

科学研究費助成事業(学術研究助成基金助成金) 研究成果報告書

平成 25 年 5 月 20 日現在

機関番号 : 11301

研究種目 : 挑戦的萌芽研究

研究期間 : 2011 ~ 2012

課題番号 : 23654110

研究課題名(和文) J-PARC パルス中性子を使用した磁気モーメント分布と電子軌道の可視化

研究課題名(英文) Visualization of magnetic moment and d-electron orbital using J-PARC neutron

研究代表者

野田 幸男 (NODA YUKIO)

東北大学・多元物質科学研究所・教授

研究者番号 : 80127274

研究成果の概要(和文):

本研究の目的は、J-PARC の物質生命科学実験施設(MLF)に建設中のパルス中性子を用いた単結晶回折装置(装置名: SENJU) で高精度磁気構造解析を行い、磁気モーメント分布を可視化することにより d 電子軌道を可視化出来るかを調べることである。2011 年 3 月 11 の地震のため、J-PARC の装置立ち上げは 1 年以上遅れたが、SENJU を実験可能なレベルまで立ち上げ、本研究目的に必要な高い Q 領域まで測定できることを実証した。この値は、原子炉の中性子を用いた回折実験では到達できない Q の領域である。また、放射光を用いた超精密構造解析でどこまで d 軌道が見えるかにも挑戦した。その結果、Ti の d 軌道の可視化に成功した。

研究成果の概要(英文):

The purpose of the present study is to do a feasibility study of the imaging of a d-electron orbit by using J-PARC high-energy neutron and Synchrotron radiation of Photon Factory at KEK. In order to do experiment, we had reconstructed SENJU at J-PARC and tested the machine using standard samples after the large earthquake at March 11, 2011. The result is satisfactory and we found the accessible Q-value is greatly extended compared with the reactor-based experiment. We have developed a new methodology for X-ray diffraction experiments and performed the measurement of YTiO₃ at Photon Factory synchrotron radiation. As a result, we could successfully obtained a d-electron image around Ti atom.

交付決定額

(金額単位: 円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,800,000	840,000	3,640,000

研究分野: 数物系科学

科研費の分科・細目: 物理学・物性 II

キーワード: 磁性、d 軌道の可視化

1. 研究開始当初の背景

(1) X 線や中性子を使用した結晶構造解析は、電子密度分布や核密度分布を与えることはよく知られており、様々な分野で応用されている。一方、磁気秩序はスピンを担っている電子がその起源であるが、中性子磁気構造解析により磁気モーメント密度分布を精密に計測することが出来れば、その電子の空間分

布、ひいては電子軌道を見る事が出来る。この方法の重要なことは、スピンを担う電子のみを見ていて内核の電子は全く見ないことである。原子炉の中性子では $\sin \theta / \lambda = Q/2$ が 0.6 までしか測定できないことが問題であることはそれまでの研究で判明していたが、もし $\sin \theta / \lambda$ が 2.0 まで測定出来るのなら、分解能の関係から明確な軌道分布を得るこ

とが可能であろうと予測されていた。J-PARC に建設が進んでいた新しい単結晶回折装置 SENJU が立ち上がれば、このような大きな Q の領域まで測定可能であろうと期待されていた。

(2) 放射光を使用した超精密構造解析を実施して、内核電子を正しく差し引けば d 電子が見える可能性が有る。昔から多くの研究があるが、必ずしもうまくいっていなかったのは多重反射の寄与が邪魔をして精度が足りないためである。この点を改善するための測定方法を開発すれば、 d 電子の可視化が可能になると期待されていたが、実際に実施した例はなかった。

2. 研究の目的

(1) J-PARC の物質生命科学実験施設(MLF)に建設中のパルス中性子を用いた単結晶回折装置を立ち上げて高精度磁気構造解析を行い、磁気モーメント分布を可視化することにより電子の軌道分布を研究する。

(2) 高エネルギー加速器研究機構共同研究の放射光施設フォトンファクトリー(PF)で多重反射を回避して高精度に反射強度を測定するプログラムを導入して整備し、さらにヘリウム吹きつけ法による低温装置を導入して、 d 電子を差フーリエ法で可視化できる可能性を調べる。

3. 研究の方法

最初は平成 23 年度に稼働する予定であった J-PARC の単結晶回折装置 SENJU を使用して、平成 24 年度に磁気構造解析を高い Q まで行い、磁気モーメント分布を高分解能で求める予定であった。これは、平成 23 年 3 月の地震で出来上がった装置が大きな被害を被ったので、一年遅れることになった。一方、放射光施設 PF は地震後の復帰が早かったため、実際の測定は放射光を用いた研究方法に重点を置いた。

(1) 平成 23 年度に SENJU を再建築して、平成 24 年度に評価実験をおこなった。いくつかの標準試料で結晶構造解析が実際に可能になるように装置を調整し、ルビーの標準試料でどの程度大きな Q 領域まで測定可能かを調べた。また、標準試料の MnF_2 で磁気反射強度の測定と磁気反射がどの程度大きな Q まで測定可能かも調べた。高エネルギー中性子が使用できるパルス中性子により、大きな Q 領域までの測定方法を進展させようというものである。

