特集 —— 中性子を利用した高圧物性研究の新展開 ——

J-PARC での高圧高温専用ビームラインの
実現に向けて

Introduction of the High Pressure Neutron Diffraction Projects in J-PARC

永井 隆哉^{1,*}Takaya NAGAI^{1,*}有馬 寛²Hiroshi ARIMA²奥地 拓生³Takuo OKUCHI³鍵 裕之⁴Hiroyuki KAGI⁴八木 健彦⁵Takehiko YAGI⁵

It is great exciting news for our high pressure science community in Japan that the first pulsed neutron beams were delivered to J-PARC Materials & Life Science Experimental Facility (MLF) on May 30th, 2008. We believe that the newly dedicated pulsed neutron beams will open a new window in the high-pressure science world. Over the past 7 years, we have prepared some projects to build a high pressure and high temperature material science beamline in the MLF. In this article, we will give a brief overview of the progress of those projects and also introduce a newly designed high-pressure cell and a neutron focusing mirror for *in-situ* neutron diffraction experiments at high pressure and high temperature.

[pulsed neutron, high pressure and high temperature material science beamline, J-PARC, MLF, neutron focusing mirror]

1. はじめに

2008年5月30日、J-PARC物質・生命科学実験施設(MLF)でパルス中性子のファーストビームの発生に成功したというニュースを耳にしたのは、筆者らが科学研究費補助金新学術領域研究公募の締め切りを前に、この新しいパルス中性子源を使った

高圧高温物質科学研究を実現させるという申請書の最終的な推敲を重ねていたときであった。

新しい中性子源が高圧力科学の新たな進展に大きな役割を果たし、中性子というプローブを利用してこそ見えてくる高圧力科学の新しい世界への扉を開いてくれることは、放射光X線が最近四半世紀の高圧力科学の目覚ましい発展にいかにかに寄与したかを総

¹ 〒060-0810 札幌市北区北10条西8丁目 北海道大学大学院理学研究院 自然史科学部門
Department of Natural History Sciences, Hokkaido University, N10W8 Kita-ku, Sapporo, Hokkaido 060-0810

² 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4 日本原子力研究開発機構 J-PARC センター 中性子利用セクション
J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency, 2-4 Shirakata-Shirane, Tokai, Ibaraki 319-1195

³ 〒682-0193 鳥取県東伯郡三朝町山田827 岡山大学地球物質科学研究センター
Institute for Study of the Earth's Interior, Okayama University, 827 Yamada, Misasa, Tottori 682-0193

⁴ 〒113-0033 東京都文京区本郷7-3-1 東京大学大学院理学系研究科 地殻化学実験施設
Geochemical Laboratory, The University of Tokyo, 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-0033

⁵ 〒277-8581 千葉県柏市柏の葉5-1-5 東京大学物性研究所
The Institute for Solid State Physics, The University of Tokyo, 5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-8581

*Electronic address: nagai@mail.sci.hokudai.ac.jp

括すれば明らかであると思われる。筆者らは 2002 年度の J-PARC 中性子実験装置提案に高温高压物質科学ステーションを提案して以来、日本の高圧力科学、中性子科学、鉱物科学分野の多くの研究者の方々に協力を仰ぎ、この新しい中性子施設に高温高压下での回折実験ができる専用のビームラインを建設すべく活動してきた。しかしそのためには、日本の科学技術行政の方針により競争的資金の獲得が必須である。そこで筆者らは綿密な準備を行い、「J-PARC の高压実験用ビームライン建設+15 GPa までの汎用高温高压実験装置の建設」という高压中性子研究の基盤の整備を含む科研費新学術領域研究（代表：八木健彦）と、「50 GPa 領域での実験をめざした新しい高压装置の開発+それに不可欠な新しい中性子集光光学系の開発」という最先端の高压中性子研究の開拓を含む科研費学術創成研究（代表：鍵裕之）を提案した。幸運にも、平成 19 年度に学術創成研究が採択され、つい先日、姫路で行われた第 49 回高压討論会の期間中に新学術領域研究採択の第一報が飛び込んできた。これにより今後約 4 年をかけて両プロジェクトが互いに協力し、高压中性子科学という新しい世界を切り拓いていくことが現実のものとなった。本稿では、新学術領域研究プロジェクトの概略と、昨年度、一足先に採択された学術創成研究で進められている新しい中性子集光光学系開発の途中経過を報告したい。

