

# 中性子線を用いた高温高圧その場観察実験用セルの開発

所属 物質設計評価施設 発表者 ○後藤 弘匡

hgotou@iissp.u-tokyo.ac.jp

## 1. はじめに

地球中心核には、硫黄、シリコン、酸素、炭素、水素などの軽元素が溶け込んでいる事が知られている。しかし、これらの軽元素が地球コアにどのくらい溶け込んでいるかは、未だ明らかになっていない。筆者等は、これら軽元素の中でも、特に地球コアの密度や融点降下に及ぼす影響が大きい水素が、地球コアに溶け込む量を明らかにする事を目的とした研究を進めている。先行研究では、高温高圧力下において地球コアの主成分である鉄に水素を溶け込ませ、常温常圧に戻してから回収された鉄中に含まれる水素量の測定を行っている。しかし、高温高圧下で鉄中に溶け込んだ水素は脱圧過程で抜けてしまうため、回収した鉄中に含まれていた水素量を基に、高温高圧状態で鉄に溶け込んでいる水素量を推定するのは容易ではない。一方、X線では水素を検出できないため、放射光を用いたその場観察実験では直接的に鉄水素化物中の水素量を測定する事はできない。

ところで最近、東海村にある「中性子実験施設 J-PARC」に高温高圧その場観察実験用の新しいビームライン「PLANET」が建設された。PLANETでは、高強度のパルス中性子線を利用して高温高圧状態の微小な試料からでも中性子回折パターンを得る事ができる。更に、中性子線を使えば水素を検出する事ができる。そこで我々は、まず高温高圧力下で鉄水素化物を合成した後、圧力を保持したままこの鉄水素化物に中性子線を当てて、鉄水素化物の中性子回折パターンを取得する事により、直接的に鉄中に含まれる水素の定量を行う計画を進めている。しかし、我々がこの実験を行う際には、幾つかの問題がある。

現在、PLANETで標準的に使用されている圧媒体は、アンビルの先端長さに対するオーバーサイズが非常に大きいため、圧媒体の加圧中における変形も大きくなる。加圧中に圧媒体は潰されてアンビルの隙間(12カ所)へ流れ出すが、これらの隙間に流れ出す量は均等ではないため、圧媒体の変形も不均一になる。流れ出し量が大きくなればなるほど、圧媒体の変形の不均一度も増大する。この結果、試料位置が圧媒体の中心からずれてしまうので、試料が外へ吹き出す、いわゆるブローアウトが生じる危険性が高くなる。

本開発の目的は、本番の中性子実験に先立ち、まずは圧媒体が均一に変形し、かつ、高圧力下で1500°C程度以上の高温を安定に発生させる事ができる新しい高温高圧実験用セルの開発を行う事である。

## 2. 実験方法

全ての開発実験は、東大物性研に設置されているCAPRICORN500ton油圧プレスを用いて行われた。アンビルはWC製とし、PLANETでの実験を想定してトランケーションの大きさは10mmとした。圧媒体のアンビルの隙間への流れ出しを抑えて変形を最小限にするために、アンビルの隙間にあらかじめプレガセットを貼り付けた。なおプレガセットを付ける事によってアンビルギャップを広くする効果が見込めるため、本番の中性子実験でも回折線強度を稼ぐ事ができると期待される。圧媒体キューブの材質は $ZrO_2$ とし、一辺の長さは14mmと15mmの2種類を用意した。比較のためPLANETで標準的に使われている一辺の長さが17mmのセル(プレガセットは付けない)も準備した。圧力較正は、圧媒体中心に入れたBiの電気抵抗変化を疑似四端子法で測定しながら加圧し、Biの圧力誘起相転移点(I→

11:2. 55GPa)を観察する事によって行った。加熱を行う際には、グラファイト製の円筒形ヒーターに電流を流して、ヒーターを抵抗発熱させた。温度は、R熱電対をヒーターの極近傍に通して測定した。

### 3. 変形実験結果

あらかじめ3mm間隔で格子模様を描いておいた圧媒体に対して室温で約3GPaまで圧力を加えた後、圧媒体を回収して変形の様子を観察した。図1に、回収した圧媒体の断面写真を示す。図1(c)の17mm圧媒体+プレガスケット無し(以下では17mmセルと呼ぶ)のセルは変形が大きく、試料位置も中心からずれており、不均一な変形をしている事が分かる。それに対して、(a)14mm圧媒体+プレガスケット付、及び(b)15mm圧媒体+プレガスケット付セル(以下ではそれぞれ14mmセル、15mmセルと呼ぶ)は、変形が小さく均一で、かつ、試料位置も中心からほぼ動いていない事が分かる。次にそれぞれのセルの圧力発生効率の比較を行った。その結果を図2に示す。図2より、14mmセルよりも15mmセルの方が圧力の発生効率は良い事が分かる。14mmセルの圧力発生効率が極端に悪い理由は、プレガスケットが大きすぎたために加圧の早い段階で潰れたガスケットがアンビルの隙間を埋めてしまい、その結果試料を押し縮めるためにより高い荷重が必要になってしまったから、と考えられる。次に回収したセルの

