

15. 偏極中性子を用いた軽水素化合物における局所構造解析法の確立

高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 助教 本田 孝志

概要

水素はエネルギー資源の観点だけでなく、水素の特性を生かした物性研究や微量不純物としての水素など様々な分野で注目されている。近年、我々が整備した偏極中性子ビーム（スピン方向が揃った中性子ビーム）を用いることで、軽水素の非干渉性散乱成分を分離することができるようになってきた。本研究は、偏極中性子ビームを用いることで軽水素の位置を平均的および局所的構造の観点から精密化する手法開発を目的としている。偏極中性子散乱実験環境の構築として、実験効率化の観点からリモート制御化ヘルムホルツコイルの設計・改良に加え、ビーム軸上の構造体を非磁性体へ更新し偏極中性子ビームの性能向上・効率化を実現した。また標準試料として NaH、H₂O を用いた偏極中性子散乱実験を行い、干渉性・非干渉性散乱成分の分離にも成功した。これにはモンテカルロシミュレーションから多重散乱過程を見積もり、偏極中性子ビームのスピンフリップ確率を補正している。

本研究助成により、本実験環境・システム構築を完遂し研究成果につなげることができ、ここに深く感謝申し上げます。

背景および目的

水素はエネルギー資源として Society5.0、カーボンニュートラルの観点からも注目を集めている。水素貯蔵材料を始めとし、水素化合物超伝導体やヒドリド（水素陰イオン）伝導体といった水素の特性を利用した物性研究や金属の水素脆化といった微量不純物としての水素など、様々な分野で水素が注目されている。物質設計において結晶構造や対称性の情報は重要であるが、結晶構造中の水素原子位置を精密化できるのは中性子ビームのみとなっている。しかしながら水素の主成分である軽水素は非干渉性散乱という大きなバックグラウンド成分を有しており、このバックグラウンドの存在が構造精密化への大きな障害となっている。特に短距離秩序を反映する散漫散乱は回折プロファイル中の Bragg ピークの裾に現れ、バックグラウンド成分の見積もり方に大きく影響される。そこで同位体である重水素に置換する方法が広く用いられている。しかし、重水素化によって結晶構造や物性が軽水素化合物と異なるなど置換が難しい等の問題があり、軽水素が多く含まれている水素化合物については未開拓な部分が残っている。

近年、我々が整備した偏極中性子ビームを用いることで、軽水素の非干渉性散乱成分を分離することができるようになってきた[1]。そこで本研究では、平均的および局所的構造の両面から構造精密化が可能な結晶 PDF（二体分布関数）解析法に着目し、J-PARC 物質・生命科学実験施設（MLF）の大強度中性子源を有効に生かした偏極中性子ビームによる結晶 PDF 解析法の確立を目的とし研究を行った。結晶 PDF 解析にはパルス中性子源のような低エネルギーから高エネルギーまでの幅広い波長帯を有するビーム（飛行時間型ビーム）が必要であり、また高エネルギー中性子までスピン偏極可能なデバイスは³He スピンフィルタの一択である。

方法

本実験は J-PARC MLF 内にある本代表研究者が所属する KEK 所有の高強度全散乱装置 (NOVA) で行った。偏極中性子散乱実験時には、ビーム上流と下流に ^3He スピンフィルタが設置されており、それぞれ偏極子 (polarizer)、検極子 (analyzer) と呼ぶ。本研究の偏極中性子システムの設置概念図を図 1 に示す。

