連載講座

中性子散乱による原子・分子のダイナミクスの観測

IX 連載講座を終わるにあたって

藤井保彦[†]

東京大学名誉教授

[†] fujii.yasuhiko@jcom.home.ne.jp

Key Words: neutron inelastic scattering, scattering law, space-time correlation

1. 連載講座のねらい

2013年4月から始まったこの「中性子散乱による原子・分子のダイナミクスの観測」(非弾性散乱)連載が、本号をもって完結します(表1)。お忙しいところ執筆していただいた執筆者の皆さん、忍耐強く編集作業を続けていただいた編集者の皆さんにお礼申し上げます。一方、諸般の事情により記事の掲載が散発的となり読者の皆さんにご不便をお掛けしたことを、本連載講座まとめ役としてお詫びいたします。

これでRADIOISOTOPES誌上の中性子利用関連連載講座として、既刊の下記3部作(1)~(3)にもう一つ(4)が加わることになり、中性子利用の初心者への入門から応用までをほぼ洩れなくカバーすることになります。

(1) 中性子による計測と利用

Vol. 45, No. 9 (Sep. 1996)~Vol. 46, No. 11 (Nov. 1997)

(2) 中性子イメージング技術の基礎と応用

Vol. 56, No. 4 (Apr. 2007)~Vol. 57, No. 5 (May 2008)

(3) 中性子回折の基礎と応用

Vol. 59, No. 1 (Jan. 2010)~Vol. 60, No. 3 (Mar. 2011)

(4) 中性子散乱による原子・分子のダイナミクスの観測

Vol. 62, No. 4 (Apr. 2013)~Vol. 66, No. 3 (Mar. 2017)

これらは、(1)計測、(2)イメージング、(3)弾性散乱、(4)非弾性散乱と大まかに分類することができます。もちろん著しい科学技術の発展により、中性子発生・制御法、計測法や解析法は日進月歩していますが、これらの連載講座での基礎的素養があれば新たな手法などは比較的容易に理解できます。

本連載で焦点を当てたのは、中性子の非弾性散乱を利用した原子・分子のダイナミクスの観測です。表1に示した通り、多様な測定法や研究対象を反映して、多くの事例を執筆者に挙げてもらいました。専門でない読者の皆さんにも中性子非弾性散乱実験の有用性をわかりただけのものと思っています。専門の読者の皆さんには、ご自分の研究領域、あるいは比較的近い領域を見出すことができるものと思います。この連載の最後に、我が国が誇る「大強度陽子加速器施設J-PARC」で発生する大強度パルス中性子を利用した「物質・生命科学実験施設MLF」における最新の測定法と研究トピックスを紹介しています。まだ設計のフルパワーに達していませんが、数年以内にはその真価を十分に発揮し国際的に多くのユーザーを惹きつけることが期待されています。

2. 非弾性散乱測定

運動量 $\mathbf{Q}(Q_x, Q_y, Q_z)$ の3次元空間内での散乱強度を測定する弾性散乱に比べて、非弾性散乱は強度が2~3桁弱いうえに、新たにエネルギー

