

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19K12648

研究課題名(和文) 中性子散乱非弾性実験による実空間ダイナミクス解析手法の確立と物性研究への応用

研究課題名(英文) Establishment of real-space dynamical analysis by inelastic neutron scattering experiment and its application to condensed matter physics

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) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：中性子による非弾性散乱実験では、「逆格子空間」にエネルギー軸を加えた動的構造因子が得られるが、このデータを「実空間」に変換することで有用な物性情報を取得するための解析手法(実空間ダイナミクス解析手法)の実現を目指して研究活動を進めた。具体的には、標準試料を用いた測定によるバックグラウンドの評価とその低減対策、高い位置分解能測定を目的としたTOチョッパー高速化、分子力学法を援用した逆モンテカルロ計算コードの改造等を行い、実空間ダイナミクス解析手法の実用化に向けた要素技術の確立に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

実空間において局所的な乱れが存在する場合、逆格子空間を通じて局所乱れに起因する構造やダイナミクスを議論することはほぼ不可能である。したがって、本研究計画が目指してきた実空間ダイナミクス解析手法の確立は、局所ダイナミクスが新奇物性の発現のキーとなる先端的研究において不可欠の研究ツールをもたらすものであり、従来にない新たな視点での物性研究を開拓しうる。

研究成果の概要(英文)：Inelastic neutron scattering (INS) experiments provide the dynamic structure factors by adding the energy axis to the "reciprocal lattice space". We conducted the research activities to realize an analytical method to obtain useful physical property information by converting the INS data into "real space" (real-space dynamics analysis method). Specifically, we evaluated the background by the measurement using the standard sample and took measures to reduce it, developed the high-speed TO chopper for the purpose of high spatial resolution measurement, modified the inverse Monte Carlo calculation code using the molecular mechanics method. We have succeeded in establishing elemental technologies for the practical use of real-space dynamics analysis method.

研究分野：中性子科学

キーワード：実空間ダイナミクス解析 中性子非弾性散乱実験

1. 研究開始当初の背景

(1) 中性子非弾性散乱 (INS) 実験は、広い運動量・エネルギー空間における物質の動的構造因子 $S(Q, E)$ を与える他に類を見ない強力な実験手段である。特に、茨城県東海村の J-PARC 物質・生命科学実験施設のパルス中性子源により発生する大強度中性子ビームは、従来の INS 実験の精度を格段に向上させることとなり、様々な学術分野における研究活動を促進している。ここでの Q は、入射波と散乱波の波数ベクトルをそれぞれ k_i と k_f としたときに、 $Q = k_i - k_f$ で定義されるベクトル量であり、散乱の際の運動量遷移を与える。測定対象が非晶質や多結晶粉末の場合、 Q はベクトル量ではなく、スカラー量として扱うことができる。

(2) 実空間において周期構造が存在する場合、その情報は逆格子空間中のある 1 点の Q に集約され、回折実験を通じて結晶の間隔等を決定することができ、フォノン分散等の集団運動も正確に測定することができる。しかしながら、実空間において局所的な乱れが存在する場合、 Q を通じてこの局所乱れに起因する構造やダイナミクスを議論することは難しい。したがって、このような局所ダイナミクスが物性発現のキーとなるような場合は、 $S(Q, E)$ ではなく、実空間動的構造因子 $G(r, E)$ で現象を捉えることが不可欠である。実際、1990 年代に石英ガラスやアモルファスホウ素等で $S(Q, E) \leftrightarrow G(r, E)$ の変換に関する報告がなされたが、後述の実験的困難さが理由で、現在に至るまで一般的な解析手法となり得ていなかった。

2. 研究の目的

$S(Q, E)$ は $G(r, E)$ と互いにフーリエ変換で結び付いているが、積分範囲が無限大であることから、できるだけ広い Q - E 空間をカバーした $S(Q, E)$ を INS 実験で測定することが望ましい。パルス中性子源施設において $S(Q, E)$ を取得できる代表的な中性子実験装置は、チョッパー分光器である。図 1 に示すように、チョッパー分光器がカバーする $S(Q, E)$ の Q - E 空間は、入射エネルギー (E_i) が高いほど広がる。一般的に、数百 meV に及ぶ高い E_i を使用するとエネルギー分解能が悪化し、散乱強度も極端に弱くなるために、フーリエ変換に耐えうる $S(Q, E)$ を得るためには、大量の試料量と膨大な測定時間が必要であった。この問題こそが INS 実験の実空間解析が一般的ツールとなり得なかった主な原因であった。

