

2015 年度指定パートナーユーザー活動報告 2

大容量高圧装置を活用した地球および関連物質の
高温高圧物性研究の推進

愛媛大学 地球深部ダイナミクス研究センター
入船 徹男

(1)

指定時PU 課題番号/ビームライン	2015A0075/BL04B1								
PU 氏名 (所属)	入船 徹男 (愛媛大学)								
研究テーマ	大容量高圧装置を活用した地球および関連物質の高温高圧物性研究の推進								
高度化	高圧高温条件下での弾性率および変形・破壊挙動測定システムの高度化								
利用研究支援	当該装置を用いた利用実験の支援								
利用期	15A	15B	16A	16B	17A	17B	18A	18B	合計
PU 課題実施シフト数	51	50.75	53.625	49.75	41.75	47.375	44.375	47.875	386.5
支援課題数	0	0	0	1	0	2	2	2	7

(2) PU 活動概要

本PU 活動においては、BL04B1 に設置されている大容量川井型マルチアンビル超高压装置 (KMA) を活用した、地球及び関連物質の高温高压下での結晶構造変化の精密測定や多様な物性測定のため、(1) 超高压装置・光学系の高度化と関連技術の開発を行い、(2) これを用いた地球深部物質の変形・破壊実験や弾性波速度測定などの先端研究を推進する一方で、(3) 関連分野及び他分野のユーザー支援も行った。以下にこれら3 項目に関する活動の概要を報告する。

1) 超高压装置・光学系の高度化と関連技術開発

光学系の高度化

2 次元回折システムの高度化及び新たな光学系 (図1) の導入を行い、より高速かつ高品質な回折データ収集を可能とした。この結果、応力及び歪の測定が効率的に行えるようになり、高温高压下における岩石の変形及び破壊物性評価が高い時間分解能にて評価できるようになった。従来は、単色 X 線の光軸上に大型の 2 次元 X 線 CCD を出し入れすることで、応力及び歪の測定を行ってきた。しかしこれには毎回数分程度

の時間を消費するため、数十分～数時間の岩石変形実験における応力・歪測定の時間分解能を低下させる要因となっていた。本光学系の導入によって、応力・歪測定のたびに大型の 2 次元 X 線 CCD を出し入れする必要がなくなったため、1 回に必要な 10 分程度の応力・歪測定において 3 分程度の時間節約が可能となった。この結果、応力及び歪の測定が効率的に行えるようになり、高温高压下における岩石の変形及び破壊物性評価が高い時間分解能にて評価できるようになった。

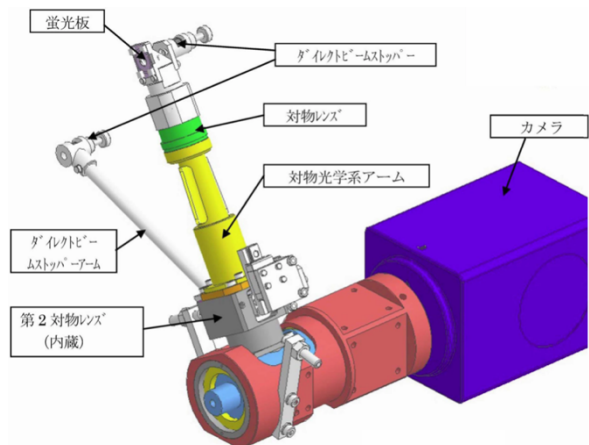


図1 BL04B1 に設置した、X 線カメラ及び 2 次元 X 線 CCD 用の単色 X 線用光学系。

微小超音波信号検出システムの改良

超音波測定システムをハッチ内に移設し、電気的ノイズ軽減の措置を講じることで、より高精度の音速測定が可能となる実験環境を実現した。また、最新のオシロスコープ及び波形発生装置をビームラインに導入するとともに、耐ノイズ性の同軸ケーブルを導入することによって、高温高压下において測定される弾性波のシグナル／ノイズ比を改善することに成功した。これらにより、下部マントル上部の 30 万気圧領域までの弾性波速度精密測定を可能にした。

