

令和 6 年 6 月 4 日現在

機関番号：16301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03703

研究課題名（和文）高温高压下における硫黄の熔融ケイ酸塩 - 液体鉄間分配に関する第一原理計算

研究課題名（英文）Ab initio calculations of liquid iron-molten silicate partition of sulfur under high pressure and high temperature

研究代表者

土屋 卓久 (TSUCHIYA, Taku)

愛媛大学・地球深部ダイナミクス研究センター・教授

研究者番号：70403863

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：地球外核は主に鉄ニッケル合金液体からなるが、それ以外にも軽元素がある程度含まれていることが分かっている。しかしその詳細ははまだ不明であり、地球深部科学における長年の重要問題の一つとなっている。本研究では軽元素として硫黄に着目し、硫黄が外核中に存在し得るかどうかが第一原理計算法を用いて解析した。その結果、従来の実験研究に見られた不一致が主に分配係数の圧力依存性と鉄中の酸素濃度により説明できること、硫黄は高温高压下で十分親鉄的であり外核中の主要軽元素となり得ること、核が少量の酸素を含み火星程度の大きさの微惑星が衝突・成長した場合に現在の地球マンツルの硫黄濃度が再現できることなどの新たな知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球外核は主に鉄ニッケル合金液体からなるが、それ以外にも軽元素がある程度含まれていることが分かっている。しかしその詳細ははまだ不明であり、地球深部科学における長年の重要問題の一つとなっていた。本研究では、実験が困難な超高温超高压下での硫黄の親鉄性について独自の理論計算の手法を用いて調べることにより、従来の実験に見られた不一致の原因や、異なる実験結果から提案された正反対の考察に対する理論面からの評価、現在の地球マンツルに含まれる硫黄量を再現することができる地球集積モデルの提案、これらから最終的に導き出される地球外核組成など、世界的にも非常に注目度の高い新たな知見を数多く得ることに成功した。

研究成果の概要（英文）：The Earth's core is composed primarily of iron-nickel alloy liquids, with the addition of some light elements. However, the details of these elements are still unknown, and they have long been one of the major research targets in deep Earth science. In this study, we focused on sulfur as a light element and analyzed whether sulfur could exist in the outer core using ab initio calculation methods. We then obtained several new findings and insights. First, the discrepancies observed in previous experimental studies can be explained mainly by the pressure dependence of the partition coefficient and the oxygen concentration in iron. Furthermore, our results indicate that sulfur remains sufficiently siderophile at high temperatures and high pressures to be a major light element in the outer core. Finally, our findings suggest that if Mars-sized planetesimals with the cores containing a small amount of oxygen impacted and grew, the current Earth's mantle sulfur content can be reproduced.

研究分野：鉱物物性理論

キーワード：核 - マンツル相互作用 硫黄の親鉄性 地球外核の化学組成 地球の揮発性元素進化 第一原理自由エネルギー計算 熱力学積分法

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

地球外核は主に鉄ニッケル合金液体からなるが、多くの研究からそれ以外にも約 10wt%程度軽元素を含むことが分かっている (Birch, 1964; Brown and McQueen, 1986; Anderson and Isaak, 2002; Alfè et al., 2002; Pozzo et al., 2013; Ichikawa et al., 2014; Kuwayama et al., 2020)。水素 (H)、炭素 (C)、酸素 (O)、シリコン (Si)、硫黄 (S) などが軽元素の主な候補と考えられている (Birch, 1964)。その詳細は現在でもまだよくわかっていない (Ichikawa and Tsuchiya, 2020)。核の組成を制約することができれば、全地球の化学組成、ひいては地球の原材料物質や形成過程の理解につながる。このため核に含まれる軽元素の特定は、長らく地球深部科学の第一線級の研究課題に位置付けられている。

地球中心核は、地球形成初期にマグマオーシャン中において金属鉄相が分離・沈降することにより誕生したと考えられている。そのため、特に、熔融ケイ酸塩と液体金属鉄間での分配挙動が、地球内部での微量元素の化学進化を規定するうえで重要となる (Rubie et al., 2003)。硫黄は、核に含まれる軽元素の有力な候補の一つであるとともに、親鉄性と揮発性を同時に有する特色ある元素である。そのため、地球集積時における核-マントル間での硫黄の分配を明らかにすることで、核の化学組成や原始地球における揮発性物質の集積プロセスについて重要な知見を得ることができる (Rubie et al., 2011)。このような地球化学的及び高圧地球科学的動機により、鉄-ケイ酸塩間における硫黄の分配については、これまで様々な実験的研究が行われてきた。マルチアンビル装置を用いた研究では、圧力増加に伴い硫黄の親鉄性の増加がみられたことから、Li and Agee (2001)は硫黄が核中の主たる軽元素であると主張し、Rose-Weston et al. (2009)や Boujibar et al. (2014)は現在のマントル中の硫黄の起源について、核形成後における親鉄性物質の地球への集積、いわゆるレイト・ベニアに関連付けて議論を行った (図 1 ○△▽)。

