

## 評価報告書

2024年2月15日 中性子共同利用実験審査委員会

課題番号：2024S01

課題名：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

実験代表者：伊藤 晋一（KEK 物質構造科学研究所・教授）

益田 隆嗣（東京大学物性研究所・教授）

種別：新規

ビームタイム配分： $\beta=50.3\%$

評価結果：採択 4.6

コメント：

2024年1月9日にオンラインで行われた HRC 研究会に参加し、S型課題の新規課題 2024S01 に関して、過去の当該グループによる研究成果と、今回の新規課題に関する研究計画の説明を拝聴した。その説明と質疑に基づき、以下のように評価した。

HRC (High Resolution Chopper Spectrometer)は、これまでの第1期、第2期、第3期において着実に中性子分光器の装置まわりのグレードアップをおこなってきた。また、装置特性を生かした研究推進、テーマ開拓に成功し、最先端の磁性、強相関電子系物理学に重点をおいた世界的に見ても独特の地位にあるチョッパー分光器に成長している。加えて、東大物性研との共同運営により、主に研究テーマの拡充に関する相乗効果が顕著に現れている。これまでの3期における研究成果は、複数のトップジャーナルへ論文発表にも見られるように申し分ない。特にベリ一曲率が中性子非弾性散乱の観測量であることを、強磁性体  $\text{SrRuO}_3$  や  $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ 、反強磁性体  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  において示した点や、バンド間の電子励起 (Stoner 励起) の観測に成功した点は、中性子非弾性散乱の新しい側面を与えたという意味で極めて重要な成果である。さらに、圧力下での中性子非弾性散乱実験にも積極的に取り組んでおり、 $\text{RbFeCl}_3$  における量子臨界点近傍における磁気励起の観測に代表されるように、チャレンジングな試料環境整備にも積極的に取り組んでいる。また中性子吸収の大きな Gd や Eu を含む化合物に対する HRC の有効性を示した点は、チョッパー分光器の利用方法の新しい可能性を提示した点で評価できる。また、HRC 全体の論文数に関しても MLF の他の同種の装置と比べても遜色ない。このように、これまでの3期において分光

器の建設から性能のアップグレードが順調に推進されているだけでなく、HRC特有の性能を最大限に活用した最先端の物性物理に関する研究成果も順調に挙げ続けている。

第4期の研究計画では、小角バンクの検出器を既存の2列配列(最大 $5.1^\circ$ )から1列配置に変更し検出範囲 $10^\circ$ に拡充するとともに、検出器位置( $L_2$ )を従来の5.1mから最長で17mまで延長する計画である。この改造により、検出Q範囲が2倍となり、分解能の向上も期待できる。(Ei = 100 meVの場合、弾性散乱領域で $Q = 1.2 \text{ \AA}^{-1}$ まで測定可能になる)この改造により、小角領域の第一ブリルアンゾーンにおける励起の全体を観測可能となる。これによりトポロジカルホール効果を示す金属磁性体  $\text{CeRh}_2\text{Si}_2$ 、 $\text{Gd}_2\text{PdSi}_3$ 、 $\text{EuAl}_4$  等における multi-q 磁気秩序とダイナミクスを観測可能となることが期待される。

またターゲットとしている物理現象、物質群は多岐にわたっており、どれもHRCの装置性能を最大限に活用したテーマとなっている。特に、装置チームのメンバーが主催する研究室から独自に提供される試料のみならず、これまで確立して来た外部との共同研究も合わせて研究を推進する提案がなされている。そのため、引き続き最先端の物性物理の課題を解決する実験が行われると期待される。

このように、第3期までの本課題は当初の目的を十分に超えた特筆すべき成果を挙げており、かつ装置の高度化、挑戦的な試料環境整備が行われてきた。第4期の研究計画においても、Q範囲の拡充、および分解能の向上を目的とした小角バンクの検出器の改造はHRCの性能を最大限に引き出す上で重要かつ、必須であると考えられる。本申請に関して、特に減点にすべき点は見受けられなかったが、敢えてコメントをするのであれば、第3期までに装置開発という意味では、ほぼ完成されていると考えられるため、第4期以降においては、新たな共同研究に着手するなどの、継続的な新規研究テーマの開拓にも期待したい。マシンタイム計画の内訳は、これまでの実績と経験に基づいた定量的なものであり、妥当かつ必要不可欠な日数になっていると判断できる。したがって、ビームタイム配分も要求どおり50.3%を認めるのが妥当と評価する。

