

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 18 日現在

機関番号：16301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2014

課題番号：25610158

研究課題名(和文)高温高压下での中性子イメージングの高精細化に向けて

研究課題名(英文)Towards the high-resolution neutron imaging under high pressure and temperature

研究代表者

井上 徹 (INOUE, Toru)

愛媛大学・地球深部ダイナミクス研究センター・教授

研究者番号：00291500

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)： J-PARCのBL11ビームラインに、新学術領域研究で我々が導入した中性子カメラの高精細イメージングを目指し、各種試験実験や改良を行った。今回得られた一番いい光学系を使用して、最終的に、X線では観察が不可能な、ZrO₂圧媒体とPtカプセルに封入した状態での高圧セルの水素濃度イメージングに成功した。これは将来的に高温高压下での試料の水素濃度の中性子イメージングが可能になるということ意味している。このように、高温高压下での中性子イメージングの可能性、及び方向性を示すことができた。この結果は、装置論文として既に論文として発表した (Hattori et al., 2015)。

研究成果の概要(英文)： I have conducted the various kinds of test-experiments and the improvements to aim for the high-resolution imaging of our neutron camera installed by our Grant-in-Aid for Scientific Research on Innovative Areas in BL11 at J-PARC. By using the most optimized optical system, I have finally succeeded the hydrogen imaging of the hydrous sample within Pt capsule in high pressure cell assembly made by ZrO₂ pressure medium, while it is impossible to see the hydrogen by X-ray. This result implies that the neutron imaging under high pressure and temperature will become possible under high pressure and temperature in nature future. We have already published the part of this research in an international journal (Hattori et al., 2015).

研究分野： 高压地球科学

キーワード： 中性子 イメージング 水素 水 マグマ 流体 含水相 高压

1. 研究開始当初の背景

H20-24年に採択された新学術領域研究のプロジェクトでJ-PARCに高圧地球科学ビームライン”PLANET”が建設され、そのビームラインに超高压発生装置と中性子カメラを導入した。申請者は特に計画研究の代表者として中性子カメラの導入を検討し、四年間の業者との議論を経て、世界で一つしかない特注品の中性子カメラを導入した。このビームラインを利用すれば、高温高压下での中性子実験が可能となり、従来X線では見ることのできなかった水素もしくは水に富む物質を見ることができる。特に、中性子カメラでは、高温高压下での水に富んだマグマの混和不混和現象の解明や金属鉄(コア)中に溶け込む水素、及び含水状態の固液混合相の分離過程(水に富んだ液体とほとんど水を含まない固相)のイメージングが重要なターゲットとなる。一方、高压実験であるがゆえに、被写体(試料)とカメラ受光面は離さざるをえず、そのため被写体による散乱中性子により、イメージング画像の悪化が見られる。このイメージング画像の悪化を防ぐ試みを行うことが重要となる。

2. 研究の目的

最近、中性子カメラがJ-PARCの高圧地球科学ビームライン”PLANET”に導入され、高温高压下での中性子イメージングの道が開けた。X線が電子と相互作用をすることは異なり中性子は原子核と相互作用をするため、従来のX線ではほとんどイメージングが不可能であった水素あるいは水に富む物質のイメージングが可能となり、高温高压下でのマグマ中の水やコア中の水素に関するイメージングが期待されている。しかしながら、高压装置とカメラとの物理的干渉から、被写体とカメラとはある程度離さざるをえず、そのため散乱中性子の影響で像が著しく悪化する。この影響を取り除き、被写体とカメラとが離れた状態でも良質(高精細)な中性子

透過画像を得るための試みを行うことが本研究の目的である。

3. 研究の方法

被写体(試料)と受光面(カメラ)とが離れた条件での中性子イメージングを高精細化するために、散乱中性子を除去するための中性子グリッドを導入し、その効果の試験研究を行う。効果を定量的に抑えるために、まずは中性子グリッドなしのデータを、スリットサイズや試料の距離の関数として収集し、それを基礎データとする。続いて導入された中性子グリッドを用い、その効果を検証する。中性子グリッドは被写体と受光面の間に入れるが、その場所の最適化を行い、その後、被写体(試料)と受光面との距離の関数としてのデータ収集を行い、画像空間分解能のチェックを行う。これらのデータと、中性子スリットが入っていない状態での基礎データとの比較を行い、その有効性の検証を行う。これらが完成すれば、高温高压下でのイメージングに応用していく。