しかしながら、最近になり Suer et al. (2017)は、ダイヤモンド・アンビル・セルを用い、深部マグマオーシャンにおいて核分離が生じたと考えられる 46 GPa から 91 GPa までの圧力範囲、3100K から 4100K の温度範囲において硫黄の分配係数を測定し、マルチアンビル装置による低圧下での結果 (Rose-Weston et al., 2009; Boujibar et al., 2014) を外挿した値よりも、1桁小さく負の圧力依存性を持つ分配係数を報告した (図 1 ◆)。この結果は、高圧下でも硫黄が想定されたほど親鉄的ではないことを示しており、また圧力により硫黄の親鉄性が増加するという従来の認識 (Li and Agee, 1996, 2001; Mavrogenes and O'Neill, 1999; Rose-Weston et al., 2009; Boujibar et al., 2014) をも否定するものである。このように、特にダイヤモンド・アンビル・セルを用いた実験とマルチアンビル装置を用いた実験の間では、分配係数の値に大きな不一致がみられている。またマルチアンビル装置による実験においても、分配係数の絶対値はそれぞれの実験において必ずしも一致しているわけではない。これらの不一致の原因としては、高温での微小試料の均質性に関するレーザー加熱式ダイヤモンド・アンビル・セルの一般的な問題点の他、マルチアンビル装置を用いた実験における急冷回収した際に析出する硫化物を含む試料の分析に関する問題点なども指摘されている (Suer et al., 2017)。また、ケイ酸塩-鉄間における硫黄の分配は、実験的には制御が容易でない酸素雰囲気に対しても敏感に変化することが知られており (Rose-Weston et al., 2009; Boujibar et al., 2014) これらのことから、実験的に硫黄の分配係数を高温高圧下において高精度で決定するには種々の困難が存在しており、マグマオーシャン深部条件においては硫黄の親鉄性については、いまだ未解明であるといえる。

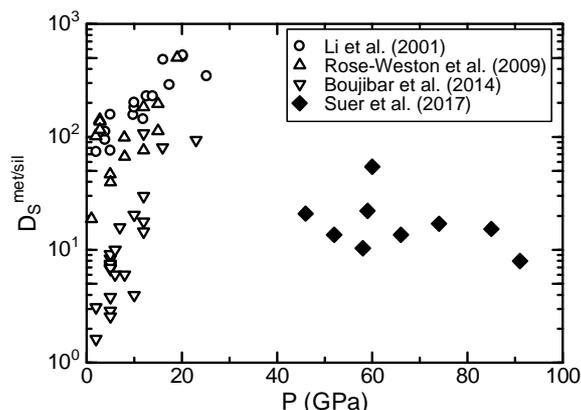


図 1 高圧実験により決定された硫黄の分配係数

2. 研究の目的

前項において説明したように、地球外核は主に鉄ニッケル合金液体からなるがそれ以外にも約 10wt%程度軽元素を含むことが分かっており、硫黄はその有力な候補の一つであると考えられている。核中に存在する軽元素であるためには、高温高圧条件下において親鉄性を有する必要があるが、最近になり硫黄は高圧下では従来考えられていたほど親鉄的ではなく、核は硫黄に乏しいとする実験結果 (Suer et al., 2017) が報告された。しかし、実験的に高温高圧下において元素分配を精密に決定することは現在でも技術的に容易でないため、実験ごとに異なる結果が報告されている。本研究の目的は、地球深部の高温高圧条件下での熔融ケイ酸塩-液体鉄間における硫黄の分配係数を、第一原理計算により明らかにすることである。得られた結果に基づき、従来の実験研究の信頼性について検討するとともに、硫黄が地球核に含まれる主たる軽元素の候補となり得るかどうか判定し、さらには地球集積時における揮発性元素獲得過程