# 評価報告書

2024年2月15日 中性子共同利用実験審査委員会

課題番号：2024S05

課題名：超高分解能中性子回折による物質構造科学研究

実験代表者：森 一広 (KEK 物質構造科学研究所・教授)

種別：新規

ビームタイム配分： $\beta=49.1\%$  (78日/159日)

評価結果：採択 4.6点

コメント：

Supersharp (BL08)は世界一の分解能をもつ時間飛行型粉末中性子回折装置であり、J-PARCが今後も中性子実験施設として世界的な優位性を示す上で重要な装置に位置づけられる。S1型課題では、BL08の有する超高分解能を活用し、わずかな構造変化に伴う **Symmetry Breaking** を発見するなど、従来の粉末法ではなし得なかった精緻な構造パラメータの獲得を目指している。BL08独自の研究提案であり、先導的プロジェクト研究においても優れた成果を挙げている。対象とする材料系も固体物理・磁性、フェロアキシシャル物質・マルチフェロイック物質、鉱物、エネルギー関連物質と多岐にわたり、物性・機能と構造の相関を明らかにするための重要な科学的知見の獲得が今後も期待できる。本提案は優遇して推進すべき研究課題である。

## 試料周辺機器の整備・開発・評価、および、超高分解能単結晶中性子回折実験システムの開発

2024年1月9日に開催された研究会においては、本研究課題の概要と SuperHRPD の現状説明、2019S05での代表的な業績の紹介がなされた。その後、来期からの将来計画の説明があった。装置改良の計画としては、BL08の超高分解能を引き出すためのバックグラウンドのさらなる低減、検出器の改良、試料環境場に応じた構造変化を捉えるための周辺機器の整備・開発・評価が提案されていた。どちらも BL08 の装置性能の向上に不可欠なアップデート案と言える。既に温度 (1–1273 K)、磁場 (~14 T)、電流 (~1 A)、電圧 (~10 kV) 等のパラメータを制御するためのアタッチメントは備わっており、S1型課題での実験を通して測定試料に応じた改良が加わり、より使いやすい装置に改良されることを期待したい。

新たな試みとしては、超高分解能単結晶中性子回折実験システムの開発が提案された。BL08の強みをさらに高める提案といえる。単結晶を動かすための駆動機構の作製を行うため、千手 (BL18)、匠 (BL19)、JRR-1の単結晶中性子回折・散乱や検出器技術に精通している研究者・技術者が新たな共同実験者として加わっており、研究体制も適切と言える。

### 先導的プロジェクト研究

磁気構造解析、電荷秩序を反映した対称性の変化の検出、結晶中に自発的な回転歪みを有するフェロアキシシャル物質の構造解析、有機無機ペロブスカイトの逐次構造相転移の解析、二次電池材料の軽微な構造変化の検出など、分解能に優れた BL08 の特徴を活かした研究が引き続き提案されており、さらなる研究の進展が期待できる。基礎研究と応用研究のバランスも良く、1年間でS1型課題に配分されるビームタイムもこれまでの実績に基づいて提案されていて適切である。

### 提言

中性子回折のビームライン SuperHRPD (BL08)、SPICA (BL09)、NOVA (BL21) はそれぞれ高分解能、多目的、高強度などの際だった特徴がある。回折ビームライン間の連携体制が構築されたことを活用し、それぞれの装置でどのような測定ができるのかをユーザーに周知する機会を設けることを検討していただきたい。ビームラインとユーザー双方の情報共有は、科学的に有意義な課題提案の増加と大型予算獲得のきっかけになると期待できる。

## 評価報告書

2024年2月15日 中性子共同利用実験審査委員会

課題番号：2024S06

課題名：結晶と非晶質が織りなすサイエンスダイバーシティ

実験代表者：本田 孝志 (KEK 物質構造科学研究所・助教)