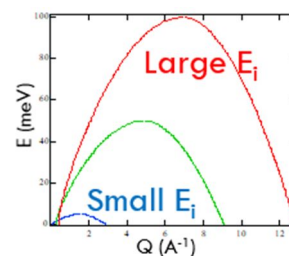


図 1: チョッパー分光器がカバーする $S(Q, E)$ の Q - E 空間

しかし、「大量の試料量と膨大な測定時間」の課題は、J-PARC で達成される大強度中性子ビームによって克服しうるものと考えられ、今回、INS 実験による実空間ダイナミクス解析手法の確立と物性研究への応用を主目的とする本研究計画を立案した。

3. 研究の方法

無限に広い Q - E 空間をカバーする $S(Q, E)$ を取得することは原理的に不可能であり、J-PARC の大強度中性子ビームを以ってしても、高い E_i を用いた高分解能・高強度の INS 実験はやはり難しい。そこで、INS 実験で得られる $S(Q, E)$ 二次元データマップ (図 2 参照) を一枚の画像と見立て、最大エントロピー法のアルゴリズムを利用して、十分に広い Q - E 空間をカバーする仮想 $S(Q, E)$ から実空間ダイナミクス解析を実行することを提案する。

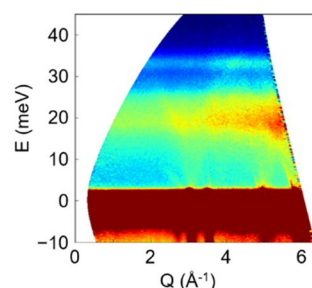


図 2: チョッパー分光器で測定される $S(Q, E)$ 二次元データマップ。

本研究で提案する新規解析手法を確立し、広く普及させるために、中性子非弾性散乱実験を通じて、新規解析手法の適用可能性とその限界に関する実験事実を積み上げるとともに、解析可能な r 領域の拡大といった適用可能性を拡張することを目的として解析アルゴリズムや中性子実験装置高度化にも取り組む。

4. 研究成果

我々が作成した $G(r, E)$ 変換コードの妥当性を検証するために、標準試料 (粉末ニッケル) の中性子非弾性散乱実験データの解析において任意の検出領域をマスクすることで、カバーされる Q - E 空間が異なる複数の $S(Q, E)$ データを生成 (図 3 参照) し、それぞれから $G(r, E)$ データを導出した。図 4 は、 $G(r, E)$ データから弾性散乱領域をピックアップした 1 次元データである。Ni 原子間の距離は、 2.49\AA 、 3.52\AA 、 4.32\AA であることが既知とされているが、やはり、最も広い Q - E 空間をカバーする $S(Q, E)$ データが最も確かな Ni 原子間距離を再現していることがわかる (図 4(a) 参照)。また、系統的な比較から、 $S(Q, E)$ データにおける Q の最大値が 6\AA^{-1} 以上であれば、

第一近接原子間距離 (2.42Å) を識別することが可能であることを明らかにした。

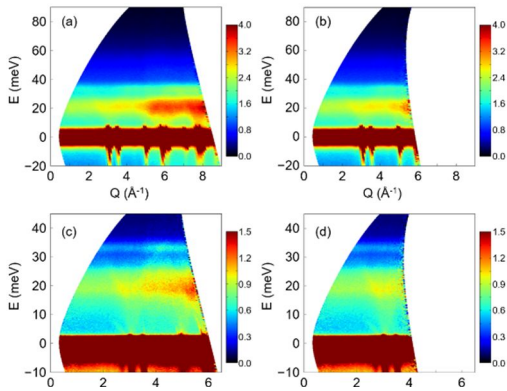


図 3: 様々な Q - E 領域での $S(Q, E)$ データ。(a) $E_i = 110.6 \text{ meV}$, $Q_{\text{max}} = 8.6 \text{ \AA}^{-1}$ (b) $E_i = 110.6 \text{ meV}$, $Q_{\text{max}} = 5.9 \text{ \AA}^{-1}$ (c) $E_i = 56.2 \text{ meV}$, $Q_{\text{max}} = 6.1 \text{ \AA}^{-1}$ (d) $E_i = 56.2 \text{ meV}$, $Q_{\text{max}} = 4.2 \text{ \AA}^{-1}$

