

令和 4 年 6 月 14 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K12650

研究課題名(和文)物質中水素の中性子コンプトン効果

研究課題名(英文) Neutron Compton effect of hydrogen in materials

研究代表者

池田 一貴 (IKEDA, Kazutaka)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・特別准教授

研究者番号：80451615

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：中性子は原子核により直接散乱されるため物質中の水素位置を決定することに適していると言われていたが、実は重水素だけに有効で、中性子と同等に軽量な軽水素に対しては反跳現象による非弾性散乱過程のために不向きである。本研究では、アルカリ金属水素化物、アルカリ土類金属水素化物、錯体系水素化物、遷移金属系水素化物、および重水素化物などの中性子回折測定を実施して、中性子の波長と散乱角により変化する干渉性散乱断面積が結晶構造因子に与える影響を解析した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた中性子の波長と散乱角により変化する干渉性散乱断面積に関する知見は、重水素化が困難で構造解析が断念されてきた軽水素化物の構造解析を可能にすることが期待される。

研究成果の概要(英文)：Neutrons are known to be suitable for determining hydrogen positions in materials because they are directly scattered by nuclei, but they are actually effective only for deuterium, and are not suitable for light hydrogen, which is as light as neutrons, due to inelastic scattering processes caused by recoil phenomena. In this study, neutron diffraction measurements of alkali metal hydrides, alkaline earth metal hydrides, complex hydrides, transition metal hydrides, and deuterides were performed to analyze the effect of coherent scattering cross sections, which vary with neutron wavelength and scattering angle, on crystal structure factors.

研究分野：中性子科学

キーワード：中性子散乱 水素 同位体 干渉性散乱

1. 研究開始当初の背景

中性子は原子核により直接散乱されるため物質中の水素位置を決定することに適していると言われているが、実は重水素だけに有効で、中性子と同等に軽量な軽水素に対しては反跳現象による非弾性散乱過程のために不向きである。そのため、重水素化が困難な物質の中性子散乱による精密な構造解析は妥協されてきた。

2. 研究の目的

本研究では、水素の多様な化学結合状態に着目して中性子散乱測定を実施して、干渉性散乱断面積の散乱角および中性子波長に対する依存性を評価して、水素の中性子散乱による反跳現象を理解することを目的とした。

3. 研究の方法

アルカリ金属水素化物 (LiH, NaH)、アルカリ土類金属水素化物 (MgH₂, CaH₂, SrH₂, BaH₂)、錯体系水素化物 (NaAlH₄, KH₂PO₄)、遷移金属系水素化物 (TiH₂, VH₂)、および重水素化物 (NaD, VD₂) などの中性子回折測定を実施して、干渉性散乱断面積の変化が結晶構造因子に与える影響を解析した。

4. 研究成果

NaH と NaD の中性子散乱測定から得られた回折曲線と Rietveld 法による精密化の結果を図 1 に示す。NaD は結晶構造が既知であり、十分に精密化できることを確認できた。NaH は NaD と同様の結晶構造であることが報告されており、精密化も可能であるが、バックグラウンドを含む信頼度因子 R_{wp} が小さいのは軽水素化物の非干渉性散乱断面積が著しく大きく、結晶構造成分である干渉性散乱断面積が相対的に小さいためである。そのため、結晶構造因子に由来する信頼度因子 R_F が大きく、構造精密化が不十分であることを示している。それに対して、干渉性散乱断面積の散乱角および中性子波長に対する依存性を評価して得られた補正を施して導出された NaH の回折曲線は精密化の信頼度因子が改善したが、NaD における信頼度因子には達していないため、さらに補正の精度を改善する必要がある。

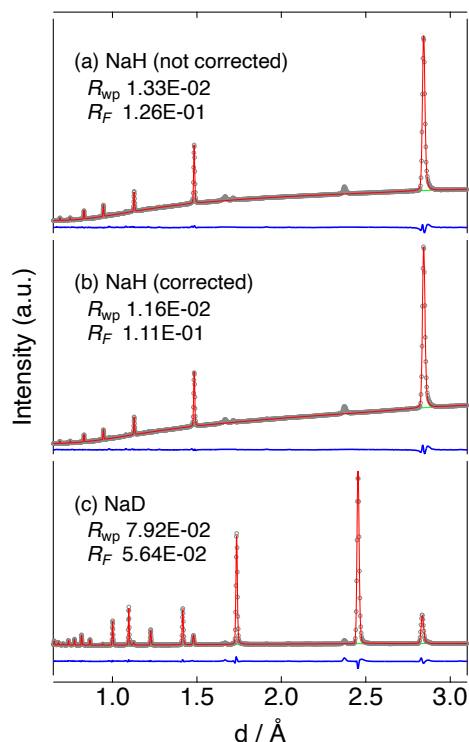


図 1 (a) NaH (補正前)、(b) NaH (補正後)、(c) NaD の中性子回折曲線と Rietveld 法による精密化結果 (R_{wp} : バックグラウンドを含む信頼度因子、 R_F : 結晶構造因子に対する信頼度因子)。

一方、中性子全散乱測定から得られる構造因子 $S(Q)$ を Fourier 変換して導出される 2 体分布関数 $G(r)$ は軽水素の大きな非干渉性散乱断面積の非弾性散乱効果が大きく、そのままでは再近接における 2 体相関を解析できないが、ベースラインを補正することによりシミュレーション

