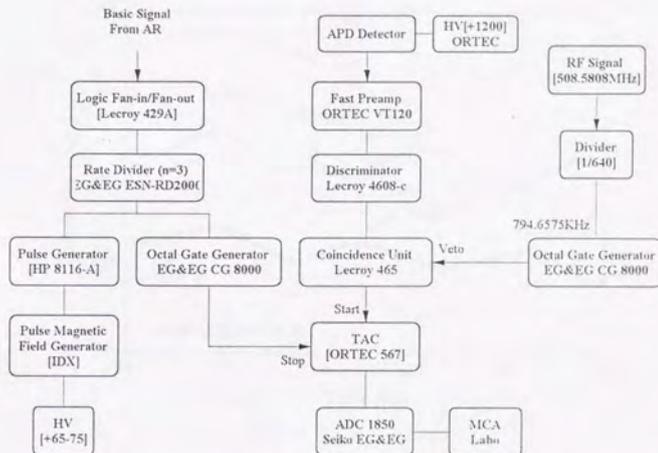


図9.4 検出回路系

#### 9.4 実験結果

以下に180°パルス磁場回転がある場合と90°パルス磁場回転がある場合に観測された時間スペクトルの測定結果を示す。

##### ① 180°パルスの場合

磁場の反転時刻を幾つか設定し、時間スペクトルを測定した。測定結果を図9.5に示す。この実験では、時間スペクトルの0-60ns程度の領域に、放射光

パルスのごみバンチによるノイズが含まれていたため、パルス磁場の立ち下げ<sup>8</sup>時刻(磁場のスイッチ時刻)は、90~105nsの幾つか点でとることにした。また、比較のため、図9・5には、パルス磁場の印加されていない場合の時間スペクトルも示しておく。<sup>9</sup>

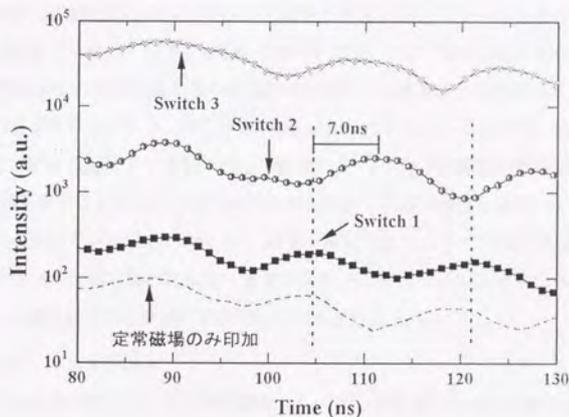


図9・5 磁化反転時刻を幾つか設定し、観測された時間スペクトル

180° 磁場反転は、1-3のスイッチ時刻で引き起こされている。

データ曲線を並べて表示したため、グラフのy軸は、今の場合、

ほとんど意味をなさない。

磁場の反転時刻を変えながら観測した時間スペクトルの内、量子ビートのピーク位置で反転した場合(Switch1)は、定常磁場のみ印加した場合の時間スペクトル

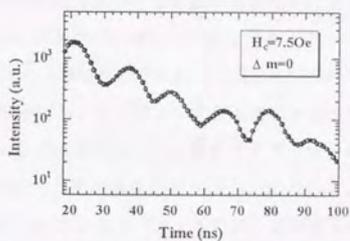
<sup>8</sup> 装置のパルスの立ち下がり時間は、6.9nsであるが、57FeB03の飽和磁場強度が50e以下であることを考慮すれば、磁化の反転は、1-2nsで起きると考えてよい

<sup>9</sup> 今の場合、放射光の基準信号を3分周してパルス磁場発生装置を駆動させているため、一度の測定でパルス磁場が印加されている場合と、印加されていない場合のスペクトルが同時に測定できる。