についても考察を行う。

理論計算においては、元素分配を計算するためには交換反応の自由エネルギーを求める必要があるが、特に液体の場合はエントロピーの定義が容易でないことにより自由エネルギーの計算は一般的に大変困難である。このため、硫黄のみならず第一原理計算により液相間の元素分配を扱った例はこれまでほとんどない。そこで、本研究では、エントロピーの直接的な評価を行わずに自由エネルギーの計算を可能とする統計力学的手法である熱力学積分法 (Kirkwood, 1935) と第一原理分子動力学計算法を組み合わせた独自の第一原理熱力学積分分子動力学法 (AI-TI-MD 法) を、世界で初めて熔融ケイ酸塩 - 液体鉄間における硫黄の分配特性に適用し、分配係数、その温度圧力依存性、また異なる硫黄分子種や酸素分圧の影響などを高精度で決定する。この独自の手法は基本部分の開発はすでに終了しており、鉱物の融解曲線 (Taniuchi and Tsuchiya, 2018) や、元素分配 (Xiong et al. 2018; 2021) の計算を通して、非常に高い有用性を持つことがすでに実証済みである。

3. 研究の方法

本研究では、AI-TI-MD 法を用いて、地球深部の高温高压条件下での熔融ケイ酸塩 - 液体鉄間における硫黄の分配係数を明らかにする。まず分配係数に対する温度・圧力・酸素雰囲気の効果や、 SO_2 、 H_2S 、単体 S といった硫黄の化学種の相違による影響、さらには熔融ケイ酸塩及び液体鉄の組成の影響について調べる。条件を系統的に変化させることで、熔融ケイ酸塩 - 液体鉄間での硫黄の分配特性について、熱化学的に体系化する。その結果に基づき、まず従来の実験研究の信頼性や不一致の原因について考察を行う。その後、初期地球において核 - マントル分離が生じた温度圧力条件やマグマオーシャンの酸素雰囲気などを複数仮定し、それぞれの場合にどの程度硫黄が地球核に含まれるか評価することで、硫黄が核中の主たる軽元素の候補となり得るかどうかを検討する。これらを解析したのちに、さらに地球集積時における揮発性元素獲得過程についても考察する。地球集積過程における硫黄獲得量を均質集積及び非均質集積を仮定してそれぞれ算出し、現在のマントル中の硫黄濃度 (200±80ppm, Lorand et al., 2013) に合致するようなプロセスを探索する。

一方、計算手法に関しても次に示すような高度化を行う。AI-TI-MD 法により液体の自由エネルギーを非経験的に求めることが可能となるが、参照系 (本研究では理想気体) から第一原理系へポテンシャルエネルギーを徐々に変化させながら数値的に積分 (熱力学積分) を行うため、十分信頼できる分配係数を得るために必要となる、約 10meV/原子以下の計算精度で自由エネルギーを評価するには、通常的第一原理分子動力学計算の約 30 倍に達する規模の計算量が必要となる。また、本研究では温度、圧力、酸素雰囲気、分子種などを変化させて様々な条件で計算を実行する必要があるため、計算の高速化・効率化が不可欠である。そこで、ガウス求積法を用いて数値積分精度を担保しながら必要となる計算点数を減少させることで、計算時間の大幅な短縮に成功した。

4. 研究成果

(1) 硫黄の化学種の相違による親鉄性の変化

硫黄の分配係数に対する SO_2 、 H_2S 、単体 S などの硫黄の化学種の相違による影響を調べるために、液体鉄 - 熔融ケイ酸塩間におけるこれらの分子の交換反応について計算を行った。その結果、硫黄は S_2 、 SO_2 、 H_2S の順に高い親鉄性を有することが分かった。いずれの化学種の場合においても硫黄の親鉄性は十分に高く、また(2)において詳述するように高压下でより親鉄的になる傾向がみられた。また実験的に仮定されている硫黄とケイ酸塩中の鉄の平衡反応 ($\text{Fe}_{\text{metal}} + 1/2\text{O}_2 = \text{FeO}_{\text{silicate}}$) についても調べ、この場合も硫黄は高い親鉄性を有するという結果を得た (図 2)。得られた硫黄の分配係数は他の核中軽元素の候補と比べて十分に大きく、そのため何らかの理由で外部への硫黄の選択的な散逸が生じない限りは、必然的に地球集積時に他の候補軽元素と同量かそれ以上の量の硫黄が核に吸収されたと考えるべきであると考えられる。

(2) 硫黄分配係数の圧力依存性

本研究による計算の結果、おおよそ 20~30 GPa を境に硫黄の分配係数の圧力依存性が減少するという挙動が予期せず見出された (図 2 ■▲●)。このことから、マルチアンビル装置を用いた実験研究とダイヤモンド・アンビル・セルを用いた実験研究により報告された硫黄の分配係数の大きな相違が、実験が行われた圧力範囲の相違に起因する可能性が高いことを世界的にも初めて指摘した。

