



AichiSR

高圧力下における水素結合性結晶の構造変化 —氷 VII 相とガスハイドレート—その 1

佐々木重雄¹, 坂田雅文¹, 木村友亮¹, 浅野雅人¹, 角谷一樹¹, 永江峰幸², 丹羽健³

¹ 岐阜大学工学部, ² 名古屋大学シンクロトロン光研究センター, ³ 名古屋大学大学院工学研究科

キーワード：氷 VII 相, メタンハイドレート, 高圧力, 粉末 X 線構造解析, 構造変化

1. 背景と研究目的

氷の高圧相である氷-VII 相の約 15 GPa における構造, 電気伝導率の変化[1-3], ガスハイドレートの構造変化のメカニズム[4]は明らかになっているとは未だに言い難い. そこで, あいちシンクロトロン BL2S1: 単結晶 X 線回折装置を利用して, 静水圧力下にある氷-VII 相およびガスハイドレートの単結晶および粉末試料の詳細な構造解析を試みることにした. 昨年度の氷 VII 相の実験では, 粉末試料の作製法の工夫およびグリセロールを圧力媒体として用いることによって, 15 GPa まで高い静水圧性を維持したまま X 線回折測定を行うことに成功した. 今年度は, 氷 VII 相に関してはさらに高い圧力域まで静水圧性を維持したまま測定を行うこと, ガスハイドレートについては粉末および単結晶 X 線回折測定より, 高圧相の詳細構造解析を行うことを目的とした.

2. 実験内容

Be 合金台座を用いた高圧ダイヤモンド・アンビル・セル (DAC) に氷 VII 相粉末試料を封入し, グリセロール圧力媒体ありと圧力媒体なしの条件で X 線回折測定を行った. また, 同じ DAC を用いてメタンハイドレート sH 相の粉末 X 線回折測定を行った. 試料の準備は岐阜大学で, X 線回折測定は, あいちシンクロトロン光センター; BL2S1 で行った.

3. 結果および考察

氷 VII 相の測定に関しては, DAC の試料室サイズや氷とグリセロールの混合割合などを換え, 3 回の実験を行ったが, 到達圧力は 8 GPa にとどまり, 目標の 15 GPa には届かなかった. また, 静水圧性についても昨年度より劣っていることが分かった. 今後, 試料室を構成する金属ガスケットの形状および材質の再検討が必要であることが分かった.

メタンハイドレートに関しては, まだ解析途中ではあるが sH 相の格子定数の圧力依存性を評価することができた. Fig.1 にその結果を示す. 我々の高圧ラマン散乱測定の結果[4]は, メタンハイドレート sH 相において, 六方晶の結晶構造を変えないまま 1.3 GPa でメタン分子の占有数が増加することを示している. 今後, 1.3 GPa における格子定数および構造の変化に着目して測定, 解析を行っていきたい.

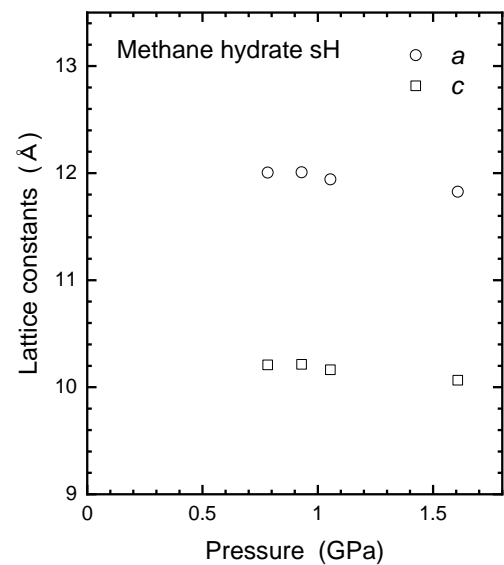


Fig.1 Pressure dependence of lattice constants in methane hydrate sH phase.

4. 参考文献

1. T. Okada *et al.*: Sci. Rep., **4**, 5778 (2014).
2. M. Somayazulu *et al.*: J. Chem. Phys., **128**, 064510 (2008); **128**, 149903 (2008).
3. M. Guthrie *et al.*: PNAS, **110**, 10552 (2013).
4. 佐々木重雄, 清水宏晏: 低温科学, **64**, 199 (2006).