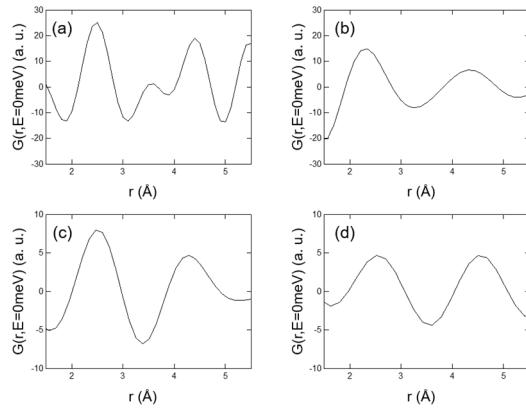


図 4: 弾性散乱領域における $G(r, E)$ の r 依存性。(a) $E_i = 110.6 \text{ meV}$, $Q_{\text{max}} = 8.6 \text{ \AA}^{-1}$ (b) $E_i = 110.6 \text{ meV}$, $Q_{\text{max}} = 5.9 \text{ \AA}^{-1}$ (c) $E_i = 56.2 \text{ meV}$, $Q_{\text{max}} = 6.1 \text{ \AA}^{-1}$ (d) $E_i = 56.2 \text{ meV}$, $Q_{\text{max}} = 4.2 \text{ \AA}^{-1}$

次に、非弾性散乱領域に着目する。図 5(a)は、図 3(c)の $S(Q, E)$ データから導出された $G(r, E)$ データであり、図 5(b)は、その $G(r, E)$ データを $r = 2.5 \text{ \AA}$ の位置でスライスした 1 次元プロットである。第一近接原子間距離に相当する $r = 2.5 \text{ \AA}$ 近傍のピーク位置は、 $E = 22 \text{ meV}$ に至るまで変化は見られない。また、図 5(b)において、 $E = 22 \text{ meV}$ 以下の領域で正の値を取っていることは、原子対相関が同位相であることを意味する。

さらに、図 5(b)では、 $E = 33 \text{ meV}$ で負のピークが観測されている。これは、ゾーン境界における縦型音響フォノンの原子対相関が逆位相になっていることを意味している。これらの実験事実は、これまでに蓄積されてきたニッケルに関する格子力学研究の結果をほぼ完全に再現しており、本解析手法の有効性を明らかに示すことができた。

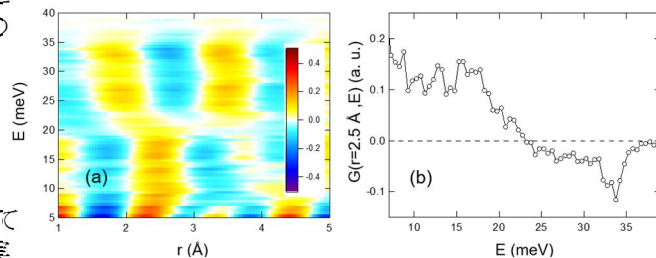


図 5: (a) 図 3(c)の $S(Q, E)$ データから導出された $G(r, E)$ データ (b) $r = 2.5 \text{ \AA}$ の位置でスライスした 1 次元プロット

その他、本研究計画の資金を一部利用して開発を進めてきた T0 チョッパーの高速化は、最高 100Hz の安定運転に成功した(図 6 参照)。T0 チョッパーはパルス中性子源から発生する高速中性子を遮断するための機器であり、回転数が低いと、測定に使用するエネルギーの中性子をも一部遮断してしまい、入射中性子強度が損なわれてしまうという問題があった。開発の成功によって、1000meV に及ぶ高いエネルギーの中性子の強度を損なうことなく入射中性子として利用できることとなり、広い Q - E 領域での $S(Q, E)$ データ取得が可能となった。このことは、 $G(r, E)$ データへの変換において、実空間 r の位置分解能をさらに向上できるようになったことを意味する。

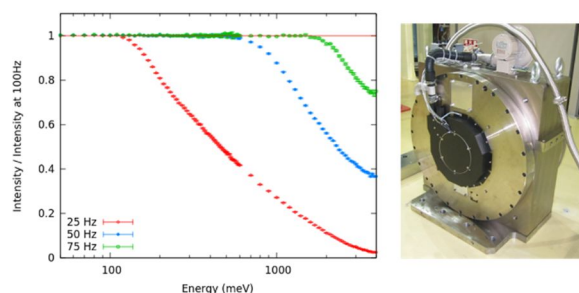


図 6: T0 チョッパー透過率の中性子エネルギー依存性。回転数が低いと高いエネルギーの中性子強度を減少させてしまう。

また、本研究から派生したスピン揺らぎの実空間ダイナミクス解析に関する研究成果が、2022 年 12 月 7 日にプレスリリースされた。

(<https://j-parc.jp/c/press-release/2022/12/07001084.html>)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 10件）

