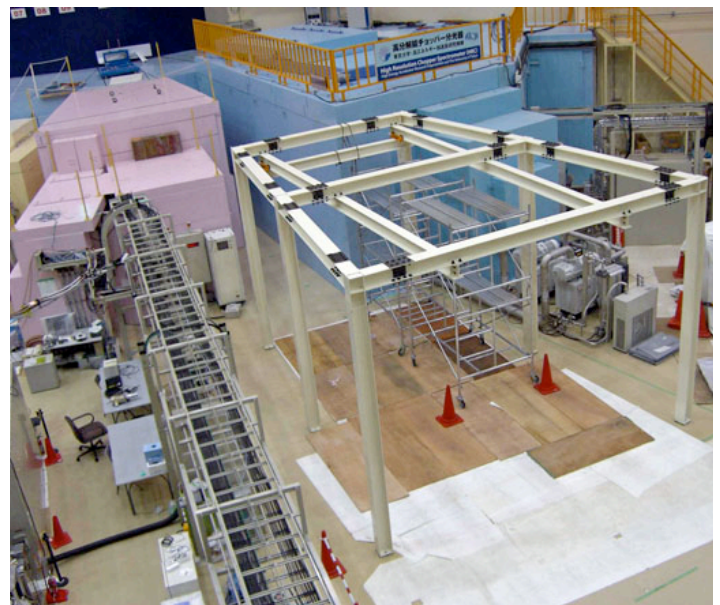
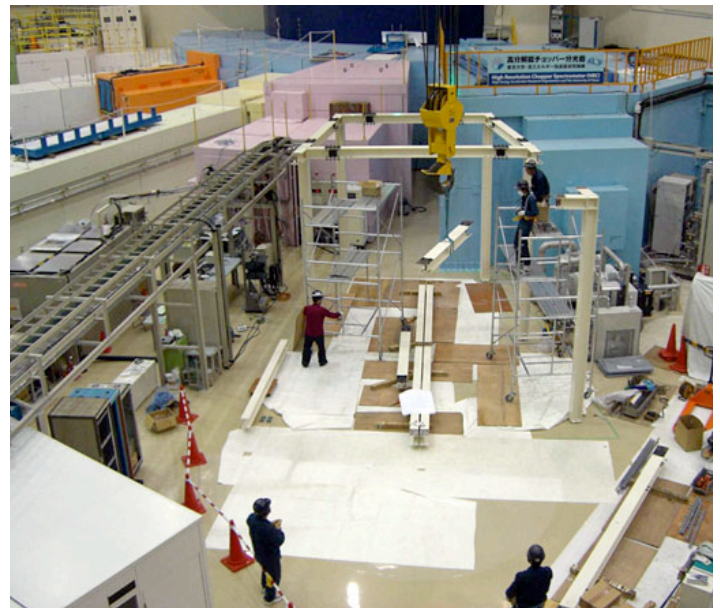




科学研究費補助金「新学術領域研究」
高温高压中性子実験で拓く地球の物質科学

目次

■ 巻頭言	領域代表者：八木健彦	2
■ 「匠」を使った予備実験報告 1		3
■ 「匠」を使った予備実験報告 2		4
■ 高压中性子BLアドバイザーミーティング報告		6
■ テクニカルミーティング、新学術領域研究総括班 +学術創成研究コアメンバー会議報告		
	永井隆哉 (北大)	8
■ ビームライン建設状況報告	服部高典 (原研)	9
■ 各研究班からの予備実験報告		
・ 含水鉱物班	深澤裕 (原研)	11
・ マグマ班	山田明寛 (愛媛大)	12
・ 液体班	片山芳則 (原研)	13
・ 計算班	池田隆司 (原研)	14





巻頭言



領域代表： 東京大学物性研究所・八木健彦

新学術領域研究「高温高压中性子実験で拓く地球の物質科学」のニュースレター第2号をお届けします。第1号を皆さんにお配りしてから早くも約半年が過ぎました。本計画ではまず、高压中性子実験用のビームラインを全く新たにJ-PARCに建設するところから始めますので、まだまだ研究成果と言えるものは出ていません。しかし新たな研究分野の確立に向け着実な前進をしていますので、その様子をこの冊子を通してご理解いただければと思います。

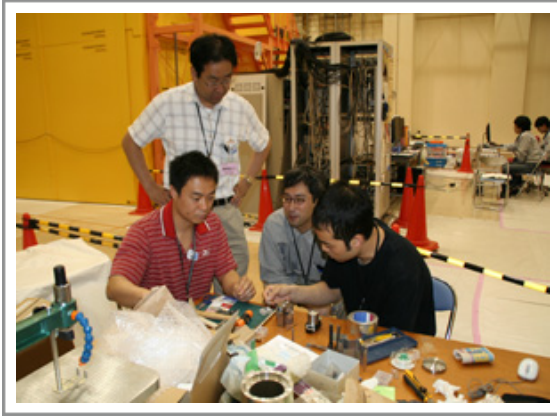
昨年11月に、本研究計画の採択が決定してからほぼ1年が過ぎました。それからまず初年度の交付申請書をまとめ、キックオフミーティングを開き、新ビームラインの設計に関する相談を繰り返し、2年度の計画立案をしてまた交付申請書を作り、アドバイザリーミーティングを開催し、・・・と、嵐のような1年でした。そして今月に入り、ついにJ-PARCのフロアに新しいビームラインの建設が始まっています。ここまでこぎ着けることができたのは、総括班研究支援担当の内海さんや服部さんを中心とした東海グループの超人的な働きのおかげです。新しいビームラインの基本概念などはもちろん皆の議論を元にして作り上げたものですが、それらを実際建設するには、さらに大変な仕事があります。まず中性子ビームの強度や発散、散乱の様子などについてさまざまなシミュレーションを行い、それらの結果をもとに設計図を描き、国際入札にかけられるような仕様書を作成する、といった、普段の研究とは全く異なったさまざまな作業をこなさなければいけません。ほとんどのメンバーは中性子に関してははずぶの素人だったわけですが、原研関係者などに助けられながら短期間に何とかこれらの作業も無事こなしてしまったようです。これもこの研究組織に若手の強力な人材が多いことの強みかと思えます。

