

液体ビスマスの音響モードの奇妙な振舞い

乾 雅祝

広島大学総合科学研究科 〒739-8521 広島県東広島市鏡山 1-7-1

梶原行夫

広島大学総合科学研究科 〒739-8521 広島県東広島市鏡山 1-7-1

宗尻修治

広島大学総合科学研究科 〒739-8521 広島県東広島市鏡山 1-7-1

細川伸也

熊本大学自然科学研究科物理科学講座 〒860-8555 熊本市中央区黒髪 2-39-1

千葉文野

慶應義塾大学理工学部物理学科 〒223-8522 神奈川県横浜市港北区日吉 3-14-1

尾原幸治

(公財)高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

筒井智嗣

(公財)高輝度光科学研究センター 〒679-5198 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

アルフレッド バロン

理化学研究所放射光科学総合研究センター 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

要 旨

局所構造が異方的であると考えられている液体 Bi の原子ダイナミクスを解明するため、非弾性 X 線散乱実験を行った。得られた動的構造因子には、音響モードが明瞭なピークとして観測された。さらに音響モードの励起エネルギーは、極大値付近で一定となる台形型の奇妙な Q 依存性を示すことが見出された。これらの結果は、1980年代の非弾性中性子散乱データの矛盾を解消し、最近公表された第一原理コンピューターシミュレーションの予言と一致する。さらに一次元鎖モデルを用いた我々の解析は、液体 Bi の音響モードの奇妙な振舞いが、パイエルス歪みを伴う構造に起因することを示している。

1. はじめに

50年以上前、理論物理学者の Peierls (パイエルス) は結晶構造と電子エネルギーの関係を論じ、1 個の価電子をもつ原子が等間隔に並んだ一次元金属よりも、Fig. 1(a)に示すように、格子が歪んで長短の距離が交互に並んだ一次元鎖(太線が短い結合距離を表している)の方が、エネルギーが得になることを示した¹⁾。格子歪みに伴い一次元金属の電子状態にバンドギャップが現れ、金属から絶縁体に転移する。この現象を Peierls の不安定性または Peierls 歪みという。Peierls 歪みを実現する結晶構造として A7 構造が知られており、単体では、元素周期律表15族の As, Sb, Bi がこの構造をとる。As は p 軌道に 3 つの価電子をもち、p 電子は隣接する p 電子と共有結合をつくる。Fig. 1(b)は、単純立方格子の上で模式的に表した A7 構造である(太線が短い結合距離を表している)。単純立方構造では中心原子の周りに 6 個の原子が等間隔に配位するが、

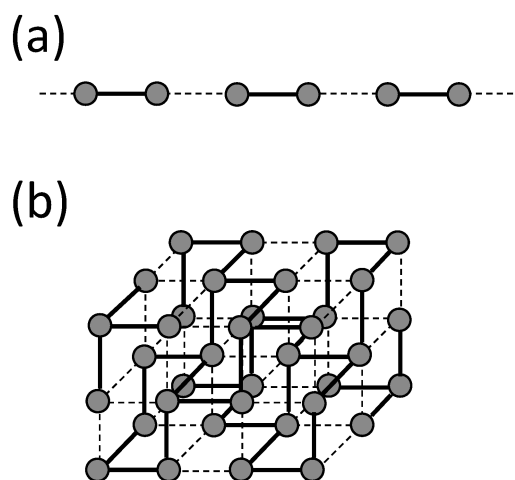


Fig. 1 (a) A linear chain with the Peierls distortion. Bold black lines denote shorter bonds. (b) An illustration of A7 structure on a simple cubic lattice. Bold black lines represent shorter bonds.

A7 構造になると、6 個の原子は短い距離と長い距離に分かれて、3 個ずつ配位する。図からわかるように、立方体の各辺に沿った構造は Fig. 1(a) と一致する。

1 気圧で温度を上げると As は液体にならずに昇華するが、少し加圧して昇温すれば液体状態を得ることができる。1980 年代後半の中性子回折実験により、As は融解後も 3 配位構造を保つことが見出された²⁾。これは液体 As の局所構造が Peierls 歪みを伴うことを示唆している。この報告の後、液体構造における Peierls 歪みが精力的に研究された^{3,4)}。これに対して融点 (約 271°C) が比較的低い Bi の液体構造は、1960 年代後半から中性子回折⁵⁾や X 線回折⁶⁾により調べられていた。これらの実験から得られた液体 Bi の構造因子 $S(Q)$ (Q は散乱ベクトルの大きさ) には、平均原子間距離の相関を表す第 1 ピークの、 Q の大きい側に肩が現れた。これは第 1 ピークに肩がない単純液体金属の $S(Q)$ とは異なる結果である。 $S(Q)$ をフーリエ変換して導かれる動径分布関数からは、液体 Bi の最近接配位数は単純液体金属に近い約 10 であることが明らかになった。理論的考察により、 $S(Q)$ の肩と動径分布関数の両方を再現できる液体 Bi の有効 2 体相互作用が導かれた^{7,8)}。その特徴は、斥力部分が階段状になっていることである。動径分布関数や有効 2 体相互作用は、液体 Bi の最近接原子間距離の分裂、つまり局所構造が異方的であることを示唆している。最近、液体 Bi の動径分布関数と A7 構造の関連性を詳しく調査した結果が報告されている⁹⁾。

