

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 9 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26390117

研究課題名(和文)大強度パルス中性子による外場応答ダイナミクスのリアルタイム追跡技術の開発

研究課題名(英文)Development of real-time tracking technique of external field responsive dynamics using the high-intensity pulsed neutron beam

研究代表者

中村 充孝(NAKAMURA, MITSUTAKA)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARCセンター・研究主幹

研究者番号：00370445

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,900,000円

研究成果の概要(和文)：パルス中性子発生周期と測定試料への外場印可のタイミングを同期させる回路系とこの同期回路に接続可能な光同期試料スティックの開発に成功した。これによりパルス中性子発生周期と同期して任意の励起光を試料に印可できるようになり、中性子散乱実験を通じてミリ秒オーダーの光応答ダイナミクスをリアルタイムで追跡することが可能となった。この技術は電場や磁場等といった光以外の外場にも適用可能であり、物性物理学や生命科学等の広い学問分野に亘って重要な研究テーマである外場応答ダイナミクスの研究が大強度パルス中性子を駆使することによりさらに加速するものと期待される。

研究成果の概要(英文)：We succeeded in developing an electronic circuit that synchronizes the period of pulsed neutron production with the timing of applying external field to the sample. In addition, we have also developed the new sample stick specially for the neutron scattering experiments under the photoirradiation. The combination of synchronization circuit and new sample stick enables us to realize the real-time tracking of millisecond-order photoresponsive dynamics by neutron scattering experiments. This technique can be applied to other external fields such as electric field and magnetic field, and can further accelerate the research activities of the external field responsive dynamics over wide research fields.

研究分野：中性子散乱

キーワード：パルス中性子 新規解析手法 外場応答ダイナミクス

1. 研究開始当初の背景

パルス中性子源施設で稼働しているほぼ全ての中性子実験装置は、飛行時間(TOF)法の特徴と利点を活かした各種計測を行っているが、白色中性子ビームを利用する回折実験やチョッパーによりエネルギー選別(単色化という)された単色中性子ビームを利用する非弾性散乱実験等といったパルス中性子実験における TOF 解析手法そのものは、30年以上前に確立されたものである。研究代表者らは、パルス中性子実験装置における TOF 解析の有用性は未だ最大限に発揮されていないものと考え、現在に至るまで様々な解析手法や中性子デバイスの新規開発に取り組んできた。これまでの開発が実を結んだ最も大きな成果は、チョッパー分光器における Multi-E_i 法の実用化である。Multi-E_i 法は、複数の異なる入射エネルギーを同時に利用して、異なるエネルギースケールにわたる励起の階層構造を一挙に網羅できる測定手法である。我々の成功を受けて、海外施設においても Multi-E_i 法の採用が急速に進み、今やチョッパー分光器における非弾性中性子散乱実験では、世界的にスタンダードな実験手法となった。

2. 研究の目的

本研究課題は、チョッパー分光器の単色化チョッパーで選択される複数の中性子ビームが一定の時間差をもって試料に到達することを積極的に利用して、物質におけるミリ秒オーダーの外場応答ダイナミクス情報をリアルタイムで追跡できる新規解析手法の実用化に向けた技術開発の推進を主目的としたものである。つまり、我々が開発に成功し、世界的に普及した Multi-E_i 法の特徴を最大限に活用した新規実験手法を開発することを目的とする。

この新規技術が貢献しうる測定対象は、光や電場、磁場等の外場励起によってミリ秒オーダーの応答特性を示す物質群であり、物性物理学、生命科学、食品科学等の極めて広い学問分野に亘る。特に、比較的分子量の大きい物質では、数多くの興味深いミリ秒オーダーの外場応答ダイナミクス(たとえば、バクテリオロドプシンの光駆動プロトンポンプ機構、タンパク質の折りたたみ過程、液晶の電場応答特性など)が観測されることが知られており、本研究課題の完遂によって当該研究分野のさらなる発展が期待できる。

3. 研究の方法

初めに本研究課題で新たに提案する実験・解析手法について説明する。Multi-E_i 法と同じ原理で、パルス中性子線源で発生した白色中性子は f [Hz] で回転する単色化チョッパーにより単色化され、異なるエネルギーを有する中性子ビームが試料に複数入射する。このとき、試料には $t = (1000/f) \times (L_1/L_{ch})$ ミリ秒毎に中性子ビームが到達することとな