2. 新学術領域研究プロジェクト

本プロジェクト「高温高压中性子実験で拓く地球の物質科学」は、地球内部の諸現象において大きな役割を果たすにも関わらずまだその物質科学の実態がほとんど解明されていない、水を含む地球深部物

質の高温高压下の研究を、中性子を使って飛躍的に発展させることを目的に計画され、これまでの科研費特定領域研究に代わって新設された新学術領域研究に 2008 年度 5 月申請された。Fig. 1 は、本プロジェクトの概念図である。水素は太陽系で最大の存在量を持つ元素であり、地球表層においては水という形で存在する。地球内部にも鉱物中の水酸基や格子欠陥に水素という形で大量に取り込まれていると考えられている。水はケイ酸塩鉱物や鉄に数 wt% 入るだけで、融点を数百℃も低下させたり、粘性を数桁も減少させたりするなど、地球深部を構成する物質の性質を大きく変化させることが知られているが、その原因は物質科学的にはほとんど理解されていない。したがって地球内部の理解を進めるには、これら水の実態を原子レベルで正確に把握することが必要である。しかしながら、水素は最も電子数の少ない元素ゆえに X 線ではほとんど観測できず、含水系地球深部物質の高压下での原子レベルの研究は未発達段階である。一方中性子線は、X 線と同様に物質と相互作用して散乱を起こすが、電子ではなく原子核によって散乱されるために水素の観測が可能である。この中性子のプローブとしての特性を本プロジェクトでは最大限に利用したいと考えている。

本プロジェクトでは、はじめに総括班を中心に J-PARC に完成する世界最強レベルのパルス中性子実験施設に、高温高压下での中性子散乱実験に最適化した、微小試料に集光できるなどの特性を持つビームラインと、上部マントルの圧力温度領域（～15 GPa, ～2,000 K）をカバーする 1,000 トンクラスの大型高温高压実験装置を開発・建設する。パルス中性子施設で行われる回折実験は飛行時間法（TOF）とよばれ、中性子源から出てくる中性子がある散乱角で固定された検出器に到着するまでの時間を計測することにより回折線のエネルギーを分解する。回折幾何学としては入射方向と 90° 方向にアンビルの隙間のある DIA 型の大型高温高压実験装置を導入し、入射方向に対し 90° 方向に散乱された中性子を検出することを計画している。ビームラインが完成した後は、対象を含水鉱物とマグマ、単純な液体に絞り、3 つの実験班と 1 つの計算班で、水を含んだ地球深部物質の物質科学的研究を新たに展開し、地球深部の水に関連する理解を飛躍的に進展させるため、次のように作業を進めることを計画している。

Fig. 1. Schematics showing the new project proposed for constructing the high-pressure beamline at J-PARC.

- (1) 高温高压中性子散乱実験用ビームラインおよび大型高温高压実験装置の設計と製作
- (2) 単純な構造の液体を用いた高压下の中性子散乱実験技術およびその周辺技術の開発
- (3) 計算物理による高压下における含水鉱物、マグマ、水の構造と物性の予測
- (4) 中性子を用いた含水鉱物やマグマの高温高压下における構造や結合状態の研究
- (5) 含水地球深部物質の弾性的性質をはじめとする地球科学の諸問題への応用と展開

3. 学術創成研究プロジェクトによる中性子散乱用超高压セルの開発

本プロジェクトは、これまで技術的困難からデータが取れなかった 30 GPa 以上の圧力領域での中性子散乱測定を実現するために、新学術領域とは独立に計画され、平成 19 年度から 5 年計画でスタートした。物質に圧力がかかると原子がお互いに近づき、物質の構造、物性が大きな変化を起こす。30 GPa の圧力は地球内部でいえば下部マントル（深さ約 1,000 km）に相当する領域となり、地球や惑星の深

部状態を実験室で再現することになる。我々は既にこのような物理条件の下で、強力な放射光 X 線光源を用いて、物質の構造を知る術を持っている。しかし電子数が少ない軽元素を観察することは、X 線を使っている限りは原理的に困難である。宇宙で最も存在度が多く、最も電子が少ない原子である水素は、地球惑星内部では各種の含水珪酸塩鉱物や氷関連物質、金属水素化物中で、その物性の発現によって重要な役割を果たしていると考えられる。だが単に水素が X 線ではほぼ見えないという理由で、その超高压下での振る舞いはあまりよくわかっていない。中性子を使うことで、含水珪酸塩鉱物、水素、氷、メタン、ガスハイドレート、金属水素化物、などの水素を基調とした一連の物質系の高压下での性質を明確に捉えることができるようになるだろう。