原子・分子が自由に運動している気体とは異なり、液体中の原子は、お互い相互作用を及ぼし合いながら運動する。これを原子の集団運動という。最も励起エネルギーが小さい原子の集団運動は、原子の疎な領域と密な領域がナノメートル程度のミクロな波長の波として伝搬する、音響モードと呼ばれる集団運動である。粗密波の波長がマクロな大きさになったものが超音波や音波である。20 世紀中ごろに非弾性中性子散乱実験が行われるようになると、固体の格子振動 (フォノン) や液体の音響モードが精力的に研究されるようになった。1970 年代の非弾性中性子散乱実験により得られた液体 Rb の動的構造因子 $S(Q, E)$ (E は中性子から液体に移行されるエネルギー) には、結晶のフォノンによるピークと同様、音響モードがピークとして観測された¹⁰⁾。これ以降、非弾性中性子散乱により、液体の原子ダイナミクスがなおいっそう研究されるようになった。

Ar のような不活性ガス液体では、引力は弱いファン・デル・ワールス力であるが、斥力は閉殻構造のため非常に強い。強い斥力により原子は高い振動数で平衡位置周辺を振動運動し、平衡位置での滞在時間が短くなる。その結果、音響モードの寿命も極めて短くなり、動的構造因子には、ピークがないブロードな非弾性成分が観測される。一方、液体金属における原子間相互作用には価電子が強く関

与しており、ファン・デア・ワールス力に比べて遥かに強い引力相互作用と、不活性ガス原子と比べてソフトな斥力相互作用という違いが現れる。このため液体金属中の原子はピコ秒程度の長い間、平衡位置の周りで振動運動することができ、音響モードも同程度の寿命をもつ。その結果、動的構造因子には、固体のフォノンに類似な明瞭なピークが観測されると考えられている^{11,12)}。

固体と比べて原子が自由に移動できる液体金属では、電子状態と構造が密接に相関し、それぞれの変化に対して応答する。圧縮すれば価電子に加え内殻電子が関与した構造へ変化するし、逆に膨張させれば斥力項よりも強い引力項の影響が増した液体金属独特の構造が実現すると期待される。このトピックスで紹介するのは結晶 Bi の構造が液体 Bi でも実現しているのではないかという研究成果であるが、固体では実現できない構造物性の可能性があり、それを探究することが液体金属研究の醍醐味といえる。

1970 年代後半に遡って考えるに、液体 Bi は、単純液体金属には見られない異方的な原子配置と、それに伴う特徴的な原子の集団運動が期待される研究対象であった。これを明らかにするため、当時、2 つの研究グループにより、液体 Bi の非弾性中性子散乱実験が行われた。先行した Dahlborg と Olsson は、 6 nm^{-1} 以下の低い Q のみに音響モードのピークが現れると結論した^{13,14)}。公表された彼らの $S(Q, E)$ には、 10 nm^{-1} 以上の高い Q でも、エネルギーの大きな領域まで非弾性散乱成分が現れていたが、彼らは多重散乱に起因する成分と解釈して無視した。重元素である Bi は、X 線だけではなく中性子の吸収係数も大きく、当時の標準的な中性子源で得られた $S(Q, E)$ は、特に Q の小さい領域で十分な精度とは言い難い。従って Dahlborg と Olsson が、そのような判断を下したのも無理なかったかもしれない。Dahlborg らは、液体 Bi の有効 2 体相互作用を用いて分子動力学シミュレーションを行い、 6 nm^{-1} 以上の $S(Q, E)$ には、音響モードが明瞭なピークを示さないことを確認し、彼らの実験結果を補強した⁷⁾。一方、Shibata らの報告は、 6 nm^{-1} 以上の $S(Q, E)$ にも音響モードによるピークが現れるというものであった¹⁵⁾。今世紀になって中性子源の強度が増し、Sani らにより液体 Bi の非弾性中性子散乱実験が再度行われた¹⁶⁾。彼らは、Dahlborg らの結果に従って 6 nm^{-1} 以下の Q で実験を行い、音響モードの励起エネルギーを精密に決定した。「3. 結果と考察」で、これら先行して行われた非弾性中性子散乱による $S(Q, E)$ と本研究の非弾性 X 線散乱による $S(Q, E)$ を比較して説明する。