4. 研究成果

中性子カメラは、東芝製の中性子カラーイメージンテンシファイアを使用し、中性子グリッドは原研所有のものを使用した。このカメラの入力面には濃縮ホウ素 B^{10} を反応膜として使用し、中性子線との反応で発生した α 線がCsI蛍光体を発光させる仕組みとなっている。実験の結果、中性子画像の高精細化にはスリットサイズの最適化が非常に重要であることが明らかとなった。

現在までの結果をまとめると、現状では中性子のフラックスが限られるため、スリットサイズや測定時間、及びカメラ感度を最適化させて、解像度のみの向上を狙うのではなく、フラックスも重視した光学系で撮影を行った方が良好であるという結果を得た。この条件で中性子グリッドを利用すると、空間分解能が上がるよりむしろ、その中性子フラック

スの減少効果の方が大きく、画像の空間分解能が著しく上がる結果は得られていない。これを補うために、画像解析の併用を試みており、現状ではその併用で、中性子イメージング画像の高精細化にも取り組んだ。

今回得られた一番いい光学系を使用して、最終的に、X線では観察が不可能な、ZrO₂圧媒体とPtカプセルに封入した状態での試料の水素濃度イメージングに成功した。これは将来的に高温高圧下での試料の水素濃度の中性子イメージングが可能になるということ意味している。このように、高温高圧下での中性子イメージングの可能性、及び方向性を示すことができた。この結果は、装置論文として既に論文として発表している (Hattori et al., 2015)。

J-PARCでの現在までのビーム強度は300 kW程度であり、将来的にはこの3倍以上の1 MWで運転される予定であり、そのようにフラックスが一段と増えれば、今回の中性子イメージングの更なる高精細化が期待できる。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計12件)すべて査読有

S. Kakizawa, T. Inoue, H. Suenami and T. Kikegawa, Decarbonation and melting in MgCO₃-SiO₂ system at high temperature and high pressure. *J. Mineral. Petrol. Sci.*, in press.

Z. Mao, J. Lin, J. Yang, T. Inoue, and V. B. Prakapenka, Effect of the Fe³⁺ spin transition on the equation of state of bridgmanite, *Geophys. Res. Lett.*, in press.

Cai, N., T. Inoue, K. Fujino, H. Ohfuji and H. Yurimoto, A Possible New Al-bearing hydrous Mg-silicate (23 Å phase) in the deep upper mantle, *Am. Mineral.*, in press.

Hattori, T., A. Sano-Furukawa, H. Arima, K. Komatsu, A. Yamada, Y. Inamura, T. Nakatani, Y. Seto, T. Nagai, W. Utsumi, T. Iitaka, H. Kagi, Y. Katayama, T. Inoue, T.

Otomo, K. Suzuya, T. Kamiyama, M. Arai T. Yagi (2015): Design and Performance of High-Pressure PLANET Beamline at Pulsed Neutron Source at J-PARC, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A*, **780**, 55-67. [doi:10.1016/j.nima.2015.01.059](https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.01.059)

Maruyama, K., H. Kagi, T. Inoue, H. Ohfuji and T. Yoshino (2015): In Situ Observation of Pressure-Induced Crystallization from Amorphous Calcium Carbonate by Time-Resolved X-Ray Diffraction. *Chem. Lett.*, **44**, 434-43.

<http://doi.org/10.1246/cl.141062>

Yang, C., T. Inoue, A. Yamada, T. Kikegawa, J. Ando (2014): Equation of state and phase transition of antigorite under high pressure and high temperature, *Phys. Earth Planet. Inter.*, **228**, 56-62.