曲線にかなり近づくことがわかった。

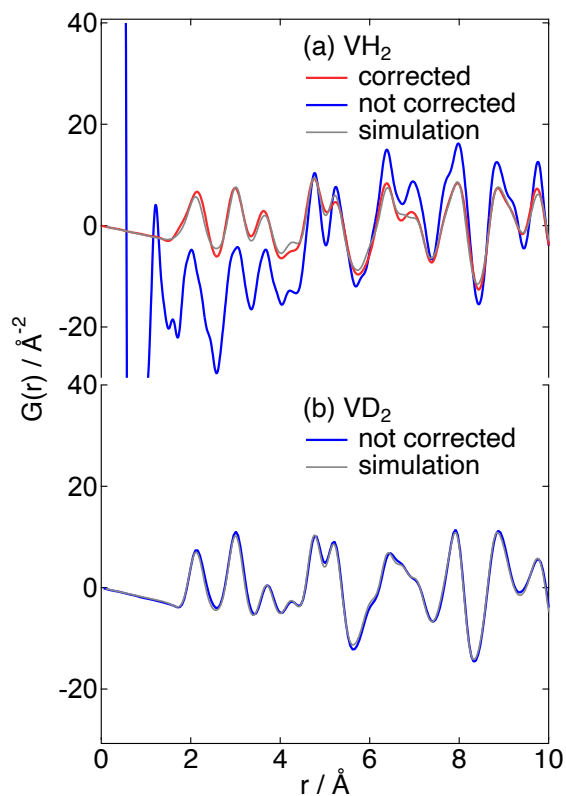


図 2 (a) VH_2 、(b) VD_2 の中性子全散乱測定から得られた構造因子 $S(Q)$ を Fourier 変換して導出した 2 体分布関数 $G(r)$ 。 VH_2 は補正によりシミュレーション曲線に近づく。

今後は干渉性散乱断面の散乱角および中性子波長に対する依存性を中性子全散乱測定の結果にも適用し、さらなる解析精度の向上と水素の中性子散乱による反跳現象の理解を進める。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ikeda Kazutaka, Fujisaki Fumika, Otomo Toshiya, Ohshita Hidetoshi, Honda Takashi, Kawamata Toru, Arima Hiroshi, Sugiyama Kazumasa, Abe Hitoshi, Kim Hyunjeong, Sakaki Kouji, Nakamura Yumiko, Machida Akihiko, Sato Toyoto, Takagi Shigeyuki, Orimo Shin-ichi	4. 巻 11
2. 論文標題 Generating Mechanism of Catalytic Effect for Hydrogen Absorption/Desorption Reactions in NaAlH ₄ -TiCl ₃	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 8349 ~ 8349
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/app11188349	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 IKEDA Kazutaka, HONDA Takashi, OTOMO Toshiya	4. 巻 64
2. 論文標題 Averaged and Local Structure Analysis of Hydrogen Storage Materials by High Intensity Neutron Total Diffractometer, NOVA	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nihon Kessho Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 174 ~ 177
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.5940/jcrsj.64.174	査読の有無 有
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4件（うち招待講演 2件／うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Kazutaka IKEDA
2. 発表標題 Structural Study of Hydrides by High Intensity Neutron Total Diffractometer (NOVA)
3. 学会等名 MATERIALS RESEARCH MEETING 2019（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kazutaka IKEDA
2. 発表標題 Neutron Scattering Experiment and Structural Analysis of Hydrides by High Intensity Total Diffractometer (NOVA)
3. 学会等名 Thermec ' 2020 International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田一貴、藤崎布美佳、大友季哉、大下英敏、本田孝志、川又透、有馬寛、杉山和正、阿部仁、Hyunjeong Kim、榊浩司、中村優美子、町田晃彦、佐藤豊人、高木成幸、折茂慎一
2. 発表標題 ナトリウム-アルミニウム系錯体水素化物の中性子・X線散乱による構造解析と水素吸蔵放出反応の触媒効果
3. 学会等名 日本中性子科学会第21回年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 池田一貴、藤崎布美佳、大友季哉、大下英敏、本田孝志、川又透、有馬寛、杉山和正、阿部仁、Hyunjeong Kim、榊浩司、中村優美子、町田晃彦、佐藤豊人、高木成幸、折茂慎一
2. 発表標題 NaAlH ₄ -TiCl ₃ の水素放出再吸蔵過程における中性子・X線散乱による構造解析と触媒効果の発現
3. 学会等名 日本金属学会2022年春季（第170回）講演大会
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
研究協力者	佐次田 頌 (SASHIDA Sho)	総合研究大学院大学 (12702)	
連携研究者	大下 英敏 (OHSHITA Hidetoshi) (00625163)	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・技師 (82118)	
連携研究者	榊 浩司 (SAKAKI Kouji) (20392615)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・研究グループ長 (82626)	

6. 研究組織（つづき）

	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
連携研究者	本田 孝志 (HONDA Takashi) (70735745)	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・助教 (82118)	
連携研究者	大友 季哉 (OTOMO Toshiya) (90270397)	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・物質構造科学研究所・教授 (82118)	

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