

平成 30 年 6 月 15 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05351

研究課題名(和文) 最下部マントル条件下での放射光X線及び超音波法による弾性波速度測定技術の開発

研究課題名(英文) Developments of elastic velocity measurement technique with synchrotron X-ray and ultrasonic method under lowermost the mantle conditions

研究代表者

肥後 祐司 (Higo, Yuji)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・利用研究促進部門・主幹研究員

研究者番号：10423435

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：高輝度放射光X線を利用して、下部マントル条件下での超音波エコー法による弾性波速度測定を実現するために、新たに高圧セルと超音波測定システムを開発した。低ノイズアンプと高速半導体リレーを使用して小型試料の超音波エコーを測定することを可能にした。このシステムは下部マントル条件下でのマントル構成鉱物の精密弾性波速度測定を可能にし、マントルの化学組成や温度分布の解明に非常に有用である。

研究成果の概要(英文)：A new pulse-echo interferometry system has been developed for measurements of sound velocity at simultaneous high pressure and temperature corresponding to those of the Earth's lower mantle, using synchrotron X-ray techniques at SPring-8. A combination of a low-noise high-frequency amplifier and a high-speed solid-state relay system allowed us to clearly detect the ultrasonic echoes of a small sample (<1.0 mm in diameter and length) in multi-anvil apparatus. The present system allows precise measurements of the elastic velocities of minerals under the pressures and temperatures corresponding to the lower mantle for the first time, which should greatly contribute to our understanding of mineralogy of the whole mantle.

研究分野：高圧地球科学

キーワード：弾性波速度 下部マントル 放射光 超音波法

1. 研究開始当初の背景

地球深部の化学組成や物理状態を推定するには、地震波観測による地震波速度プロファイルと高圧実験による高圧鉱物の弾性波速度を比較する『mineral physics test』が最も有用な手段である。特に地球体積の約50%を占める下部マントルの化学組成は、マントル対流や地球の化学的分化を解明する上で必要不可欠な情報である。

近年、地震波観測データの蓄積や解析手法の進歩により、1次元速度モデルばかりでなく、地域的な下部マントルの地震波速度の不均質データが発表され、マントルダイナミクスを解く鍵となっている。その一方で、下部マントル構成鉱物の弾性波速度データは乏しく、下部マントル最主要構成鉱物と考えられているブリッジマナイトの弾性波速度も十分に制約されておらず、弾性波速度データから推定される下部マントルの化学組成も未だ異論が多い。

現在のところ、下部マントルと同じ高圧高温条件下でマントル構成鉱物の弾性波速度を測定する方法には、ダイヤモンドアンビルセルとブリルアン散乱測定を組み合わせる手法とマルチアンビル型高圧発生装置と超音波エコー測定法を組み合わせる手法がある。Murakami et al., 2012 では MgSiO_3 -ブリッジマナイト端成分およびAlまたはFeを含んだ系でのダイヤモンドアンビルセルとブリルアン散乱測定を組み合わせた実験から、下部マントルの化学組成は非常に SiO_2 に富む (ブリッジマナイト 93vol%以上) と提案した。それに対して、Chantel et al., 2012 はマルチアンビル型高圧発生装置と超音波エコー測定法を組み合わせる手法を用いて、Feを含んだブリッジマナイト試料の弾性波速度測定から、下部マントルの化学組成は Pyrolite 組成 (ブリッジマナイト約60vol%) に近いと結論付けている。このように、近年においても下部マントルの化学組成は見解の一致を得ていない。また、これらの実験的研究はいくつかの問題点が指摘されている。ダイヤモンドアンビルセル型高圧発