このような目的のもとに進められている学術創成研究の中心的な技術課題は、信号強度が放射光 X 線よりも低い中性子散乱を超高压下で可能にするために、大容積化された 1 mm³ の試料を 30 GPa 以上にまで加圧することができる、独自の対向アンビルセルの開発である。その心臓部であるアンビルには、愛媛大学で創り出された HIME ダイヤと称される

Fig. 2. An opposed anvil cell designed for neutron scattering at pressures higher than 30 GPa. Nano-polyerystalline diamonds are used as anvils.

ナノ多結晶ダイヤモンド (NPD) を応用する[1, 2]。NPD は硬度が単結晶ダイヤモンドよりも高いが、単結晶ダイヤモンドに近い可視光透過性があり、ルビー蛍光による圧力測定やレーザー加熱など通常のDAC 実験の手法が、多少の制限はあるものの援用できる。NPD がダイヤモンドアンビルとして使われた場合には、2 Mbar に達する圧力発生[3] や、レーザー加熱[4] も可能である。本プロジェクトでは目的の達成のため、NPD の硬さおよび透明性以外の利点をもさらに活用することを試みている。NPD は単結晶ダイヤモンドよりも大きなサイズで機械的欠陥のない素材が比較的入手しやすい。いまだ開発途上の材料ではあるが、現在のところ直径4~5 mm の均質な多結晶焼結体が再現性良く得られるようになっている。米国カーネギー研究所ではCVD 法によって大きなダイヤモンド単結晶を製作して中性子散乱に用いる計画が進められているが、それに対抗できるサイズのNPD を得ることも、見通しとしては可能になりつつある。このような大きなアンビルを使えば、それだけキュレットの断面積を大きくできるので、試料容積を大きくすることができる。

また、NPD は数十 nm の微結晶がランダムに結合する多結晶材料であって、単結晶ダイヤモンドのようなへき開性や硬度の異方性がない。この利点を活用すれば、単結晶ダイヤモンドよりも、自由度の高い形状のアンビルを設計することができる。たとえば30 GPa の圧力発生の実績があるドリッカマー型アンビルセル[5] を、中性子用に改良して用いれば、必要な容積を加圧できる可能性がある。その際にアンビルの前面だけでなく側面をもサポートすることで、アンビルが破壊に至る圧力をさらに増加させることができるかもしれない。大荷重対向セル用のアンビルへの側面サポートの大きな効果は、例えばモアッサナイトについては既に実証されている[6]。以上を組み合わせることが、我々の対向アンビルセル開発の現段階での基本的アイデアである (Fig. 2)。ドリッカマーアンビルの形状は、単結晶ダイヤモンドアンビルよりも側面の傾斜角度がゆるやかである。このアンビルを単結晶ダイヤモンドで製作すると、(111) 面方向のへき開による破壊が起こることが予想されるのだが、NPD ならばこの破壊を避けられる可能性がある。このような利点を活用して、大容積試料を超高圧に加圧する技術は、中性子散乱実験以外にも、さまざまな波及効果があると予想している。これはNPD 自身の開発が大容積の高圧技術開

発の結晶であることから明らかである。

NPD は以上のような優れた利点を持つ材料であるが、その性能のまさに裏返しとしての欠点もある。それは固すぎて機械加工に著しい時間と労力を必要とすることである。アンビルがつくれなければ実験はできない。そこで我々はプロジェクト発足以降、この課題に本腰を入れて取り組んできた。商業用レーザー加工機を用いたダイヤモンドの精密加工の経験[7] を活かして、ナノ秒近赤外、ナノ秒近紫外、およびフェムト秒近赤外の三種類のパルス光源を用いた試験加工作業を繰り返し、その結果を互いに比較検討した。そして各光源の利点を組み合わせて用いることで、NPD の精密加工が実現できることを示した[8-10]。Fig. 2 に示すアンビルについても、最終的にはまだ研磨作業の助けが必要であるものの、現実的な作業時間およびコストのもとに加工ができるようになり、実験を行うためのアンビルもつくることができた。来年度の早い段階には、このアンビルを使って、J-PARC における最初の高圧中性子散乱実験を実施する予定である。