(2) 放射光 PF の BL14A を用いて多重反射回避プログラムのテストを実施し、今まで中性

子偏極回折実験と放射光吸収端での回折実験の実績がある $YTiO_3$ で測定を行った。この方法は、磁気秩序がなくても測定可能という特徴があるが、大きな量から大きな量を差し引くので、高精度の測定と多重反射による系統誤差の除去が開発要素となる。

4. 研究成果

(1) J-PARC の SENJU 立ち上げ開始は地震の影響で一年以上遅れて平成 24 年 10 月にコミッションが終了した。我々は装置立ち上げグループとして参画し調整まで終了した。装置の建設と概要に関しては国際会議での発表に基づくプロシーディングスが刊行された[発表雑誌論文の 1]。テスト実験として、標準試料の構造解析までは成功したが、今回の研究目的とする中性子磁気構造解析による本実験を行うところまでは至っていない。ただし、これまでの評価実験の結果は、十分に大きな単結晶を用意すれば本研究の目的は達成できる性能に徐々に近づきつつあることが証明されている。例えば、 $S=5/2$ の MnF_2 の比較的小さな結晶 ($2 \times 2 \times 2 \text{mm}^3$) で 200kW 運転時でも磁気反射は大きな Q まで見えている(図 1 で $\sin \theta / \lambda = 1.3$ に磁気反射が見える)。 $S=1/2$ の Cu 系の磁気反射でも、J-PARC の最終パワーである 1MW 運転時に大きな結晶を使えば、大きな Q までの測定が期待できる段階である。このことは、フーリエ変換してスピン密度を求めたときの分解能が、これまでの測定と比べて格段に向上するであろうと予測できる。従って、方法論開発としてはかなりの進歩が見られた。これらの結果は各種学会にて口頭発表した。

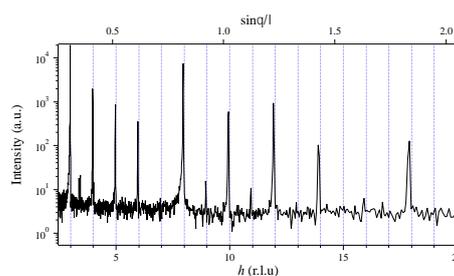


図 1 MnF_2 の磁気反射 (学会発表 1 の鬼柳等より)

(2) 放射光施設のフォトンファクトリー BL14A を使用して、X線回折で $YTiO_3$ の軌道の観察に成功した。高精度の測定により、Ti の d 軌道の電子を差フーリエ法で可視化することに成功した。結果は予想外によく見えており、Ti の dxz , dyz 軌道の電子が予想通りの位置に観測されている。この結果は日本物

理学会において発表しており(図2)、平成25年度に国際会議での発表とそのプロシーディングスとして公表する予定である。

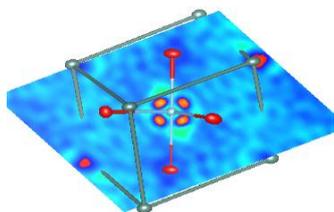


図2 YTiO₃のTi周りのd電子軌道(学会発表6の坂倉等より)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計1件)

1. I. Tamura, K. Oikawa, T. Kawasaki, T. Ohhara, K. Kaneko, R. Kiyonagi, H. Kimura, M. Takahashi, T. Kiyotani, M. Arai, Y. Noda and K. Ohshima, Current status of a time-of-flight single crystal neutron diffractometer SENJU at J-PARC 査読有り Journal of Physics: Conference Series 340(2012)012040(4pp). DOI:10.1088/1742-6596/340/1/012040

[学会発表](計12件)

1. 鬼柳亮嗣, 大原高志, 及川健一, 田村格良, 金子耕士, 川崎卓郎, 花島隆泰, 中尾朗子, 宗像孝司, 木村宏之, 坂倉輝俊, 野田幸男, 高橋美和子, 清谷多美子, 大嶋建一, 新井正敏, 立ち上がった特殊環境微小単結晶中性子構造解析装置 SENJU の現状, 日本物理学会(2013. 3. 26) (広島大学) 東広島市 2013. 3. 26-3. 29 概要, Vol 68 No .1 p.1013. 講演プログラム番号 26aXZB-4
2. 花島隆泰, 大原高志, 中尾朗子, 宗像孝司, 鬼柳亮嗣, 川崎卓郎, 及川健一, 田村格良, 金子耕士, 新井正敏, 木村宏之, 野田幸男, 高橋美和子, 大嶋建一, 清谷多美子, 特殊環境微小単結晶中性子構造解析装置 SENJU の立ち上げと現状, 日本中性子科学会(2012. 12. 11) (京都大学百周年時計台記念館) 2012. 12. 10-12. 11, 講演概要集 p. 27. 講演プログラム番号 OB-6
3. 鬼柳亮嗣, 大原高志, 川崎卓郎, 及川健一, 田村格良, 金子耕士, 中尾朗子, 花島隆泰, 宗像孝司, 木村宏之, 坂倉輝俊,