生装置とブリルアン散乱測定との組み合わせでは、ダイヤモンドアンビルセルの測温精度が十分でなく、ブリルアン散乱測定が多結晶体試料への適用の是非や有色鉱物の測定が難しいなど、実験手法に起因する問題も無視できない。また、マルチアンビル型高圧発生装置と超音波エコー測定法を組み合わせた Chantel et al., 2012 の研究においても、地温勾配よりはるかに低い温度下での実験結果しかなく、弾性波速度の温度依存性を十分制約できていないばかりではなく、試料の差応力の緩和が十分でなく、弾性波速度 (特に横波速度) を低く見積もっている可能性がある。

このように、下部マントルの化学組成を制約するためには、下部マントル構成鉱物の弾性波速度精密測定が必須であり、そのためには焼結体試料を破壊せずに高圧状態にする高圧セルの開発と、微小な試料の超音波エコーを高精度で測定する弾性波速度測定技術の開発が欠かせない。これまで我々は、マルチアンビル型高圧発生装置と放射光X線測定技術、さらに超音波測定技術を組み合わせ、マントル遷移層までの弾性波速度精密測定に成功した (Irifune et al., 2008, Higo et al., 2008, Higo et al., 2009)。その結果、マントル遷移層下部の化学組成を精密に制約し、マントル遷移層最下部で化学組成が連続的に変化している可能性を指摘した。

一方、これまでマルチアンビル型高圧発生装置はダイヤモンドアンビルセルに較べて、発生圧力が低く、下部マントル領域の実験は困難であったが、Yamazaki et al., 2014 らの研究によって、アンビル材に従来の炭化タングステン (超硬合金) に替えて焼結ダイヤモンドを使用して 100 GPa を超える圧力発生に成功し、下部マントル全域での高圧実験が可能となった。こうした技術と我々の超音波測定技術をさらに発展・組み合わせることで、下部マントル条件下での精密弾性波速度測定を実現すべく本研究を計画した。

2. 研究の目的

下部マントル構成鉱物の弾性波速度を精密に測るには、実際の下部マントルと同じ温度圧力条件下で弾性波速度を測定しなければならない。特に下部マントルの大部分を占めていると考えられている MgSiO_3 ブリッジマナイトは、約 21GPa 以下の安定領域外では低圧相へ相転移し、熱などの物理刺激によって容易にアモルファス化する。そのため、高温高圧状態以外では弾性波速度の圧力や温度依存性は精密に測定できない。

そこで本研究の目的は、放射光を用いた超高压実験技術を基に、新たな高压セルの開発と超音波測定システムの高度化によって、下部マントル条件下での精密な弾性波速度データを得ることにある。下記の技術的課題を克服することで、下部マントル鉱物の弾性波速度の精密測定を実現し、下部マントルにおける鉱物・化学組成の不均質、温度分布が詳細に明らかになる。

3. 研究の方法

本研究は SPring-8・BL04B1 に設置の大型高压プレスを用いて実験することを前提として技術開発をおこなった。このビームラインでは偏向電磁磁石光源からくる白色 X 線をそのまま利用し、Ge-SSD を用いたエネルギー分散型 X 線回折測定及び、X 線蛍光板とカメラを使用した X 線ラジオグラフィ観察を行っている。本技術開発は下記の 3 つの要素に大別される。(1) 下部マントル条件に相当する 23GPa、1600 以上を発生させる超音波高压セルの開発、(2) 微弱な超音波エコー信号を高精度で測定する超音波測定システムの開発、(3) 高压下での正確な試料長を測定するために X 線ラジオグラフィ技術の開発。

4. 研究成果

上記の技術開発のうち、(1) では圧力媒体の素材と形状の最適化、X 線を透過し且つ高温

発生が可能な新規ヒーター材の開発、試料の焼結と加工技術の開発をおこなった。20GPa を超える高压下では、試料変形が大きくまた、2 段アンビルやガスケットの変形によって、X 線を透過可能なアンビルギャップが非常に狭くなり、試料の長さ測定に必要な X 線ラジオグラフィ観察が行えない。そのために、必要なアンビルギャップを確保しつつ、圧力発生と試料変形を抑えるために、圧力媒体には稜を落とさない 8 面体の $(\text{Mg,Co})\text{O}$ 素材を用い、ガスケット部分に特殊加工を行って、加圧時にがたつき等が発生せず、均質な加圧が可能になるようにした。またガスケット材に用いるパイロフィライトを高温炉で焼成し、硬度を増して、ガスケットの変形を抑えた。