表1 連載講座「中性子散乱による原子・分子のダイナミクスの観測」本誌に掲載された題目一覧

区 分	表題	著者	掲載号	Vol. - No.
I	連載講座を始めるにあたって—序説—	藤井 保彦	2013年4月	62-4
II	原子・分子のダイナミクス「固体(格子系)」—緒言—	藤井 保彦	2013年4月	62-4
	原子・分子のダイナミクス「固体(格子系)」誘電体の相転移とダイナミクス	野田 幸男	2013年5月	62-5
	原子・分子のダイナミクス「固体(格子系)」中性子散乱によるリクサー強誘電体の格子ダイナミクスの研究	松浦 直人	2013年6月	62-6
	原子・分子のダイナミクス「固体(格子系)」熱電材料とラットリング運動	李 哲虎	2013年7月	62-7
III	原子・分子のダイナミクス「液体・非晶質・表面/界面」	山室 修	2013年9月	62-9
	1 細孔中の水のダイナミクス 過冷却水の相転移	山口 敏男, 吉田 亨次	2014年6月	63-6
	2 細孔中の水のダイナミクス プロトン伝達	福嶋 喜章, 藤田 悟	2014年7月	63-7
	3 中性子非弾性散乱法による固体表面での分子分光	山室 修, 古府 麻衣子	2014年9月	63-9
	5 金属中の水素のダイナミクス	大友 季哉, 池田 一貴	2014年10月	63-10
IV	ソフトマター・生体物質の非弾性・準弾性中性子散乱研究	金谷 利治	2015年4月	64-4
	1-1 非弾性・準弾性中性子散乱による高分子固体のダイナミクス	井上 倫太郎	2015年5月	64-5
	1-2 中性子準弾性散乱による高分子溶液ダイナミクスの研究	遠藤 仁	2015年9月	64-9
	2 蛋白質の水和とダイナミクス	中川 洋, 片岡 幹雄	2015年10月	64-10
V	スピンドナミクス 緒言—中性子磁気散乱研究の基礎—	遠藤 康夫	2015年11月	64-11
	2 低次元磁性体のスピンドナミクス—2次元正方格子反強磁性体 $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ におけるスピン・ネマティック相互作用の観測—	益田 隆嗣	2015年12月	64-12
	3 フラストレート磁性体のスピンドナミクス—スピネル酸化物にひそむスピンの分子たち—	富安 啓輔	2016年1月	65-1
	4 準結晶のスピンドナミクス	佐藤 卓	2016年2月	65-2
	5 偏極中性子で観るスピンドナミクス	加倉井 和久	2016年3月	65-3
VI	超伝導体, 金属磁性体等の磁気・格子ダイナミクス—強相関電子系を中心に—	佐藤 正俊	2016年4月	65-4
	1 希土類金属系における電子自由度と磁気励起スペクトル	岩佐 和晃	2016年6月	65-6
	1-2 Mn酸化物の磁気ダイナミクス—二重交換相互作用と軌道秩序—	梶本 亮一, 吉沢 英樹	2016年9月	65-9
	2 鉄系や Na_xCoO_2 水和物超伝導体の磁気・格子ダイナミクス	佐藤 正俊	2016年8月	65-8
	3 Y123系銅酸化物高温超伝導体の磁気・格子ダイナミクス	佐藤 正俊	2016年8月	65-8
	3-2 銅酸化物高温超伝導体のスピンドナミクス—エネルギー階層的磁気励起構造の理解を目指して—	藤田 全基, 佐藤 研太郎	2016年11月	65-11
VII	磁性と電気分極が強く結合したマルチフェロイック系のダイナミクス	安井 幸夫	2016年10月	65-10
VIII	J-PARC物質・生命科学実験施設の設計概念—緒言—	新井 正敏	2016年11月	65-11
	1 J-PARC非弾性散乱装置の革新的計測方法	新井 正敏	2016年11月	65-11
	2 四季による固体のダイナミクス研究	梶本 亮一	2016年12月	65-12
	3 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	中村 充孝	2017年2月	66-2
	4 冷中性子ディスクチョッパー型分光器・AMATERASとそれによって行われる研	中島 健次	2017年2月	66-2
	5 高分解能チョッパー分光器による物質のダイナミクスの研究	伊藤 晋一, 井深 壮史, 横尾 哲也, 益田 隆嗣, 吉沢 英樹, 佐藤 卓	2016年12月	65-12
IX	6 DNAによる生体物質・機能性材料などのダイナミクス研究	柴田 薫	2017年3月	66-3
	連載講座を終るにあたって	藤井 保彦	2017年3月	66-3

*III-4は欠番

(敬称略)

ギー軸Eが入った4次元空間 ($\mathbf{Q}$, E) 内における散乱強度分布を測定することになり, 実験的難易度は一桁上がると言ってもよいでしょう。一昔前は, 非弾性散乱測定を真っ当にできるようになって初めて中性子散乱の専門家として認められるという雰囲気がありました。

観測者が真に知りたい自分の研究対象である試料からの散乱強度分布 (散乱関数) $S(\mathbf{Q}, E)$ に対して, 観測できる量は入射・散乱中性子のエネルギー分布や角度広がり, 各種光学素子等に起因する装置固有の分解能 $R(\mathbf{Q}, E)$ が畳み込まれた量となります。Rにおいて $\mathbf{Q}$ とEが独立

ならば取り扱いは簡単ですが, 両者は複雑に関連しているのが通例で, ここに非弾性散乱測定 of 妙味があると言ってもよく, 腕の見せどころとも言えます。初めて非弾性散乱実験を行う初心者の方は, これらに精通した研究者・技術者のアドバイスを受けることをお勧めします。