本文中にあるように、J-PARCにすでに完成しているビームライン「匠」を使っただけの予備実験の結果は、今後の展開に希望を持たせるものでした。この先もまだ、本計画の研究成果が出てくるまでの道のりは決して平坦ではないと思いますが、われわれの新ビームライン PLANETの建設とそれを使ったサイエンスの展開に向けて、メンバー一同でがんばっていきたいと思っています。関係する皆さまの一層のご理解とご協力をお願いします。



「匠」を使った予備実験報告 1 (2009年6月7日、10-11日実験)

2009年6月7日、10-11日にJ-PARCの「匠」を使った予備実験を行いました。今回の実験では、このビームライン用に新たに開発した中性子集光ミラーの性能評価と、各種の高圧発生装置を効率よく遮蔽してバックグラウンドを減らすための遮蔽体の試験などを行いました。



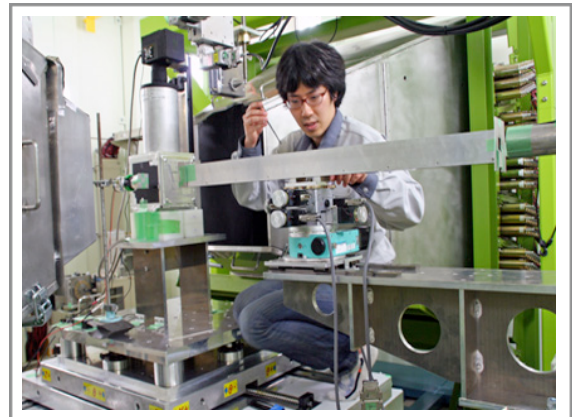
佐々木さんが設計した中性子散乱用DACに、試験測定用の鉛試料を詰めている小松さん。まわりは服部さん、井上さん、奥地さん。



服部さん、佐野さんによる、検出器用カドミウム遮蔽体の準備作業。



「カドミウム遮蔽体をビームラインに運んでいます。」



有馬さんが設計した中性子集光ミラーの設置調整風景。



中性子集光ミラーの性能評価の結果を議論しています。
左から佐々木さん、有馬さん、佐野さん、井上さん、服部さん、小松さん。



最終日の深夜に、最後の測定用装置を設置した後に撮影。
おかしくなっている人もいますが気にしないでください。
後列中央に宗像さん。



J-PARC物質・生命科学実験施設(MLF)では2009年11月10日より100 kW以上での安定したビーム供給が開始されました。これにより英国ISISと比較して遜色のない中性子実験がついに国内で可能になったといえます。今回、万全な実験準備のもと大強度の中性子を活用することにより、PLANETの輝ける未来を確信できるデータが取れたことをここにご報告します。

我々は、PLANETでの実験に先立ち、すでに稼動をしているJ-PARCのビームライン (BL19工業材料回折装置:「匠」)を利用して、高圧下での中性子回折実験に向けた種々の開発を進めています(プロジェクト課題名: Development of high pressure devices for neutron powder diffraction study)。平成21年11月のビームタイムにおいて、今後の展開につながる大きな成果が得られました。実験ハイライトとして次の3つをご紹介します。(1) パリ・エジンバラプレスならびにパームキュービックアンビルセルを用いた高圧下でのその場中性子回折実験の成功 (2) ナノ多結晶ダイヤモンド (NPD) アンビルセル中の微小試料(0.8 mm³)の測定 (3) 微小試料測定での集光ミラーによる測定効率の向上。

本格的な高圧研究に向けてはまだまだ解決すべき数多くの問題点がありますが、今後も艱難の道に挑み着実に前進する所存です。

(1) パリ・エジンバラプレスならびにパームキュービックアンビルセルを用いた高圧下でのその場中性子回折実験の成功

パリ・エジンバラプレスならびにパームキュービックアンビルセルを用いて、高圧下でのその場粉末中性子回折実験を行うための各種技術開発を進めています。高圧装置のガスケットやアンビル素材の検討・形状の最適化などを進めるとともに、バックグラウンド軽減化対策のための出射コリメータやradialコリメータの整備・調整などを行いました(図1)。その結果、パリ・エジンバラプレス、パームキュービックアンビルセルともに、BL19「匠」において、高圧下での中性子回折実験が可能になりました。