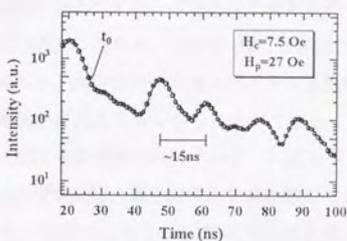
ルとほぼ同じ波形を示していることがわかる。一方、量子ビートが増加しつつある時刻(Switch2)、または、減少しつつある時刻(Switch3)で磁場反転が行われた場合、その後の時間スペクトル波形には、ビート周期については、変化は見られないが、X線の電場の位相変化に伴うスペクトル波形のシフトがはっきりと見られている。これは、9.2節で議論され、式(9-4)で示されたX線電場の位相部の時間的振る舞いが逆転する場合に見られるスペクトルの波形変化と定性的に良く一致している。[図9・2参照] また、 $180^\circ$  磁化反転の前後における $^{57}\text{FeBO}_3$ の内部磁場強度を量子うなりの周期から求めた所、磁場反転の前後で共に同じ値となっており、317.9KGであることがわかった。これまでに他の定常磁場下でのメスbauer実験で調べられている $^{57}\text{FeBO}_3$ の正確な内部磁場の値が、318.1KGであることから、この実験で求められた内部磁場強度の値は、0.055%の精度で一致していることがわかる。(磁場の高速回転によらず内部磁場は、一定の値を保つ。) 測定値が完全な一致をみなかったのは、パルス磁場の長時間印加による結晶の温度の変化が原因ではないかと考えられる。

#### ② $90^\circ$ パルスの場合

この実験の目的は、9.2節で議論した、 $90^\circ$  の磁場回転後に放射される、 $\Delta m=0$ の遷移に対応するX線の偏光状態の変化を実験的に示すことにある。そこで、実験の手順としては、放射光パルスにより、最初、 $\Delta m=0$ の遷移で励起され、時刻 $t_0$ で磁場回転を受けた後にも、 $\Delta m=0$ の遷移に対応するX線が放射され続けるような磁場のスイッチ時刻 $t_0$ を適当に選び、その条件下で、偏光アナライザの前後に検出器を配置して、時間スペクトルを観測し、比較することにした。このため、実験では、まず、磁場回転時刻 $t_0$ を少しずつ変化させながら、その後に生じる量子うなりの周期が、 $\Delta m=0$ の遷移に対応したものが現れるように調整を行った。図9・6 (a) (b)には、X線入射に対し、約25ns程度後に磁場回転を行った時に得られた時間スペクトルを示す。



(a)



(b)

図9.6 磁場が約 $90^\circ$ 回転する場合に観測された時間スペクトル

(a): 定常磁場のみ印加 [ $H_c = 7.50e$ ] (b): 時刻 $t_0$ 以降パルス磁場印加 [ $H_c = 7.50e$ ,  $H_p = 27.00e$ ]

観測されたメスバウアー時間スペクトルの内、図9.6(a)は、定常磁場(7.50e)のみが印加されている場合のスペクトルで、この場合には、当然、量子うなりの周期が、約15ns前後<sup>10</sup>となっており、 $^{57}\text{Fe}$ の許容な6本の遷移の内、 $\Delta m = 0$ の2本の遷移に対応したスペクトル波形が現れていることがわかる。

<sup>10</sup>  $^{57}\text{FeBO}_3$ の場合、 $\Delta m = 0$ の二つの遷移で生じる量子うなりの特徴的な周期は14-15ns程度となる。一方、 $\Delta m = \pm 1$ の遷移に特徴的なうなりの周期は、短周期のもので8-9ns程度となる。

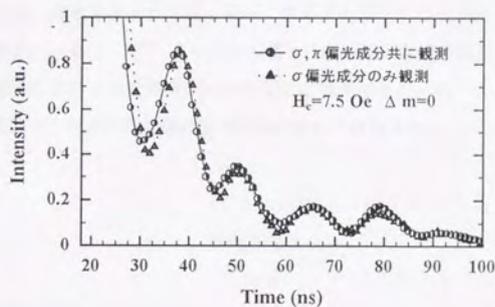
一方、放射光X線による集団励起後の時刻 $t_0 \sim 25\text{ns}$ において磁化の向きが約 $90^\circ$ の回転する場合に観測されたメスバウアー時間スペクトル、図9・6 (b)には、時刻 $t_0$ から約 $10\text{ns}$ 後に新たに許容となる遷移を反映した量子うなりが生じている。<sup>11</sup>この量子うなりの周期は、約 $15\text{ns}$ 程度となっており、磁化回転後も主に、 $\Delta m=0$ の遷移に対応するX線放射が行われていることがわかる。