Sani らの精度の高い非弾性中性子散乱実験が報告された後、液体 Bi の音響モードに関する驚くべき結果が報告された。Souto らは液体 Bi の第一原理分子動力学シミュレーションを行って、 10 nm^{-1} 以上の $S(Q, E)$ にも音響モードのピークが現れることを示した¹⁷⁾。さらにその励起エネルギーの Q 依存性 (分散関係) を調べると、液体

金属で普通観測される正弦関数形にはならず、台形状の特異な関数形になることを見出した (Fig. 4 (■) 参照)。Souto らはシミュレーションで得られた動径分布関数を解析して、液体 Bi の最近接原子間距離が長短の 2 つに分類できることを示し、Peierls 歪みが実現している可能性にも言及した。しかし彼らは、液体 Bi の音響モードの励起エネルギーが特異な分散関係を示す理由については、明言しなかった。

20 世紀後半まで、固体、液体に関わらず、ナノメートル程度の波長をもつフォノンや音響モードを観測できる方法は、非弾性中性子散乱のみであった。しかし、20 世紀末に高輝度放射光を利用した非弾性 X 線散乱がミリ電子ボルト (meV) のエネルギー分解能を達成し、非弾性中性子散乱と並ぶ重要な観測手段の地位を確立した。我々は、パイエルズ歪みが期待される液体 Bi の原子ダイナミクスを明らかにすることを目的に、非弾性 X 線散乱実験を行うことを計画した。この実験結果によって、Souto らが提起した問題、すなわち 6 nm^{-1} 以上の $S(Q, E)$ にも音響モードによる非弾性ピークが現れるか否かと、音響モードの励起エネルギーが台形状の特異な分散関係を示すのかどうか、に決着をつけることができる。先に述べたように X 線吸収係数の大きな液体 Bi の非弾性 X 線散乱を行うには、試料として数十ミクロンの液体薄膜が必要である。また、極薄の試料からの非弾性 X 線散乱強度は微弱である。しかし我々独自に開発したサファイア製試料容器は、極薄の液体金属試料を何日でも安定に保持できる。本稿では、我々の非弾性 X 線散乱実験¹⁸⁾が、Souto らの第一原理分子動力学シミュレーションの結果を実証したことを紹介する。さらに我々は、液体 Bi の音響モードの分散関係が台形状になるメカニズムを解明した。なお、液体の原子、分子ダイナミクスについては、以前「放射光」に掲載された解説記事¹⁹⁾も参照してもらえると有難い。

2. 実験

非弾性 X 線散乱実験は SPring-8 の BL35XU ビームラインにおいて行われた²⁰⁾。2009 年に BL35XU ビームラインは挿入光源を高度化し、2001 年に稼働したときに比べ 6 倍以上の入射 X 線強度を達成している²¹⁾。Si (11 11 11) 面からの後方散乱により高度に単色化されたエネルギー 21.75 keV の入射 X 線を用い、散乱 X 線を 10 m 先に置かれた Si の分析結晶で後方散乱させ、分光計全体で約 1.5 meV のエネルギー分解能を達成する。

液体 Bi は、サファイア製試料容器²²⁾を用いて、厚さ 0.04 mm の薄膜に保持した。サファイア製試料容器に関しては「放射光」の解説記事¹⁹⁾も参照してもらいたい。サファイア製試料容器を結晶シリコンの窓を有する容器²³⁾に入れ、1 気圧の He ガス雰囲気中で、液体試料を得た。測定は融点近傍の 300°C および 750°C の液体 Bi につい

て行った。空のサファイア製試料容器を 300°C で測定して、バックグラウンドを評価した。吸収補正を行って試料の非弾性 X 線散乱スペクトルからバックグラウンドを引き、液体 Bi の $S(Q, E)$ を導いた。本稿では原論文¹⁸⁾に従って 300°C の $S(Q, E)$ について報告する。

3. 結果と考察

Fig. 2(a) は、代表的な Q について、非弾性 X 線散乱と非弾性中性子散乱による $S(Q, E)$ を比較したものである。上段のグラフが示すように、精度が十分な Q の大きい 25 nm^{-1} では、我々と Dahlborg と Olsson の結果¹³⁾は良く一致している。中段のグラフは、音響モードのピークが現れるか否かが問題となっている中間の Q の $S(Q, E)$ について、我々の結果と、Dahlborg と Olsson¹⁴⁾ならびに Shibata ら¹⁵⁾の非弾性中性子散乱の結果を比較したものである。我々の結果は、Shibata らの 14 nm^{-1} の結果と定性

