

科学研究費補助金（学術創成研究費）公表用資料
〔研究進捗評価用〕

平成19年度採択分

平成22年4月27日現在

研究課題名（和文）**強力パルス中性子源を活用した
超高圧物質科学の開拓**
研究課題名（英文）Material sciences at ultra-high pressure
using the strongest spallation neutron source
研究代表者
氏名 鍵 裕之 (KAGI HIROYUKI)
所属研究機関・部局・職 東京大学・大学院理学系研究科・教授



推薦の観点：創造的・革新的・学際的学問領域を創成する研究

研究の概要：J-PARCに建設されたパルス中性子源を利用し、これまで到達することができなかった高圧力条件下で中性子回折を測定する技術を開発し、地球・惑星内部の超高圧極限条件における、水素を基調とした物質科学を飛躍的に発展させる。

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学、岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：水素、水、高圧、中性子、地球、惑星

1. 研究開始当初の背景

高圧高温環境は新物質創成の場として重要であり、また新しい物性発現の場としても注目されている。このような極端圧力条件下での物性の解明は、さまざまなその場観察測定技術の進歩と共に発展してきた。特に最近10年は、第3世代の放射光施設における強力X線を用いた実験を中心として、めざましい進展が見られている。一方、宇宙で最も存在度が高い元素で、地球・惑星内部構成物質の物性にも大きな影響を与える水素は、X線との相互作用は極めて小さく、物質中の水素原子の位置は中性子回折によって決定しなければいけない。しかし、従来の中性子線源の強度では試料体積に限られる高圧実験への適用が難しかった。2008年にビーム供用が開始されるJ-PARCにおけるパルス中性子線源を有効に利用することで、新たな研究のパラダイムが創成され、これから10年の高圧物性科学研究の進展に大きな役割を果たすと期待される。

2. 研究の目的

本研究計画では、超高圧条件下での中性子回折実験を実現するための研究基盤技術を開発し、茨城県東海村に建設されるJ-PARCのパルス中性子実験施設において、高圧下での中性子散乱その場観察を行い、地球や惑星内部の超高圧極限条件における、水素を基調とした物質科学を飛躍的に発展させることを目的としている。

3. 研究の方法

上記の研究目的を達成するために、三種の独自の実験技術を新たに創り出す。つまり(1)日本発の新材料である、ナノ多結晶ダイヤモンド(NPD)を用いた新しい対向アンビルセル装置を開発して、大容積(1mm³)の試料を30 GPa以上に加圧することを可能にせしめ、(2)新しい中性子光学系(ミラー)によって断面積1mm²以下にまで高度に集光されたパルス中性子ビームを、加圧された試料に対して照射することで、質の高い中性子回折パターンを得る。さらに(3)これと同一の試料に対して放射光X線回折およびラマン散乱を同時に行って、多角的に物質を理解する。

4. これまでの成果

(1) NPDのレーザー加工法の開発

NPDは、日本発の新材料で、高温高圧下でグラファイトからの直接変換によって得られるナノメートルオーダーの微小なダイヤモンド粒子の焼結体である。微小な結晶がランダムに焼結した多結晶体であるため、劈開がなく、単結晶ダイヤモンドと比較して飛躍的に高い硬度を持つことが知られている。しかし、高強度という特性が、NPDの加工を困難にしていた。NPDを用いた高圧発生セルを作成するためには、曲面を含んだ複雑な三次元加工が求められる。我々は最適なレーザー加工条件を見出すことに成功し、現在では曲面を含むほぼ自由な形状にNPDを加工することを可能とした(Okuchi et al., 2009:図1参照)。このような複雑な加工を行うことが

