

科学研究費補助金（学術創成研究費）公表用資料

[事後評価用]

平成 16 年度採択分
平成 22 年 3 月 31 日現在

研究課題名（和文） **パルス中性子源を活用した
量子機能発現機構に関する融合研究**
研究課題名（英文） **Advanced pulsed-neutron research
on quantum functions in nano-scale materials**
研究代表者 氏名 **池田 進 (IKEDA SUSUMU)**
高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・教授



推薦の観点：国際協力によるパルス中性子科学の創成

研究の概要：表面・界面研究、グリーンマテリアル研究、非一様系研究、水素結合系研究、強相関物質研究を深化させ、新しい研究方向を確立させるとともに、医学や考古学のような新しい分野での中性子利用の可能性を示すことに成功した。また、多くの基盤技術や解析手法を実現させ、これらを用いた新しい中性子実験装置開発に至った。

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学 ・ ナノ構造科学

キーワード：パルス中性子、物性物理、ナノ物質・材料、計測技術、国際協力

1. 研究開始当初の背景

1MW 級大型パルス中性子源が、日本の J-PARC 計画、米国の SNS 計画、欧州の ESS 計画として世界の三ヶ所で、2000 年代初頭に建設されようとしていた。パルス中性子科学における新時代の到来である。この新時代に向けて、高エネルギー加速器研究機構(KEK)パルス中性子施設 KENS や強度で勝る英米の既存パルス中性子施設（米国 IPNS 施設、米国 LANSCE 施設、英国 ISIS 施設）を利用し、新時代で日本が先導すべき新しい中性子科学を創成することが強く求められていた。J-PARC 完成は 2007-8 年に予定され、一方、KENS は 2006 年度の閉鎖が検討されており、状況は逼迫していた。

2. 研究の目的

新しい中性子科学の創成を目指して、パルス中性子研究を深化させ新しい研究方向を確立する。また、医学や考古学分野の新分野での応用に挑戦する。パルス中性子技術を革新し、新時代に適合した高性能中性子実験装置を開発する。

3. 研究の方法

KENS 施設を最大限に活用し、日英中性子散乱研究協力事業（KEK が 1986 年より ISIS 施設でパルス中性子散乱研究を推進）の枠組みを利用し、さらに IPNS 施設、LANSCE 施設と国際協力により、表面・界面研究、グリーンマテリアル研究、非一様系研究、水素結合系研究、強相関物質研究の新しい方向の研究を推進するとともに革新的なパルス中性子技術の開発を行う。また、医学研究応用や考古学研究応用に挑戦する。

4. 研究の主な成果

KENS や ISIS 施設の中性子反射計を用いて、薄膜の熱的破壊現象である Dewetting を抑制する添加剤の役割、濃厚ブランシが持つ機能と界面構造との相関、ブロック共重合体薄膜に誘起される相分離構造、生体膜のモデルであるリン脂質二分子膜の添加剤による作成効率向上の原因等を明らかにした。また、非鏡面反射を測定することにより、基板上の薄膜の脱濡れ過程に発生したドロップレット構造を発見した。さらに、高分子薄膜はその内部でかなり不均一な多層構造をとっていることを動的観点から示し、膜厚の減少に伴いガラス転移温度や熱膨張係数が低下する原因を明らかにした。

従来の周期構造解析法に加えて、MEM(最大エントロピー法)、PDF(二体分布相関関数法)、RMC(逆モンテカルロ法)を採用し、局所的な乱れを含めたより正確な構造解析技術の開発を行なった。KENS や IPNS 施設でのデータを新解析技術で解析した結果、電池関連材料を含むグリーンマテリアルの材料機能は、微小な特定の原子変位に起因することを明らかにした。例えば、固溶体型水素吸蔵合金 Ti-Cr-Mo 系の水素分布、リチウム伝導体 $(\text{Li}, \text{La})\text{TiO}_3$ のイオン伝導度、CuI の高温の超イオン伝導性、プロトン伝導体 $\text{RbMg}(\text{PO}_3)_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ の伝導性、高温酸素分離膜材料ランタンガレートのイオン伝導性、かご型物質 $12\text{CaO} \cdot 7\text{Al}_2\text{O}_3$ のイオン伝導性。六方晶 RMnO_3 におけるマルチフェロイック性。電池材料オリビン酸鉄リチウムにおける内部抵抗増大。

パーコレーション磁性体は唯一単結晶試料の存在するフラクタル系である。このフラクタル次元を実験的に決定するとともに、中性子非弾性散乱実験により集団励起モードであるフラクトンの検証を行なった。動的構造因子が单一特性長でスケールされるという長年の理論的予想をはじめて実験的に完全に証明した。これはガラス、非晶質、液体等々の非一様系における構造とダイナミックスを統一的に理解する手がかりを与える成果である。