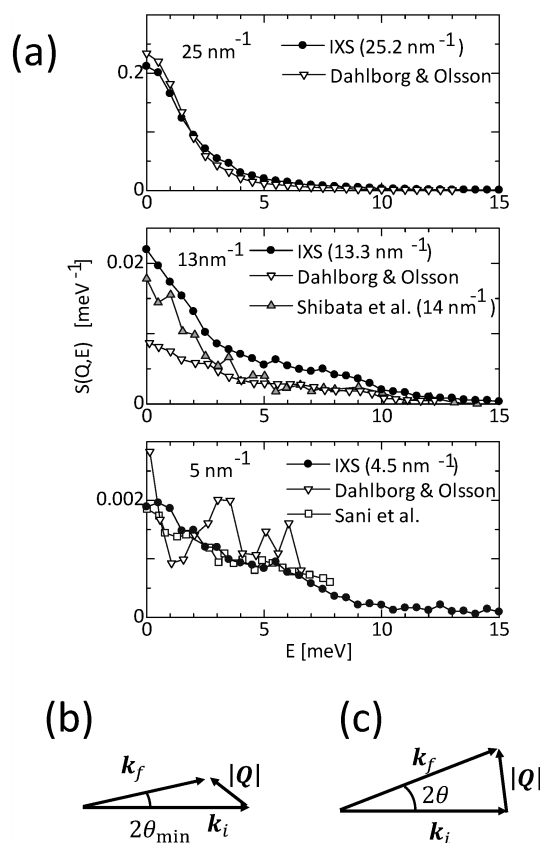


Fig. 2 (a) The dynamic structure factor $S(Q, E)$ of liquid Bi obtained by inelastic x-ray scattering (IXS) and inelastic neutron scattering (INS) experiments. Black circles, open upside down triangles, gray triangles and open squares denote $S(Q, E)$ obtained by IXS, INS by Dahlborg and Olsson^{13,14)}, INS by Shibata *et al.*¹⁵⁾ and INS by Sani *et al.*¹⁶⁾, respectively. (b) The relation of k_i , k_f and $|Q|$ in INS. (c) The relation of k_i , k_f and $|Q|$ in IXS.

的に合っている。一方、 $S(Q, 0)$ で規格化すると我々の結果は Dahlborg と Olsson の結果と全く重ならない。先に述べたように Dahlborg と Olsson は、5~10 meV に現れる非弾性成分を多重散乱に起因すると判断した。下段のグラフでは、 Q の小さい 5 nm^{-1} の比較である。我々の結果は、Sani らの非弾性中性子散乱の結果¹⁶⁾と良く一致している。しかし、Sani らの $S(Q, E)$ は、非弾性ピークの途中のエネルギーで打ち切られている。入射中性子のエネルギーが数十~100 meV である非弾性中性子散乱の場合は、移行エネルギー E の増加に伴い散乱波の波数ベクトル k_f の大きさが変化するため、Fig. 2(b) に示すように、ある $|Q|$ に対して、ある E 以上になると、 2θ を調整して最小値 $2\theta_{\min}$ にしても入射波の波数ベクトル k_i , k_f , Q がつくる三角形が閉じない測定不可能な E 領域が現れる。これを運動力学的制約という。一方、非弾性 X 線散乱の場合は Fig. 2(c) に示すように、 E が 1 eV 程度まで大きくなっても k_f の大きさは事実上変化しないので、 $|Q|$ を与える 2θ を決めれば三角形は常に閉じ、測定不可能な E 領域は現れない。すなわち Q は弾性散乱の場合と同様、散乱角 2θ だけの関数として決定される。Sani らの測定エネルギー領域が狭いのは、非弾性中性子散乱の運動力学的制約のためと考えられる。また、同じ 5 nm^{-1} の Dahlborg と Olsson の結果¹⁴⁾は、Sani ら同様エネルギー領域が狭い上に、明らかに精度が悪い。このように液体 Bi の音響モードを調べる際、非弾性中性子散乱の運動力学的な制約が不利に働いたことは否めないと思われる。