4. 学術創成研究プロジェクトによる新しい中性子集光光学系の開発

4.1 スーパーミラーによる集光

超高圧下での中性子散乱実験の実現に向けて、高圧発生装置の開発と並んで成功の鍵となるのは中性子集光技術である。我々が想定する超高圧実験における試料体積は約1 mm³ であり、一般的な中性子粉末回折実験で用いられる試料体積と比較して極めて小さい。短時間で測定を行うために、またS/N 比のよいデータを得るためには微少な試料からいかにして効率よく回折強度を得るかが課題となる。

我々は理化学研究所と(株)日本中性子光学の協力のもと、中性子スーパーミラー[11] を用いた集光デバイスの設計を進めている。中性子スーパーミラーは金属の多層膜 (多くはNi/Ti) からなる。多層膜の周期 (膜厚) d を変えながら積層することで、金属の全反射と多層膜によるBragg 反射を利用してミラーの実効的な全反射臨界角を大きくしている。

スーパーミラーの性能はNi ミラーに対する臨界角の比 m と臨界角での反射率で表される。例えば3Q_c スーパーミラーはNi ミラーの3 倍の臨界角をもつ。また3Q_c スーパーミラーでは臨界角での反射率は80-95%程度である。 m 値を大きくすることに

よって入射中性子の分散が大きくなり、また臨界角での反射率が向上する。よって試料位置での中性子強度が増加する。 m 値は金属膜の積層数と界面粗さで決まる。3Q_c で約 500 層、4Q_c で約 1,000 層の積層が必要となる。つまりどれほど平滑な積層を重ねられるかがスーパーミラーの性能を決める。

また集光デバイスの製作においては、どの波長の中性子を集光するのかを検討する必要がある。スーパーミラーの臨界角は波長に比例し、その関係は次式の通りである。

$$\theta_c [\text{rad}] = \frac{m\lambda [\text{\AA}]}{565}. \quad (1)$$

短い波長の中性子ほど“曲がりにくい”。曲がりにくい中性子をできるだけ少ない反射回数でいかに効率よく微小な試料に集めるかが集光デバイスの形状を考える上で課題となる。これまで高圧実験用にテーパー型[12] やマルチチャンネル型[13] が製作されている。

スーパーミラーを用いた集光デバイスの製作における開発要素として我々は次の 3 点に着目し作業を開始した。1. 回転楕円体、回転放物面を活用したデザイン、2. 平滑な蒸着面を実現する曲面切削技術、3. 曲面への多層膜積層技術、である。微小なビーム径を試料位置に実現し、また収差を最小限に抑え、さらには高い反射率を実現するためには回転放物面（または回転楕円面）を表面粗さ 2–3 Å の精度で切り出し、数十ミクロンの Ni/Ti 膜をその基板面に積層することが必要である。その解として ELID（電解インプロセスドレッシング）切削法[14] による基板の作成とイオンビームスパッター法による多層膜の蒸着[15] に着目し研究を進めている。

現在、我々は曲面からなるガイド管型の集光デバイスを設計し、実験目的に応じた最適な形状を検討している段階にある。これまでの成果として J-PARC 物質生命実験施設 (MLF) での高圧中性子回折実験に向けて工学材料回折装置 (BL19・「匠(たくみ)」) へ導入する集光デバイスを製作した。また建設資金獲得に備えて高圧ビームラインの光学系の検討を行ってきた。

以下、匠用集光デバイスの概要と現在想定している高圧ビームラインの TOF 回折装置の性能について述べる。TOF 回折装置一般の詳細な技術的解説については参考文献[16] にあたっていただきたい。

4.2 光学系の設計

集光デバイスやビームラインを設計するにあたってはまず研究課題を検討しなければならない。スーパーミラーの効果によって中性子を集光することは試料位置での入射ビームの分散を大きくすることと同義である。必要以上に集光し入射ビームの分散を大きくすると装置分解能が悪化する。また研究課題によって実験に必要な波長領域は異なる。どのエネルギーの中性子を集光するのか、スーパーミラーの性能、デバイスの形状を含めて検討して必要がある。