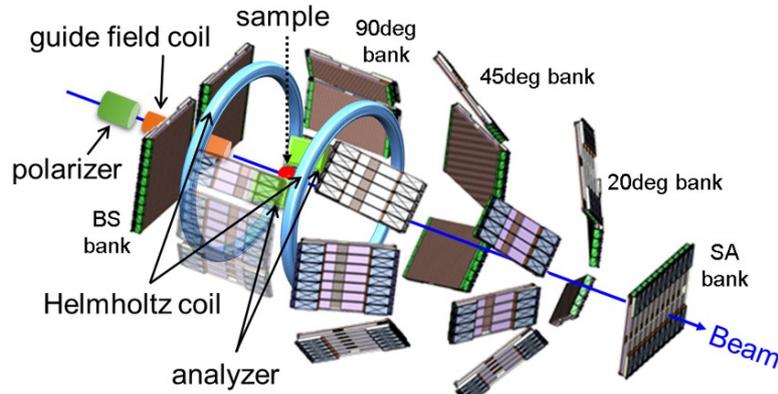


図 1. J-PARC MLF、NOVA における偏極中性子システムの設置概念図。

パルス中性子源では様々な波長の中性子ビームが発生するため、検出器をある散乱角に固定し散乱データを取得する。NOVA では散乱角の異なる 5 種の検出器バンクを有しており、観測可能な波数領域はバンクで異なることから測定したい範囲に応じてバンクを変える必要がある。スピンフィルタは立体角の制限から特定のバンクのみを覆う (特定の散乱角方向にのみ設置できる) 仕様となっており、検出器バンクを変更する際にはクレーン作業が伴う。そこで検極子が設置されている回転テーブルをリモート制御・自動化することで、作業工数を削減した効率的な測定環境を実現した。加えて、実験効率化の観点から NOVA 専用の偏極デバイスを作製し実装した。また、空気散乱由来のバックグラウンドを低減することを目的としたビーム成型用入射コリメータも製作および実装し、リモート制御可能とした。

標準試料としてナトリウム水素化物 NaH および軽水 H_2O を用いた偏極中性子散乱実験を行い、データ補正方法の確立を目指した。中性子スピンの偏極率はエネルギー依存性を持ち、また多重散乱過程が散乱角度によって異なるため、モンテカルロシミュレーション Geant4 を用いた評価を行った。

結果および考察

専用偏極デバイスおよびリモート制御・自動化を行ったヘルムホルツコイルを図 2 に示す。検極子を設置しているヘルムホルツコイルフランジは大型機器となっており、検極子の位置変更にはこれまで平日・日中のクレーン作業が伴っていた。本改良により、時間的制約がなくなり、かつ 1/30 程度の作業時間となり大幅な効率化が実現できた。またビーム成型を行うスリットがこれまで装着されていなかったため試料以外の構造体にビームが当たることがあったが、ビーム成型用入射コリメータの実装により、試料サイズに合わせたビーム成型を行うことができバックグラウンドが低減されている。

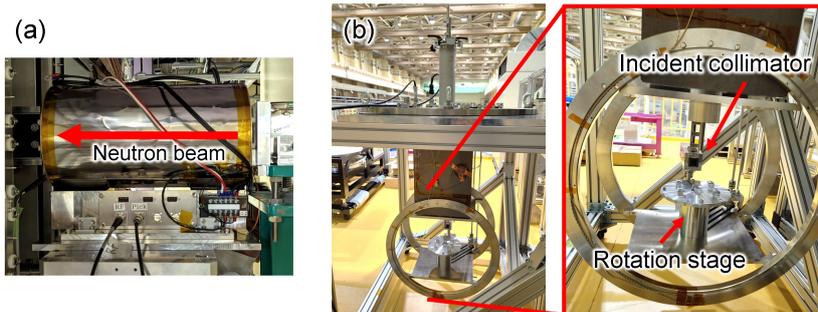


図 2. (a)NOVA 専用偏極デバイスおよび(b)リモート制御化ヘルムホルツコイル.

偏極子・検極子のスピン配列を平行と反平行にした透過ビームのプロファイルを計測することで、偏極中性子ビームの性能評価を行うことができる。図 3 に示すようにビームがスピントラップを通過することで、出てきた中性子ビームのスピン方向がスピントラップの方向にそろうため、偏極子・検極子が反平行配置のもの（青線）はほとんどビームが透過しない。ビーム評価を行ったところ、ビーム軸上で磁場が発生していることを示すフリンジが観測され、原因究明の結果、装置のビームダクトの加工部が磁化していることが判明した。2023 年度にアルミ製ダクトに更新し、図 3(b)に示すように当該フリンジが消えていることを確認、偏極中性子散乱実験環境の整備を完了した。