る。ここで、 L_1 は線源-試料間の距離、 L_{ch} は線源-単色化チョッパー間の距離である。このとき、パルス中性子発生周期と同期した外場を試料に印可することができれば、外場印可後の $T, T + t, T + 2t, \dots$ ミリ秒後における弾性(準弾性)散乱スペクトルが得られ、外場印可による構造緩和(拡散)過程のスナップショットを逐次取得することが可能である。外場励起による始状態、中間状態、終状態等が出現する時刻が明らかになれば、試料に導く入射中性子ビームの本数を絞り、これらの時刻に中性子ビームが試料に到達する時刻を合わせることで、ある時刻での非弾性散乱スナップショットを取得することができる。これにより、外場によって誘起される様々な状態下において、広い運動量-エネルギー空間にわたるダイナミクス情報の観測が可能となる。

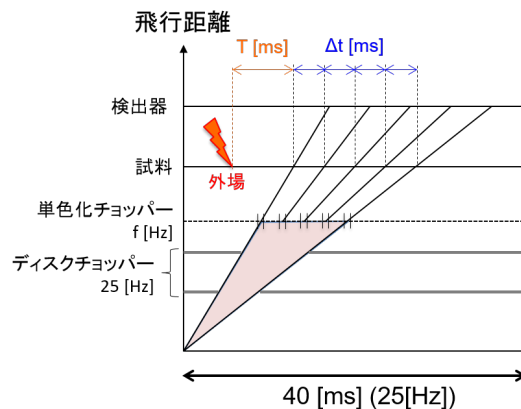


図 1: 新規解析手法の飛行時間ダイアグラム

上述の新規手法を実現するため、以下の方法で研究開発を行った。

(1) 外場印可同期回路系の設計・開発

J-PARC の加速器トリガー信号と同期して、外場印可の出力信号を出すことのできる回路を設計・開発する。この同期回路の開発こそが本研究の最重要課題である。この回路系をベースに、トリガー信号に同期した出力信号を多岐に亘る試料環境デバイスに送信できる「ユニバーサルボックス」を製作する。これにより、光や電場等といった様々な外場と組み合わせた中性子散乱による外場応答ダイナミクスの研究が可能となる。

(2) 光同期試料スティックの設計・製作

測定試料に LED やレーザー等の光を照射することができる試料スティックを設計・開発する。この試料スティックは中性子実験装置で一般的に用いられるトップローディング型冷凍機に上方から挿入することができるものであり、(1)で開発する外場印可同期回路を組み合わせることで、ミリ秒オーダーの光応答ダイナミクス情報をリアルタイムで追跡できるようになる。

4. 研究成果

本研究課題で開発に成功した外場印可同期回路の入出力信号波形を図2に示す。25Hz周期のトリガー信号入力に対し、あるディレイ時間の後にパルス状の信号が出力されている。出力信号のパルス時間幅とディレイ時間は任意に変更することが可能である。

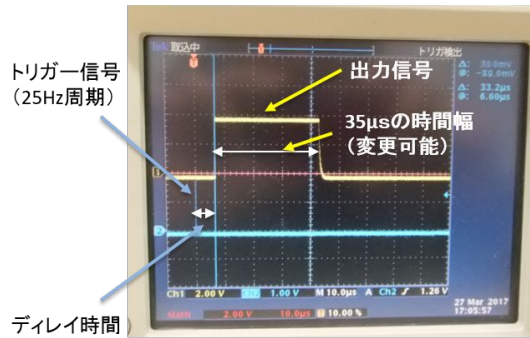


図2: 外場印可同期回路の入出力信号波形

この同期回路に接続可能な光同期試料スティックを開発し、実機を製作した。光同期試料スティックの写真を図3に示す。光ファイバーを通じて外部からの光を試料位置まで導くことができ、80K~室温の温度領域で実験可能である。本研究課題では365nm及び660nmのLED光源を購入し、このスティックで運用しているが、外部光源との接続は一般的な光ファイバーカップリングを採用しており、原理的にはいかなる波長の光源であっても使用可能である。

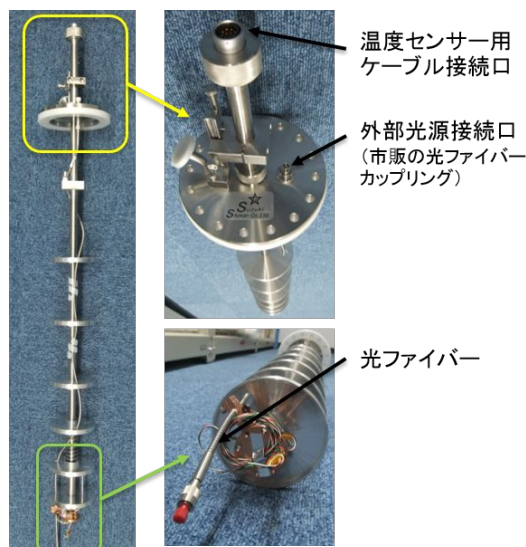


図3: 光同期試料スティック

このように、本研究課題の主目的として掲げていた主要な技術を確認することができた。この技術は光のみならず電場や磁場等といった他の外場にも適用可能であり、今後、物性物理学や生命科学等の広い学問分野に