[doi:10.1016/j.pepi.2013.07.008](https://doi.org/10.1016/j.pepi.2013.07.008)

Yamada, I., Etani, H., Tsuchida, K., Marukawa, S., Hayashi, N., Kawakami, T., Mizumaki, M., Ohgushi, K., Kusano, Y., Kim, J., Tsuji, N., Takahashi, R., Nishiyama, N., Inoue, T., Irifune, T. and Takano, M. (2013): Control of bond-strain-induced electronic phase transitions in iron perovskites, *Inorganic Chem.*, **52**(23), 13751-13761, doi: 10.1021/ic402344m

Etani, H., Yamada, I., Ohgushi, K., Hayashi, N., Kusano, Y., Mizumaki, M., Kim, J., Tsuji, N., Takahashi, R., Nishiyama, N., Inoue, T., Irifune, T. and Takano, M. (2013): Suppression of Intersite Charge Transfer in Charge-Disproportionated Perovskite YCu₃Fe₄O₁₂, *J. Am. Chem. Soc.*, **135**(16), 6100-6106, doi:10.1021/ja312015j

Kawasaki, Y., Takase, S., Kishimoto, Y., Ohno, T., Yamada, I., Shiro, K., Takahashi, R., Ohgushi, K., Nishiyama, N., Inoue, T.

and Irifune, T. (2013): NMR study of successive magnetic transitions in the A-site ordered perovskite $\text{LaMn}_3\text{Cr}_4\text{O}_{12}$, J. Korean Phys. Soc., 63(3), 640-643,

doi:10.3938/jkps.63.640

Hattori, Y., Nomura, S., Mukasa, S., Toyota, H., Inoue, T., and Usui, T. (2013): Synthesis of tungsten oxide, silver, and gold nanoparticles by radio frequency plasma in water, J. Alloys and Compounds., 578, 148-152, doi:10.1016/j.jallcom.2013.05.032

Hattori, Y., S. Nomura, S. Mukasa, H. Toyota, T. and Inoue, T. (2013): Synthesis of tungsten trioxide nanoparticles by microwave plasma in liquid and analysis of physical properties, J. Alloys and Compounds., 560, 105-110,

doi:10.1016/j.jallcom.2013.01.137

Ochi, M., Yamada, I., Ohguchi, K., Kusano, Y., Mizumaki, M., Takahashi, R., Yagi, S., Nishiyama, N., Inoue, T. and Irifune, T. (2013): B-site deficiencies in A-site-ordered perovskite $\text{LaCu}_3\text{Pt}_{3.75}\text{O}_{12}$, Inorg. Chem., 52(7), 3985-3989, doi:10.1021/ic302809v

[学会発表](計 34 件)

Chen, J., Pamato, M., Inoue, T., Kakizawa, S., Yang, B., Ma, C., Lin, Y., Katsura, T., Kawazoe, T., and Liu, Z., Effect of pressure on water solubility in aluminous magnesium silicate perovskite, 2014 AGU Fall Meeting, San Francisco (USA), December 15-19, 2014.

Cai, N., Inoue, T., Fujino, K., Ohfuji, H. and Yurimoto, H., New Al-bearing hydrous Mg-silicate in the deep upper mantle, 2014 AGU Fall Meeting, San Francisco (USA), December 15-19, 2014.

Inoue, T., Suenami, H. and Kikegawa, T., In situ X-ray observation of dehydration and EoS of chlorite under high pressure and

temperature, 2014 AGU Fall Meeting, San Francisco (USA), December 15-19, 2014.

柿澤翔, 井上徹, 坂本尚義, 高温高压下における bridgmanite 中の含水量の温度圧力依存, 第 55 回高压討論会, 徳島大学(徳島県徳島市), 平成 26 年 11 月 22 日

八木健彦, 後藤弘匡, 飯塚理子, 鈴木昭夫, 井上徹, ラジオグラフィーによるケイ酸塩-鉄分離過程のその場観察, 第 55 回高压討論会, 徳島大学(徳島県徳島市), 平成 26 年 11 月 22 日

栗林貴弘, 井上徹, 藤野清志, 長瀬敬郎, Al と H を含有する MgSiO_3 ペロブスカイト, bridgmanite の結晶構造の精密化, 第 55 回高压討論会, 徳島大学(徳島県徳島市), 平成 26 年 11 月 22 日

井上徹, 矢吹智実, 柿澤翔, 藤野清志, 坂本尚義, 栗林貴弘, 長瀬敬郎, 含水 bridgmanite の合成とキャラクタリゼーション, 第 55 回高压討論会, 徳島大学(徳島県徳島市), 平成 26 年 11 月 22 日