液体鉄及び熔融ケイ酸塩の構造について解析を行った結果、この圧力依存性の変化は熔融ケイ酸塩の圧縮機構の変化によ

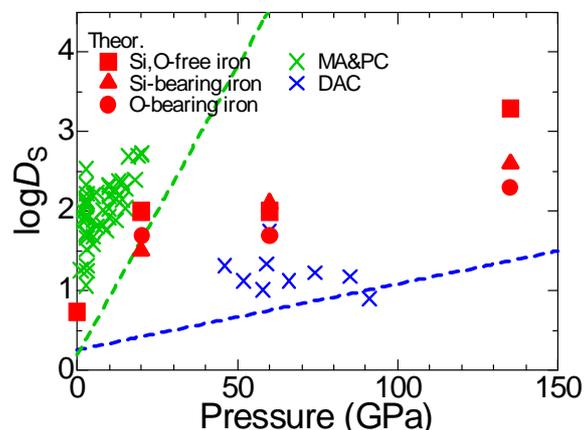


図 2 本研究による硫黄の分配係数の計算結果と過去の実験結果との比較

り生じる可能性が高いことが分かった。すなわち、常圧から 20~30 GPa 程度の圧力範囲において、ケイ素イオンに対する酸素配位数が 4 配位から 5 配位に向けて急激に増加していく一方、その後は緩やかな配位数増加がみられ、135 GPa においてもケイ素に対する酸素配位数は 6 程度であるという結果が得られた。このことは、20~30 GPa 程度までの圧力範囲において配位数増加に伴い熔融ケイ酸塩中の間隙が急激に減少し、高圧高密度型の高配位数構造へと変化した後は構造隙間の圧縮も緩やかに進むことを意味する。硫黄は熔融ケイ酸塩中で構造隙中に存在しており、そのため構造隙が急減少する低圧領域で硫黄が熔融ケイ酸塩から排出される傾向がより顕著となったとして、本研究で得られた分配係数の圧力依存性の変化が説明できると考えられる。

(3) 硫黄分配係数に及ぼす鉄中軽元素の効果

低圧領域では本計算結果(図 2 ■▲●)とマルチアンビル装置を用いて得られた実験結果(×)が温度条件の相違も考慮すれば非常に良く一致しているといえるのに対し、高圧領域でのダイヤモンド・アンビル・セルを用いて得られた分配係数(×)は本計算結果に比べて顕著に小さい値となっている。この相違の原因について考察するために、硫黄分配係数に与える鉄中軽元素の効果について計算を行ったところ、液体鉄が酸素及びケイ素のいずれを含む場合も、硫黄の親鉄性が減少するという結果が得られた(図 2)。この結果に基づき過去の実験におけるサンプル組成の確認を行ったところ、マルチアンビル装置を用いた実験では液体鉄中にほとんど酸素が含まれていなかったのに対し、ダイヤモンド・アンビル・セルを用いた実験では液体鉄中に多量の酸素が含まれていたことが確認でき、後者の実験で得られた小さな分配係数が液体鉄中に多量の酸素が溶解したこと起因するとして説明できることが分かった。この鉄中酸素濃度の相違は、圧力増加に伴い鉄中の酸素溶解度が上昇したために生じたと考えられる。

また、鉄中の酸素やケイ素がなぜ硫黄の親鉄性を減少させる排他的効果を持つのかを理解するために、液体の局所構造や電子状態について解析を行った結果、酸素については溶解により鉄酸素合金液体の体積が減少し、それに伴い構造隙間も減少することにより硫黄が液体鉄から排除される傾向が強まるとして、一方ケイ素の場合は鉄原子とケイ素原子の間にわずかながら共有結合的相互作用が形成されることにより硫黄を排除しようとする性質が働くとして、それぞれの挙動に対して異なるメカニズムでの解釈を行った。