- Chang-Hee Lee, 野田幸男, 高橋美和子, 清谷多美子, 大嶋建一, 新井正敏, SENJU における構造解析の現状, 日本結晶学会(2012. 10. 26) (東北大学片平キャンパス) 2012. 10. 25-10. 26, 講演要旨集 p. 84. 講演プログラム番号 26PA10
4. 大原高志, 鬼柳亮嗣, 川崎卓郎, 及川健一, 田村格良, 金子耕士, 中尾朗子, 花島隆泰, 宗像孝司, 木村宏之, 野田幸男, 高橋美和子, 清谷多美子, 大嶋建一, 新井正敏, 特殊環境微小単結晶中性子回折計 SENJU の立ち上げと現状, 日本結晶学会(2012. 10. 26) (東北大学片平キャンパス) 2012. 10. 25-10. 26, 講演要旨集, p. 33. 講演プログラム番号 26OA02
 5. 野田幸男, 磁気構造とスピン分布の測定 - Over View -, 日本結晶学会(2012. 10. 26) (東北大学片平キャンパス) 2012. 10. 25-10. 26, 講演要旨集, p. 7. 講演プログラム番号 26SA01
 6. 坂倉輝俊, 中野隆裕, 木村宏之, 野田幸男, 石川喜久, 十倉好紀, 宮坂茂樹, 放射光単結晶 X 線回折法による YTiO₃ の軌道秩序の研究, 日本物理学会(2012. 9. 21) (横浜国立大学) Vol 67 概要, No .2 p. 592. 講演プログラム番号 21aPSB-25
 7. 鬼柳亮嗣, 大原高志 A, 及川健一, 田村格良, 金子耕士, 川崎卓郎, 花島隆泰, 中尾朗子, 宗像孝司, 木村宏之, 野田幸男, 高橋美和子, 清谷多美子, 大嶋建一, 新井正敏, 特殊環境微小単結晶中性子構造解析装置 SENJU の立ち上げと現状, 日本物理学会(2012. 9. 20) (横浜国立大学) 概要, Vol 67 No .2 p. 867. 講演プログラム番号 20aAG-5
 8. T. Sakakura, Y. Ishikawa, T. Nakano, H. Kimura, Y. Noda, Y. Tokura, and S. Miyasaka, Orbital Order in YTiO₃ Observed by Super Accurate Synchrotron X-ray Diffraction, The 9th Korea-Japan Conference on Ferroelectrics (KJC-FE09), University of Ulsan, Ulsan, Korea August 9, 2012, abstract book p.118, program NO: Poster-P56
 9. R. Kiyonagi, T. Ohhara, T. Kawasaki, K. Oikawa, I Tamura, K Kaneko, A. Nakao, T. Hanashima, K. Munakata, H. Kimura, T. Sakakura, C-H. Lee, Y. Noda, M. Takahashi, T. Kiyotani, K. Ohshima, M. Arai, Structure analyses on the new TOF neutron single crystal diffractometer, SENJU, at J-PARC/MLF, AsCA12/CRYSTAL28, December 2-6, 2012, Adelaide Convention Centre, Australia, abstract book P104, program NO: Poster-3172

10. T. Ohhara, R. Kiyonagi, T. Kawasaki, K. Oikawa, I Tamura, K Kaneko, A. Nakao, T. Hanashima, K. Munakata, H. Kimura, Y. Noda, M. Takahashi, T. Kiyotani, M. Arai, SENJU: An Extreme Environment Single Crystal Neutron Diffractometer at BL18 of J-PARC, AsCA12/CRYSTAL28, December 2-6, 2012, Adelaide Convention Centre, Austraria, abstract book P112, program NO: Poster-3214
11. 坂倉輝俊, 木村宏之, 野田幸男, 精密構造測定のための多重散乱回避技術の研究, 日本物理学会(2012.3.25) (関西学院大学) 概要集, Vol 67 No .1 p.999. 講演プログラム番号 25aPS-15
12. 川崎卓郎, 及川健一, 大原高志, 鬼柳亮嗣, 田村格良, 金子耕士, 木村宏之, 野田幸男, 高橋美和子, 清谷多美子, 新井正敏, 大嶋建一, 中尾朗子, 花島隆泰, 宗像孝司, 単結晶構造解析装置 SENJU の現状, 日本物理学会(2012.3.25) (関西学院大学) Vol 67 概要集, No .1 p.1007. 講演プログラム番号 25pCL-8

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

野田 幸男 (NODA YUKIO)
東北大学・多元物質科学研究所・教授
研究者番号：80127274

(2) 研究分担者

木村 宏之 (KIMURA HIROYUKI)
東北大学・多元物質科学研究所・准教授
研究者番号：50312658

(3) 連携研究者

()

研究者番号：