種別：新規

ビームタイム配分： $\beta=40.6\%$

評価結果：採択 4.6

コメント：

NOVA 分光器は J-PARC の高強度中性子全散乱装置として、水素化物の構造解析、非晶質・液体物質の構造解析、また磁気構造解析を通じて、物質の規則・不規則構造の研究分野で活躍している。2019-2023 年度の S 型研究課題代表者を途中交代した本田氏は、交代後本年度までの短期間に、偏極中性子システムの導入や 3D プリンタによるラジアルコリメータの製作など、NOVA の高度化に大きく貢献した。

申請書では、磁性強相関、水素、イオン電導、機能性液体、乱れた構造など、多様な分野の専門家による個々の研究計画が記述されており、数多くの成果が期待される。さらに、研究代表者の本田氏は、各研究テーマの連携・融合により新しい研究分野創成を目指している。装置・測定手法の高度化についても具体的に述べられており、技術的成果に付随した大きな科学的成果が得られることが期待される。本課題は最優先で行うべきものと考えます。

なお、実験審査委員会においては、S 型課題の個別課題と一般課題のすみ分けについて質問した。水素化物の研究においては、新しい解析手法の開発が必要な課題が選定されたこと、圧力効果や偏極中性子解析などの研究では当該技術が開発中であるため S 型課題として選定されたことなど、適切な返答が得られた。また、実験審査委員会に先立ち、12/7 に事前打ち合わせを行うことで予備知識の説明をいただいた。

## 評価報告書

2024年2月15日 中性子共同利用実験審査委員会

課題番号：2024S07

課題名：中性子共鳴スピンエコー分光器群(VIN ROSE)を用いたメゾスコピックな時空間領域における物質ダイナミクス研究

実験代表者：遠藤 仁 (KEK 物質構造科学研究所・准教授)

種別：新規

ビームタイム配分:  $\beta = 53.5\%$

評価結果: 4.8

コメント：

中性子スピンエコー法は中性子スピンを利用して、中性子強度を落とさずに高いエネルギー分解能での準弾性散乱を測定する方法である。本申請ではその特徴を生かして、メゾスコピックな空間領域での遅いダイナミクスの研究を展開することを目標にしている。MLF BL06には、中性子共鳴スピンエコー分光装置群 (VIN ROSE) として、MIEZE 型と NRSE 型の二台の分光器が設置されている。前者では、従来の NSE 装置 (Mezei 型) では測定困難であった試料位置に磁場を印加する条件での測定が可能である。装置開発はほぼ完了しており、その特徴を生かして、磁性体のメゾスコピックなスピン揺らぎの観測がなされている。磁気スキルミオンの測定は、小角領域での比較的短いフーリエ時間という時空間における情報が必要で、MIEZE 型には適した試料である。また、高い Q 分解能での測定が可能である MIEZE 型の特徴を活かして、反射率と NSE の同時測定が行われており、薄膜の励起モードの測定がなされている。薄膜における励起モードは未解明の部分が多く、今後の研究の進展が期待される分野である。

MIEZE 型装置は開発から利用のフェーズに移行しつつあるため、本計画では、検出器の増設、バックグラウンドの低減、測定・解析システムの構築、偏極アナライザの設置という高度化が予定されている。これらの高度化により、磁気スキルミオン相と常磁性相の境界のスピン揺らぎに関する研究、妹沢モードと呼ばれる薄膜における励起モードの検証や磁気多層膜からのスピン揺らぎの研究が飛躍的に進められると期待される。その結果、磁性材料や薄膜材料に関する基礎的な知見が得られ、戦略的な機能材料開発が加速される。

一方、NRSE 型装置では具体的な試料の測定は実現していないが、本計画では

回転楕円体中性子集光スーパーミラーの開発と集光中性子ビームに対応した共鳴スピンプリッパーの開発が計画されている。これが実現されれば、高分子材料など、小角領域における遅いダイナミクス(最終的な目標としては 100 ns まで)の観測が可能になる。さらに微小試料の測定が可能になるため、試料量が制限される生体試料なども測定の対象にすることができる。また、JRR3 の iNSE 分光器との連携で、それぞれの特徴を活かした相補的利用が期待される。