(4) 原始地球の成長に伴うマントル中硫黄濃度の推移

本計算によって得られた硫黄の液体鉄 - 熔融ケイ酸塩間における分配係数を、温度・圧力・鉄中酸素濃度・ケイ酸塩中鉄濃度の関数としてモデル化した。この作成した硫黄分配モデルを用いて、原始地球の成長に伴うマントル中硫黄濃度の推移について、原始地球集積における微惑星サイズや微惑星核中の酸素濃度を様々に変えながら推算した(図 3)。その際、集積する微惑星のサイズは固定し、始原的な隕石であるコンドライトと同程度の 3 mol%の硫黄が微惑星中に均質に分布する、初期核とマグマオーシャンは初期地球の核マントル境界において反応すると単純化した。解析の結果、10 mol%以上の高酸素濃度の核を持つ小さい微惑星が多数衝突・合体し地球が形成された場合は、最終的な核中の硫黄濃度は現在の地球マントル中の硫黄濃度(200±80ppm)よりも過剰となること、逆に 1 mol%以下の低酸素濃度の核を持つ微惑星が衝突・合体し地球が形成された場合は、最終的な核中の硫黄濃度は現在の地球マントル中の硫黄濃度よりも不足することが分かった。従って、これら以外の条件、すなわち核に 5 atom%程度の酸素を含む火星程度のサイズの微惑星が 4~7 個程度集積して地球が形成された場合に、最終的に現在の地球マントル中の硫黄濃度が再現できることが分かった。

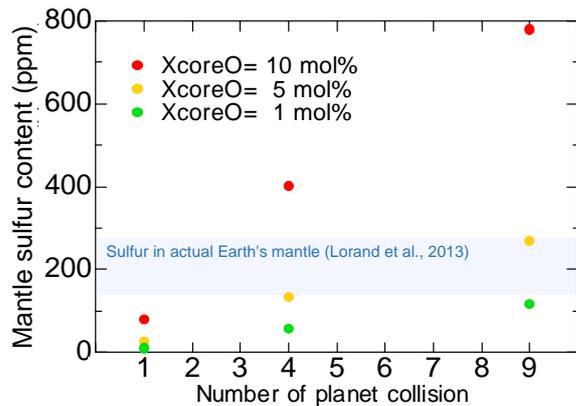


図 3 本研究により得られた硫黄分配モデルを用いて推算された原始地球の成長に伴うマントル中硫黄濃度

(5) 地球核中の硫黄濃度に関する考察

地球の原材料物質がコンドライトと同程度の 3 mol%程度の硫黄を含み、それが(4)で設定したような条件で初期地球の成長に伴って核とマントルに分配されたとすると、最終的な地球核中の硫黄濃度は約 9 mol%となることになる。(4)で示した条件では硫黄以外に酸素も 5 mol%程度液体鉄に含まれることから、硫黄及び酸素を合わせれば外核の密度欠損の大半が説明できる(Ichikawa and Tsuchiya, 2020)という興味深い結論が得られる。今後他の軽元素も加えてより複雑な多成分系での硫黄の液体鉄 - 熔融ケイ酸塩間分配挙動を解明し、これを用いて現実的な条件で原始地球成長に伴う核中硫黄濃度の推移を解析することにより、外核組成のより精密な制約が進展すると期待される。

<引用文献>

Alfè et al., *Phys. Rev. B* **65** 165118 (2002); Anderson and Isaak, *Phys. Earth Planet. Inter.* **131** 19 (2002); Birch, *J. Geophys. Res.*, **69** 4377 (1964); Boujibar et al., 2014; Suer et al., *Earth Planet. Sci. Lett.* **469** 84 (2017); Brown and McQueen, *J. Geophys. Res.* **91** 7485 (1986); Ichikawa et al., *J. Geophys. Res.* **119** 240 (2014); Ichikawa and Tsuchiya, *Minerals* **10** 59 (2020); Kirkwood, *J. Chem. Phys.* **3** 300 (1935); Kuwayama et al., *Phys. Rev. Lett.* **124** 165701 (2020); Li and Agee, *Geochim. Cosmochim. Acta* **65** 1821 (1996); Li and Agee, *Geophys. Res. Lett.* **28** 81 (2001); Lorand et al., *Lithos* **164** 2 (2013); Mavrogenes and O'Neill, *Geochim. Cosmochim. Acta* **63** 1173 (1999); Pozzo et al., *Phys. Rev. B* **87** 014110 (2013); Rose-Weston et al., *Geochim. Cosmochim. Acta* **73** 4598 (2009); Rubie et al., *Earth Planet. Sci. Lett.* **205** 239 (2003); Rubie et al., *Earth Planet. Sci. Lett.* **301** 31 (2011); Taniuchi and Tsuchiya, *J. Phys. Cond. Mat.* **30** 114003 (2018); Xiong et al., *J. Geophys. Res.* **123** 6451 (2018); Xiong et al., *Geophys. Res. Lett.* **48** e2020GL090769 (2021)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 5件）