また、低温冷凍機中にパームキュービックアンビルセルを設置し(図2)、1GPa 60-250 Kの温度圧力条件において氷の中性子粉末回折プロファイルをその場観察することにも成功しました。これは、J-PARCにおける低温高圧下でのその場中性子回折実験の最初の実験であり、PLANETに設置が予定されている大型キュービックアンビル高圧装置を用いた中性子回折実験の実現にむけて、大きく前進したと言えます。また、高圧下での氷の未知相の発見への期待も高まっています。

(2) ナノ多結晶ダイヤモンドを使った対向型アンビルセルでの測定

愛媛大学で開発されたNPDを用いた大容量対向アンビルセルに鉛試料を封入し、約1GPaにまで加圧した状態での測定を行いました(図3、4)。試料体積0.7 mm³という中性子回折実験の常識からすると非常に微小な試料について、強度は非常に弱いものの、初めて回折パターンの測定に成功しました。NPDを用いることにより中性子実験における未到達圧力領域での測定に期待がもたれます。

(3) 集光ミラー

高圧実験用に開発したスーパーミラー集光デバイスの性能評価を行い、設計時のシミュレーション通り中性子強度が1.4倍になることを実証しました。また微小な試料にビームを集めることでバックグラウンドを低減することに成功しました。(図5)



図1. パームキュービック装置を用いた測定の様子。
左側にはradialコリメータ、右側には出射コリメータが付いている。



図2. 冷凍機の位置調整の様子。
冷凍機の下流側に置かれた中性子カメラを用いて、試料部を観察しながら位置調整を行う。

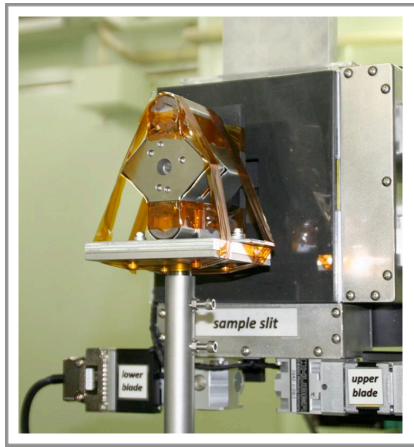


図3. NPD-DACを用いた測定の様子。NPD-DAC中の鉛は約1GPaに加圧されており、加圧軸方向に中性子は入射される。

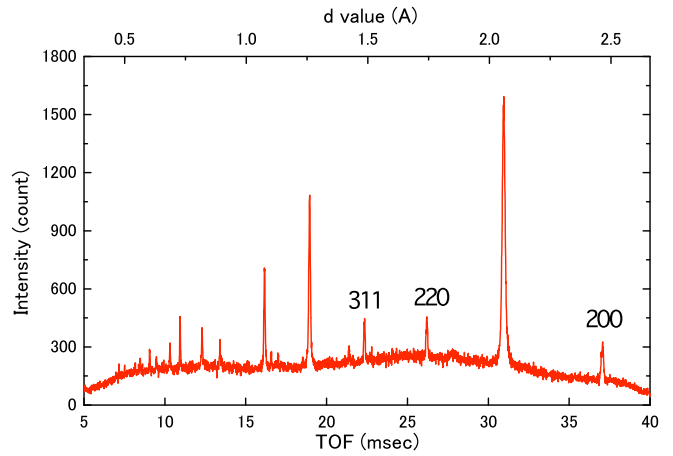


図4. NPD大容量対向アンビルセルを用いて測定された鉛の中性子回折パターン。微小試料の鉛からのピークが観測されている。

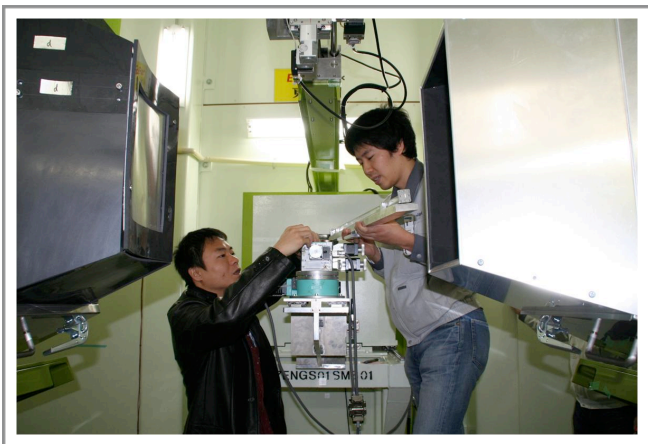


図5. 集光デバイスを設置する服部さんと有馬さん。



高圧中性子BLアドバイザーミーティング報告

7月25日(土)～26日(日)にかけて、高圧中性子BLアドバイザーミーティングが水戸のHOTEL SEASONで開かれました。この会議の目的は、高圧中性子BLについて経験豊富な海外のアドバイザー委員（John Parise (SUNY), John Loveday (U. Edinburgh), Stefan Klotz (U. P&M Curie, Paris), Chris Tulk (SNS), Yusheng Zhao (Los Alamos), Malcolm Guthrie (APS) 各博士ら）に、本プロジェクトの方向性についてアドバイスをいただくものです。7月25日(土)の午前中には、J-PARC見学ツアーが行われ、その日の午後には水戸のHOTEL SEASONでミーティングが開催されました。以下がそのプログラムです。