学術創成研究プロジェクトでは水素の化学結合状態に着目している。氷や含水鉱物をはじめとする水素化合物において 50 GPa 以上の圧力領域で水素位置を決定することが最大の目標である。水素位置決定のためには d 値が 0.7 Å 以下の領域で少なくとも $\Delta d/d = 0.5\%$ 程度の装置分解能が要求される。水素位置に関連する H-H 結合距離 (≈ 0.3 Å) や O-H 結合距離 (≈ 1.0 Å) を反映する回折線は d 値で 0.7 Å 以下に多数存在し、これら回折線を明瞭に区別しなければならないからである。

新学術領域研究では水素化合物に加えてマグマと液体も研究対象となる。高圧ビームラインに設置する TOF 回折装置はこれら研究対象をカバーできる性能を持たなくてはならない。特に液体の構造解析においては High- Q 領域を含めた広範囲の Q 領域でのデータ測定が望まれる。

研究課題によって必要な分解能、波長領域が決まると次にそれに応じたスーパーミラーの性能と集光デバイスの形状を検討する。TOF 回折装置における装置分解能は次式で表される。

$$\frac{\Delta d}{d} = \sqrt{\left(\frac{\Delta t}{t}\right)^2 + \left(\frac{\Delta L}{L}\right)^2 + \Delta\theta^2 \cot^2 \theta}. \quad (2)$$

(2) 式における第 1 項が飛行時間の誤差、第 2 項が飛行距離の誤差、第 3 項が散乱角の誤差である。集光の効果である試料への入射ビームの分散の増大は第 3 項に寄与する。

既存のビームラインに集光デバイスを導入する場合は (2) 式の第 3 項以外の項を装置の幾何学的配置や MLF における中性子ビームのパルス特性から計算する。そうすると目標とする装置分解能に対して許容される入射ビームの分散が求まる。許容される分散に対して必要なスーパーミラーの性能が決まる。

ビームラインの設計を白紙から考える場合はもう少し事情が複雑になる。飛行時間の誤差（どの減速材を用いるか）、飛行距離の誤差（ L_1 , L_2 をいくつにするか）を含めて目標とする分解能において強度が最適になるよう検討しなければならない。また検出器の位置分解能が第2項と第3項に含まれるのでどのような検出器を採用するかもビームライン設計において重要な検討事項のひとつである。

デバイス形状やビームラインパラメータの最適化は(2)式を用いた解析的な手計算を行った後、モンテカルロ法による光路追跡計算によって詳細な形状を検討するという手順で進めた。一般的に平行光源に対しては放物線、点光源に対しては楕円による反射光学系が最小の反射回数で焦点位置に光を集めるために有効である。しかしながら減速材の表面積、発生する中性子のパルス特性、波長依存性などを考慮して形状を詳細に検討するためには解析的手法だけでは限界がある。

モンテカルロシミュレーションはMcStasプログラム[17]を用いた。McStasはRisø National Laboratoryにおいて開発され、中性子散乱実験における装置シミュレーションを目的として使われている。主な用途として、(1)装置の設計、(2)実験条件の最適化、(3)実験データの解析の3点があげられる。計算では中性子を位置、進行方向、エネルギーなどの状態についてランダムに発生し、装置の設計（ガイド管や検出器、スリット、試料などのパラメータ）に基づき個々の中性子の飛行過程を計算する。任意の位置での中性子の状態を積算することでエネルギープロファイルやTOFプロファイル、ビームプロファイルなどを観察することができる。

4.3 匠用集光ミラー

工学材料回折装置「匠」[18, 19]はMLFのBL19に建設中のTOF粉末回折装置である。残留応力測定や微小領域での粉末回折測定を目的に設計されている。Day-one装置（供用開始時に稼働する装置）のひとつで平成20年度12月からの供用開始にむけて10月末現在、調整が進められている。25 Hz運転における波長幅は $3.51 \text{ \AA}$ で、装置分解能は 90° バンクにおいて高強度モードで $\Delta d/d < 0.4\%$ 、高分解能モードで $\Delta d/d = 0.15\%$ となっている。

匠は我々が指向する高圧実験に適した設備を有する。一つは 90° バンクに設置された検出器、もう一つはゲージ体積を制約するラジアルコリメータである。またガイド管出口から試料位置までに1.5 mの空間があり集光デバイスを設置することが可能とな

Horizontal: linearly tapered

Vertical: Parabolic guide

Fig. 3. Schematic drawing of the focusing device.