ISIS の高エネルギー励起を観測できるチョッパー分光器を用いて、高温超伝導体のダイナミック研究が行われた。いくつかの銅酸化物超伝導体について、磁気励起スペクトルの全容を高いエネルギー領域まで測定し、スペクトルや分散関係の普遍的側面を明らかにした。

異常凝集が白内障を引き起こすと考えられる水晶体内タンパク質クリスタリンにおいて、外的ストレス(低温化・UV 被爆)による異常凝集の過程を明らかにした。パーキンソン病やアルツハイマー病と関連する脳タンパク質 UCLH-1、 α シニクレン、タウの異常凝集機構の解明を行ない、凝集と疾病との関連を指摘した。また、火縄銃や縄文土器に関する考古学研究を行ない、江戸時代における火縄銃の銃身の製法を明らかにするとともに、縄文土器中の結晶性 α 石英の存在比が縄文時代中期に急激に増大することを見つけた。

パルス中性子技術も大きく革新された。1 % のエネルギー分解能を可能とするフェルミチョッパーや eV 分光を可能とする T0 チョッパーの実現と国産化。 ^3He を用いた偏極子、サイトップ材を用いた中性子光学素子フレネルレンズ、中性子ビームを集束させる曲面ミラー、高計数率中性子検出器を目指したマイクロストリップガス比例計数管(MSGC)等の開発。KEK の素粒子実験用に開発された DAQ ミドルウェアを導入し、NEUNET システム(ハードウェア)を開発して高性能データハンドリングシステムを構築した。

新しい研究方向をさらに高度に展開するために必要とされる世界最高性能の実験装置(水平型中性子反射計、超高分解能粉末解析装置、全散乱装置、高分解能チョッパー分光器)の設計を、革新された技術を導入して進めた。これら全ての装置は、2009 年には、世界最高性能を有する実験装置として J-PARC で実現し、世界をリードするデータを創出し始めている。

5. 得られた成果の世界・日本における位置づけとインパクト

(1) 表面・界面研究、グリーンマテリアル研究、非一様系研究、水素結合系研究、強相関物質研究の分野で進めたパルス中性子実

験研究は多くの学術成果を生みだし、産業界を含めた広い学術研究分野で認められた。その結果として、電池材料専用実験装置や水素貯蔵材料専用実験装置の建設が認められた。

(2) 本研究で設計した実験装置は、それぞれ世界最高性能を有する実験装置として実現し、世界をリードするデータを創出している。例えば、超高分解能粉末解析装置では、世界最高性能の 0.03% の分解能を実現した。

(2) 本研究で開発した技術の質は高く、世界で注目されている。例えば、高性能データハンドリングシステムは、直ぐに、我が国の J-PARC の中で採用されたのみならず、米国の SNS 計画や欧州の ESS 計画にも大きなインパクトを与えている。

6. 主な発表論文

(研究代表者は二重線、研究分担者は一重下線、連携研究者は点線)

- (1) S. Itoh 他 3 名, "Single-length- scaling analysis for antiferromagnetic fractons in dilute Heisenberg system $\text{RbMn}_{0.4}\text{Mg}_{0.6}\text{F}_3$ ", *J. Phys. Soc. Jpn.* 78 (2009) 013707-1~4
- (2) Seongsu Lee, A. Pirogov, Misun Kang, Kwang-Hyun Jang, Masao Yonemura, Takashi Kamiyama, S.-W. Cheong, F.Gozzo, NamsooShin, H. Kimura, Y.Noda, J.-G Park, Giant magneto-elastic coupling in multiferroic hexagonal manganites, *Nature* 451 (2008) 805-808.
- (3) T. Otomo, H. Iwase, Y. Kameda, N. Matubayasi, K. Itoh, S. Ikeda and M. Nakahara, Partial Pair Correlation Functions of Low-density Supercritical Water Determined by Neutron Diffraction with H/D Isotopic Substitution Method *J. Phys. Chem. B* 112, 2008, 4687-4693
- (4) S. Wakimoto, K. Yamada, J.M. Tranquada, C.D. Frost, R.J. Birgeneau and H. Zhang, Disappearance of Antiferromagnetic Spin Excitations in Overdoped $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, *Phys. Rev. Lett.* 98 (2007) 247003(1-4).
- (5) S. Naito, 3名略, M. Furusaka, S. Ikeda, 他 8 名, "Characterization of multimetric variants of ubi-quitin carboxyl-terminal hydrolase L1 in water by small-angle neutron scattering", *Biochem. Biophys. Res. Comm.* 339(2006)717-725
- (6) R. Inoue, T. Kanaya, K. Nishida, I. Tsukushi, K. Shibata, Inelastic Neutron Scattering Study of Low Energy Excitations in Polymer Thin Films, *Phys. Rev. Lett.*, 71, 056102(1-4) (2005).

ホームページ等

<http://neutron-science.kek.jp/>