次に、磁場の回転時刻をここに固定して、偏光アナライザー<sup>12</sup>の後に検出器を配置し、時間スペクトルを測定した。偏光アナライザーの前に検出器を配置した場合の結果を含めて、その結果を図9・7 (a) (b)に示す。観測された時間スペクトル図9・7 (a)、及び(b)のスペクトルの内、定常磁場のみ印加した場合のデータとパルス磁場を印加した場合のデータは、それぞれARのパルス周期を3分周してパルス磁場印加のタイミングをとった測定を行っているため、同時に一度に測定されている。このため、各測定で得られた定常磁場のみ印加されている場合の時間スペクトルの積分強度でスペクトルを規格化することができ、スペクトル強度の時間的変化の比較を行うことができる。[図9・7 (a) (b)に示されたグラフでは、既にその計算を行っている。] 図9・7 (a)からは、定常磁場のみ印加されている場合には、偏光解析の有無に関らずスペクトル波形、強度の変化は見られず、(当然のことながら)核共鳴散乱の偏光状態には変化が無いことを示している。一方、図9・7 (b)には、偏光解析を行った場合と行わなかった場合でスペクトルの波形、強度に大きな変化が見られ、偏光解析を行った時のスペクトル強度が、偏光解析を行わなかった場合のものに比べて激減していることが分かる。このことは、磁化回転後、 $\Delta m=0$ の遷移に対応する電流密度ベクトルの向きに変化が生じ、放射X線の偏光状態が変化したため、 $\pi$ 偏光の核共鳴散乱成分が新たに生じていることを意味しており、第3章の理論

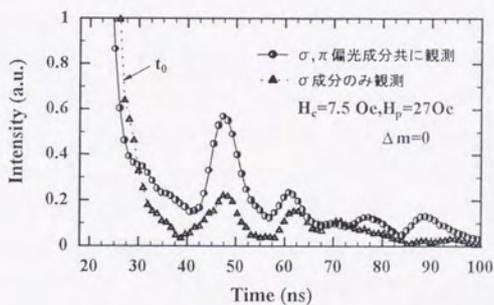
<sup>11</sup>  $10\text{ns}$ のタイムディレイはパルス磁場の立ち上がりが瞬間的ではないことから生じていると考えられる。

<sup>12</sup> 偏光アナライザーにはSi(840)を利用した。この反射面の、 $14.4\text{KeV}$ の波長に対するブラッグ角は、ほぼ $45^\circ$ となっており、入射X線の内、 $\sigma$ 偏光成分のみを反射できるようにになっている。

で予想された現象IIが実際に起きていることが示されたといえる。



(a)



(b)

図9・7 核共鳴線の偏光状態の時間的变化

(a):  $H_c$ のみ印加し、Si (840)の前後に検出器を配置して観測した時間スペクトル

(b):  $H_p$ を時刻 $t_0$ で印加し、Si (840)の前後に検出器を配置して観測した時間スペクトル

## 9.5 実験結果のまとめ

散乱体に高速の磁化特性を持つ反強磁性体 $^{57}\text{FeBO}_3$ を利用し、初期励起として $\Delta m=0$ の遷移を励起した後、内部磁場の向きを高速回転させた場合の核共鳴前方散乱の時間スペクトルを観測した。180°、90°の内部磁場の回転後の時間スペクトルには、磁場回転後の許容な遷移に対応する量子うなりが再現されることが観測できた。また、180°スイッチの場合には、第3章の理論を基に予想された反転時刻に依存した核共鳴線の波形変化が観測できた。90°スイッチの場合にも、理論で予想されたX線の偏光状態の変化が観測された。

## 参考文献

- /1/ S.Kikuta ; Hyperfine Interaction 90(1994)335
- /2/ Y.V.Kagan ; Hyperfine Interaction 90(1994)287

## 第10章 今後の展望

本研究では、散乱体が磁場変動下にある場合の核共鳴散乱の時間発展過程が調べられ、そのような研究を行う際の実験手法が確立された。そこで最後に、本研究で得られた実験結果を踏まえ、今後の展開として、どのような実験が可能であるのか簡単に考察することにした。