Fig. 4. Neutron intensity distributions with and without the focusing device for a wavelength of (a) $0.8 \text{ \AA}$, (b) $1.0 \text{ \AA}$, and (c) $1.8 \text{ \AA}$ at the sample position.

ている。

匠用集光ミラーは (1) $\lambda < 1.0 \text{ \AA}$ の短波長を特に集光すること, (2) 装置分解能を変えないことを目的として設計を行った。Fig. 3 に匠用集光ミラーの概略図を示す。全長 1 m の四面からなる矩形ガイド管形状である。集光ミラーの出口から試料位置までの距離は 25 cm とした。集光は上下面のみで行い、水平方向にはビームの分散を変えないように設計している。装置分解能を低下させないためである。上下面には放物線のカーブを用い、 $4Q_c$ のスーパーミラーを採用した。側面は平面からなり、金属薄膜をコーティングしていないので中性子を反射しない。

放物線のパラメータは匠での最短波長 $0.8 \text{ \AA}$ の強度が $1 \times 1 \text{ mm}^2$ の試料サイズにおいて最大となるよう最適値を決定した。この際、試料位置を放物線の焦点とし、集光デバイス入りの大きさを変化させてシミュレーションを行った。最終的には、試料位置から集光デバイスの入り口を見込む角度と最短波長成分の分散が一致するように入り口の大きさを決定した。

Fig. 4 にモンテカルロシミュレーションで求めた波長ごとの試料位置における強度分布を示す。集光することにより $\lambda = 0.8 \text{ \AA}$ においてビーム中心部分で約 1.8 倍の強度、FWHM は 4.5 mm となる。また $\lambda > 1.8 \text{ \AA}$ においては約 1.4 倍の強度となる。このときビームの垂直方向の分散は $\lambda = 0.8 \text{ \AA}$ で 0.37° から 0.65° に増加し、 $\lambda > 1.8 \text{ \AA}$ では 0.58° から 0.81° に増加した。分散から見積もった立体角の増加分と強度の増加分は一致し、スーパーミラーの性能に対して理想的な集光ができているといえる。また集光ミラーの出口を試料から 15 cm の距離まで近づけることにより、長波長側 $\lambda > 1.8 \text{ \AA}$ での強度は 2 倍以上となる。ただし短波長側の強度は減少するので実験目的に応じて集光ミラーの位置を選択する必要があるであろう。今後、さらなる性能の向上を目指し、先に述べた回転放物面、回転楕円面を用いたミラーの製作を進める予定である。

4.4 高温高圧専用ビームラインのデザイン

最後に、高温高圧専用ビームラインの設計概念について述べる。現状において、高圧下での中性子実験はイギリスのパルス中性子源 ISIS とフランスの研究用原子炉 ILL での研究が中心となっている。またアメリカの大強度パルス中性子源 SNS においては高圧専用のビームライン SNAP が建設され新

世代の研究が始まろうとしている。我々が MLF に建設するビームラインはこれら中性子施設の装置群に優る特長をもつことを目指している。そのための戦略の一つが大容量プレスによる高温高圧実験、そしてもうひとつが独自の集光デバイスによる中性子強度の増大である。ここではそれら装置の土台となるビームラインの TOF 粉末回折計について紹介する。

Fig. 5 にビームラインのレイアウトを示す。高温高圧専用ビームラインの設計においては次の点を考慮した。(1) 主検出器である 90° バンクにおいて $\Delta d/d = 0.5\%$ の分解能をもつ、(2) 結晶、液体それぞれの構造解析に対応するため $0.5\text{--}10.0 \text{ \AA}$ の波長領域を用いる、(3) 大容量プレスを設置する空間を確保する。そのために、 $L_1 = 24 \text{ m}$, $L_2 = 1 \text{ m}$ とし、線源から 7.5 m を起点としてそこから 22 m までガイド管を設置する。また 7.3 m と 10.15 m にディスクチョッパーをおくことによって 90° バンクにおいて $0.3 \text{ \AA} < d < 8.6 \text{ \AA}$ の領域から任意の $4.3 \text{ \AA}$ の d 値範囲を 1 フレームで測定することを可能とする。減速材には必要分解能とビーム強度の兼ね合いを計算した結果から非結合型モデレータを想定している。また検出器については広く利用されている half inch サイズの ^3He 検出器を用い、芯線方向の位置分解能 5 mm を活用することを考えている。試料サイズは 1 mm を想定している。本装置は J-PARC パルス中性子源の繰り返し周期が 25 Hz と ISIS (50 Hz) や SNS (60 Hz) と比較して遅いことから飛行距離が ISIS, SNS の同種の装置 (PEARL, SNAP) よりも長いにも関わらずそれら装置よりも広い波長幅を同時に測定できるという利点をもつ。また装置分解能に関しても長い飛行距離をとることで PEARL ($\Delta d/d = 0.8\%$), SNAP ($\Delta d/d = 0.6\%$) よりも高分解能となることを目標としている。

Fig. 5. Schematic drawing of the geometry of the high-pressure material science beamline at MLF, J-PARC.

