

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 6月 23日現在

機関番号：16301

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009～2011

課題番号：21740382

研究課題名（和文） ヒメダイヤを用いたドリッカマー型装置の開発とポストペロブスカイト相境界の精密決定

研究課題名（英文） Development of Drickamer-type apparatus with HIMEDIA and precise determination of post-perovskite phase boundaries

研究代表者

西山 宣正（NISHIYAMA NORIMASA）

愛媛大学・地球深部ダイナミクス研究センター・准教授

研究者番号：10452682

研究成果の概要（和文）：ヒメダイヤをアンビルに使用することができるドリッカマー装置の技術開発を行った。ヒメダイヤを含む小型ダイヤモンドアンビルを採用して 60 万気圧以上の圧力発生を可能にした。

研究成果の概要（英文）：Technical development of Drickamer apparatus with nano-polycrystalline diamond (HIMEDIA) has been performed. We succeeded to generate pressure above 60 GPa using small diamond anvils including HIMEDIA.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2010年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：高圧地球科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学、岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：ヒメダイヤ、ドリッカマー型装置、ポストペロブスカイト

1. 研究開始当初の背景

（1）下部マントルの最主要鉱物である MgSiO_3 ペロブスカイトが、下部マントル最下部条件下で、ポストペロブスカイト相 (CaIrO_3 型) に相転移することが発見されて以来 (Murakami et al., 2004)、これまで説明が困難であった最下部マントルの特徴が、この相の存在により説明されるようになった。最下部マントルに存在する D” 層上面は、このペロブスカイトーポストペロブスカイト相転移に相当すると考えられている。

（2）この MgSiO_3 ポストペロブスカイト相に関する実験的研究は、130 万気圧というきわめて高い圧力を必要とするため、ダイヤモンドアンビル・セル (DAC) により行われた。

この装置では、2つの単結晶ダイヤモンドを対向させて、その間に試料をはさんで加圧を行う。このとき試料は、直径数十マイクロン、厚み数マイクロンときわめて小さくなる。その結果、試料には大きな圧力勾配と温度勾配が存在し、DAC を用いた実験によって、ペロブスカイトーポストペロブスカイト相境界の勾配を精密に決定することは困難である。

（3）このような状況を受けて、より低い圧力でペロブスカイトーポストペロブスカイト相転移を起こすアナログ物質を探索する研究が行われてきている。しかしながらいずれのポストペロブスカイトアナログ物質の合成には 50 万気圧以上の圧力を必要とするので、そのほとんどの研究が DAC によって実

施されてきた。しかしながら DAC を用いた場合、高温発生にはレーザー加熱が使用され、精密な温度コントロールによる相境界の精密決定は困難である。そこで 50 万気圧以上の圧力発生を可能にし、かつ、より安定した抵抗加熱との組み合わせを可能にする高圧発生装置の開発が望まれていた。

2. 研究の目的

(1) ヒメダイヤを含む焼結ダイヤモンドをアンビルに使用するドリッカマー型装置の開発を目的にした。

(2) ヒメダイヤは、ナノサイズの結晶からなるダイヤモンド焼結多結晶で、その硬度は単結晶ダイヤモンドのそれよりも高く、また熱伝導度が低い (Irvine et al., 2003)。そのため、高圧高温発生実験に使用するアンビル材に最適な材質として注目されている。また 1 センチ級の大型多結晶の合成も技術的には可能であり、大容量のドリッカマー型装置の開発をできる。大容量化により、高圧発生試料室内部に抵抗式加熱装置を組み込むことも可能になると考えられる。

(3) 大容量のドリッカマー型装置を世界最大の第 3 世代放射光施設である SPring-8, BL04B1 ビームラインに導入し、高圧下における X 線回折実験を可能にする。

(4) MgSiO_3 ポストスピネル相境界の決定を、開発した実験システムを用いて試みる。

3. 研究の方法

(1) 装置製作に必要な大型ヒメダイヤを合成する。愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センターに平成 20 年度末に設置予定の世界最大の Kawai 型装置 (6000 トン) を使用して、直径 8 mm 以上のヒメダイヤを合成する。これをドリッカマー型装置に使用可能な形状に加工する (加工業者に依頼)。