### 10.1 展望、及び応用実験

#### ① 核共鳴散乱によるストロボトポグラフィの観測

線源に大強度で指向性の高い放射光を利用し、反強磁性単結晶等に純核ブラッグ反射させることにより、核共鳴散乱線によるX線トポグラフィの観察が可能になる。ところで、核共鳴散乱は、本質的に磁気散乱であるため、得られるトポグラフィの像は、磁性体の磁氣的構造(磁化の向き空間的分布、磁歪など)を反映したものとなり、電子散乱による通常のX線トポグラフィでは得られない情報を得ることができる。核共鳴散乱線によるトポグラフィは、1994年、C. K. Suzukiにより、 $^{57}\text{Fe}$ を富化した完全性の非常に良い反強磁性体ヘマタイト単結晶/ $1/\text{の純核ブラッグ反射面}[\alpha\text{-}^{57}\text{Fe}_2\text{O}_3(777)]$ を利用し、最初の撮影がなされた。この実験では、定常的な磁場の印加による結晶の磁歪の変化を反映した像が観測されている。 $/2/\text{高周波磁場が印加され、磁気弾性波が共鳴励起された}^{57}\text{FeBO}_3\text{単結晶は、平板モードの一つに対応した共鳴変形が生じる。第8章で説明した実験で得られたトポグラフィには、二次元的なパターンを持つ像のコントラストが、印加磁場の二倍の周期(4.5MHz)で反転することが示された。この像の変化の周期はかなり高速で、}^{57}\text{Fe}\text{の崩壊時間が}144\text{nsあるのに対し、コントラストの反転までに要する時間は、}105\text{ns程度となっている。つまり、高周波磁場印加により、核の崩壊中に結晶の完全性が大きく変化するような状況が実現されている。そこで、第8章での実験で、ブラッグ反射面を}^{57}\text{FeBO}_3\text{単結晶の純核ブラッグ反射面}に選び、核共鳴散乱線による}^{\gamma}\text{線によるストロボトポグラフィ}$

フを撮影した場合、 $\gamma$ 線の寿命を反映したトポグラフの像を得ることが可能であると考えられる。この実験は、電子散乱により得られるトポグラフの像との比較からも非常に興味深い実験であると思われる。<sup>1</sup>

#### ② X線干渉計による磁場変調がある場合の核共鳴散乱の研究

第9章で説明した実験の内、 $180^\circ$ パルス磁場回転の実験では、摂動による励起準位のサブレベル間の粒子占有率の変化に起因して、スイッチ時刻 $t_0$ に依存した時間スペクトルの変化を観測することに成功した。しかし、この実験では、単一の散乱体中の核から再放射されるX線の電場成分の二乗を観測しているため、電場振幅の符号の変化まで含めた、詳しい位相情報を得ることはできない。一方、放射光を利用した核共鳴散乱実験で、X線干渉計を利用すると、電場振幅の符号の反転まで含めたより詳しい研究が可能となり、<sup>3/</sup> また、従来のX線干渉計の実験では不可能であった時間スペクトルによる干渉現象の実時間追跡も可能となる。<sup>4/</sup> 例えば、X線干渉計の光路に本実験で使用した $^{57}\text{FeBO}_3$ や高速の磁化回転が可能な強磁性体膜などを挿入し、パルス磁場回転を行わせることで磁場による位相変調現象を詳しく調べることが可能になると考えられる。<sup>2</sup> 図10.1には、この実験の概念図を示す。

<sup>1</sup> 結晶の形状が時間に依存して変形(ただし、動力学的理論は成り立つものとする。)している場合に、放射光のパルスX線を結晶が吸収したとすると、結晶中に動力学的理論により説明される結晶場が生じる。この時、電子散乱によるトポグラフの像は、瞬間的であるため、回折X線強度は、瞬間的な結晶性のみを反映する。一方、核共鳴散乱の場合は、崩壊時間を反映して、最初に結晶中に存在していた結晶場が必ずしもそのまま維持されないと予想される。著者の知る限り、この時間に依存する結晶場の変化が数学的にどのような形で表現されるか明らかにはされていない。(この点が明らかになると、第8章での磁気弾性波動起時の核共鳴散乱の回折強度の増加の原因が明らかになるかもしれない。また、反強磁性単結晶による放射光からの核共鳴散乱線の分光で、より強い強度を取り出す方法として、積極的に磁気弾性波による結晶変形を利用するための根拠が得られるかもしれない。)