ヒレの厚さ(アンビルギャップに相当する)を調べたがほとんど差は無く、15mmセルの方が14mmセルより0.25mm厚かった程度である。

以上の結果から、セルの変形が均一で試料位置が中心に止まり、圧力発生効率が良く、かつ、ヒレの厚さが厚い15mmセルが、我々の目的とする中性子実験には最適であると判断できる。そこで以下では、15mmセルにヒーターを組み込んで実際に加熱試験を行い、安定して高温高圧を発生できるかどうかを試した。

### 4. 加熱試験結果

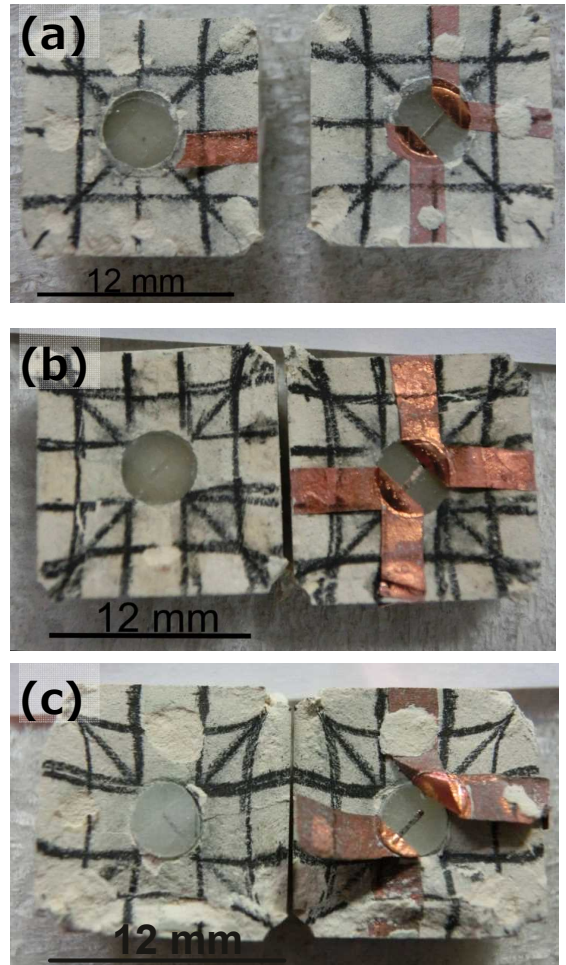


図1: 変形実験後に回収したセルの断面写真。

(a)14mmセル+プレガスケット付、(b)15mmセル+プレガスケット付、(c)17mmセル+プレガスケット無。

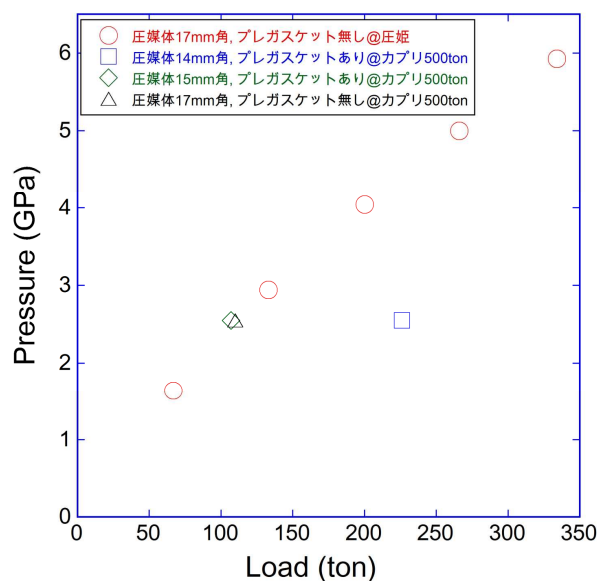


図2: 圧力発生効率の比較。

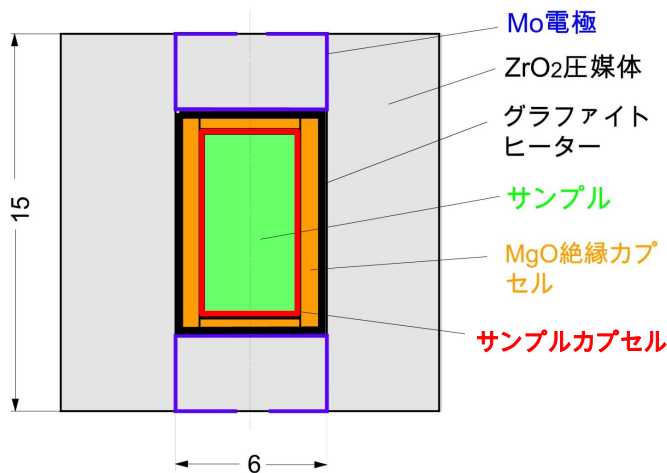


図3:セルアセンブリ。

セルアセンブリは、数種類ほど作って試したが、必要なサンプル体積、変形挙動、ヒーターの安定度などの条件を勘案し

て最終的には図3の様な形に落ち着いた。ヒーターの外径はφ5.9mm、内径は5.3mm、高さは8mm、サンプルの大きさは、直径3mm、高さ6mmである。試料は、Fe(粉末)、SiO<sub>2</sub>、および、Mg(OH)<sub>2</sub>の混合物(モル比で2:1:1)とした。加熱実験では、まず試料を室温で5GPaまで加圧した後にヒーターに電流を流して加熱し、試料中心付近が1500°Cになるまで温度を上げた。その後、試料を急冷して一気圧まで減圧してから試料を回収した。図4に加熱実験を行った時の投入電力と発生温度の関係を示す。図4より、およそ500Wまでは投入電力に対して比例して温度が上がっており、目標とする1500°C前後の温度は余裕をもって発生できている事がわかる。