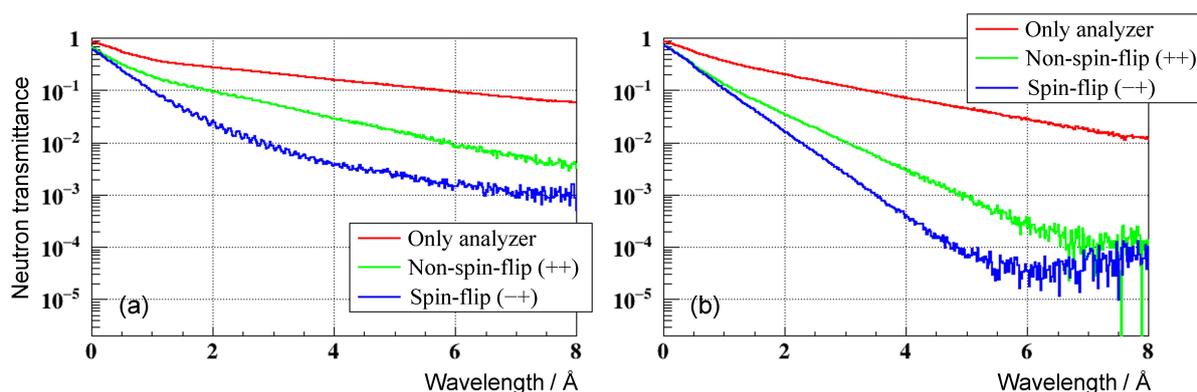


図 3. NOVA のビームダクト(a)更新前および(b)更新後の透過ビームプロファイル.

赤線はビーム上に偏極子のみ設置したビームプロファイルを、緑および青線は偏極子と検極子両方を設置し、中性子スピンの方向がそれぞれ平行、反平行の時のビームプロファイルを示す。

NaH における 90 度バンクの偏極中性子散乱データのテスト測定結果を図 4 に示す。偏極子と検極子のスピン方向を平行・反平行配置でそれぞれ 10 分測定したデータを用いて、干渉性・非干渉性散乱成分を分離したものである。軽水素由来の非干渉性散乱成分を分離することに成功した。偏極中性子ビームは試料中の多重散乱によってスピンフリップ確率が変わるため、中性子ビームのエネルギーおよび散乱角依存性を Geant4 から評価したフリップ確率を用いている。本測定は長時間測定を行っており、偏極子の ^3He スピン偏極率は時間減衰するため補正後にマージすることを進めている。H₂O においても非干渉性散乱成分を分離した静的構造因子が得られることを確認しており、従来の NOVA 解析用パッケージへの実装を進めている。

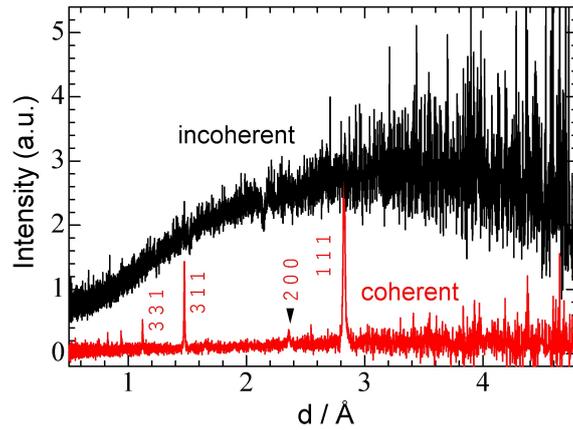


図 4. NaH における偏極中性子散乱プロファイル.

短時間測定 (10 分測定) によるデータであり、干渉性・非干渉性散乱成分をそれぞれ赤線、黒線で示す。

MLF の施設トラブルのため十分なビームタイムが確保できず平均年 1 回の実験数となってしまったが、着実に進捗を積み重ねられたところは幸いであった。

(完)

発表論文

- 1) T. Honda, H. Ohshita, K. Ikeda, T. Otomo, "Status of the High Intensity Total Diffractometer (BL21, NOVA)", MLF Annual Report **2022**, 114-115 (2024).
- 2) S. Takada, M. Fujita, Y. Goto, T. Honda, K. Ikeda, Y. Ikeda, T. Ino, K. Kaneko, R. Kobayashi, M. Okawara, T. Oku, T. Okudaira, T. Otomo, S. Takahashi, "Study of Magnetic Environment for Neutron Spin Filters Using Polarized ^3He at J-PARC and JRR-3", JPS Conf. Proc. **41**, 011005 (2024).
- 3) 本田孝志, "高強度全散乱装置 NOVA における現状と将来" (招待講演), 2022 年度 液体・非晶質研究会, ハイブリッド, 2023 年 3 月 16 日.

引用文献

- 1) T. Okudaira *et al.*, Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A **977**, 164301 (2020).