<sup>2</sup> X線干渉計の実験では、光路に薄いSi板等を挿入し、回転させることで厚さを変化させ、2つのパスのX線の電場に位相変化を与えることが多い。これに対し、磁氣的に位相を変化させるような実験は、これまであまり考えられてこなかった。この点からもこの実験は興味もたれる。

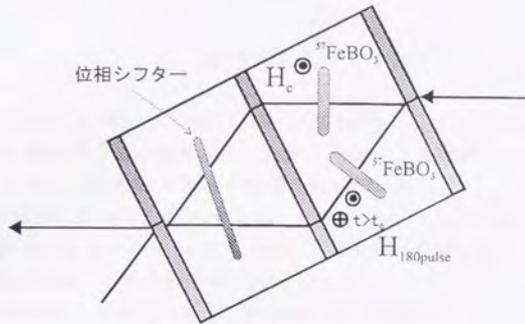


図10.1 磁場変調がある場合の核共鳴散乱線特性のX線干渉計による追跡

③ パルスレーザー照射による磁性体の内部磁場の緩和過程の研究

本実験では、外部摂動を磁氣的に引き起こす実験をおこなっているが、超微細構造は、熱的にも変化を与えることが可能である。例えば、外部からパルスレーザーを印加して、強磁性薄膜等に照射し、瞬間的に相転移温度近傍まで温度変化を与えられれば、その後の緩和過程における超微細構造パラメータ(特に内部磁場の強度)の時間的変化をメスバウアー時間スペクトルで実時間観測できるかもしれない。<sup>3</sup>

<sup>3</sup> 緩和時間が長い場合には、測定時間の関係から実験は困難となるが、緩和時間が $10\mu\text{s}$ 程度の現象であれば、パルスレーザーと入射X線パルスとのタイミングを放射光の基準信号を分周してとることで実験可能であると考えられる。

参考文献

- /1/ C. K. Suzuki, H. Takei, F. Kasai, Y. Yoda, X. W. Zhang, T. Mitsui, Y. Kudo, K. Izumi, T. Ishikawa, H. Sugiyama, M. Ando, H. Ohno, T. Harami, T. Matsushita and S. Kikuta : Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 32 (1993) 3900
- /2/ C. K. Suzuki, Y. Yoda, X. W. Zhang, H. Sugiyama, K. Izumi, T. Ishikawa, T. Matsusita, M. Ando, H. Takei, T. Harami, H. Ohno and S. Kikuta : Hyperfine Interactions 92 (1994) 1101
- /3/ Y. Hasegawa, Y. Yoda, K. Izumi, T. Ishikawa and S. Kikuta : Physcal Review B Vol50, No23 (1994)
- /4/ K. Izumi, Y. Yoda, T. Ishikawa, X. W. Zhang, M. Ando and S. Kikuta : Jpn. J. Appl. Phys 34 (1995) 4258