図5に回収した試料の断面写真を示す。写真から、5GPa-1500°C程度の温度・圧力条件で試料が全熔融し、水素を吸収した鉄の粉末が凝集して鉄水素化物の球となってサンプルカプセルの底に沈んだ事が分かる。通常、セルのオーバーサイズが大きいとヒーターが鼓状に変形し、温度の安定度も良くない。しかし、今回のセルの様にオーバーサイズを抑えてプレガスガasketを付ける事によって、ヒーターやサンプルカプセルが綺麗に変形し、試料位置もセルの中心から動かない事が分かる。加熱も極めて安定していたので、このセルではブローアウトが生じる危険性が低いと考えられる。以上より、今回開発したセルを使用すれば、中性子実験施設において安全確実に実験が可能であると考えられる。

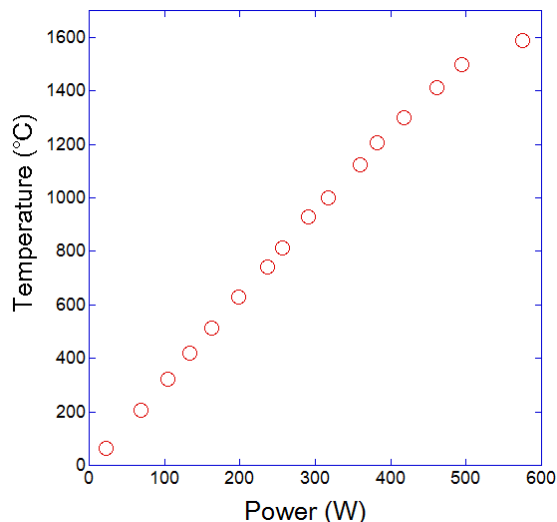


図4:投入電力と発生温度の関係。

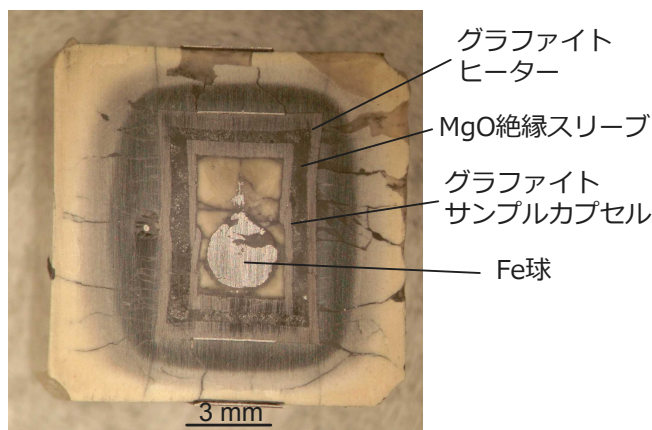


図5:回収試料の断面。

## 5. まとめ

J-PARCのPLANETにおいて、我々の目的とする高温高压その場中性子回折実験を安全に行うための新しい高压セルの開発を行い、以下の様な結果を得た。

1. 一辺15mmのZrO<sub>2</sub>製の圧媒体とプレガスケットを用いたセルを使う事によって、試料部周辺が均一に変形する様になり、5GPa-1500°Cの条件で熔融した試料を完全に封止した上で、安定して高温高压力を発生させる事に成功した。
2. 熔融したシリケートと鉄の混合物から大きな球状の鉄の水素化物を合成し、これを回収する事に成功した。