ヒーター材は白金やレニウム等の金属ヒーターを使用してきたが、小型高压セルでは抵抗が非常に小さくなるため、抵抗加熱が困難であり、また X 線透過性に乏しいことから新たな導電性セラミックスを高压下でテストした。今回用いた素材は『 TiB_2+BN 』、『 Ti_3SiC_2 』、『 $\text{TiC}+\text{Al}_2\text{O}_3$ 』の 3 種類で 20GPa 以上の高压下で加熱可能テストを行った。その結果、 TiB_2+BN は最も X 線透過性に優れるものの 1600 以上で電気抵抗が不安定化することが判った。 Ti_3SiC_2 は機械加工性に優れるが、非常に電気抵抗が低く、大電流が供給可能な電力設備を必要とするが、少なくとも 1800 以上の加熱が可能であることが判った。 $\text{TiC}+\text{Al}_2\text{O}_3$ は機械加工が困難であるが、高温時の抵抗変化の線形性に優れて安定な加熱が可能であった。これまでの結果では $\text{TiC}+\text{Al}_2\text{O}_3$ が下部マントル条件下でのヒーター材として最も適しているが、問題点である機械加工法について今後検討していく。

(2) では小型試料の微弱な超音波エコーを測定するために、新たに入出力信号の分離装置を開発した。超音波速度の周波数依存性を広帯域に渡って測定するために超音波振動

素子と同軸ケーブルの間にはマッチング回路が挿入されていない、そのため振動子に印加する高周波信号の大部分は、その境界面で反射し、同軸ケーブル内を多重反射しノイズ源の一つとなっている。本装置では高速半導体リレーによって電気ノイズと超音波信号を分離して、高いS/Nで試料の超音波エコーの観察を可能とした。(3)では試料上下端面の長さ測定用の金マーカーのX線吸収像を高分解能で見えるためにX線フィルターをテストした。X線吸収像では試料だけでなく、圧力媒体とガスケット全体のX線コントラストが重畳して試料の視認性を低下させている。そのため金のコントラストを強調するために、X線の低エネルギー成分を銅や真鍮のフィルターを使用して除去し、金のコントラストだけを強調することに成功した。

今後、本研究で開発したシステムを使用して下部マントル構成鉱物の弾性波速度測定を行う予定である。その前段階として、Al₂O₃を標準試料としてシステムの検証を行った。その結果を下記の発表論文【1】に詳しく述べてある。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 12 件)
(すべて査読有)

1. Higo, Y., Irifune, T. and Funakoshi, K. Simultaneous high-pressure high-temperature elastic velocity measurement system up to 27 GPa and 1873 K using ultrasonic and synchrotron X-ray techniques, *Rev. Sci. Instrum.*, 89, 014501, doi.org/10.1063/1.4993121, 2018.
2. Ohuchi, T., Lei, X., Ohfuji, H., Higo, Y., Tange, Y., Sakai, T., Fujino, K., Irifune, T., Intermediate-depth earthquakes linked to localized heating in dunite and harzburgite. *Nature Geoscience*, 10, 771-776, doi:10.1038/ngeo3011, 2017
3. Shibazaki, Y., Nishida, K., Higo, Y., Igarashi, M., Tahara, M., Akamai, T., Terasaki, H., Shimoyama, Y., Kuwabara, S., Takubo, Y., and Ohtaka, E., (2016) Compressional and shear wave velocities

for polycrystalline bcc-Fe up to 6.3 GPa and 800 K, *American Mineralogist*, 101, 1150-1160

4. Nishida, K., Suzuki, A., Terasaki, H., Shibazaki, Y., Higo, Y., Kuwabara, S., Shimoyama, Y., Moe, S., Ushioda, M., Takahashi, E., Kikegawa, T., Wakabayashi, D., and Funamori, N., (2016) Towards a consensus on the pressure and composition dependence of sound velocity in the liquid Fe-S system, *PEPI*, 257, 230-239

5. Tsujino, N., Nishihara, Y., Yamazaki, D., Seto, Y., Higo, Y., Takahashi E., (2016) Mantle dynamics inferred from the crystallographic-preferred-orientation of bridgmanite, *Nature*, 539, 81-84.