スケジュール

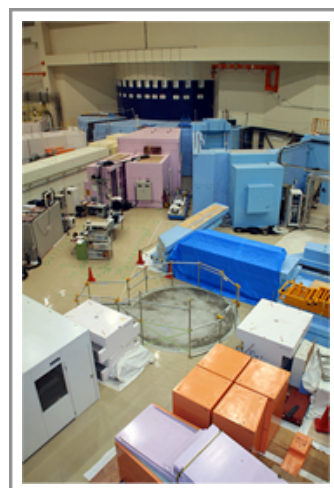
13：00	アドバイザー委員会開催（司会：永井） はじめに（八木）5分 海外パルス中性子施設の高圧BL現状報告（各20分） ISIS：John Loveday SNS：Chris Tulk Los Alamos：Yusheng Zhao
14：30	高圧中性子BLの計画詳細説明 コンセプト、チョッパー、検出器、高圧装置など（服部）50分 ミラー（有馬）20分 ヒメダイヤ高圧装置（鍵）15分 匠での予備実験状況（小松）5分
16：30	総合討論2時間 Qレンジ、分解能、集光、検出器、遮蔽、高圧装置などについて
19：30～	懇親会

その夜には懇親会が開かれ、委員同士の意見交換や歓談が行われました。また、翌日の7月26日(日)にはアドバイザー委員によるレポート作成が行われました。総じて、本研究プロジェクトの方向性については、致命的なミスはないとの意見をいただき、今検討している路線で進めていってよいことが確認されるとともに、有益な意見も多々いただき、非常に今後の参考となりました。尚、参加者は総勢33名にも及びました。

J-PARC見学ツアー・高圧中性子BLアドバイザーミーティング



J-PARC見学風景



J-PARC BL11の現況 (2009. 7. 25現在)



会議の一コマ



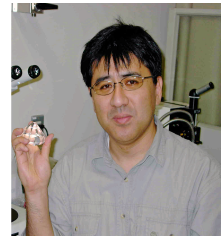
懇親会の一コマ



John Parise博士からの贈り物贈呈



テクニカルミーティング、新学術領域研究総括班 +学術創成研究コアメンバー会議報告



北海道大学大学院理学研究院：永井隆哉

2009年10月29日（木）東京大学理学部化学東館会議室において、本新学術領域研究総括班会議が行われました。会議では、各研究計画班の現状報告と今後の研究方針などと合わせ、 J-PARC全体の状況・PLANET建設に関する本年度予算計画と執行状況・PLANETの建設状況と資材発注状況などについて報告され、議論が行われました。現場メンバーの活躍により、PLANET建設・発注作業は順調に進んでおり、2010年3月にはビームラインの外枠が完成する見込みです。チョッパー・ミラー・検出器の発注作業も進んでおり、来年度はPLANETの中性子光学系の建設がいよいよ本格化します。

また、総括班会議に先立ち、鍵さん（東大理）率いる科研費学術創成研究「強力パルス中性子源を活用した超高压物質科学の開拓」のコアメンバーと愛媛大学 GRCの若手研究者にも参加していただき、PLANETの旗艦である超高压プレスの設計デザイン・プレスや空気散乱などのバックグラウンドを抑えることを目的としたラジアルコリメータの仕様・アンビル素材の開発状況・中性子カメラの現状などについて報告と議論が行われました。超高压プレスについては、2010年度の発注も視野に入れ、最大荷重1500トン・愛媛大学GRCの開発した6-6方式による一段押しをデザインのベースに、担当者を決め、仕様の詳細や中性子用の新規技術開発を進めることになりました。

今後、本新学術研究の屋台骨であるPLANET建設がますます忙しくなってきます。皆さんのなお一層のご協力をよろしくお願いいたします。





ビームライン建設状況報告



(独)日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門：服部高典

ビームライン建設に当たり、建設の障害となっていた床面のピットの埋設及び隣接するビームラインの実験キャビンの移設を年度の前半に行いました。その後、本年度発注予定のコリメータ、チョッパー、スーパーミラーガイド、遮蔽体、検出器に関して、デザインを終えました(図1)。最上流部のコリメータに関しては、7月に製作を終え、ビームラインにインストールを行いました。また、遮蔽体に関して、放射線漏洩計算を終え、現在製作を行っています(図2)。一部の遮蔽体に関しては製作をすでに終え、順次ビームラインへの据付を行っています(図3)。また、チョッパーを初めとするその他の部品は、現在製作中であり、来年度J-PARC実験が休止期間中であるビーム7~9月に順次インストールしていく予定です。検出器に関して、その検出ガスとなる ^3He 同位体が世界的に欠乏しているため、一時はその使用が危ぶまれましたが、苦難の末、必要最低限の本数を確保することができました。一方、本ビームラインの要となる大型高圧プレスに関して、来年度の発注に向けて、全力で仕様の検討を行っています。

