

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：16301

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K21901

研究課題名(和文) ナノ多結晶ダイヤモンドの大型化とマントル最下部に至る圧力発生技術開発への利用

研究課題名(英文) High-pressure generation to the lowest mantle condition in multi-anvil apparatus using nano-polycrystalline diamond anvils

研究代表者

國本 健広 (Kunimoto, Takehiro)

愛媛大学・地球深部ダイナミクス研究センター・特定研究員

研究者番号：20543169

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では地球マントル全域に相当する圧力発生の実現を目指した技術開発を進め、最終的に地球のマントル全域を超える最大150 GPaに至る高圧発生を達成した。また、同技術開発の過程でダイヤモンドの塑性変形開始条件に関する観察を幅広い温度圧力条件において実施し、また様々な条件から収集されたダイヤモンドの回折X線半値幅を解析した結果、500-1000 間におけるダイヤモンドの降伏強度を決定することに成功した。ダイヤモンドの降伏強度はこれまでに1000 -1500 という高温下でのみ測定されており、本研究ではこれを500 にまで低下させ、室温下におけるダイヤモンドの強度に制約を与えることに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ダイヤモンドは硬度や熱伝導率などにおいて傑出した物性を持つため、掘削、研磨、加工など現代の工業において、また実験用材料として欠かすことが出来ず、このような利用目的の場合、ダイヤモンドは高い応力環境に曝される。そのため我々は降伏条件を把握した上で利用する必要があるが、ダイヤモンドの高い強度のため明らかにされていなかった。我々はX線その場観察実験により高温高圧条件下におけるダイヤモンド中の応力の蓄積と開放条件を調べ、幅広い温度下における降伏強度を明らかにした。本成果は降伏強度を明らかにするという基礎研究としての成果に加え、工業面でもダイヤモンド材の長寿命化や加工の高速化などに有用である。

研究成果の概要(英文)：In this study, we developed an experimental technology using nano-polycrystalline diamond to generate pressure condition equivalent to the whole mantle condition of the Earth, and finally achieved high-pressure generation up to 150 GPa, which exceeds the entire the mantle pressure. In the process of developing this technology, observations of the plastic deformation of diamond were conducted with a wide range of temperature and pressure conditions, and the yield strength of diamond between 500- and 1000-degree C was successfully determined by analyzing the width of X-ray diffraction peaks of diamond (100) and (220) collected from various P-T conditions. The yield strength of diamond had previously been measured only at high temperatures of 1000-1500-degree C. In this study, we have succeeded in determining the yield strength of diamond at lower temperature than in previous studies.

研究分野：鉱物物理学

キーワード：ダイヤモンド 降伏強度 塑性変形 高圧発生 マルチアンビル装置

1. 研究開始当初の背景

地球内部の構造や運動を知るための物質科学的研究は実験と理論計算を併用することで進展してきた。特に高圧実験は、種々の高圧発生装置を用い地球内部を構成する鉱物やモデル物質の地球内部条件下での物性や構造、組み合わせの変化を最も直接的に知ることが可能な手法であるため、特に重要な役割を担っている。これらの実験に用いられる代表的な装置として川井式マルチアンビル装置(KMA)があげられる。KMAは数ミリ単位の大きな試料容積を確保可能であり圧力や温度を安定に発生させる事が出来るため、精密かつ多様な実験の実施が可能である。しかしKMAを用いて一般的に発生可能な圧力は約30 GPaほどであり、この圧力は地球の下部マントル上部に相当する。圧力発生限界は探索可能な地球の深さに直結するため、今後、KMAを用いて地球深部の研究をすすめるためには、より高い圧力を発生可能な技術の開発が求められる。

2003年、ナノ多結晶ダイヤモンド(NPD)という新規超硬質材料が我々のグループによって開発された。単結晶ダイヤモンドの場合、硬度は高いが、へき開があるため方位によっては破壊されやすい。しかしNPDは数10 nm程度の粒径からなる多結晶体であり、発生したクラックは粒界で制止されクラックが伸展することは無く破壊は防がれるため、NPDは全ての方位でダイヤモンドの最も硬い面と同等の硬度を持つ。NPDは現在、様々な分野の基礎・応用研究から工業用途に至るまで幅広く利用され、また小型の装置に限るが高圧実験用資材としても利用されている。