6. Yoshino, T., Yamazaki, D., Tange, Y., Higo, Y., (2016) Short-period cyclic loading system for in situ X-ray observation of anelastic properties at high pressure, *RSI*, 87, 105106.

7. Kawazoe, T., Nishihara, Y., Ohuchi, T., Miyajima, N., Higo, Y., Funakoshi, K., and Irifune, T., (2016) Creep strength of ringwoodite measured at pressure-temperature conditions of the lower part of the mantle transition zone using a deformation-DIA apparatus, *EPSL*, 454, 10-19.

8. Yamazaki, D., Tsujino, N., Yoneda, A., Ito, E., Yoshino, T., Tange, Y., Higo, Y., (2016) Grain growth of ϵ -iron: Implications to grain size and its evolution in the Earth's inner core, *EPSL*, 459, 238-243.

9. Ono, S., Kikegawa, T., Higo, Y., (2016) Reaction boundary between akimotoite and ringwoodite+stishovite in MgSiO₃, *Phys. Chem Minerals*, 44, 1-6.

10. Litasov, D., Shatskiy, A., Gavryushkin, P., Bekhtenova, A., Dorogokupets, P., Danilov, B., Higo, Y., Akilbekov, A., and Inerbaev, T., (2016) P-V-T equation of state of CaCO₃ aragonite to 29 GPa and 1673 K: In situ X-ray diffraction study, *PEPI*, 265, 82-91.

11. Ohuchi, T., Kawazoe, T., Nishihara, Y., Higo, Y., Funakoshi, K., Suzuki, A., Kikegawa, T., and Irifune, T. (2015) Dislocation-accommodated grain boundary sliding as the major deformation mechanism of olivine in the Earth's mantle, *Sci. Adv.*, 1(9), e1500360.

12. Rosales-Sosa, G. A., Masuno, A., Higo, Y., Inoue, H., Yanaba, Y., Mizoguchi, T., Umada, T., Okamura, K., Kato, K., and Watanabe, Y. (2015) High Elastic Moduli of a 54Al₂O₃-46Ta₂O₅ Glass Fabricated via Containerless Processing, *Sci. Rep.*, 5, 15233.

〔学会発表〕(計 5 件)

1. Higo Y. and Irifune T., Development of ultrasonic measurement technique under lower mantle conditions, HPMP5-9, Saint Malo France, 2017. (招待講演)
2. 肥後祐司, 丹下慶範, 大容量プレスを用いた放射光実験の将来技術, 第 58 回高压討論会, 2017.
3. 肥後祐司, 放射光 X 線高压実験用の新ヒーター材の探索, 第 57 回高压討論会, 2017.
4. Higo, Y., Irifune, T., Elastic velocity measurements under high pressure and high temperature in BL04B1 at SPring-8, MISASA VI, Japan, 2016. (招待講演)
5. Higo Y., Development of Ultrasonic Measurement Technique under Lower Mantle Conditions, ACHPR-7, Chulalongkorn University, Bangkok Thailand, 2015. (招待講演)

〔図書〕(計 1 件)

1. 鳥海 光弘他編/肥後祐司他執筆、朝倉書店、図説 地球科学の事典、2018

〔産業財産権〕

出願状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

肥後 祐司 (HIGO Yuji)
公益財団法人高輝度光科学研究センター
利用研究促進部門, 主幹研究員
研究者番号: 10423435

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号:

(4) 研究協力者

()