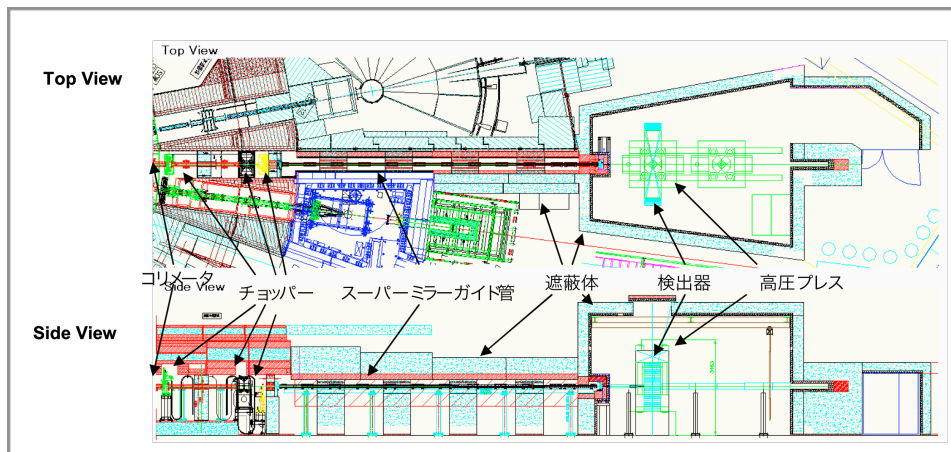


図1 高圧ビームラインPLANETの概略図

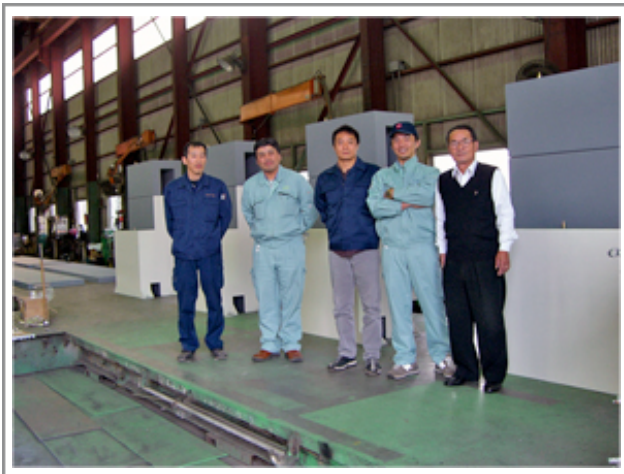


図2 遮蔽体の製作状況

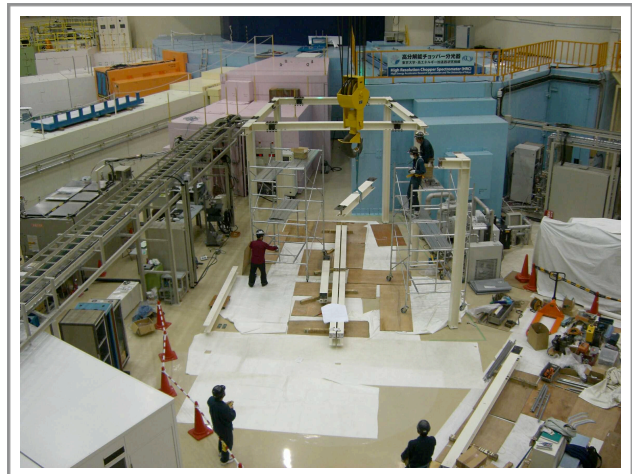


図3 12月から建設が始まったPLANETの現状



いよいよ建設が始まりました。「中性子の素人集団が本当に中性子ビームラインを立てれるのか？」の周り（及び本人）の懸念を見事に裏切り、本年度予定案件を何とか無事完了しようとしております。放射光と中性子の線源の基本的性質の違いや、アメリカ DOEの政策による ^3He の世界的欠乏の予想外の災難（？）に見舞われながらも、放射光徹夜実験で培った不撓不屈の精神でなんとか乗り切っております。いろいろな仕様の決定では、まさにPLANETのごとく惑っておりますが、皆様のご協力のもと本年度は、よいスタートをきることができました。中性子ビームを受け入れ、実験データを見るまでは、まだまだ気が抜けませんが、今後とも皆様のご支援ご協力をどうぞよろしくお願い申し上げます。



図4 BL11建設現場にて



含水鉱物班

(独)日本原子力研究開発機構 量子ビーム応用研究部門：深澤裕



普通の氷は電氣的に中性ですが、強誘電体の氷は静電力をもちます。宇宙で粒子が凝集して惑星が形成される過程において、惑星の元となる塵の中に数 μm 程度の氷が多くできます。もしこれが強誘電体なら、様々なイオンを呼び寄せたり、氷同士が引き寄せあって合体成長したりすることができ、重力のみの力で凝集が起こる場合に比べて、より大きな天体がより早く形成できることとなります。また、同じ理由から、

生命の起源物質が発生する確率も強誘電体氷の上では高くなるかもしれません。このように、宇宙に強誘電体が存在するかどうかは、惑星、生命、物質の形成シナリオに決定的な影響を与える基本的かつ重要な問題です。

私達は、原子力機構の研究用原子炉JRR-3ならびにオークリッジ国立研究所の原子炉HFIRに設置された実験装置を用いて、氷の詳細な構造を明らかにする研究を進めてきました。これまでの研究で、天王星、海王星、冥王星等に相当する低温条件下（約マイナス 200°C ）で、氷結晶中の水分子の水素が自発的に揃うことにより、強誘電性を有する氷