高温高压専用ビームラインの特徴のひとつは集光ガイド管である。近年、微小領域に集光することを目的として放物型や楕円型などの集光ガイド管の形状がいくつか提案されている[20-22]。これら集光ガイド管はストレートガイド管と比べて、ガイド管出口から離れたところにビーム最強位置がある、反射回数が少ないのでビームの減衰が小さい、微小なビームスポットを試料位置につくることができる、など高压発生装置と組み合わせた中性子実験に適した特性をもつ。

我々は楕円形状による集光ガイド管について McStas によるシミュレーションを行い、その性能を評価した。まずガイド管を用いない場合は、

Table 1. Geometric specifications of the simulated elliptical guide.

Cross section at entrance (mm ²)	67 × 67
Cross section at exit (mm ²)	26 × 26
Guide length (m)	14.5
Distance from the focal point to the guide entrance (m)	62.8
Distance to the focal point from the guide exit (m)	2

Fig. 6. Gain factors of various guide geometries compared to a natural flight path of 12 m. Gain factors are calculated from intensities spatially integrated over $1 \times 1 \text{ mm}^2$ at the sample position.

$L_1 = 12 \text{ m}$ で $\Delta d/d = 0.5\%$ を達成できる。これを“ガイドレス構造”とし強度比較の基準とした。楕円のパラメータは前節で述べた匠用集光ミラーと同様の方針で試料サイズ $1 \times 1 \text{ mm}^2$ での $\lambda = 0.45 \text{ Å}$ のビーム強度について最適化することで決定した。垂直方向の集光のみであった匠用集光ミラーの場合と異なり、ガイド管のシミュレーションは四面に同一のカーブをつけた $3Q_x$ ミラーによる垂直方向、水平方向での集光とした。分解能は $\lambda = 0.45 \text{ Å}$ で $\Delta d/d = 0.5\%$ となる。ガイド管のパラメータを Table 1 にまとめた。

Fig. 6 に集光による強度の利得を示す。縦軸は先に述べたガイドレス構造に対する値である。比較のため、楕円形状とガイド管出入り口の大きさを合わせた、ストレートテーパ形状のガイド管での値も併せて示した。ストレートテーパガイドと比較した場合、楕円ガイドは短波長領域での利得の立ち上がりが良い。また、 $\lambda > 2 \text{ Å}$ の長波長側での利得も楕円ガイドのほうが大きい。楕円ガイドでは長波長側での利得は 2.2、分解能は $\Delta d/d = 0.6\%$ となる。分解能が 0.5% になるようスリットを用いた場合、利得は 1.2 となる。

本シミュレーションでは線源から試料までの理想的なビームライン構成とガイド管を検討した。ガイド管を用いて飛行距離をのばした結果、短波長 $\lambda = 0.45 \text{ Å}$ については利得が 0.9 となり、ガイドレス構造よりも強度が低下するという結果であった。今後は設置スペース、遮蔽計算の結果、建設費用との兼ね合いを踏まえて最適なパラメータを決定していきたい。

5. おわりに

本稿では中性子を高压科学研究に利用するための具体的な準備状況について概観した。今後、建設が具体化すると作業量は膨大に増えていくと予想され、スリット系、 T_0 チョッパーの導入、遮蔽計算に基づくバックグラウンドの見積もり、検出器の配置など建設にあたって検討しておくべき事項は数多い。本稿のデザインは出発点であり、あくまでも草案にすぎない。ビームライン建設に向けてご理解とご協力をお願いするとともに、本稿が高压コミュニティにおいてさらに活発な議論と検討が行われるきっかけとなれば幸いである。魅力ある中性子プローブを将来的には高压力下の物質科学の広範な分野の発展