新規超硬物質の超高压発生技術への応用

PU 側が開発・導入した新しい超硬合金 (WC) や焼結ダイヤモンド (SD)、ナノ多結晶ダイヤモンド (NPD = ヒメダイヤ) などを用いた、KMA による発生可能圧力・温度領域の拡大を行った。WC に関しては、企業との共同研究の結果、生み出された新たな製品を用いて、従来の KMA による限界 (40 GPa 程度) を大きく打破する 50 GPa 領域の圧力発生を可能にした。また、SD アンビルを用いた実験では、高温発生技術の開発に取り組み、70 GPa 領域で 2300 K の安定的な高温発生とともに、このような領域での X 線その場観察実験を可能にした。更に NPD アンビルを用いた圧力発生技術の開発を行い、SD アンビルを用いた場合に比べてはるかに効率よく、最大 88 GPa までの圧力発生が可能であることを明らかにした (図 2)。

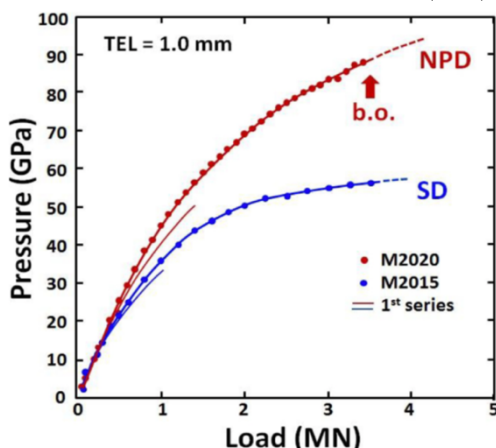


図 2 NPD アンビルにより達成した、88 GPa の発生圧力。SD アンビルと比べ、より高い圧力発生効率を実現している (Irifune *et al.*: *C. R. Geosci.*, 2019)。b.o. = blow-out による実験終了、M2015、M2020 = 実験番号、1st series = 最初の予備的実験、TEL = アンビルトランケーションサイズ。

高压変形下における AE 測定技術の開発

自動車で運搬可能なコンパクトな微小破壊音 (アコースティックエミッション=AE) 測定システムを導入した (図 3)。本システムは波形収集記録装置とプリアンプ、発振器、ノイズフィルタから構成される。SPRING-8 をはじめとした放射光施設においては環境由来のノイズが多いため、それが AE 波形に悪影響を与えることが問題となっていた。ノイズは AE 波形から初動時刻を決定する際に誤差を増大させるといった問題を引き起こすため、高压下の直径数 mm 程度の試料から発生する微弱な AE の 3 次元震源位置を精密に決定する上で、ノイズの影響を軽減することは技術的に重要である。このノイズ問題の対策として、シグナル／ノイズ比を高くするために高性能のプリアンプ (及び同軸ケーブル) を用いること、及び測定系のインピーダンスの整合化が重要であることが分かり、本 PU 活動において、空間分解能 ±1 mm 程度の AE 震源位置決定精度を有する測定システムの開発に成功した。