これまで、KMAを用いて実験することが出来ない地球のマントル中域よりも深い部分についての研究はごく微小な試料を用いた高圧実験と理論計算によって進められてきた。現在、それらによって得られた実験結果は大きな圧力温度誤差を含むことや温度勾配に起因する原子の拡散が問題となっているが、より精密な実験結果を得られるKMAによって同領域の研究を実施することが実現した際にはそのような問題の殆どが解決できる。そこで我々は地球全マントルに渡る圧力の精密発生技術の実現を目指して、NPDをKMAの高圧発生部材料として採用した超高圧発生技術の開発を行った。

2. 研究の目的

NPDの高い硬度や等方性などの特徴は高圧発生部の材料として有用であるが、合成可能な大きさに制限があるため、これまで大型の高圧発生装置に利用することは出来なかった。本研究では従来のKMAの圧力媒体にNPDアンビルを直接埋め込む加圧セル(6-8-2式)による高圧発生技術の改良を進め、地球のマントルを網羅する圧力条件下での鉱物相転移の観察を目指した。

また、高圧高温下における圧力維持のためには圧力発生部材料として用いている物質の強度を知る必要がある。そこで、上の技術開発と同時に高温高圧下におけるダイヤモンドの降伏強度の決定を目的として据えた。

3. 研究の方法

(3-1) 6-8-2式を用いた高圧発生

実験は放射光施設(SPring-8)の高温高圧ビームライン(BL04B1)を利用した。高圧装置としてKMA(SPEED-Mk.II)を用いた。アンビルには超硬合金を採用し、加圧部は5 mmとした。加熱材としてグラファイト、圧力標準物質には金を用いた。

出発物質としてサンカルロス産オリピンから予め合成したブリッジマナイト(Brg)とマグネシオウスタイト(Mw)の焼結体を用いた。第3段目アンビルとしてNPDを用い、その先端は0.8 mmもしくは0.6 mmとした。実験手順は一般的な高圧実験と同様に圧力発生効率を確認しながら加圧を行い、相変化に注意しつつデータを収集しながら徐々に加熱を行った。データ収集は300-1800秒とした。回収したNPDはレーザー顕微鏡を用いて塑性変形の有無を確認した。

圧力発生効率の向上はNPD背面のバックアップ材の素材やプロポジション、また試料部周辺の材料の再調整によって試験し、最適な構成を模索した。

(3-2) ダイヤモンドの降伏強度の決定

実験は3-1と同様SPring-8のBL04B1を利用した。高圧装置としてKMA(SPEED-Mk.II)を用いた。アンビルには超硬合金を採用し、加圧部は3もしくは5 mmとした。加熱材としてグラファイト、圧力標準物質には金とMgOの混合物を用いた。試料には1-2 μmのダイヤモンド粉末を用いた。加圧過程、加熱過程で得られた回折X線の半値幅から試料中の歪と応力をWeidner 1994で報告された手法を用いて導出し、その結果とダイヤモンドのヤング率から様々な温度での降伏強度を決定した。放射光実験では加熱は降伏完了まで連続して行うが、回収実験では再現性の確認のため、およそ100間隔で試料を回収し、その観察結果から放射光実験で得られた降伏開始温度のクロスチェックを行った。

4. 研究成果

(4-1) 6-8-2式を用いた圧力発生

図1に6-8-2式を用いて達成した圧力発生効率をKMAによる一般的な圧力発生効率とともに示した。一般的なKMAによる最大発生圧力が<25 GPa程度であるところ、6-8-2式を用いた場合は、技術開発の結果、最終的に地球のマントル全域を超える最大150 GPaに至る高圧発生を達成した。これまで大型の高圧発生装置を用いた圧力発生としては焼結ダイヤモンドを備えたKMAによる120 GPaが最高であり、この圧力はマントル最下部に位置するD層の直上程度に相当するため、同領域の鉱物相転移の観察を実施するには至っていない。しかし本結果はD層を超えて外核に至る圧力発生に成功しており、今後、この圧力発生技術を用いた地球マントル鉱物の詳細な相境界の決定や核マントル境界の構造に関するあらたな知見が得られる可能性がある。

(4-2)ダイヤモンドの降伏強度の決定

圧力は15 GPaと25 GPaまでの2つの条件で実験を行った。それぞれの圧力条件でダイヤモンドの回折X線の半値幅の解析結果からダイヤモンド中の歪の蓄積過程を測定し、加熱時にその開放過程の観察を行った。いずれの圧力においても加圧過程で蓄積した歪は加熱中に温度の上昇とともに徐々に開放された。この歪の開放が開始される温度は蓄積した歪が大きいほど低い温度から開始した。これらの結果から、500-1000 間におけるダイヤモンドの降伏強度を決定することに成功した(図2)。ダイヤモンドの降伏強度はこれまでに1000 -1500 という高温下でのみ測定されており、本研究ではこれを500 程度低下させ、室温下におけるダイヤモンドの強度に強い制約を与えることに成功した。