井上徹, 末次秀規, 柿澤翔, 亀卦川卓美, 緑泥石の脱水分解反応境界とその状態方程式, 日本鉱物科学会 2014 年年会・総会, 熊本大学(熊本県熊本市), 平成 26 年 9 月 18 日

井上徹, 矢吹智実, 柿澤翔, 藤野清志, 坂本尚義, 栗林貴弘, 長瀬敬郎, Al と H に富む Mg-bridgmanite の合成とキャラクタリゼーション, 日本鉱物科学会 2014 年年会・総会, 熊本大学(熊本県熊本市), 平成 26 年 9 月 18 日

栗林貴弘, 井上徹, 藤野清志, 長瀬敬郎, Al と H に富む Mg-bridgmanite の放射光 X 線単結晶構造解析, 日本鉱物科学会 2014 年年会・総会, 熊本大学(熊本県熊本市), 平成 26 年 9 月 17 日

丸山浩司, 鍵裕之, 井上徹, 吉野徹, 非晶質炭酸カルシウムの圧力誘起結晶化その場観察, 日本鉱物科学会 2014 年年会・

総会，熊本大学（熊本県熊本市），平成
26年9月17日

Inoue, T., Hayashi, K. and Yurimoto, H., Al
incorporation in dense hydrous magnesium
silicates, IMA 2014, Sandton (South Africa),
September 3, 2014

Kakizawa, S., Inoue, T., Suenami, H. and
Kikegawa, T., Reaction and melting in the
MgCO₃-SiO₂ system at high temperature and
high pressure, Asia Oceania Geosciences
Society, Royton Sapporo Hotel (Sapporo,
Hokkaido), August 1, 2014

Inoue, T., Cai, N., Hayashi, K. and Yurimoto,
H., Coupled substitution of H⁺ and Al³⁺ into
deep mantle minerals, Asia Oceania
Geosciences Society, Royton Sapporo Hotel
(Sapporo, Hokkaido), August 1, 2014

新里美月，井上徹，蔡開，末次秀規，柿
澤翔，沈み込む堆積岩層中の含水相
topaz-OH の高温高压下における状態方程
式の決定，日本地球惑星科学連合 2014，
パシフィコ横浜（神奈川県横浜市），平
成 26 年 5 月 2 日

鍵裕之，飯塚理子，小松一生，八木健彦，
永井隆哉，井上徹，佐野亜沙美，服部高
典，J-PARC 高压中性子ビームライン
(PLANET)の地球惑星科学への応用，日本
地球惑星科学連合 2014，パシフィコ横浜
(神奈川県横浜市)，平成 26 年 5 月 2 日
服部高典，佐野亜沙美，有馬寛，井上徹，
鍵裕之，八木健彦，地球内部の「水」を
見るツール～超高压中性子ビームライン
PLANET～，日本地球惑星科学連合 2014，
パシフィコ横浜（神奈川県横浜市），平
成 26 年 5 月 2 日

Cai, N., Inoue, T., Fujino, K., Ohfuji, H.,
Kuribayashi, T. and Yurimoto, H.,
Aluminum incorporation into phase A - a
new hydrous silicate in the deep upper
mantle, Japan Geoscience Union Meeting

2014, Pacifico Yokohama (Yokohama,
Kanagawa), April 29, 2014

Suenami, H., Inoue, T., Kakizawa, S. and
Kikegawa, T., Dehydration boundary and the
EoS of chlorite under high pressure and
temperature, Japan Geoscience Union
Meeting 2014, Pacifico Yokohama
(Yokohama, Kanagawa), April 28, 2014 (招
待講演：発表者井上徹)

Hattori, T., Sano-Furukawa, A., Arima, H.,
Inamura, Y., Yamada, A., Komatsu, K.,
Nahgai, T., Katayama, Y., Inoue, T., Kagi, H.
and Yagi, T., New Tool for Investigating
High-Pressure and High-Temperature States
of Matter at Intense Pulsed Neutron Source
J-PARC, THERMEC 2013 (the 8th
international conference on advanced
materials), Las Vegas (USA), December 6,
2013.