Fig. 3 には、非弾性 X 線散乱により得られた液体 Bi の $S(Q, E)/S(Q)$ を表示した。 $S(Q, E)/S(Q)$ は、 $S(Q, E)$ の E 積分値 ($S(Q)$) に比例するべき物理量で $S(Q, E)$ を規格化した動的構造因子である。丸印が実験データ、太い実線は記憶効果を取り入れたモデル関数による最適化曲線である。一番下にプロットしたピークは、スペクトロメータの分解能関数である。 2.9 nm^{-1} の $S(Q, E)/S(Q)$ には、中央の準弾性散乱ピークの両側に音響モードによるピーク(矢印で示した)が現れている。 Q が大きくなると、このピークは高エネルギー側に移動するが、 $9.3 \sim 14.6 \text{ nm}^{-1}$ の間は、ほぼ同じエネルギーに停滞しているように見える。このように非弾性 X 線散乱により、 6 nm^{-1} 以上の $S(Q, E)$ においても、音響モードに由来するピークが現れることが確認された。液体 Bi の $S(Q)$ や 2 体分布関数を正しく再現できる有効 2 体相互作用を使った古典分子動力学シミュレーションでは音響モードによるピークが動的構造因子に現れなかった。つまり原子の集団運動を正しく記述できなかったということである。一方 Fig. 3 の破線が示すように、第一原理分子動力学シミュレーションによる $S(Q, E)/S(Q)$ は非弾性 X 線散乱の結果を良く再現している。それぞれの原子配置に応じた原子間相互作用を評価しながら原子の運動を追跡すると実験結果を再現できたという事実は、液体 Bi のダイナミクスには、3 体相関

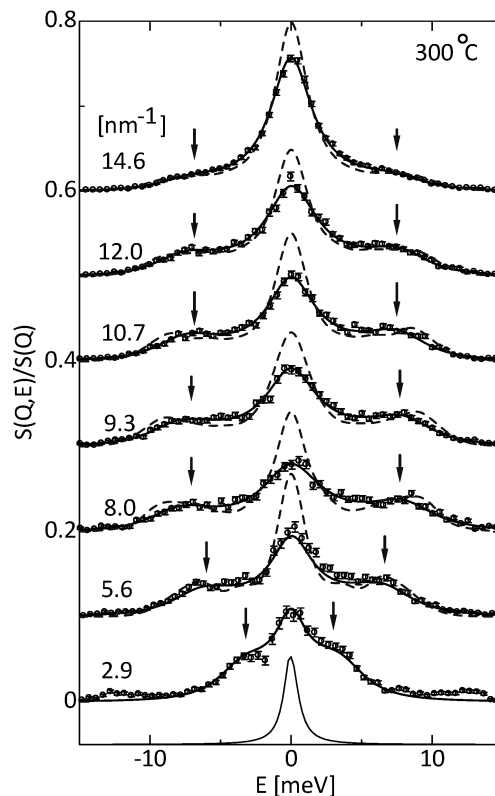


Fig. 3 The normalized dynamic structure factor $S(Q, E)/S(Q)$ of liquid Bi at 300°C. Open circles and a bold line denote the IXS results and the fits with the memory function, respectively. Also shown is $S(Q, E)/S(Q)$ obtained by our ab initio molecular dynamics (AIMD) simulation (broken line). The inelastic excitations of the acoustic mode are indicated by arrows.

以上の多体相互作用が重要な役割を果たしていることを示唆している。

液体 Bi の音響モードの分散関係を調べるため、音響モードの励起エネルギーを決定する。非弾性 X 線散乱では、スペクトロメータのエネルギー分解能 (約 1.5 meV) 分だけ、観測された $S(Q, E)/S(Q)$ のピーク幅が広がっていることを配慮する必要がある。我々は、記憶関数で表されたモデル関数 $[S(Q, E)/S(Q)]^M$ を分解能関数で畳みこみ、実測の $S(Q, E)/S(Q)$ を再現した。

ここで動的構造因子を表す記憶関数の式について簡潔に説明する。液体は、マイクロメートル程度の大きな空間スケールでは連続的な物質 (= 流体) として扱えるが、ナノメートル程度より小さい空間スケールでは構成粒子を配慮した粘弾性的 (固体的) な扱いが必要になると考えられる。1960~70年代のコンピューターシミュレーションによる研究から、液体の緩和過程には、2 粒子の衝突時間程度で緩和する速い成分と、複数の粒子の相関した衝突により緩和すると考えられる遅い成分が見出された。我々が用いたモデルでは、速い成分には緩和時間ゼロのデルタ関数、遅い成分にはデバイ緩和を仮定して、これらの成分の割合が

Q に依存して変化する。ある振動数で励起される密度ゆらぎ (=ある励起エネルギーをもつ音響モード) が流体的な緩和をするか粘弾性的な緩和をするかを決定するのが、デバイ緩和の緩和時間である。振動数の逆数よりも緩和時間が短ければ流体的な (長ければ粘弾性的な) 緩和が予想される。実測された $S(Q, E)/S(Q)$ に対して、緩和強度や緩和時間、規格化された 2 次と 4 次の振動数モーメントをパラメータとして最適化する。Fig. 3 の太い黒線が最適化された $[S(Q, E)/S(Q)]^M$ を分解関数で畳み込んだ結果である。詳細は省くが、緩和時間や規格化された 4 次の振動数モーメントの値から、非弾性 X 線散乱で観測された液体 Bi の音響モードは粘弾性的な領域のものと判断できる。