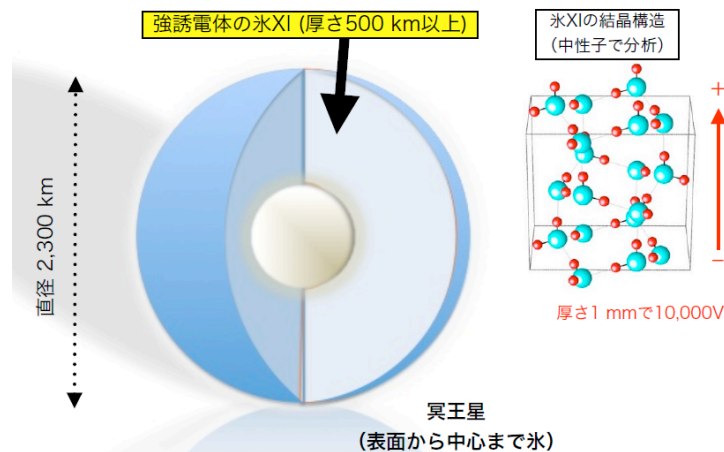


図 冥王星に存在が予測される強誘電体の氷XI

(氷XI) が形成されることを中性子回折実験によって明らかにし、このような強誘電体の氷が宇宙にも存在するとの仮説を提案しています (Fukazawa et al., *Astrophysical Journal* 2006)。また、実験室で氷XIの赤外吸収スペクトルを測定することに成功し、スペクトル中の特定ピークが通常の氷より鋭くなることを発見しました。この事実は、赤外スペクトルから通常の氷と強誘電体氷を識別することが可能であることを意味しており、天体望遠鏡や探査機を用いた赤外スペクトル観測によって、宇宙における強誘電性氷の存在を直接探索する道筋を開くものです (Arakawa et al., *Astrophysical Journal* 2009)。

大強度陽子加速施設 (J-PARC) の施設共用が昨年からは開始され、より強い中性子ビームを用いた研究が始まっています。我々は、J-PARCにおいて、強誘電体氷の生成割合と赤外スペクトル変化の関係の定量化など、さらに踏み込んだ実験を予定しており、実験と観測の双方から宇宙での強誘電体氷の存在を検証する研究が、より進展することが期待されます。



私たちのグループでは、高圧中性子回折実験の本格的な開始に向けて、中性子回折と相補的な実験データを提供してくれる放射光 X線回折を用いて鉱物融体（マグマ）の構造変化を調べています。図 1に NaAlSi₃O₈-H₂O (9.3 wt%)融体のX線回折によって得られた動径分布関数を示します。この組成の融体中には低圧の領域ではSiO₄、AlO₄四面体が基本構造単位として存在しています。これらの四面体構造は圧力とともに5、6配位構造へと徐々に構造変化を起こすことがわかっています。このうち、AlO₄四面体構造はSiO₄四面体構造に比べて比較的低下の領域で構造変化が起こると予想されています。低圧の領域では両多面体中のSi-O、Al-O結合距離は非常に近いので動径分布関数中で両者を区別することができません(図1中、低圧のデータにおけるSi、Al-Oのピーク)。ところが、圧力を上昇させると徐々にAlO₄多面体が高配位数状態へと移ることによりAl-O結合距離が伸び、次第にSi-OのピークとAl-Oのピークが分離されるようになります(図1中、高圧のデータにおけるAl-Oのピーク)。この分離は4GPa付近から明瞭に見られるようになってきていることから、少なくともAlO₄四面体はこの圧力領域(地球内部の深さ約120 km相当)から構造変化を起こしていることが示唆されます。このような局所構造変化に伴い、大きなマグマの物性変化(密度、粘性)が予想され、地球内部におけるマグマのダイナミクスに大きな影響を与えている可能性があります。

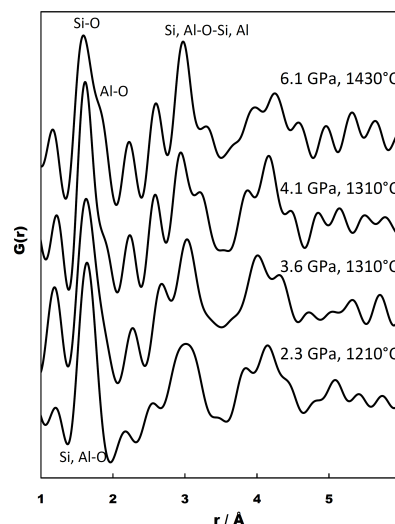


図1、NaAlSi₃O₈-H₂O (9.3 wt%) 融体の動径分布関数G(r)

また、私たちは水を含まないNaAlSi₃O₈融体の高圧X線回折実験も行っており、上で述べたようなSi-O、Al-Oピークの明瞭な分離を高圧下(<5.5 GPa, 1600°C)でも観察することができませんでした。この構造変化における違いはマグマ中の水の役割が重要な鍵を握っている可能性があります。残念ながら今回紹介したX線回折からは水素に関する情報を得ることができませんが、今後本格利用が始まる中性子回折を用いて

調べることで、マグマ中の水の役割について多くの知見がもたらされると期待されます。

また、最近私たちは高圧ビームラインの完成に先駆け、いち早くマグマの高圧中性子回折データを得るべく、これまで中性子回折実験に主として用いられてきたParis-Edinburgh高圧発生装置を用いて珪酸塩融体の高圧X線回折実験をアメリカの第三世代放射光施設 Advanced Photon SourceのSector 16-BMBビームラインで行っています(図2)。現在までのところ、本高圧発生装置を用いて5.5 GPa, 1600°Cまでの条件で珪酸塩融体のX線回折実験を成功させており、本高温高圧発生技術を中性子回折に応用することで、世界に先駆け、珪酸塩融体の高圧中性子回折による構造データを得ようと考えています。