その他の技術開発

熱電対は高温高压実験での温度測定に幅広く用いられているが、その起電力への圧力の効果は 3 GPa を越える高压下ではよく分かっていない。このため、こ

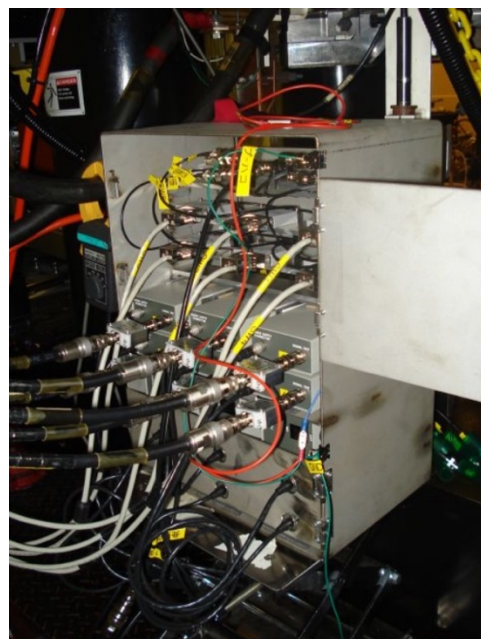


図 3 BL04B1 に設置した、ハッチ内外を結ぶ同軸ケーブルと AE 信号増幅用プリアンプ。

これらの実験に基づいた温度の見積もりは大きな不確定性を持っている。本PUでは、単線法により熱電対起電力の圧力効果を決定するための新しい実験手法を開発した。大容量KMAを用いることにより、従来の圧力を越える高圧下で起電力測定を行い、同時に放射光 X 線を用いることにより単線上の圧力経路の定量的測定を実現した。この方法に基づいた実験によって得られた 7 GPa、600°C までのクロメルとアルメルのゼーベック係数の圧力効果は過去の低温・低圧での結果と調和的であった。

2) 大容量 KMA による先端的地球深部科学研究の推進
地球深部物質のレオロジー物性の解明

地球内核を構成していると考えられる六方最密充填 (hcp) -Fe の格子選択配向を解明することを目的として Fe 及びアナログ物質である Zn の変形実験を、BL04B1 に設置の D-DIA 型変形実験装置 MADONNA を用いて高温高圧下にて行った。これまでの我々のせん断変形実験からは、hcp-Fe の主要なすべり系は底面すべりであることが示唆されている。新たに行った一軸圧縮及び一軸引張実験により得られた選択配向はこの考えと調和的であった (図 4)。比較的低压で行われた Zn を用いたせん断変形実験では、理想的な方位を持った底面すべり系を選択配向が得られた。このことはこれまでの hcp-Fe のせん断変形では高圧下のために一軸圧縮成分を含んでいたことを示唆する。以上の結果を総合的に判断して、hcp-Fe の主要なすべり系が底面すべりであると結論づけた。

このことは、地球内核の複雑な地震波速度異方性を理解する上で鍵となる物質科学的情報である。

また、hcp-Fe の流動則の決定を目指して、一軸圧縮変形実験を行った。圧力 17-18 GPa、温度 150-450°C の条件下で、温度ステップ実験と歪速度ステップ実験を行い、各ステップにおける歪速度と定常応力を測定した。その結果、本実験のような低温条件では hcp-Fe の流動強度は温度や歪速度にあまり強く依存せず、その値は 2-3 GPa 程度であった。

この他、地球型惑星においてプレートテクトニクスが起きるかどうかを左右するパラメータである、プレートの強度を実験的に決定すべく、地球の上部マントルの温度圧力条件下における斜方輝石 (上部マントルにおいてカンラン石に次いで 2 番目に多い鉱物) の流動則の決定を目指した実験も行った。

下部マントル条件下での弾性波速度測定

WC アンビルを用いた KMA と、本PUで高度化した超音波速度測定システムを用いて、未分化マントルの代表的化学組成であるパイロライト組成の試料 (ブリッジマナイト + フェロペリクレス + カルシウムペロブスカイト) の弾性波速度を、上部マントルから下部マントル最上部に相当する高温高圧下 (最高 28 GPa、1700 K) で測定した。この結果、パイロライトの弾性波速度は、代表的な地震波速度モデルである PREM とよく一致した。また、これまで測定が困難であったカルシウムペロブスカイトに対して、マントル遷移層下部~下部マントル最上部条件下での弾性波