畳み込まれる前の $[S(Q, E)/S(Q)]^M$ に現れる非弾性ピーク位置が音響モードの励起エネルギーである。このようにして実験から求めた液体 Bi の音響モードの励起エネルギーを、Fig. 4 に○で表した。Fig. 4 には、Souto ら (■) と我々 (▲) の第一原理分子動力学シミュレーションによる音響モードの分散関係も合わせてプロットした。第一原理分子動力学シミュレーションに比べて非弾性 X 線散乱の励起エネルギーがわずかに小さくなっているが、分散関係はどちらも台形状である。すなわち、Souto らのシミュレーションの予想が非弾性 X 線散乱実験により実証された。

一般に、単純液体金属の音響モードの分散関係は、Fig. 4 の破線で示されるような正弦関数型をしている。このような分散関係は、各原子が最近接原子とばね定数 K_1 のばねで結ばれている単純な一次元鎖モデルの運動方程式を解いて導くことができる。それに対して液体 Bi の分散関係

は台形型である。我々はその起源を明らかにするため、遠距離相互作用を加えた一次元鎖モデルの分散関係を調べた。

Fig. 1(a) に示された Peierls 歪みを伴う一次元鎖は、各原子が最近接原子とばね定数 K_1 、第 2 近接原子とばね定数 K_2 のばねで結ばれていると仮定するとモデル化できる。これは Fig. 1(a) の太線で表された結合のばね定数を K_1 、太線で結ばれた原子対を 2 原子分子に見立てたとき、隣り合う 2 原子分子がばね定数 K_2 のばねで結ばれていることに相当する。最近接原子間距離を a 、原子の質量を m 、角振動数を ω とすると、2 原子分子の質量中心間の距離は $2a$ となり、このように修正された一次元鎖を伝わる波の ω と Q の関係は、

$$\omega^2 = 2\Omega_1^2(1 - \cos Qa) + 2\Omega_2^2(1 - \cos 2Qa)$$

と表される。ただし、振動数 $\Omega_i = \sqrt{K_i/m}$ ($i=1, 2$) とおいた。このモデルでは、第 1 項はピークが $Q_1 = \pi/a$ に位置する正弦関数型の分散関係を与え、ピークが $(1/2) Q_1$ と $(3/2) Q_1$ に位置する第 2 項が第 1 項のピークを鈍らせる。そして $\Omega_2/\Omega_1 = 0.5$ のとき、最も台形型に近い分散関係を得ることができる。我々は、励起エネルギー $\hbar\omega$ が Fig. 4 の○を再現するように、振動数 Ω_1, Ω_2 と a を最適化した。得られた結果がピークの鈍った分散関係を与えている太い実線で、このとき $\Omega_2/\Omega_1 = 0.46$ であった。以上のように、Peierls 歪みを伴う一次元鎖モデルが、液体 Bi の音響モードの励起エネルギーの分散関係をよく再現できることが明らかになった。この結果は、液体 Bi のナノメートルの領域に注目すると、Fig. 1(b) に示されるようなパイエルズ歪みを伴う原子配列が形成されていることを強く示唆している。

4. まとめ

$S(Q)$ の第 1 ピークに肩が現れることから、液体 Bi の局所構造に異方的な結合が存在することが予想されていた。しかし、 $S(Q)$ から導かれる動径分布関数は、すべての方向を平均した結果であるので、結合の異方性を伴う Peierls 歪みが液体中に形成されているのかどうか、確証は得られていなかった。非弾性 X 線散乱実験により音響モードの励起エネルギーを調べた結果、Peierls 歪みを伴う一次元鎖の音響モードの分散関係と一致することが分かった。これは、液体 Bi 中に Peierls 歪みを伴う異方的なナノ構造が形成されていることを強く示唆する結果である。

我々の研究は、原子やイオンが不規則に配置されているだけと考えられていた液体を原子の集団運動の観点から解析し、液体中には原子間にはたらく力を忠実に反映した規律のある構造がナノメートル程度の範囲にわたり形成されていることを証明した。これは、原子間に働く力を制御すればナノ構造をデザインできる可能性を示唆するものかも

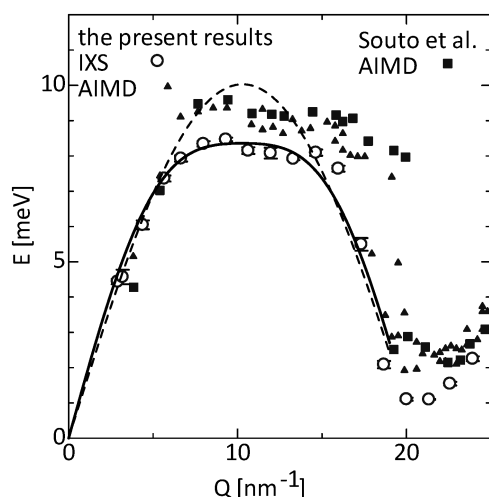


Fig. 4 Open circles, black triangles and black squares denote the excitation energy of the acoustic mode in liquid Bi obtained by IXS, our AIMD, and AIMD by Souto et al.^{17),} respectively. Also shown are the dispersion curves of a regular chain and a distorted chain shown in Fig. 1(a) by broken and bold lines, respectively.