VIN ROSE は核破碎型パルス中性子源に設置されている唯一の共鳴型分光器であり、広い波長領域、高強度、飛行時間法による低エネルギー分散などの長所を持っており、本計画で示された測定の高効率化とユーザーが使いやすい実験環境の整備は、開発フェーズを終えた後の共同利用を見据えたものとなっている。

VIN ROSE に組み込まれている光学デバイス等は全て国内の大学、研究所で開発されている。つまり、国産の中性子光学技術を集約させた装置となっており、国際情勢の影響を受けにくく、安定的な開発、運用が担保されている。本装置の開発で培われた技術は MLF 第 2 ターゲットステーションや福井県に建設予定である研究用原子炉における中性子散乱装置に適用が可能であり、長期的な将来性も視野においた計画であると高く評価できる。

申請メンバーは、人数は絞られているが、それぞれ装置開発やサイエンス分野の専門家を揃えており、本計画の実効性は高いと考えられる。

以上の観点から、優先度が極めて高い課題と判断し、上記の評価結果とした。

申請ビームタイムについては、MIEZE 型は 35 日、NRSE 型では 45 日となっている。そのうち、MIEZE 型では多くが開発と調整に割り当てられている。それぞれの装置の現状に合わせた配分となっており、妥当である。

# 評価報告書

2024年2月15日 中性子共同利用実験審査委員会

課題番号：2024S09

課題名：偏極中性子散乱装置 POLANO による交差相関物理の解明

実験代表者：横尾 哲也 (KEK 物質構造科学研究所・教授)

種別：新規

ビームタイム配分： $\beta = 69.6\%$

評価結果：4.6

コメント：

2024年1月9日の中性子S型実験申請課題ヒアリングに加えて、2023年12月26日にPOLANO S型課題談話会で、進捗状況の報告を受けた。非偏極実験でのユーザー利用に対応しながらも、偏極オプションの開発を進め、ガイド磁場システムの構築を進め、3月には偏極中性子非弾性散乱実験のテストができるとのことである。偏極中性子散乱には、1次元偏極の他に3次元偏極モードがあり、それぞれで設置する装置が大きく変わる。S型課題で提案されているサイエンスでは3次元偏極モードが必要であるが、コミッショニングの順番としては、まず1次元偏極実験を実現することになる。その際に可能なサイエンスとして水素系物質の準弾性散乱研究が考えられる。こちらはPOLANOのデカップルドモデレーターとの相性も良く、新たなフェルミチョッパーを製作し回転速度を遅くすることで、水素モデレーターから強く出てくる低エネルギー中性子強度を有効活用できる。本来の方針とは異なるかもしれないが、将来のPOLANOの利用範囲拡大を視野に入れて、ぜひ検討していただきたい。談話会では技術陣の大下英敏技師、山内沙羅准技師からの報告もあり、窒素ガスモニターの分析やPythonコードを用いたコントロールパネルの整備が、技術的な背景をよく理解した上で順調に進んでいることがわかった。新しく池内和彦特別准教授が加わり、今後のPOLANO装置及びその周辺環境で、若手の活躍が期待される。最後に、今年度に待望の初偏極ビームの取り出しに成功したことから、次期S型課題では偏極のコミッショニングをさらに進めていただき、偏極共同利用の早期開始に期待したい。

## 評価報告書

2024年 2月15日 中性子共同利用実験審査委員会

課題番号：2024S10

課題名：SDGsを支えるエネルギー・機能性材料の中性子構造研究

実験代表者：森 一広 (KEK 物質構造科学研究所・教授)

種別：新規

ビームタイム配分： $\beta = 60.4\%$

評価結果：採択 4.6点

コメント：本課題では、SPICAの高分解能・高強度性を最大限に利用し、これまでの国家プロジェクト研究を踏まえた次世代蓄電池材料研究に対しては、ターゲットを絞った集中的な研究を進めると同時に、新たな取り組みとしてバイオマテリアルや放射性廃棄物処理材といった社会的課題の解決に向けた構造研究を行う。オペランド測定の実質化と合わせて、ブラッグイメージング計測や小角散乱測定、他の量子ビームプローブとの協奏的利用の推進など、幅広い測定手法に対しての高度化が計画されており、発展性の高い研究内容である。