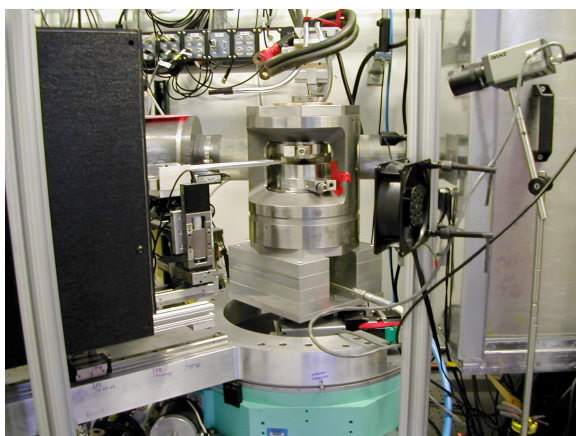
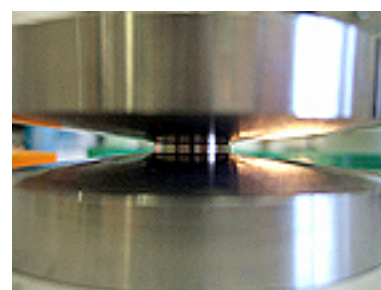


図2、APSのSector 16-BMBビームラインに設置されたParis-Edinburgh高圧発生装置と測定器系



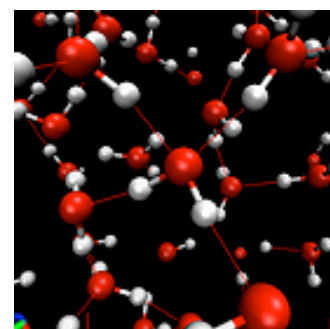
パリエジンバラプレス圧力発生テスト

小型のパリエジンバラプレスを用いた中性子実験では、トロイダルアンビルと金属ガスケット(TiZr)が用いられますが、この組み合わせによる圧力発生に関しては、日本ではまだほとんど経験が蓄積されていません。金属ガスケットの形状の最適化に向けて、圧力発生のテストを SPring-8の放射光を用いて行っています。高エネルギー放射光を用いることによって、厚い金属ガスケットを通して中の圧力マーカー(NaCl)のX線回折測定を行うことができました。荷重と発生圧力の関係から、金属ガスケットの形状の最適化に向けた基礎データが得られています。



放射光X線回折実験による水の構造の圧力変化の解析

液体班の最初のターゲットである水の高圧下の構造については、これまで、放射光を用いた高温高圧下X線回折その場観察実験を SPring-8のキュービック型プレスを用いて行ってきました。常温常圧の水の中では、水素分子が、水素結合によってつながり、4配位のネットワーク構造よく残っています。水の特異な性質、例えば氷より水の方が、密度が高く、4°Cで最も密度が高くなること、他の同じ分子量を持つ分子性液体に比べて、顕著に融点が高いことなどは、この水素結合の存在と関係があります。これまでの X線回折実験から、このような特異な構造が、圧力とともに、急激に単純な液体の構造、すなわち、水分子が密に詰まった構造へと変化していくことが明らかになりました。実験データの解釈のため、経験ポテンシャルを用いた分子動力学シミュレーションも行っています。この2つを比較することによって、X線回折実験と経験ポテンシャルによるシミュレーションの信頼性について議論することができました。この2つに、さらに中性子のデータ加われば、高温高圧での水素結合の変化についてより詳細な情報を得ることが可能となります。





第一原理分子動力学シミュレーションによる、室温から数千 Kに渡る広い温度領域、及び数 GPaから数百 GPaに渡る広い圧力領域における水の相図が既にいくつか報告されています。一例を図 1に示します。シミュレーションから得られた相図には固相と液相（より正確には流体相）の間に高圧下で超イオン伝導相が出現しており注目されています。また、液相においても通常の分子性液体から加圧によりイオン性液体に変化すること、加えて超高温高圧下では金属的になることが予想されており興味を持っています。他のシミュレーションの結果においても固相と分子性液体相の他に、超イオン伝導相、イオン性液体相、金属相が高温高圧下で現れることは共通していますが、それぞれの相の出現する温度圧力領域にかなりの食い違いが見られます。