しない。我々は、この研究成果が液体母合金を扱う材料科学分野の発展に役立つことを強く願っている。

謝辞

本研究は、(公財)高輝度光科学研究センター (SPRING-8) の BL35XU ビームラインにおいて実施された (利用課題番号2011B1314, 2010B1173, 2009B1283)。

参考文献

- 1) R. E. Peierls: "Quantum Theory of Solids" (Oxford University Press, 1955)
- 2) R. Bellissent, C. Bergman, R. Ceolin and J. P. Gaspard: Phys. Rev. Lett. **59**, 661 (1987).
- 3) C. Bichara, A. Pellegatti and J. P. Gaspard: Phys. Rev. B **47**, 5002 (1993).
- 4) A. Chiba, M. Tomomasa, T. Hayakawa, S. M. Bennington, A. C. Hannon and K. Tsuji: Phys. Rev. B **80**, 060201(R) (2009).
- 5) M. North, J. E. Enderby and P. A. Egelstaff: J. Phys. C: Solid State Phys. **1**, 1075 (1968).
- 6) Y. Waseda and K. Suzuki, Phys: Status Solidi B **49**, 339 (1972).
- 7) M. Dzugutov and U. Dahlborg: Phys. Rev. A **40**, 4103 (1989).
- 8) J. Hafner and W. Jank: Phys. Rev. B **45**, 2739 (1992).
- 9) M. Mayo, E. Yahe, Y. Greenberg and G. Makov: J. Phys.: Condens. Matter **25**, 505102 (2013).
- 10) J. R. D. Copley and J. M. Rowe: Phys. Rev. Lett., **32**, 49 (1974).
- 11) J. W. E. Lewis and S. W. Lovesey, J. Phys. C **10**, 3221 (1977).
- 12) U. Balucani, G. Ruocco, A. Torcini and R. Vallaauri, Phys. Rev. E **47**, 1677 (1993).
- 13) U. Dahlborg and L. G. Olsson: Phys. Rev. A **25**, 2712 (1982).
- 14) U. Dahlborg and L. G. Olsson: J. Phys. F: Met. Phys. **13**, 555 (1983).
- 15) K. Shibata, S. Hoshino and H. Fujishita: J. Phys. Soc. Jpn. **53**, 899 (1984).
- 16) L. Sani, L. E. Bove, C. Petrillo and F. Sacchetti: J. Non-Cryst. Solids **353**, 3139 (2007).
- 17) J. Souto, M. M. G. Alemany, L. J. Gallego, L. E. González and D. J. González: Phys. Rev. B **81**, 134201 (2010).
- 18) M. Inui, Y. Kajihara, S. Munejiri, S. Hosokawa, A. Chiba, K. Ohara, S. Tsutsui and A. Q. R. Baron: Phys. Rev. B **92**, 054206 (2015).
- 19) 乾雅祝, 梶原行夫, 松田和博, 石川大介, 筒井智嗣, アルフレッド バロン, 放射光 **23**, 219 (2010).
- 20) A. Q. R. Baron, Y. Tanaka, S. Goto, K. Takeshita, T. Matsushita and T. Ishikawa: J. Phys. Chem. Solids **61**, 461 (2000).
- 21) A. Q. R. Baron, S. Tsutsui, H. Uchiyama, D. Ishikawa, H. Fukui and D. Ellis: SPRING-8 年報2009年度77-78 (2010).
- 22) K. Tamura, M. Inui and S. Hosokawa: Rev. Sci. Instrum. **70**, 144 (1999).
- 23) S. Hosokawa and W.-C. Pilgrim: Rev. Sci. Instrum. **72**, 1721 (2001).