にもつなげていきたい。

謝 辞

本稿で紹介した高圧中性子をキーワードとする二つのプロジェクトが採択された背景には、過去5年間に及ぶ研究作業グループ「高圧力実験技術と中性子科学」を通じた高圧力学会の全面的な支援があったことは言うまでもない。ここに深く感謝いたします。また、本稿で紹介した高圧セルの製作と光学系の設計は学術創成研究のもと、特に入船徹男教授、大藤弘明博士、角谷均博士、小松一生博士、池田一昭博士、広田克也博士との協力によって行われたものです。ここに深く感謝いたします。本稿は、科学研究費補助金新学術領域研究（研究代表：八木健彦）課題番号 20103001～20103005、科学研究費補助金学術創成研究（研究代表：鍵裕之）課題番号 19GS0205 のサポートによる成果である。

参考文献

- [1] T. Irifune, A. Kurio, S. Sakamoto, T. Inoue, H. Sumiya: *Nature*, **421**, 599 (2003).
- [2] 角谷均, 入船徹男: 高圧力の科学と技術, **16**, 207 (2006).
- [3] Y. Nakamoto, H. Sumiya, T. Matsuoka, K. Shimizu, T. Irifune, Y. Ohishi: *Jpn. J. Appl. Phys.*, **46**, L640 (2007).
- [4] 八木健彦, 岡田卓, 大藤弘明, 入船徹男, 亀卦川卓美, 佐多永吉: 第48回高圧討論会講演要旨集, 1A10, p. 15 (2007).
- [5] H. Gotou, T. Yagi, D.J. Frost, D.C. Rubie: *Rev. Sci. Instrum.*, **77**, 035113 (2006).
- [6] J. Xu, H. Mao, R.J. Hemley, E. Hines: *Rev. Sci. Instrum.*, **75**, 1034 (2004).
- [7] T. Okuchi, M. Takigawa, J. Shu, H.K. Mao, R.J. Hemley, T. Yagi: *Phys. Rev. B*, **75**, 144104 (2007).
- [8] 奥地拓生, 大藤弘明, 小竹翔子, 鍵裕之, 長友正平, 菅田充, 角谷均: 第49回高圧討論会講演要旨集, 3D05, p. 287 (2008).
- [9] S. Odake, H. Ohfuji, T. Okuchi, H. Kagi, H. Sumiya, T. Irifune: *Diamond Relat. Mater.*, doi:10.1016/j.diamond.2008.10.06621
- [10] T. Okuchi, H. Ohfuji, S. Odake, H. Kagi, S. Nagatomo, M. Sugata, H. Sumiya (submitted).
- [11] F. Mezei: *Commun. Phys.*, **1**, 81 (1976).
- [12] I.N. Goncharenko, I. Mirebeau, P. Molina, P. Böni: *Physica B*, **234**, 1047 (1997).
- [13] T. Osakabe, K. Soyama: *Rev. Sci. Instrum.*, **76**, 073102 (2005).
- [14] H. Ohmori: *JSPE*, **26**, 273 (1992).
- [15] K. Ikeda, T. Adachi, T. Shinohara, T. Morishima, K. Hirota, Y. Takizawa, H. Sato, H.M. Shimizu, M. Hino, S. Tasaki, T. Oku, K. Soyama: *Nucl. Instrum. Methods A*, **529**, 78 (2004).
- [16] 神山崇: 高圧力の科学と技術, **14**, 103 (2004).
- [17] K. Nielsen, K. Lefmann: *Physica B*, **283**, 426 (2000).
- [18] S. Harjo, A. Moriai, S. Torii, H. Suzuki, K. Suzuya, Y. Morii, M. Arai, Y. Tomota, K. Akita, Y. Akinawa: *Mater. Sci. Forum*, **524**, 199 (2006).
- [19] <http://j-parc.jp/MatLife/ja/instrumentation/bl19/bl19.html>
- [20] T. Hils, P. Boeni, J. Stahn: *Physica B*, **350**, 166 (2004).
- [21] C. Schanzer, P. Böni, U. Fliges, T. Hils: *Nucl. Instrum. Methods A*, **529**, 63 (2004).
- [22] N. Kardjilov, P. Böni, A. Hilger, M. Strobl, W. Treimer: *Nucl. Instrum. Methods A*, **542**, 248 (2005).

[2008年10月27日受付, 2008年12月12日受理]

© 2009 日本高圧力学会