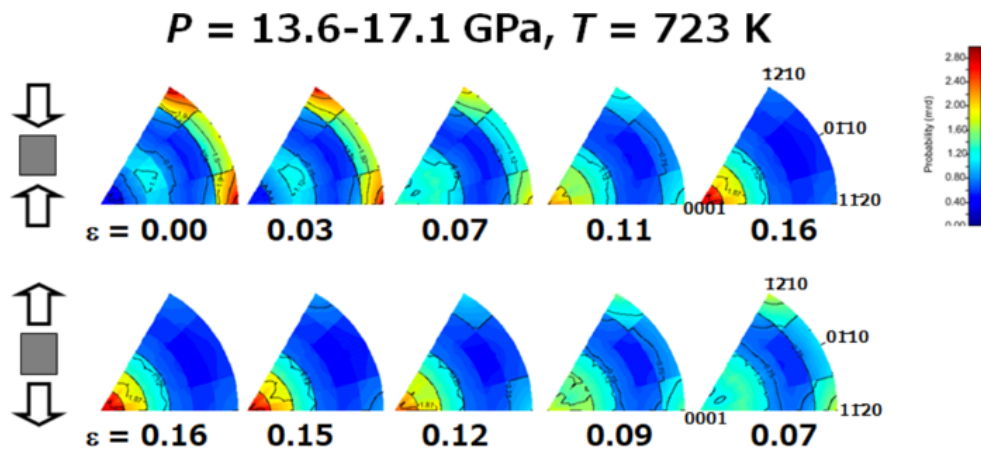


図4 高温高圧下での圧縮及び引張試験に伴う hcp-Fe の結晶選択配向 (Nishihara et al. Earth Planet. Sci. Lett., 2017) 。 ε = 歪。

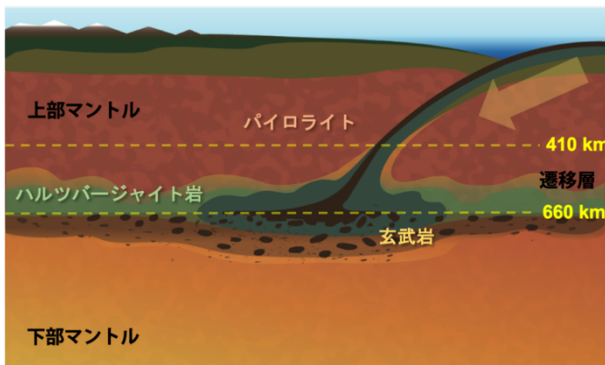
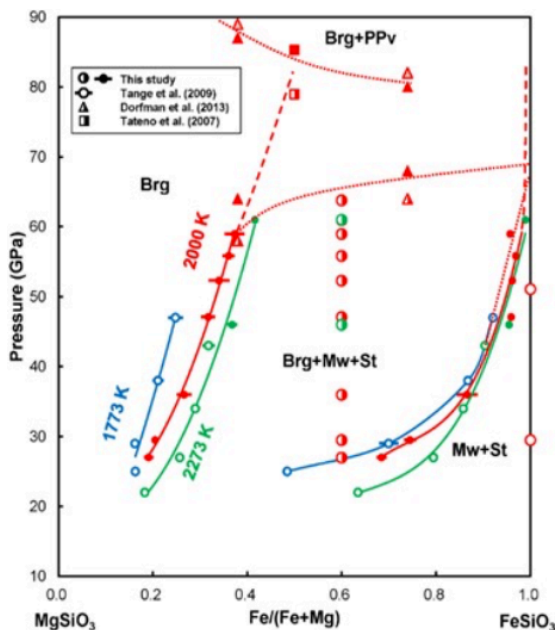


図5 弾性波速度測定結果に基づく最上部マントル物質構成の新しいモデル (Greaves, Irifune *et al.*: *Nature*, 2019)。

速度を明らかにした。この結果から、下部マントル最上部に玄武岩的組成の物質が存在することを予測した (図5)。

また、下部マントルの主要構成鉱物であるブリッジマナイトの弾性波速度における水の影響を明らかにする実験を、約 20 GPa、900 K の条件下までで行った。測定はブリッジマナイト準安定領域内での P-V-T-Vp-Vs データ収集であり、温度は 900 K までに限定した。予備的な結果であるが、水の影響によりブリッジマナイトの P 波速度・S 波速度とも遅くなることが明らかとなった。



SD アンビルによる下部マントル条件下の相変化・密度変化

PU で開発された SD アンビルを用いた KMA 実験による高温高压実験技術に基づき、下部マントル領域での相平衡実験及びマントル鉱物の状態方程式の精密決定を行った。FeOOH の相平衡実験の結果、55 GPa、1000 K 付近で FeOOH の 9% 程度の急激な体積減少が観察され、これが Fe のスピン転移によることを明らかにした。また同様に、Fe を含む AlOOH 高压相や phase H においても鉄のスピン転移による大きな密度減少が確認され、このような体積減少は地球内部物質を想定した多成分系でも起こりうる現象であることを示した。