1. 著者名 Nakamura Mitsutaka, Kikuchi Tatsuya, Kawakita Yukinobu	4. 巻 567
2. 論文標題 Applicability and limitations of G(r, E) analysis transformed from the inelastic neutron scattering data	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physica B: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 61 ~ 64
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.physb.2019.01.002	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Kajimoto Ryoichi, Yokoo Tetsuya, Nakamura Mitsutaka, Kawakita Yukinobu, Matsuura Masato, Endo Hitoshi, Seto Hideki, Itoh Shinichi, Nakajima Kenji, Ohira-Kawamura Seiko	4. 巻 562
2. 論文標題 Status of neutron spectrometers at J-PARC	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physica B: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 148 ~ 154
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.physb.2018.11.061	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Kajimoto Ryoichi, Nakamura Mitsutaka, Iida Kazuki, Kamazawa Kazuya, Ikeuchi Kazuhiko, Inamura Yasuhiro, Ishikado Motoyuki	4. 巻 -
2. 論文標題 Energy resolution and neutron flux of the 4SEASONS spectrometer revisited	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Neutron Research	6. 最初と最後の頁 1 ~ 9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3233/JNR-200146	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Hattori T., Nakamura M., Iida K., Machida A., Sano-Furukawa A., Machida S., Arima H., Ohshita H., Honda T., Ikeda K., Otomo T.	4. 巻 106
2. 論文標題 Hydrogen vibration excitations of ZrH _{1.8} and TiH _{1.84} up to 21 GPa by incoherent inelastic neutron scattering	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.134309	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Iida Kazuki, Kodama Katsuaki, Inamura Yasuhiro, Nakamura Mitsutaka, Chang Lieh-Jeng, Shamoto Shin-ichi	4. 巻 12
2. 論文標題 Magnon mode transition in real space	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-022-22555-9	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kajimoto Ryoichi, Nakamura Mitsutaka, Kamazawa Kazuya, Inamura Yasuhiro, Iida Kazuki, Ikeuchi Kazuhiko, Ishikado Motoyuki	4. 巻 272
2. 論文標題 Possible future upgrades of the direct-geometry chopper spectrometer 4SEASONS	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 EPJ Web of Conferences	6. 最初と最後の頁 02007 ~ 02007
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1051/epjconf/202227202007	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計15件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 6件)

1. 発表者名 梶本亮一、中村充孝、蒲沢和也、稲村泰弘、飯田一樹、池内和彦、石角元志
2. 発表標題 非弾性中性子散乱装置「四季」の現状
3. 学会等名 日本中性子科学会第20回年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 M. Nakamura, R. Kajimoto, K. Oikawa, T. Shinohara, K. Aizawa, S. Harjo, T. Iwahashi, K. Kamazawa, K. Ikeuchi, K. Iida, Y. Inamura, M. Ishikado
2. 発表標題 Investigations of the cause of unexpected elastic tail observed in the Fermi chopper spectrometer 4SEASONS
3. 学会等名 The 23rd meeting of the International Collaboration on Advanced Neutron Sources (ICANS XXIII) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Kajimoto, M. Nakamura, K. Kamazawa, Y. Inamura, K. Ikeuchi, K. Iida, and M. Ishikado
2. 発表標題 Time-of-Flight Direct-Geometry Neutron Spectrometer 4SEASONS at J-PARC
3. 学会等名 The 3rd J-PARC Symposium (J-PARC 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飯田一樹, 樹神克明, 稲村泰弘, 中村充孝, 張烈錚, 社本真一
2. 発表標題 実空間でのマグノンモード転移
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Ryoichi Kajimoto, Mitsutaka Nakamura, Kazuya Kamazawa, Yasuhiro Inamura, Kazuki Iida, Kazuhiko Ikeuchi, and Motoyuki Ishikado
2. 発表標題 Current status and issues in the direct geometry time-of-flight spectrometer 4SEASONS
3. 学会等名 Conference on Quasielastic Neutron Scattering and Workshop on Inelastic Neutron Spectrometers (QENS/WINS 2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 梶本亮一, 中村充孝, 蒲沢和也, 稲村泰弘, 飯田一樹, 池内和彦, 石角元志
2. 発表標題 非弾性中性子散乱装置「四季」の高度化の検討
3. 学会等名 日本中性子科学会 第22回年会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

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

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------