亘って重要な研究テーマである外場応答ダイナミクスの研究が大強度パルス中性子を駆使することによりさらに加速するものと期待される。

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 19件)

中村 充孝、J-PARC チョッパー分光器による非晶質・超イオン伝導体のダイナミクス研究、RADIOISOTOPES、査読有、66巻、2017、pp. 93 -- 99
DOI:10.3769/radioisotopes.66.93

H. Seto, S. Itoh, T. Yokoo, H. Endo, K. Nakajima, K. Shibata, R. Kajimoto, S. Ohira-Kawamura, M. Nakamura, Y. Kawakita, H. Nakagawa, T. Yamada、Inelastic and quasi-elastic neutron scattering spectrometers in J-PARC、Biochimica et Biophysica Acta、査読有、1861巻、2017、pp.3651 -- 3660、
DOI:10.1016/j.bbagen.2016.04.025

稲村 泰弘、中村 充孝、新井 正敏、無秩序系の低エネルギーダイナミクス、RADIOISOTOPES、査読有、65巻、2016、pp. 319 -- 324
DOI:10.3769/radioisotopes.65.319

T. Okuda, H. Hata, T. Eto, S. Sobaru, R. Oda, H. Kaji, K. Nishina, H. Kuwahara, M. Nakamura, R. Kajimoto、Effects of Mn Substitution on the Thermoelectric Properties and Thermal Excitations of the Electron-doped Perovskite $Sr_{1-x}La_xTiO_3$ 、Journal of the Physical Society of Japan、査読有、85巻、2016、pp. 094717(-1) -- 094717(-6)、
DOI:10.7566/JPSJ.85.094717

D. Hu, Z. Yin, W. Zhang, R.A. Ewings, K. Ikeuchi, M. Nakamura, B. Roessli, Y. Wei, L. Zhao, G. Chen, S. Li, H. Luo, K. Haule, G. Kotliar, P. Dai、Spin excitations in optimally P-doped $BaFe_2(As_{0.7}P_{0.3})_2$ superconductor、Physical Review B、査読有、94巻、2016、094504(-1) -- 094504(-7)
DOI: 10.1103/PhysRevB.94.094504

M. Nakamura, Y. Kawakita, W. Kambara, K. Aoyama, R. Kajimoto, K. Nakajima, S. Ohira-Kawamura, K. Ikeuchi, T. Kikuchi, Y. Inamura, K. Iida, K. Kamazawa, M. Ishikado、Oscillating Radial Collimators for the Chopper

Spectrometer at MLF in J-PARC、JPS Conference Proceedings、査読有、8巻、2015、pp.036011(-1) -- 036011(-6)、DOI:10.7566/JSPSC.8.036011

S. Tahara, Y. Kawakita, M. Nakamura, H. Shimakura, T. Kikuchi, Y. Inamura, K. Nakajima, S. Ohira-Kawamura, T. Sunakawa, T. Fukami、Two Low-Energy Excitations in Superionic Conductors of RbAg_4I_5 and KAg_4I_5 、JPS Conference Proceedings、査読有、8巻、2015、pp. 031008(-1) -- 031008(-6)、DOI: 10.7566/JSPSC.8.031008

M. Arai, M. Futakawa, H. Takada, K. Haga, S. Meigo, Y. Miyake, M. Harada, K. Nakajima, R. Kajimoto, M. Nakamura, K. Suzuya, K. Shibata, J. Suzuki, S. Takata, T. Nakatani, Y. Inamura, T. Nakamura, T. Oku, K. Aizawa, K. Soyama, Y. Kawakita、Present Status of the Materials & Life Science Experimental Facility of J-PARC、JPS Conference Proceedings、査読有、8巻、2015、pp.036021(-1) -- 036021(-10)、DOI:10.7566/JSPSC.8.036001

E. Kartini, M. Nakamura, M. Arai, Y. Inamura, K. Nakajima, T. Maksum, W. Hoggowiranto and T.Y.S.P. Putra、Structure and dynamics of solid electrolyte $(\text{LiI})_{0.3}(\text{LiPO}_3)_{0.7}$ 、Solid State Ionics、査読有、262巻、2014、pp. 833 -- 836
DOI: 10.1016/j.ssi.2013.12.041