一方で、コランダム圧媒体の使用とセル形状の最適化により可能となった 60–70 GPa 領域の安定加熱技術に基づき、MgSiO₃-Al₂O₃系や、MgSiO₃-FeSiO₃系の相関係を高温高压下で精密に決定した (図6)。一方で新たに開発した放射光 X 線その場観察における閉鎖系実験法を用いて、Al に富む含水ブリッジマナイトの状態方程式の決定を試みた。30–40 GPa、300–1500 K の条件でデータ取得に成功し、Al に富む含水ブリッジマナイトの熱弾性特性を決定することを可能とした。

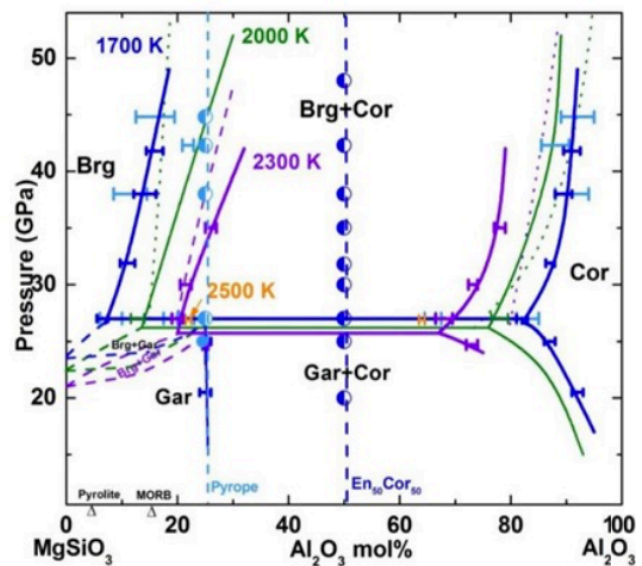


図6 下部マントルの主要鉱物である MgSiO₃-FeSiO₃系 (左: Arimoto, Irifune *et al.*: *Phys. Earth Planet. Inter.*, 2019) 及び MgSiO₃-Al₂O₃系 (Liu, Nishi *et al.*: *J. Geophys. Res.*, 2017) の相関係。

高圧下変形実験による稍深発・深発地震の発生メカニズム

沈み込むスラブ内の深さ 40–150 km にて発生する稍深発地震の発生メカニズムを実験的に解明すべく、高温高圧下にて一軸圧縮変形を被るカンラン岩試料内に発生する AE 測定実験を行った (図 7)。600–950°C の温度条件において、低歪においては AE 発生を伴わない塑性変形が進行した一方で、高歪においては AE 発生を伴う塑性変形が進行し、最終的には破断面を形成した。一方、より高温側の 1000°C では AE 発生を伴う塑性変形が進行したものの、高歪において破断面形成は確認されなかった。更に高温の 1100°C では、AE 発生を伴わない塑性変形のみが進行した。これらの結果より、スラブ内地震は塑性変形に伴う微小クラックの形成に由来している可能性が示唆されるとともに、アセノスフェアに相当する高温領域では微小クラック形成が起きない (すなわち地震が起きない) ものと考えられる。回収試料中に発達した断層面を透過型電子顕微鏡にて観察した結果、カンラン石が部分溶融した痕跡 (溶融ガラス) が確認された。そのガラスの化学組成より、断層面において変形のエネルギーが局所集中した結果、断熱不安定現象が発生した結果、瞬間的に温度が 1840°C にまで上昇 (もとの温度は 900°C 以下) したことが明らかになった。

また、同様の実験を水に飽和したハルツバーガイトの一軸圧縮試験及び AE 測定実験を沈み込むスラブ内浅部条件下 (1–2 GPa、500–700°C) にて行った。いずれの場合でも、差応力が封圧を超えていないにもかかわらず断層形成に至ることが確認された他、AE をほとんど発生させずに断層すべりが起きる“サイレント地震”現象も確認された。また、上部マントル条件下 (2–5