できるのは、世界で我々のグループのみであり、学術創成の研究期間に世界の研究グループからのリードをさらに広げたい。

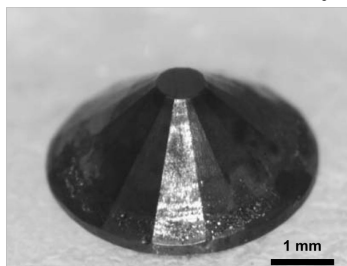


図 1 レーザー加工によって得られた NPD アンビル

(2) 中性子回折用高压装置の開発

前述したレーザー加工で形状を最適化した後に、表面の精密研磨作業を施すことで実際の高圧実験に用いる NPD アンビルを作製した。テーバー状の底面形状をとることによって、アンビルのサポートが強化され、NPD の高い強度性能を引き出して高圧実験を実現することが可能となった。先端径 1.25 mm の NPD アンビルを用いて、現在のところ約 14GPa の圧力を発生することが可能である。また、NPD アンビルセルの開発と並行して、手のひらに載る小型キュービックアンビル高圧発生装置の開発を進めている。主として低温高圧下での中性子回折実験に活用しており、氷の高圧相の秩序化過程などに関する実験結果を予察的に得ている。

(3) 中性子オプティクス開発

本研究計画における一つの柱が、高压装置に特化した中性子光学系の設計と開発である。試料サイズが高々ミリメートルオーダーの試料に対して、効率よく中性子を集光し、なおかつ解析に必要な装置分解能を維持することが求められる。2 年間の研究の結果、楕円曲面をもつ長さ 11 m 超のスーパーミラーガイドが最適なミラー形状であることが明らかになった。スーパーミラーガイドは既に製作が終了し、21 年度末に J-PARC に納入され、間もなくビームラインに据え付けられる。

(4) 種々の分光学的測定

中性子関連の研究と並行して振動分光法を用いた研究も遂行した。例えばスペクトルの微小な周波数変化を高精度で測定可能な、極めて優れた安定性を誇るラマン分光装置の開発がその一例である (Odake et al. 2008)。また、我々のグループで、中性子回折によって生成過程を追跡していた氷 XI 相の赤外吸収スペクトルの観測にも成功した (Arakawa et al., 2009)。氷 XI 相は外惑星を中心とした宇宙空間に存在することが予測されてい

る。この成果は、中性子回折で得られた実験結果が、将来の赤外天文学的な観測につながることを指摘した画期的なものである。

5. 今後の計画

今後は、日に日にビーム強度が増強されていく J-PARC の中性子源を用いて、今後達成されるであろう超高压条件において、中性子回折実験を行うことを何よりも最優先して進めていきたい。そのために、特にナノ多結晶ダイヤモンドを用いた高压セルで、試料体積をできるだけ確保しながら高压状態を作り出すためのセル開発、具体的にはガスケットの材質と形状の最適化を 22 年度の中盤までには完了させる予定である。

地球深部に存在しうる含水鉱物、惑星内部に存在しうる高压氷、資源や気候変動のキーを握るメタンハイドレートなどを研究対象として、人類未到の高圧条件での研究を展開していく予定である。

6. これまでの発表論文等 (受賞等も含む)

(1) 奥地拓生、佐々木重雄、大野祥希、小松一生、鍵裕之、有馬寛、阿部淳、服部高典、佐野亜沙美、長壁豊隆 ほか 5 名 (2010) 大型ナノ多結晶ダイヤモンド対向アンビルを用いた高压下パルス中性子粉末回折実験. *高圧力の科学と技術*, 20 巻, 印刷中.

(2) Ohfuji H., Okuchi T., Odake S., Kagi H., Sumiya H. and Irifune T. (2010) Micro-/nanostructural investigation of laser-cut surfaces of single- and polycrystalline diamonds. *Diamond and Related Materials*, *in press*.

(3) Arima H., Komatsu K., Ikeda K., Hirota K. and Kagi H. (2009) Designing an elliptical supermirror guide for the material science beamline of J-PARC. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, **600**, 71-74.

(4) Okuchi T., Ohfuji H., Odake S., Kagi H., Nagatomo S., Sugata M. and Sumiya H. (2009) Laser micromachining of the super-hard nano-polycrystalline diamond. *Applied Physics A: Mat. Sci. Process*, **96**, 833-842.

(5) Arakawa M., Kagi H. and Fukazawa H. (2009) Laboratory measurements of infrared absorption spectra of hydrogen-ordered ice: a step to the exploration of ice XI in space. *Astrophysical Journal Supplement Series*, **184**, 361-365.

(6) 鍵裕之 鉱物学会賞 (2009.9)

ホームページ等:

<http://www.eqhem.s.u-tokyo.ac.jp>