(2) ヒメダイヤをアンビル材に使用したドリッカマー型装置を開発し、室温下での圧力発生実験を行う。高圧発生のためにアンビルのデザイン、圧力媒体、ガスケットなどの材料、寸法を最適化する。

(3) ドリッカマー型装置を放射光施設に導入するためのステージなどを製作し、高圧下における X 線回折実験を行う。

4. 研究成果

(1) 装置製作に必要な大型ヒメダイヤを合成する。愛媛大学地球深部ダイナミクス研究センターの世界最大の Kawai 型装置 Botchan-6000 (6000 トン) を使用して、合成を行った。合成の手法や、合成条件などは、すでに確立されていたので、合成を容易に行うことができた。この合成実験の過程で、試料を SiO_2 にすることにより、

偶然、多結晶硬質材料を作ること成功した。この成果は現在、特許出願中である。

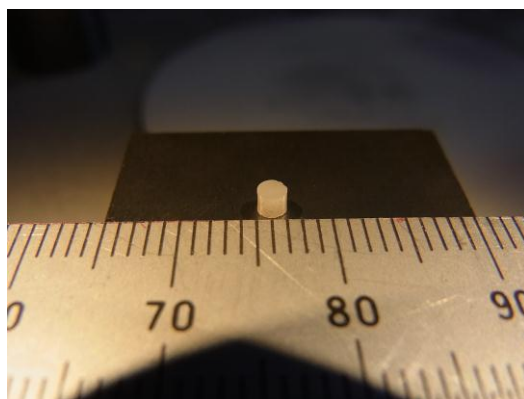


図 1 SiO_2 多結晶体の写真

(2) ドリッカマー型装置 (図 2) に焼結ダイヤモンドアンビル、およびヒメダイヤアンビルを装着し、圧力発生実験を行った。



図 2 本研究で使用した小型ドリッカマー型装置の写真

図 3 にドリッカマー型装置の圧力発生部をしめす。1、アンビルガイド；2、アンビル；3、ガスケットからなる。ガスケット部には、様々な物質の使用をテストした結果、パイロフィライトが最適であることがわかった。アンビルは組み合わせ方式を採用し、焼結ダイヤモンドアンビルあるいはヒメダイヤを使用する部分の体積 (図 3a 中の 1) をできるだけ小さくし、実験のコストをできるだけ低くするようにした。

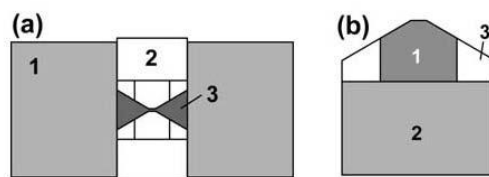


図 3 ドリッカマー型装置の圧力発生部とアンビルの断面図

(3) Fe₂O₃ と CoO の圧力誘起相転移を高圧下における電気抵抗測定により検出し、圧力発生の評価を行った。図4に試料室の構成を示す。試料はマグネシア単結晶の試料容器に入れ、その上下をモリブデンの電極で封をする。これらはパイロフィライトガasket中心の穴にセットされる。

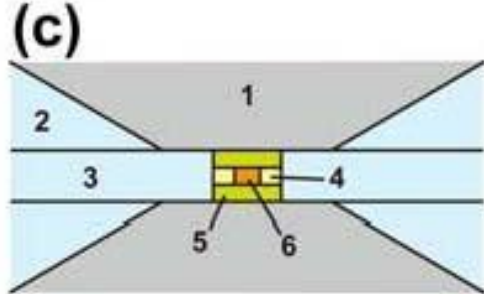


図4 圧力媒体、試料部の断面の概念図

(4) Fe₂O₃ は、50 万気圧で、CoO は 55 万気圧で電気抵抗値が急激に低下する（金属化する）相転移が起こることがこれまでの研究により知られている。図にその結果