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 TAKANO Masahiro, KAGI Hiroyuki, MORI Yuichiro, AOKI Katsutoshi, KAKIZAWA Sho, SANO-FURUKAWA Asami, IIZUKA-OKU Riko, TSUCHIYA Taku | 4. 巻 - |
| 2. 論文標題 Low reactivity of stoichiometric FeS with hydrogen at high-pressure and high-temperature conditions | 5. 発行年 2024年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Mineralogical and Petrological Sciences | 6. 最初と最後の頁 in press |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2465/jmps.240122 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Ritterbex Sebastian, Tsuchiya Taku, Drury Martyn, Plumper Oliver | 4. 巻 129 |
| 2. 論文標題 Atomic Scale Study of Intercrystalline (Mg,Fe)O in Planetary Mantles: Mechanics and Thermodynamics of Grain Boundaries Under Pressure | 5. 発行年 2024年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Geophysical Research: Solid Earth | 6. 最初と最後の頁 e2023JB028375 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2023JB028375 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Dekura Haruhiko, Tsuchiya Taku | 4. 巻 35 |
| 2. 論文標題 Ab initio lattice thermal conductivity of (Mg,Fe)O ferropericlaste at the Earth's lower mantle pressure and temperature | 5. 発行年 2023年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter | 6. 最初と最後の頁 305402 ~ 305402 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/acce16 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Ohmura Satoshi, Shimojo Fuyuki, Tsuchiya Taku | 4. 巻 10 |
| 2. 論文標題 Ab Initio Molecular-Dynamics Study of Structural and Bonding Properties of Liquid Fe-Light-Element-O Systems Under High Pressure | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Frontiers in Earth Science | 6. 最初と最後の頁 873088 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3389/feart.2022.873088 | 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 - |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Tsuchiya Taku, Nakagawa Saito | 4. 巻 34 |
| 2. 論文標題 A new high-pressure structure of SiO ₂ directly converted from α -quartz under nonhydrostatic compression | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter | 6. 最初と最後の頁 304003 ~ 304003 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ac6f3a | 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 - |

| | |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名 Noda Masamichi, Inoue Toru, Tsuchiya Taku, Higo Yuji | 4. 巻 42 |
| 2. 論文標題 Reassessment of a bond correction method for in situ ultrasonic interferometry on elastic wave velocity measurement under high pressure and high temperature | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 High Pressure Research | 6. 最初と最後の頁 278 ~ 293 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/08957959.2022.2112677 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|---|-----------------------------|
| 1. 著者名 Xiong Zhihua, Tsuchiya Taku, Van Orman James A. | 4. 巻 48 |
| 2. 論文標題 Helium and Argon Partitioning Between Liquid Iron and Silicate Melt at High Pressure | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Geophysical Research Letters | 6. 最初と最後の頁 e2020GL090769 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2020GL090769 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計50件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 22件)