著者紹介



乾 雅祝

広島大学大学院 総合科学研究科 教授

E-mail: masinui@hiroshima-u.ac.jp

専門：金属・半導体物性

【略歴】

1989年 京都大学大学院理学研究科 博士後期課程修了。理学博士。

1989年 九州大学教養部教務員，1991年同助手

1994年 広島大学総合科学部 助教授

2009年より現職



千葉文野

慶應義塾大学理工学部物理学科 専任講師

E-mail: ayano@phys.keio.ac.jp

専門：液体，高分子，高圧物理

【略歴】

2003年 京都大学大学院理学研究科物理学・宇宙物理学専攻修了。博士（理学）。日本学術振興会特別研究員（PD），慶應義塾大学物理学科助手，Rutherford Appleton Laboratory Visiting Scientist（海外学振）を経て，2013年4月より現職。



梶原行夫

広島大学大学院総合科学研究科 助教

E-mail: kajihara@hiroshima-u.ac.jp

専門：不規則系物理学（液体，ガラス）

【略歴】

2003年京都大学大学院理学研究科物理学・宇宙物理学専攻修了。博士（理学）。愛知県科学技術交流財団研究員，名古屋工業大学研究員，広島大学助手を経て，2007年4月より現職。



尾原幸治

高輝度光科学研究センター 利用研究促進部門 構造物性Ⅰグループ 研究員

E-mail: ohara@spring8.or.jp

専門：非晶質構造解析

【略歴】

2010年九州大学大学院理学府凝縮系科学専攻修了。博士（理学）。高輝度光科学研究センター協力研究員，京都大学産官学連携本部特定助教を経て，2015年4月より現職。



宗尻修治

広島大学大学院 総合科学研究科 准教授

E-mail: munejiri@hiroshima-u.ac.jp

専門：計算物理，物理教育

【略歴】

1998年 広島大学大学院生物圏科学研究科 博士課程後期修了。博士（学術）。

1999年 宇宙開発事業団 特別研究員

2002年 比治山大学 講師

2007年より現職



筒井智嗣

高輝度光科学研究センター 主幹研究員

利用研究促進部門 構造物性Ⅱグループ 非弾性散乱チームリーダー

E-mail: satoshi@spring8.or.jp

専門：固体物理，高分解能X線非弾性散乱，核共鳴散乱

【略歴】

1999年大阪大学大学院基礎工学研究科物理系専攻修了。博士（理学）。日本原子力研究所先端基礎研究センター博士研究員，高輝度光科学研究センター研究員，同副主幹研究員を経て，2015年4月より現職。



細川伸也

熊本大学大学院自然科学研究科（理学系）教授

E-mail: hosokawa@sci.kumamoto-u.ac.jp

専門：原子構造とダイナミクス，3D 活性サイト科学

【略歴】

1984年京都大学大学院理学研究科物理学第一専攻単位取得退学。理学博士。広島大学助手，助教授，マルブルク大学研究員，広島工業大学助（准）教授，教授を経て，2012年4月より現職。



Alfred Baron

理化学研究所 播磨研究所 バロン物質ダイナミクス研究室 准主任研究員

E-mail: baron@spring8.or.jp

専門：Atomic Dynamics, X-Ray Optics, Synchrotron Radiation Instrumentation.

【略歴】

AB received his PhD in Applied Physics from Stanford University in 1995. He then spent 3 years working at the ESRF before moving to SPring-8, where, as a member of JASRI, he was responsible for designing, commissioning, and running BL35XU. He moved to RIKEN in 2006 where, as the leader of the Materials Dynamics Laboratory, he is now commissioning BL43LXU.

Anomalous behavior of the acoustic mode in liquid Bi

Masanori INUI	Graduate School of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University, Higashi-Hiroshima, Hiroshima 739-8521, Japan
Yukio KAJIHARA	Graduate School of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University, Higashi-Hiroshima, Hiroshima 739-8521, Japan
Shuji MUNEJIRI	Graduate School of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University, Higashi-Hiroshima, Hiroshima 739-8521, Japan
Shinya HOSOKAWA	Department of Physics, Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University, Kumamoto 860-8555, Japan
Ayano CHIBA	Department of Physics, Keio University, Yokohama 223-8522, Japan
Koji OHARA	Japan Synchrotron Radiation Research Institute, SPring-8, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan
Satoshi TSUTSUI	Japan Synchrotron Radiation Research Institute, SPring-8, Sayo-gun, Hyogo 679-5198, Japan
Alfred. Q. R. BARON	Materials Dynamics Laboratory, RIKEN SPring-8 Center, Sayo-gun, Hyogo 679-5148, Japan

Abstract To understand atomic dynamics in liquid Bi whose local structure is expected to be anisotropic, we have carried out inelastic x-ray scattering (IXS) measurements. The dynamic structure factor experimentally obtained exhibits a distinct inelastic peak of the acoustic mode, and it was found that the dispersion relation of the acoustic excitation energy shows an anomalous flat-topped profile. These results explain the inconsistency of inelastic neutron scattering (INS) results in 1980's, and are consistent with prediction by a recent ab initio molecular dynamics simulation [Souto et al., *Phys. Rev. B* **81**, 134201 (2010)]. Our analysis with a linear chain model suggests that the anomalous dispersion relation in liquid Bi arises from local anisotropy accompanying the Peierls distortion.