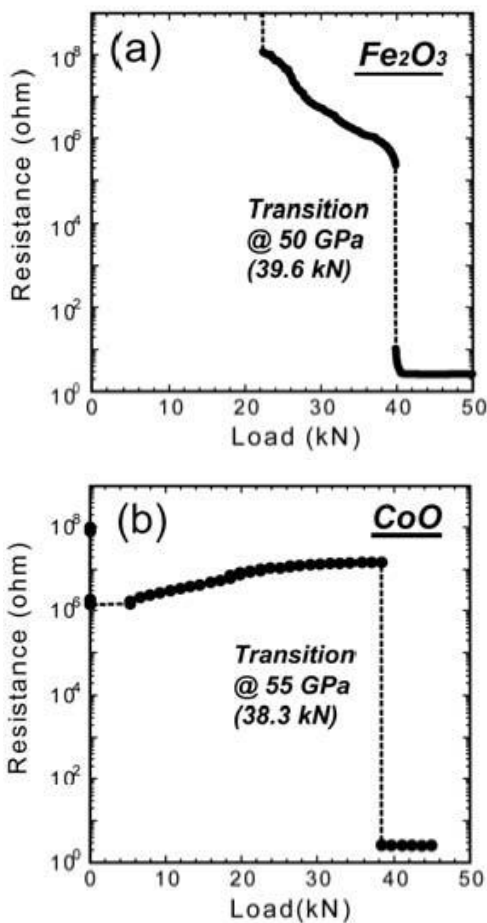


図5 Fe₂O₃ と CoO の電気抵抗の荷重依存性。電気抵抗が急落する部分で相転移を検出。

(5) 図6にはそれぞれの実験のあとに回収した試料部の断面の光学顕微鏡写真を示した。これにより、図5に示す電気抵抗の急激な低下は、電極の短絡などではなく試料の相転移であることが明確にわかる。また、より高圧を発生させた試料ほど、その厚みが薄くなっていることがわかる。

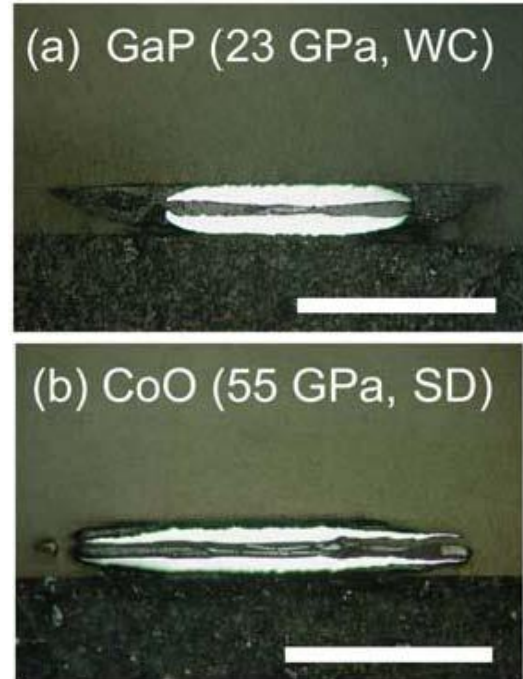


図6 実験後の試料部の断面写真

(6) 本研究のドリッカー型装置を使った結果と、過去の研究の結果を比較したものを図7に示す。本研究で開発した装置では 60 万気圧程度の発生に成功しており、これまでの装置よりも高効率でこれを達成している。今後の開発により、100 万気圧を大きく超える圧力発生が期待される。

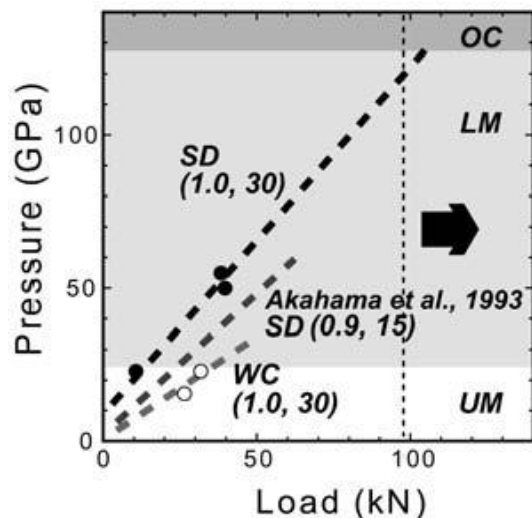


図7 発生圧力と荷重の関係。過去の研究との比較

(7) 本研究で開発した小型ドリッカマー型装置を、世界最大の第3世代放射光施設 SPring-8 に持ち込み、高圧下における X 線回折実験を行った。その実験セットアップの一例を、図 8 に示す。金を試料として、その格子体積の圧力による変化を測定することにより、発生圧力を算出した。圧力標準物質を使用した実験と同様に、60 万気圧程度までの圧力発生を確認した。