3. 非弾性散乱と実時間空間表示

X線回折実験が始まった20世紀初頭, ブラッグの式を満足する方向に回折したX線が黒点となって現れた写真フィルムの模様を観て, 結晶内部の原子配置をイメージできた人はどれ

だけいたでしょう？ 実空間での原子配置（結晶構造）と回折強度に直接関係する（静的）構造因子はフーリエ変換（実空間 $\mathbf{r} \leftrightarrow$ 運動量空間 $\mathbf{Q}$ ）で結ばれた関係にあるからこそ、回折法によって結晶構造解析ができるわけですが（位相問題はさて置き）、実空間での結晶構造を見てはじめて実験結果に納得できるのではないのでしょうか。特にタンパク質や酵素などの巨大分子の構造をもとに機能を説明するには、この実空間の結晶構造が不可欠です。

では、非弾性散乱ではどうでしょう？ 非弾性散乱では、原子位置の時間変化のフーリエ変換（ $\mathbf{r}, t \leftrightarrow \mathbf{Q}, E$ ）が、運動量・エネルギー空間で観測されます。この分野の専門家は、 $(\mathbf{Q}, E)$ 空間での散乱強度分布を表す散乱関数 $S(\mathbf{Q}, E)$ で議論するのが常套手段としています。専門家同士ではそれが日常的でしばしば適確なのですが、専門外の人にはチンプンカンプンかも知れません。それでは弾性散乱の時と同じように、非弾性散乱でも実験結果を逆フーリエ変換して実空間・実時間（ $\mathbf{r}, t$ ）で表せばよいのではないのでしょうか。まさにその通りです！ そのためには非弾性散乱のエネルギー軸上のピーク位置（励起エネルギー）のみならず、その強度の測定と解析が必要になります。ちょうど弾性散乱でブラッグ回折角からは単位格子の大きさと形を求めることしかできず、複数のブラッグ反射の強度解析をしないと格子内の原子位置を知ることができないのと同じです。

周期的な結晶構造を持つ物質の原子の格子振動（フォノン）やスピン波（マグノン）の運動量とエネルギーの関係を示す分散関係は、これらの運動の基本的な情報を提供してくれます。しかし、振動数（励起エネルギー）の情報のみであり、各原子（スピン）の振動の様子（固有ベクトル）を知ることはできません。それを知るためには非弾性散乱強度を、異なるブリュアン帯で測定することが必要で、膨大な測定時間が掛かります。そこで通常は原子間相互

作用をパラメータとするモデルを用いて分散関係を計算し、実験に合うように相互作用を決め、それにより原子振動の固有ベクトルを求めるという手続きを踏みます。しかし、分散関係を満足する固有ベクトルは無数にあり、モデルからはユニークに決めることはできないことが知られています。

それを解決するには系統的な非弾性散乱強度の測定しかありません。すなわち、 $S(\mathbf{Q}, E)$ の測定から動的構造因子を求め、逆フーリエ変換により実空間・実時間における原子の運動状態を表す時空相関関数 $G(\mathbf{r}, t)$ を求めることができます。そうすれば専門家以外にも視覚的に原子の運動状態を示すことができ、言わば究極の非弾性散乱実験と言えます。大強度の中性子と先端的な計測方法が相まって、J-PARC/MLFでこのような計測と解析が行われ始めています（本連載中、中村充孝：VIII 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、本誌 Vol. 66, No. 2, pp. 93–99）。

最後に、改めて本シリーズに寄稿していただいた執筆者ならび編集委員の皆様にお礼を申し上げるとともに、読者の皆さんが将来の我が国の中性子ならびに量子ビーム科学技術の推進とそれを支え発展させる人材育成に大いに貢献して下さることを期待しています。

Abstract

Neutron Scattering Study on Dynamics of Atomic and Molecular Motions

IX Finishing the Serial Publication

Yasuhiko FUJII[†]: Emeritus Professor of the University of Tokyo

This series of articles "Neutron Inelastic Scattering" started in April 2013 is now ending after almost four years spent. It complements the previous series of "Measurement of Neutrons and Application" (1996–1997), "Neutron Imaging" (2007–2008) and "Neutron Diffraction (2010–2011) to provide readers with a full coverage of major neutron utilization.