また、回収実験から得られた試料の表面観察の結果、歪が開放されはじめた温度以上の条件から回収されたダイヤモンド上には図2中に示した様な格子模様が確認され、ダイヤモンドのすべり面に対応する塑性変形が生じていたことが明らかとなった。これに対して歪が一定の値を保っていた温度から回収されたダイヤモンド上にはこのような形跡は見られなかった。これらの結果は、歪の開放開始条件と降伏開始条件が一致するという我々の推測を裏付ける。

ダイヤモンド材は硬質材料の加工などに代表される現代の工業の一端を担う物質である。そしてダイヤモンド材を用いる多くの環境は高い応力・温度下に曝されている。ダイヤモンドの降伏強度は我々の目的である高圧技術に関する知見集積のみならず、ダイヤモンド工具や半導体の加工条件の最適化、高速化、そして長寿命化など現代の工業においても有用である。

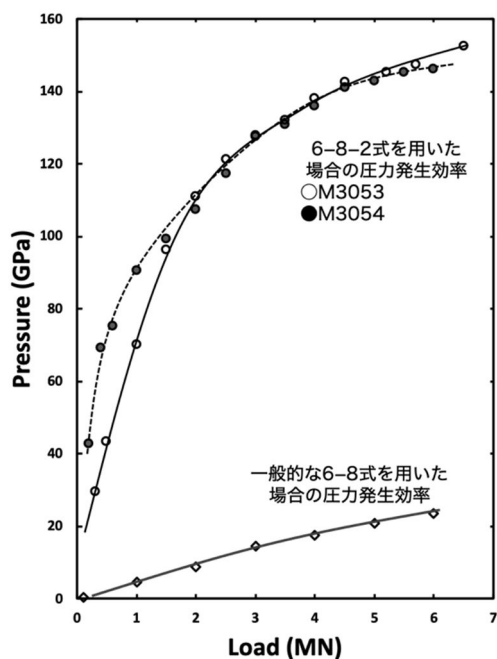


図1(左) 6-8-2加圧方式を用いて達成された高圧発生効率

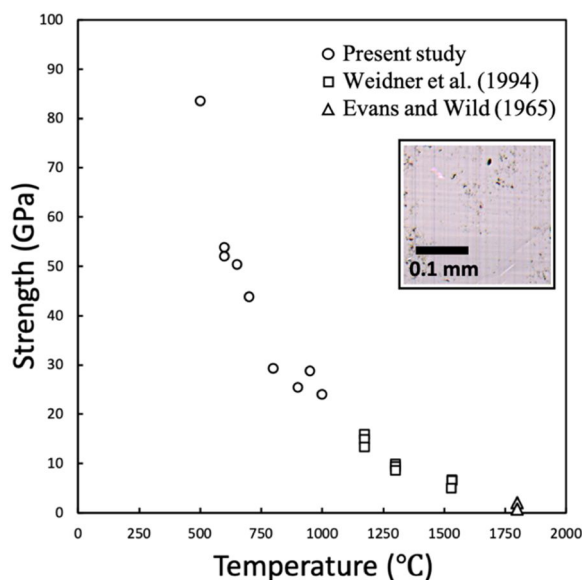


図2(右) 高温下におけるダイヤモンドの降伏強度

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Irifune, T., Ueda, C., Ohshita, S., Ohfuji, H., Kunimoto, T. and Shinmei, T.	4. 巻 40
2. 論文標題 Synthesis of nano-polycrystalline diamond from glassy carbon at pressures up to 25 GPa	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 96-106
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/08957959.2019.1702658	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Takehiro Kunimoto, Masayuki Nishi, Tetsuo Irifune
2. 発表標題 High-pressure generation to 150 GPa using a 6-8-2 type multianvil system with nano-polycrystalline diamond anvils.
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint meeting 2020: Virtual（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 國本健広 西真之 入船徹男
2. 発表標題 ナノ多結晶ダイヤモンドを備えた6-8-2加圧方式によるマントル最下部に至る高圧発生
3. 学会等名 第61回高圧討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 國本健広、入船徹男
2. 発表標題 Strength of diamond at high pressure and temperature determined by in situ X-ray diffraction measurement
3. 学会等名 第62回高圧討論会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------