SPICAは、NEDOプロジェクトの1つである「革新型蓄電池先端科学基礎研究事業(RISING)」の一環として設計・製作された高分解能・高強度中性子回折装置である。これまで国家プロジェクトRISING、RISING2、RISING3に参加して様々な蓄電池材料の構造研究を行い、数多くの成果を挙げてきている。課題2019S10では9件プレスリリースに結びつく研究を含め、社会的にインパクトの高い研究が継続的に進められてきた。2023年度では、伝導率が世界最高の超リチウムイオン伝導体のLiイオン伝導経路の解明、室温で作動するヒドリド導電性固体電解質 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{H}_3$ のSr置換効果の解明などの成果がプレスリリースとして報告され、SPICAの構造解析測定に対する高い性能が示された。また、回折法以外の測定手法として高度化が進められている中性子ブラッグイメージング計測については、この計測法に対する新たな解析手法を開発し、リチウムイオン二次電池の非破壊での電池電極の劣化の可視化、結晶相の種類と密度の定量測定に成功している。さらに中性子全散乱測定に向けての90度バンク測定データ用「SPICA専用S(Q)作成コード」、Mott-Bethe法による静電ポテンシャルMEM解析などデータ解析手法の開発も積極的に進められており、測定・解析法にも着実な進展がみられている。これらの実績を踏まえ、本課題を遂行する能力は十分高いと判断した。

本実験課題では、先導的プロジェクト研究の柱の一つである「次世代蓄電池材料の創製」としてリチウムイオン伝導体、フッ化物イオン伝導体、マグネシウムイオン伝導体（多価カチオン伝導体）およびプロトン/ヒドリドイオン伝導体の4つに絞った研究が行われる。これら4つは蓄電池材料として高いポテンシャルを持ち、これまでも **SPICA** で高い研究実績が挙げられている物質群である。

**RISING3**のターゲットはフッ化物電池と亜鉛負極電池の2種類であること、リチウムイオン伝導体、ヒドリドイオン伝導体については23年度にプレスリリースにつながる成果があげられていることを踏まえると、これら4つの選択は妥当と判断される。蓄電池材料と並行し、先導的プロジェクト研究のもう一つの柱として、「社会的課題の解決」に向けた新たな取り組みが開始される。この取り組みでは放射性廃棄物処理で用いられる非晶質水酸化物および生物が常温常圧下で作出す鉱物 “バイオミネラル”の構造研究が行われる。**SDGs** への新たな視点からの取り組みであり、**SPICA** の可能性を拓げる研究として評価される。

**SPICA**では建設当初からオペランド測定のための専用化学実験室の整備や専用セルの開発が精力的に進めてきており、その結果、実用型リチウムイオン電池の充放電における正負極同時測定など、反応過程の観測において数多くの成果が生み出されてきた。本課題では、専用セルなどの開発に加え、オペランド測定と組み合わせた自動解析法やブラッグエッジイメージング法の開発をおこなうことで、さらなる高度化を目指している。これらの高度化と**J-PARC**におけるビームの強度化との相乗により、オペランド測定の効率、精度の飛躍的向上と情報量の拡大化が期待される。また、新たな取り組みとしてのミュオンとの協奏的量子ビーム利用には、**MLF** 内での相補利用として今後の進展に興味もたれる。

本課題には研究体制として36名が参加し、このうち装置運用には業務委託、派遣スタッフも含めて9名が担当しており、**SPICA**での多様な測定にも十分対応できる状況と思われる。先導的プロジェクト研究を担当するメンバーのほとんどが**SPICA**での測定に精通している研究者であることから、メンバー内での協力体制も充実している。

ビームタイム配分は $\beta=60\%$ 、**Fast Track**課題10%とされており、残りの30%で一般課題が実施されることとなる。現実験責任者の**KEK**着任以降、**S1**型課題研究組織の整理及び一般課題の推進に取り組んでいるが、依然として一般課題申請数が著しく低い。**First track** の推進により、一般課題数の拡大に取り組もうとしているが、さらにより実効的な対策が求められる。2025年度への継続審査においては、この点に取り組んだことを明確に示して欲しい。