| |
|--|
| 1. 発表者名 土屋卓久, 北口一志 |
| 2. 発表標題 Charge disproportionation reaction of iron in silicate melts predicted from first principles free energy calculations |
| 3. 学会等名 第6回惑星深部研究会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 K. Suzuki and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Hf and W partitioning between liquid metal and silicate melt calculated by first principle thermodynamic integration of molecular dynamics and the evolution of ¹⁸² W isotope of the earth |
| 3. 学会等名 AGU Fall Meeting 2023 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 高野将大, 鍵裕之, 森悠一郎, 青木勝敏, 柿澤翔, 佐野亜沙美, 飯塚理子, 土屋卓久 |
| 2. 発表標題 中性子回折と第一原理計算を用いたFeS Vの水素化挙動の探索 |
| 3. 学会等名 第64回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 伊藤慧, 土屋卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理計算に基づく鉄 - ケイ酸塩間硫黄分配実験における不一致の解決 |
| 3. 学会等名 第64回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 S. Huang and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Nitrogen-carbon-argon features of the bulk silicate Earth established by deep core-mantle differentiation |
| 3. 学会等名 第64回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 出倉春彦, 土屋卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理鉱物物性額に基づくCMB熱流量モデリング |
| 3. 学会等名 第64回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 北口 一志, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理計算から予測される高圧条件におけるがん鉄ケイ酸塩メルト中の鉄の電荷不均化反応と組成の影響 |
| 3. 学会等名 第64回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 S. Huang and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Missing nitrogen of the bulk silicate Earth established by deep core-mantle differentiation |
| 3. 学会等名 日本地球化学会 第70回年会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 鈴木勝彦, 土屋卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理計算による熔融鉄と珪酸塩メルト間の Hf と W の分配と地球の ^{182}W 同位体進化 |
| 3. 学会等名 日本地球化学会 第70回年会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 高野 将大, 鍵 裕之, 森 悠一郎, 青木 勝敏, 柿澤 翔, 佐野 亜沙美, 飯塚 理子, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 中性子回折と分子動力学法を用いたFeSVの水素化挙動の探索 |
| 3. 学会等名 日本鉱物科学会2023年年会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 High-pressure metal/silicate partitioning of volatiles |
| 3. 学会等名 第五回惑星深部研究会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Effects of light elements on the water partitioning between liquid metal and molten silicate under high pressure and temperature |
| 3. 学会等名 The Joint 28th AIRAPT and 60th EHPRG International Conference 2023 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 K. Suzuki and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Hf and W partitioning between liquid metal and silicate melt based on first principle calculation and the early earth's evolution of ^{182}W isotope |
| 3. 学会等名 Goldschmidt 2023 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 高野 将大, 鍵 裕之, 森 悠一郎, 柿澤 翔, 佐野 亜沙美, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 First-principles calculations and neutron diffraction measurements on hydrogenation of FeS at high-pressure conditions. |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 土屋 旬, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理熱力学積分法による氷超イオン相の自由エネルギー計算 |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 北口 一志, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理計算から予測される 含鉄ケイ酸塩メルトにおける鉄の電荷不均化反応 |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 出倉 春彦, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 Ab initio lattice thermal conductivity of pyrolytic lower mantle to infer the core-mantle boundary heat flow |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 伊藤 慧, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 Sulfur partitioning between light element-bearing liquid iron and molten silicate |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 鈴木 勝彦, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理計算による溶融鉄-ケイ酸塩メルト間でのHf-W分配と ^{182}W 同位体進化 |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 土屋 卓久, 伊藤 慧, 北口 一志, H. Shengxuan |
| 2. 発表標題 Effects of light elements on the water partitioning between liquid metal and molten silicate under high pressure and temperature |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 S. Huang and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 The Earth's nitrogen budget set by core-mantle differentiation |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2023年大会 (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名 土屋卓久 |
| 2. 発表標題 液体鉄-熔融ケイ酸塩間における元素分配の第一原理計算 |
| 3. 学会等名 第69回日本地球化学会年会 (招待講演) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Ab initio evaluation of transport properties and element partitioning under deep Earth conditions. |
| 3. 学会等名 Gordon Research Conference 2022 (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Core-mantle chemical interactions from ab initio calculations |
| 3. 学会等名 SEDI 2022 (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Taku Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Effects of light elements on the water partitioning between liquid metal and molten silicate |
| 3. 学会等名 第4回惑星深部研究会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Toshiki Ohtaki, Satoshi Kaneshima and Taku Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Exploration of velocity structure in the lowermost outer core (F layer) beneath east-central to central Pacific Ocean |
| 3. 学会等名 AGU2022, Chicago, USA & Online (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 伊藤 慧, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 鉄 ケイ酸塩間元素分配の第一原理シミュレーションによって予測される硫黄を含む地球核 |
| 3. 学会等名 第63回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 北口 一志, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理計算から予想される含鉄ケイ酸塩メルトにおける鉄の電荷不均化反応 |