## 研究発表等

### A : 学会誌等

- 1) 三井隆也、依田芳卓、泉弘一、菊田惺志、武居文彦、松下正  
“核共鳴散乱素子の開発”  
強力X線実験室レポートNo. 6, 平成元-2年度, p29-34, 東京大学工学部  
総合試験所強力X線実験室
- 2) 三井隆也、依田芳卓、泉弘一、伊藤幸仙、菊田惺志、武居文彦  
“FeB<sub>3</sub>O<sub>3</sub>の結晶評価”  
強力X線実験室レポートNo. 7, 平成3-4年度, p26-30, 東京大学工学部  
総合試験所強力X線実験室
- 3) C. K. Suzuki, H. Takei, F. Sakai, Y. Yoda, X. W. Zhang, T. Mitsui, Y. Kudo, K. Izumi,  
T. Ishikawa, H. Sugiyama, M. Ando, H. Ohno, T. Harami, T. Matsushita and S. Kikuta  
“Flux Growth and Characterization of  $\alpha$ -<sup>57</sup>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Single Crystals for Nuclear  
Bragg Scattering Optical Components” ; Jpn. J. Appl. Phys. 32(1993)3900-3904
- 4) T. Mitsui, Y. Yoda, K. Izumi, T. Ishikawa, X. W. Zhang, H. Sugiyama, C. K. Suzuki, M. Seto,  
H. Ohno, H. Takei, T. Yamakawa and S. Kikuta  
“Dynamic-process of nuclear resonant scattering by Synchrotron radiation”  
Photon Factory Activity Report 11(1993)424
- 5) K. Izumi, T. Mitsui, M. Seto, Y. Yoda, T. Ishikawa, X. W. Zhang, M. Ando, S. Kikuta  
“Interference of nuclear resonantly scattered X-rays by an X-ray  
interferometer with large optical path difference”  
Jpn. J. Appl. Phys. 34(1995)5862-5868

### B : 口頭発表

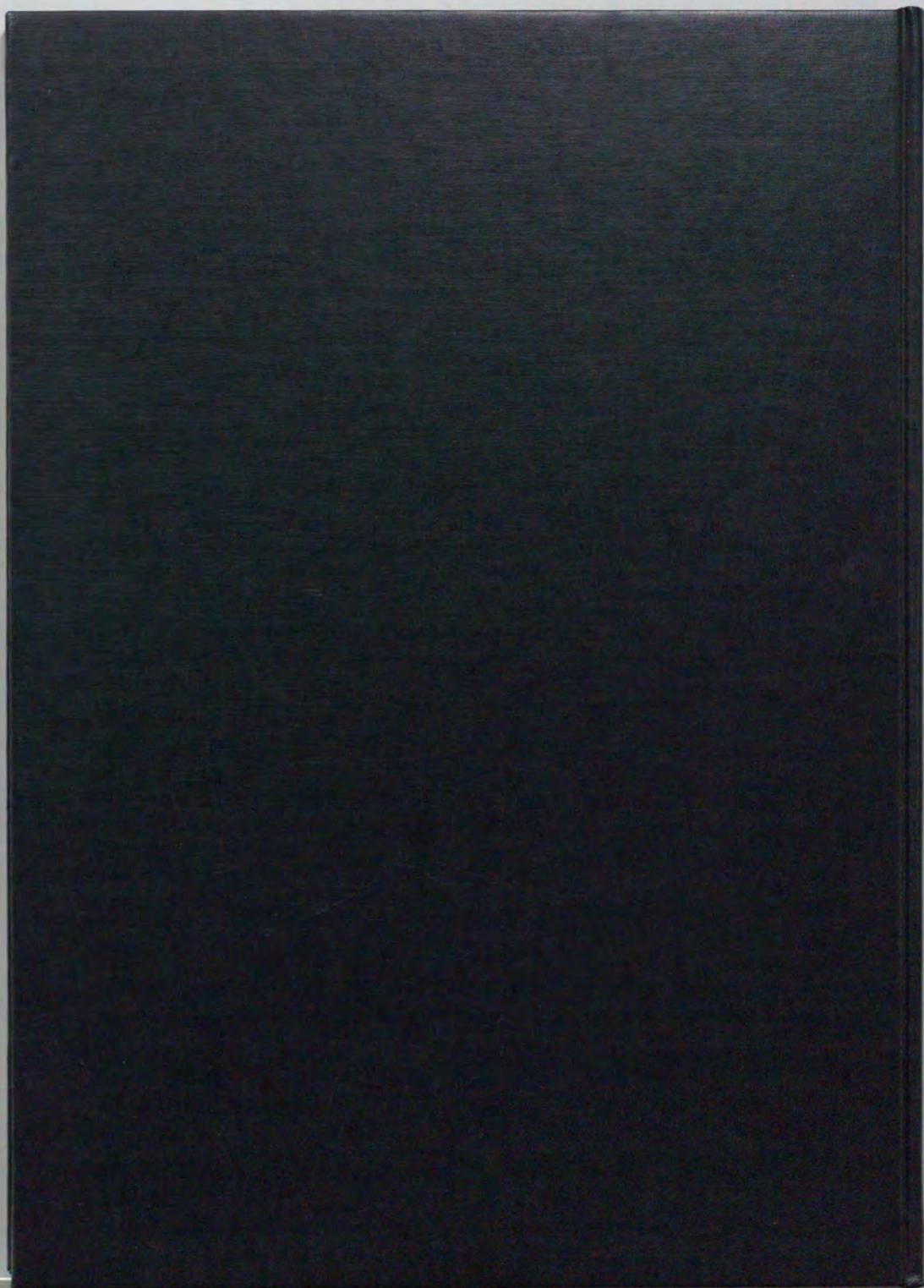
- 1) 三井隆也、依田芳卓、泉弘一、石川哲也、張小威、杉山弘、カルロス鈴木、  
瀬戸誠、大野英雄、安藤正梅、武居文彦、山川達也、菊田惺志  
“放射光の核共鳴散乱の動的過程” 日本放射光学会第6回年会、1993年5月10日
- 2) 三井隆也  
“パルス磁場による核共鳴散乱の動的過程”  
高エネルギー物理学研究所第4回トリスランAR-BLNE3ワークショップ、  
1993年9月17日
- 3) 三井隆也、依田芳卓、泉弘一、石川哲也、張小威、杉山弘、カルロス鈴木、  
瀬戸誠、大野英雄、安藤正梅、武居文彦、山川達也、菊田惺志  
放射光の核共鳴散乱の動的過程 日本物理学会1993年秋の分科会、1993年10月15日
- 4) 三井隆也、依田芳卓、泉弘一、石川哲也、張小威、杉山弘、カルロス鈴木、  
瀬戸誠、大野英雄、安藤正梅、武居文彦、山川達也、菊田惺志  
“放射光の核共鳴散乱の動的過程” 第11回PFシンポジウム、1994年1月10日