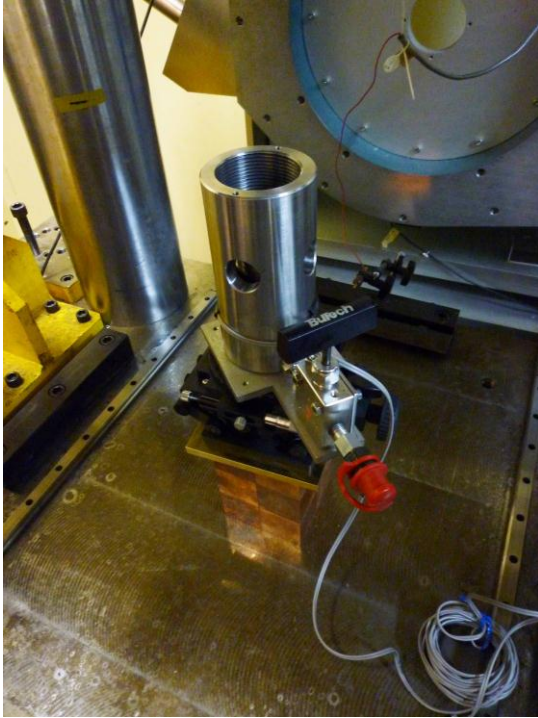


図 8 SPring8 における実験セットアップの一例の写真

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 25 件)

- ① Merkel S, Gruson M, Wang Y, Nishiyama N, Tomé C N. Texture and elastic strains in hcp-iron plastically deformed up to 17.5 GPa and 600 K: experiment and model. Modelling Simul Mater Sci Eng. 査読有. Vol. 20, 2012, 024005.
- ② Nishiyama N, Maeda T, Irifune T, Wada K, Shinmei T, Isobe F, Akatsu M. Pressure generation up to 55 GPa using a Drickamer-type apparatus with sintered diamond anvils toward use of nano-polycrystalline diamond as anvils. J. Phys.: Conference series. 査読有. Vol. 215, 2010, 012189.

- ③ Nishiyama N, Wang Y, Irifune T, Sanehira T, Rivers ML, Sutton SR, Cookson D. A combination of Drickamer anvil apparatus and monochromatic X-rays for stress and strain measurements under high pressure. J. Synchrotron Rad., 査読有, vol. 16, 2009, 472.
- ④ Liu W, Kung J, Li B, Nishiyama N, Wang Y. Elasticity of $(\text{Mg}_{0.87}\text{Fe}_{0.13})_2\text{SiO}_4$ wadsleyite to 12 GPa and 1073 K. Phys Earth Planet Inter. 査読有, vol. 174, 2009, 98.
- ⑤ Sueda Y, Irifune T, Sanehira T, Yagi T, Nishiyama N, Kikegawa T, Funakoshi K. Thermal equation of state of CaFe_2O_4 -type MgAl_2O_4 . Phys Earth Planet Inter. 査読有, vol. 174, 2009, 75.

[学会発表] (計 8 件)

- ① N. Nishiyama, T. Irifune, Y. Wang, T. Sanehira, M. Rivers. Plastic deformation of polycrystalline sintered diamond materials in the DDIA with HIMEDIA pistons. Joint AIRAPT-22 & HPCJ-50. July 28th, 2009. Odaiba, Tokyo, Japan.
- ② 西山宣正、清家郷詩、入船徹男、大藤弘明、河野義生、松下正史、高橋学. 超高温高硬度を有する SiO_2 ステイショバイト・ナノ多結晶体の合成. 日本セラミックス協会 第 24 回秋季シンポジウム. 2011 年 9 月 8 日. 北海道札幌市

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: ステイショバイト焼結多結晶体及びその製造方法

発明者: 西山宣正、入船徹男

権利者: 愛媛大学

種類: 特許

番号: 特願 2011-223844

出願年月日: 2011 年 10 月 11 日

国内外の別: 国内

6. 研究組織

(1) 研究代表者

西山 宣正 (NISHIYAMA NORIMASA)

愛媛大学・地球深部ダイナミクス研究センター・准教授

研究者番号: 10482682