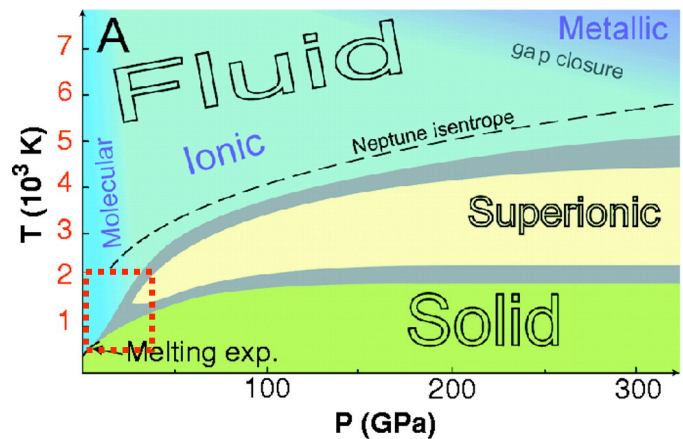
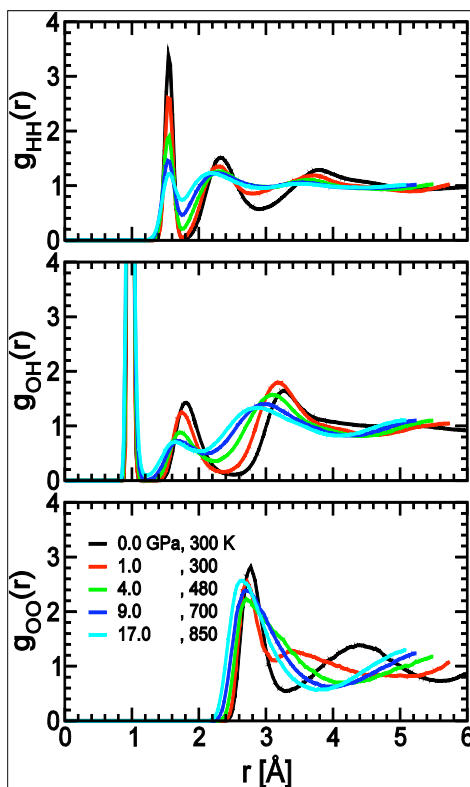


図 1 第一原理分子動力学シミュレーションから得られた水の温度圧力相図(C. Cavazzoni *et al.*, Science **283**, 44 (1999) から引用)

計算班では、対象とする温度圧力領域を右図の赤い点線で囲った領域に絞って、より詳細な構造、ダイナミクス、及び化学的性質の変化を、第一原理分子動力学シミュレーションを用いて調べています。ここでは、常圧から20 GPaくらいまでの比較的低い温度圧力下での分子性液体相について得られた結果の一部を紹介します。



温度・圧力を融解曲線に沿って変化させて得られた動径分布関数を図 2に示します。温度・圧力を常温常圧から融解曲線に沿って変化させていくと、酸素-酸素対の動径分布関数 g_{OO} の第1ピークの位置はほとんど変化せず、第2ピークが第1ピークに近づいていき4 GPa付近で第1ピークと第2ピークが合わさって一つのピークとなることがわかります。4 GPa以上に加圧すると第1ピークの位置が左側に徐々にシフトしていきます。これは常圧から4 GPaくらいまでは加圧により配位数が増大しますが、それ以上の圧力では配位数が既に最密充填に対応するまで増大しているため、一様圧縮に切り替わることを意味すると考えられます。一方、水素結合による酸素-水素対の動径分布関数 g_{OH} の第2ピークが17 GPaにおいても存在しており、高配位数と水素結合ネットワークがどのようにして共存しているか興味を持たれます。水分子の拡散および回転運動を詳細に解析した結果、水分子の回転相関時間が図 3に示したように温度により大きく変化し、850 Kくらいでは常温よりも2桁近く短くなることがわかりました、さらに、高温下では回転相関時間の圧力

図 2 第一原理分子動力学シミュレーションから得られた動径分布関数の温度圧力変化 (T. Ikeda *et al.*, unpublished)

(密度) 依存性が極めて小さくなっています。これは500 K以上の高温領域での回転運動の重要性を示すものと考えられます。今後の液体班による検証が期待されます。

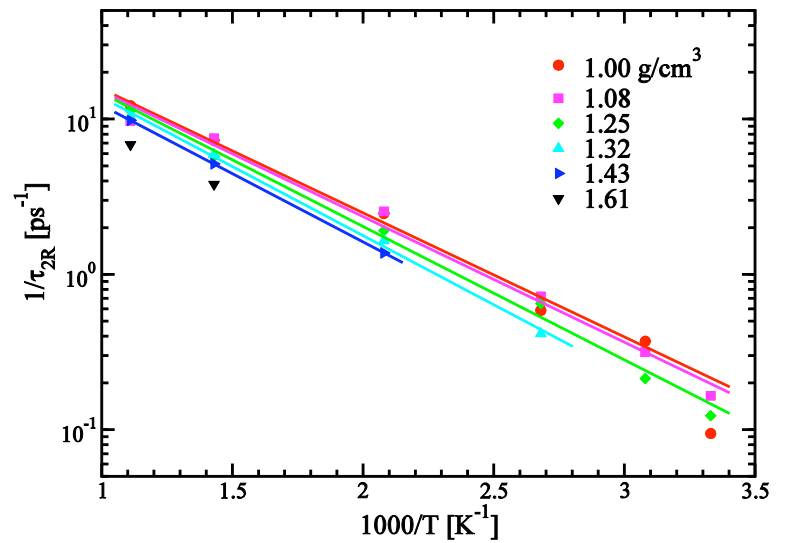


図 3 水分子の回転相関時間 τ_{2R} の温度依存性
(T. Ikeda *et al.*, unpublished)

編集後記

東海組の驚異的な頑張り仕事量により、ビームラインの建設が順調に進められています。また、各研究班での中性子利用に向けた予備実験も着々と進められています。本新学術領域研究のホームページも、随時更新していきますので、是非ご覧ください。

本新学術領域研究のホームページ

<http://yagi.issp.u-tokyo.ac.jp/shingakujutsu/index.html>

(井上 徹)

お問い合わせ：井上 徹 (inoue@sci.ehime-u.ac.jp)

山本 夏水 (yamamoto@issp.u-tokyo.ac.jp)