GPa、900–1100°C) における斜方輝石多結晶体の変形実験も行った。

3) ユーザー支援活動

単色 X 線利用実験

既述の高度化にて導入した、「X 線カメラ及び 2 次元 X 線 CCD を共存させるための光学系」の利用を希望する一般ユーザーへの支援を行った。本 PU 期間中、BL04B1 の単色光学系のヘビーユーザーである岡山大学及び九州大学のグループは継続して本光学系を使用した。また、ドイツ連邦共和国バイロイト大学の川添氏 (現広島大学) へは、当光学系及び D-DIA 型変形試験機の使用に関する支援を継続的に行った。更に、独自の変形試験機を導入した堀田氏 (九州大学) へ技術的アドバイスなどを行ったが、堀田氏らのグループは現在も BL04B1 の継続的なユーザーとなっている。なお、これらの支援は、愛媛大学先進超高压科学研究拠点 (PRIUS) の利用を通じた形で行われた。

超音波測定実験

既述の高度化で導入した、「高圧下弾性波速度測定システム」の利用を希望する一般ユーザー (東北大学、東京大学、大阪大学などのグループ) への支援を行った。また、当初 PU メンバーであったが、PU 期間中に広島大学に異動となった井上氏へは重点的に支援を行った。この点は、井上氏は川添氏とともに広島大学にて高圧地球科学の研究拠点の構築を進めており、今後広島大学からの BL04B1 の利用拡大を図るため重要であると判断したためである。なお、これらの支援の一部は、PRIUS 利用を通じた形で行われた。

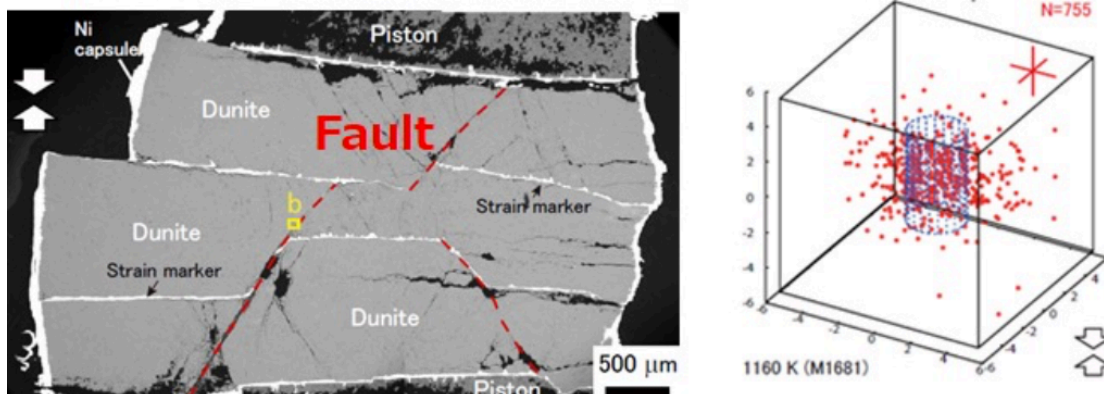


図 7 下部マントルの主要鉱物である $\text{MgSiO}_3\text{-FeSiO}_3$ 系 (左: Arimoto, Irifune *et al.*: *Phys. Earth Planet. Inter.*, 2019) 及び $\text{MgSiO}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ 系 (Liu, Nishi *et al.*: *J. Geophys. Res.*, 2017) の関係。右図の圧媒体は 1 辺 11 mm。

新素材アンビル利用実験

新しい WC アンビルに関しては、論文や学会発表を通じた情報開示により、BL04B1 ユーザーなどの利用を促進している。同じアンビルを用いてアンビルの形状やセル構成を工夫することにより、パイロイト大学のグループでは 60 GPa 領域の圧力発生も報告した。また NPD アンビルに関しては、PU としてこれを用いた技術開発を行うとともに、PRIUS 利用を通じて SPring-8 を含め国内外の多くのグループに提供して共同研究を進めた。