- 5) 三井隆也、太田雄介、今井康彦、橋川善之、依田芳卓、泉弘一、石川哲也、張小威、  
カルロス鈴木、安藤正梅、武居文彦、菊田惺志  
“放射光による核共鳴散乱のストロボ時分割観測”  
日本放射光学会第8回年会、1995年1月11日

## 謝辞

はじめに、本研究テーマを与えていただき、適切な指導をしていただいた菊田惺志教授に心からの謝意を表したいと思います。また、著者のつまらない質問にもいやな顔一つせずに丁寧な説明等をいただいた菊田研助手の泉弘一さん、博士課程3年間の研究で共同して研究にあたっていただいた学部4年(当時)の伊藤幸仙君、矢橋牧名君、今井康彦君、橋川善之君、M2(当時)の太田雄介君、M1(現在)清水達夫君にも深い謝意を表したいと思います。高エネルギー研究所の張小威さん、石川研助手の依田芳卓さんには研究遂行にあたり、多大な便宜を図っていただきました。心から謝意を表したいと思います。

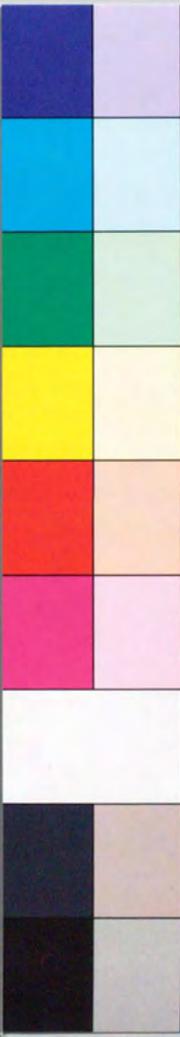
平成8年1月 著者



Kodak  
cm 1 2 3 4 5 6 7 8  
1 2 3 4 5 6 7 8  
1 2 3 4 5 6 7 8

# Kodak Color Control Patches

Blue Cyan Green Yellow Red Magenta White 3/Color Black



# Kodak Gray Scale

A 1 2 3 4 5 6 M 8 9 10 11 12 13 14 15 B 17 18 19



© Kodak, 2007 TM, Kodak