21 Hattori, T., Sano-Furukawa, A., Arima, H.,
Inamura, Y., Nahgai, T., Katayama, Y., Inoue,
T., Kagi, H. and Yagi, T., New high-pressure
neutron beamline PLANET at J-PARC,
International conference on neutron
scattering (ICNS2013), Edinburgh (UK),
July 12, 2013.

22 Inoue, T., Hayashi, K. and Yurimoto, H.,
Al-bearing dense hydrous minerals under
mantle transition zone and uppermost lower
mantle conditions, AGU Fall Meeting 2013,
San Francisco (USA), December 10, 2013

23 糀谷浩，井上徹，赤荻正樹，ポストスピ
ネル相境界から制約される Mg₂SiO₄ リン
グウッドライト中の陽イオン無秩序，第 54
回高压討論会，新潟コンベンションセン
ター（新潟県新潟市），平成 25 年 11 月
16 日

24 浦川啓，井上徹，亀卦川卓美，室温圧縮
下の含水石英ガラスの X 線回折実験，第
54 回高压討論会，新潟コンベンションセ

- ンター(新潟県新潟市),平成25年11月16日
- 25 山田明寛, 井上徹, 亀卦川卓美, 高压下における $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ ガラスの局所構造変化, 第54回高压討論会, 新潟コンベンションセンター(新潟県新潟市), 平成25年11月15日
- 26 井上徹, 林晃平, 坎本尚義, 下部マントル最上部における Al に富む高压含水鉱物, 第54回高压討論会, 新潟コンベンションセンター(新潟県新潟市), 平成25年11月14日
- 27 柿澤翔, 井上徹, 末次秀規, CAI Nao, 山田明寛, 亀卦川卓美, 高温高压下における $\text{MgCO}_3 + \text{SiO}_2$ 系の反応と熔融, 第54回高压討論会, 新潟コンベンションセンター(新潟県新潟市), 平成25年11月14日
- 28 Nao CAI, Toru INOUE, Takumi KIKEGAWA, Thermal equation of state of lawsonite under high pressure and high temperature, 第54回高压討論会, 新潟コンベンションセンター(新潟県新潟市), 平成25年11月14日
- 29 糀谷 浩, 井上徹, 赤荻正樹, 熱力学的手法による Mg_2SiO_4 のポストスピネル相転移境界の再決定, 日本鉱物科学会2013年年会・総会, 筑波大学(茨城県つくば市), 平成25年9月11日
- 30 井上徹, 林晃平, 坎本尚義, 下部マントル条件下で安定な Al に富む高压含水鉱物, 日本鉱物科学会2013年年会・総会, 筑波大学(茨城県つくば市), 平成25年9月11日
- 31 柿澤翔, 井上徹, 山田明寛, 末次秀規, 上部マントル条件下における $\text{MgCO}_3 + \text{SiO}_2 = \text{MgSiO}_3 + \text{CO}_2$ 反応境界の決定, 日本地球惑星科学連合2013, 幕張メッセ(千葉県千葉市), 平成25年5月25日
- 32 糀谷浩, 井上徹, 赤荻正樹, 熱力学的手法による Mg_2SiO_4 のポストスピネル相転移境界の再決定, 日本地球惑星科学連合2013, 幕張メッセ(千葉県千葉市), 平成25年5月24日
- 33 井上徹, 山田明寛, 浦川啓, 鈴木昭夫, 有馬寛, 寺崎英紀, 大高理, 服部高典, 佐野亜沙美, J-PARC, PLANET における無水及び含水アルバイトガラスの高压下中性子回折実験と中性子イメージング予備実験, 日本地球惑星科学連合2013, 幕張メッセ(千葉県千葉市), 平成25年5月22日
- 34 末次秀規, 井上徹, X線その場観察を用いた高压下における緑泥石の脱水分解反応, 日本地球惑星科学連合2013, 幕張メッセ(千葉県千葉市), 平成25年5月22日

〔図書〕(計 1件)

井上徹 朝倉書店 地球ダイナミクス: 山本明彦編 (2014) 229(155-174)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0件)

○取得状況(計 0件)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.grc.ehime-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

井上 徹 (INOUE, Toru)

愛媛大学・地球深部ダイナミクス研究センター・教授

研究者番号: 00291500

(2)研究分担者 なし

(3)連携研究者 なし