(3) 成果リスト (査読付き論文)

SPring-8 利用研究成果登録データベースに登録済みで、PU 課題番号が関連づけられた査読付き論文のみを掲載します (その他、PU として支援した一般課題の発表論文やポスター発表、受賞歴など多数の成果がありますが、掲載スペースの都合上割愛しています)。

- [1] SPring-8 publication ID = 31163
T. Kunimoto *et al.* “Pressure Generation to 50 GPa in Kawai-type Multianvil Apparatus using Newly Developed Tungsten Carbide Anvils” *High Pressure Research* **36** (2016) 97-104.
- [2] SPring-8 publication ID = 31189
Y. Nishihara *et al.* “Determination of Pressure Effect on Thermocouple Electromotive Force using Multi-Anvil Apparatus” *High Pressure Research* **36** (2016) 121-139.
- [3] SPring-8 publication ID = 31938
S. Gréaux *et al.* “Sound Velocities of Aluminum-Bearing Stishovite in the Mantle Transition Zone” *Geophysical Research Letters* **43** (2016) 4239-4246.
- [4] SPring-8 publication ID = 34614
T. Ohuchi *et al.* “Intermediate-Depth Earthquakes Linked to Localized Heating in Dunite and Harzburgite” *Nature Geoscience* **10** (2017) 771-776.
- [5] SPring-8 publication ID = 34615
T. Ohuchi *et al.*: “Flow behavior and microstructures of hydrous olivine aggregates at upper mantle pressures and temperature” *Contributions to Mineralogy and Petrology* **172** (2017) 65.
- [6] SPring-8 publication ID = 35385
Z. Liu *et al.* “Phase Relations in the System MgSiO₃-Al₂O₃ up to 2300 K at Lower Mantle Pressures” *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **122** (2017) 7775-7788.

- [7] SPring-8 publication ID = 35791
Y. Nishihara *et al.* “Deformation-Induced Crystallographic Preferred Orientation of hcp-iron: An Experimental Study using a Deformation-DIA Apparatus” *Earth and Planetary Science Letters* **490** (2018) 151-160.
- [8] SPring-8 publication ID = 37433
T. Ohuchi *et al.* “Semi-Brittle Behavior of Wet Olivine Aggregates: the Role of Aqueous Fluid in Faulting at Upper Mantle Pressures” *Contributions to Mineralogy and Petrology* **173** (2018) 88.
- [9] SPring-8 publication ID = 38625
T. Arimoto *et al.* “Phase Relations of MgSiO₃-FeSiO₃ System Up to 64 GPa and 2300 K Using Multianvil Apparatus with Sintered Diamond Anvils” *Physics of the Earth and Planetary Interiors* **295** (2019) 106297.
- [10] SPring-8 publication ID = 38892
M. Nishi *et al.* “Solid Solution and Compression Behavior of Hydroxides in the Lower Mantle” *Journal of Geophysical Research-Solid Earth* **124** (2019) 10231-10239.
- [11] SPring-8 publication ID = 38893
M. Nishi *et al.* “Thermal Equation of State of MgSiO₄H₂ Phase H Determined by in situ X-ray Diffraction and a Multianvil Apparatus” *Physics and Chemistry of Minerals* **45** (2018) 99-1001.
- [12] SPring-8 publication ID = 38905
S. Gréaux *et al.* “Sound Velocity of CaSiO₃ Perovskite Suggests the Presence of Basaltic Crust in the Earth’s Lower Mantle” *Nature* **565** (2019) 218-221.
- [13] SPring-8 publication ID = 38913
T. Irifune *et al.* “High Pressure Generation in Kawai-type Multianvil Apparatus using Nano-Polystalline Diamond Anvils” *Comptes Rendus Geoscience* **351** (2019) 260-268.

入船 徹男 *IRIFUNE Tetsuo*

愛媛大学 地球深部ダイナミクス研究センター
〒790-8577 愛媛県松山市文京町 2-5
TEL : 089-927-9645
e-mail : irifune@dpc.ehime-u.ac.jp