| 3. 学会等名 第63回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 鈴木 勝彦, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理計算による熔融鉄-熔融ケイ酸塩間のHf/W分配と182W同位体の初期進化 |
| 3. 学会等名 第69回日本地球化学会年会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 S. Ritterbex and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Ab initio investigation of the intercrystalline mechanical behavior of ferropericlase at extreme pressures of planetary mantlesng properties of liquid Fe-Light-Element-0 systems under high pressure: ab initio molecular-dynamics simulations |
| 3. 学会等名 EGU (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 S. Ohmura and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Bonding properties of liquid Fe-Light-Element-0 systems under high pressure: ab initio molecular-dynamics simulations |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 土屋 旬, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 第一原理熱力学積分法による氷超イオン相の自由エネルギー計算 |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 K. Ito and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Effects of the core mantle interaction on the sulfur partitioning in the deep Earth |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Tsuchiya and A. Ohba |
| 2. 発表標題 Water partitioning between liquid metal and molten silicate under high pressure and temperature |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Ab initio computation on the element distribution between liquid metal and molten silicate |
| 3. 学会等名 ACHPR-10 (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 J. Tsuchiya and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 H/D partitioning between forsterite, wadsleyite and ringwoodite : ab initio free energy calculation |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会 (招待講演) (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 大村 訓史, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 高压環境下における液体鉄混合系の物性 |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会 (招待講演) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 K. Suzuki, A. Takamasa, T. Tsuchiya, Y. Fukami, Y. Orihashi and R. Shinjo |
| 2. 発表標題 First-principles calculations of the Hf-W partitioning between molten iron and silicate melt and its implications for 182W isotopes in Ethiopian basalts |
| 3. 学会等名 AGU2021 (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 土屋 卓久, 大場 篤郎 |
| 2. 発表標題 高温高圧下における水の金属 - ケイ酸塩間分配反応 |
| 3. 学会等名 第62回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 伊藤 慧, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 地球深部の硫黄分布に対する核マントル相互作用の影響 |
| 3. 学会等名 第62回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 中川 采音, 土屋 卓久 |
| 2. 発表標題 SiO ₂ における Li ₂ ZrF ₆ 型構造の熱力学的安定性と結晶化学的特徴 |
| 3. 学会等名 第62回高圧討論会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1 . 発表者名 S. Ritterbex and T. Tsuchiya |
| 2 . 発表標題 Viscosity of HCP iron and its implications for the dynamics of Earth ' s inner core |
| 3 . 学会等名 AOGS2021 (国際学会) |
| 4 . 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1 . 発表者名 T. Tsuchiya and K. Ito |
| 2 . 発表標題 Effects of the core-mantle interaction on the distribution of sulfur in the Earth's deep interior |
| 3 . 学会等名 AOGS2021 (国際学会) |
| 4 . 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1 . 発表者名 J. Tsuchiya and T. Tsuchiya |
| 2 . 発表標題 H/D partitioning between forsterite, wadsleyite and ringwoodite : ab initio free energy calculation |
| 3 . 学会等名 AOGS2021 (国際学会) |
| 4 . 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1 . 発表者名 K. Suzuki, A. Takamasa, T. Tsuchiya, Y. Fukami, Y. Orihashi and R. Shinjo |
| 2 . 発表標題 Hf and W fractionation between liquid metal and liquid silicate and resultant core-mantle interaction signature on the 182W isotope of the ethiopian basalts |
| 3 . 学会等名 Goldschmidt Virtual 2021 (国際学会) |
| 4 . 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 K. Suzuki, A. Takamasa, T. Tsuchiya, Y. Fukami, Y. Orihashi and R. Shinjo |
| 2. 発表標題 Hf and W partitioning between liquid metal and liquid silicate and resultant core-mantle interaction signature on the 182W isotope of the afar plume |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会 (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 野田 昌道, 井上 徹, 土屋 卓久, 肥後 祐司 |
| 2. 発表標題 高压高温下におけるその場X線観察と超音波干渉法を組み合わせた弾性波速度測定に関するバンド補正の再評価 |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 T. Tsuchiya and K. Ito |
| 2. 発表標題 Effects of the core-mantle interaction on the distribution of sulfur in the Earth's deep interior |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会 (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 S. Ritterbex and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 First-principles study of the mechanical behavior of (Mg,Fe)O tilt grain boundaries in planetary mantles |
| 3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会 (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 S. Ritterbex and T. Tsuchiya |
| 2. 発表標題 Viscous strength of hcp iron at conditions of Earth's inner core |
| 3. 学会等名 EGU General Assembly 2021 (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

〔図書〕 計2件

| | |
|----------------------|-----------------|
| 1. 著者名 日本高圧力学会 | 4. 発行年 2022年 |
| 2. 出版社 朝倉書店 | 5. 総ページ数 500 |
| 3. 書名 高圧力の科学・技術事典 | |

| | |
|--|-----------------|
| 1. 著者名 Takashi Nakagawa, Taku Tsuchiya, Madhusoodhan Satish-Kumar, George Helffrich | 4. 発行年 2023年 |
| 2. 出版社 Wiley | 5. 総ページ数 288 |
| 3. 書名 Core-Mantle Co-Evolution: An Interdisciplinary Approach | |

〔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 |
|-------|---------------------------|---|----|
| 研究協力者 | 伊藤 慧 (Ito Kei) | 愛媛大学・地球深部ダイナミクス研究センター・博士後期課程大学院生 (16301) | |

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 | | | |
|---------|----------------------|--|--|--|
| 米国 | Princeton University | | | |
| オランダ | Utrecht University | | | |