M. Nakamura, R. Kajimoto、General Formulae for the Optimized Design of Fermi Chopper Spectrometer、JPS Conference Proceedings、査読有、1巻、2014、pp. 014018(-1) -- 014018(-4)
DOI:10.7566/JSPSC.1.014018

[学会発表](計 20件)

R. Kajimoto, M. Nakamura, Y. Inamura, K. Kamazawa, K. Ikeuchi, K. Iida, M. Ishikado, N. Murai, T. Nakatani, N. Kubo, W. Kambara、Status report of the chopper spectrometer 4SEASONS、The 22nd meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Source (ICANS XXII)、2017年3月29日、オックスフォード(イギリス)

稲村 泰弘、中谷 健、伊藤 崇芳、梶本 亮一、中村 充孝、鈴木 次郎、「空蝉」における単結晶試料の非弾性散乱連続回転測定、2016年度量子ビームサイエンスフェスタ、2017年3月14日、つくば国際会

議場(茨城県・つくば市)

石角 元志、吉良 弘、蒲沢 和也、池内 和彦、飯田 一樹、梶本 亮一、中村 充孝、稲村 泰弘、高橋 竜太、J-PARC・MLF、「四季」における高温用試料スティックの開発・整備状況、日本中性子科学会第16回年会、2016年12月2日、名古屋大学豊田講堂(愛知県・名古屋市)

M. Nakamura, W. Kambara, R. Kajimoto, K. Ikeuchi, K. Iida, K. Kamazawa, M. Ishikado, Y. Inamura, K. Aoyama、Development of oscillating radial collimator for the Fermi chopper spectrometer 4SEASONS at J-PARC、The 7th Workshop on inelastic Neutron Spectrometers (WINS2016)、2016年9月8日、ポツダム(ドイツ)

中村 充孝、梶本 亮一、稲村 泰弘、青山和弘、神原 理、川上 一弘、久保 直也、蒲沢 和也、池内 和彦、飯田 一樹、石角元志、J-PARC BL01 四季におけるフェルミチョッパーの高度化、日本中性子科学会第15回年会、2015年12月11日、和光市民文化センター(埼玉県・和光市)

梶本 亮一、中村 充孝、稲村 泰弘、中島健次、河村 聖子、中谷 健、神原 理、久保 直也、青山 和弘、川上 一弘、山内 康弘、細谷 倫紀、相澤 一也、蒲沢 和也、池内 和彦、飯田 一樹、石角 元志、桐山幸治、J-PARC BL01 チョッパー分光器「四季」'15、日本中性子科学会第15回年会、2015年12月11日、和光市民文化センター(埼玉県・和光市)

W. Kambara, M. Nakamura, K. Aizawa、Current Status of TO Chopper System in MLF、The 4th Design and Engineering of Neutron Instruments Meeting (DENIM2015)、2015年9月8日、ブダペスト(ハンガリー)

Y. Kawakita, S. Tahara, T. Kikuchi, M. Nakamura, Y. Inamura, K. Maruyama, Y. Yamauchi, K. Nakajima, S. Ohira-Kawamura, W. Kambara, M. Arai、Interpretation of coherent dynamics of molten CuI from molecular dynamics simulation、The 6th European Conference on Neutron Scattering (ECNS2015)、2015年8月31日、サラゴザ(スペイン)

M. Nakamura, K. Ikeuchi, R. Kajimoto, W. Kambara, Th. Krist, T. Shinohara, M. Arai, K. Iida, K. Kamazawa, Y. Inamura, M. Ishikado、MAGIC chopper: theory,

simulation, and experimental evaluation. The 21st meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Source (ICANS XXI)、2014年9月30日、茨城県立県民文化センター（茨城県・水戸市）

R. Kajimoto, M. Nakamura, Y. Inamura, K. Kamazawa, K. Ikeuchi, K. Iida, M. Ishikado, K. Nakajima, S. Ohira-Kawamura, T. Nakatani, W. Kambara, H. Tanaka, Y. Yamauchi, K. Aoyama, T. Hosoya, K. Kiriyama, K. Aizawa, M. Arai. Recent progress in the chopper spectrometer 4SEASONS at J-PARC. The 21st meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Source (ICANS XXI)、2014年9月30日、茨城県立県民文化センター（茨城県・水戸市）

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中村 充孝 (NAKAMURA, Mitsutaka)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARC センター・研究主幹
研究者番号：00370445

(2) 連携研究者

川北 至信 (KAWAKITA, Yukinobu)
国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 J-PARC センター・研究副主幹
研究者番号：50264015

(3) 研究協力者

神原 理 (KAMBARA, Wataru)
田中 浩道 (TANAKA, Hiromichi)
山内 康弘 (YAMAUCHI, Yasuhiro)