

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 5 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2013

課題番号：23654181

研究課題名（和文） 高压中性子トモグラフィ法の開発：マントル中におけるフルイドの三次元分布の解明

研究課題名（英文） Development of neutron tomography under pressure: 3D distribution of fluid in the mantle minerals

研究代表者

寺崎 英紀 (TERASAKI HIDENORI)

大阪大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号：50374898

研究成果の概要（和文）：

本課題では、マントル鉱物中の H₂O フルイド三次元分布のその場観察を目指して、中性子線を用いた高压トモグラフィ測定技術の開発を行った。トモグラフィ測定用に新たに製作した加熱・加圧機構を小型プレス導入した。また J-PARC 中性子施設において中性子イメージングの光学系セットアップの最適化を行い、試料種類・サイズによるイメージ変化についても調べた。以上の最適化したセットアップを用いて、含水鉱物と無水鉱物試料を用いた中性子トモグラフィ測定をおこなった。以上より高温高压下における中性子イメージングおよびトモグラフィ測定が可能となった。

研究成果の概要（英文）：

In this study, we have developed neutron computed-tomography (CT) technique under high pressure in order to reveal in situ 3D distribution of H₂O fluid in the mantle minerals. Newly designed heating and compress systems for CT measurement have been installed to the portable PE press. Optical set-up for neutron imaging was optimized at J-PARC neutron facility and the effects of sample material and its size on the image contrast were investigated. Neutron tomography measurement for hydrous and anhydrous mineral samples was carried out using new system. The present new system able us to perform neutron imaging and tomography measurements under high pressure and temperature.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,200,000	660,000	2,860,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学、岩石・鉱物・鉱床

キーワード：マグマ・火成岩

1. 研究開始当初の背景

沈み込むスラブより脱水した H₂O 流体（フルイド）の行方・移動様式は、マントル鉱物中のフルイドの分布様式により決定される。このフルイドの移動は地球内部の水循環や

マグマ形成場に直結する重要な問題である。

このフルイドの分布に関して、従来は急冷回収試料の組織観察を元に議論され、温度・圧力によりフルイドの浸透性が大きく変化することが報告されてきた (Mibe et al.

1998; Yoshino et al. 2007)。ところが回収試料ではフルイドは抜けて残存していないため、試料中の空隙をフルイドの痕跡として組織の解釈が行われてきた。実際は脱圧の際に体積変化により結晶粒界が開き、試料中に空隙が生ずることが多く起こる。このため回収試料組織観察よりフルイド部分を特定するのは困難な場合が多々あった。これに対し、高温高压下でマントル鉱物中にフルイドが存在している状態で分布・形状が観察できれば、フルイドの移動様式についてより正確な評価が可能となることが期待される。

2. 研究の目的

本研究では高压下におけるマントル鉱物中の H_2O フルイドの三次元分布を観察するために、中性子プローブを用いた高压トモグラフィー測定を開発することを目的とする。

X線吸収能とはまったく異なる中性子イメージング技術を用いることでこれまでX線では観察が非常に困難であった含水鉱物やフルイドの直接観察が可能となる。水素は中性子に対する吸収能が高いため、中性子を用いることによりフルイドを直接観察することができるようになる。さらにトモグラフィー技術の導入で、試料の微妙な密度差やランダムに複数相が存在する系についての相の検出が可能となる。

具体的な目的としてはまず中性子ビームラインにおいて、小型のプレスを用い、高压下の中性子トモグラフィー測定に向けた装置開発を行う。続いて含水鉱物と無水鉱物試料を用いてトモグラフィー測定を行い、フルイドの三次元分布の観察に向けたデータの評価を行う。

3. 研究の方法

研究の方法については、項目ごとに下記に述べる。

(1) 中性子トモグラフィー用の装置開発

まず高温高压トモグラフィー測定に必要な装置の設計、製作を行った。トモグラフィー測定用高压プレスは、大強度陽子加速器施設 J-PARC に設置されている小型のパーエジンバラ(PE)プレスを用いた。このプレスは対向型の加圧方式であるため水平方向の開口角が大きく、トモグラフィーイメージ測定用には最適である。トモグラフィー測定は、小型プレスを回転ステージの上に乗せて、各角度における試料の中性子イメージをプレス下流側に設置した中性子カメラで撮像して測定する。中性子は発散が大きいので中性子カメラは可能な限りプレスに近づけて撮像を行う。このため、プレスの加圧や加熱機構はプレスの回転動作に対応し、かつプレス近くの検出器と干渉しないことが必要となる。このため、これらの要求を満たす油

圧のクランプ機構を用い、さらに高温発生用に回転機構を持つ加熱ユニットを製作し加熱機構を取り付けた。同時に加圧部のアンビルの摩擦を防ぐために水冷機構を設けた。(これらの詳細は研究成果の項で述べる)

使用する超硬アンビル形状については、試料室容積を大きく稼ぐことのできる中心サイズ 8.5mm のトロイダル形状アンビルの製作した。この形状によりイメージング視野を高荷重下でも広いまま維持することができる(Terasaki et al. 2008)。

(2) 中性子イメージング測定

(1) で開発したトモグラフィー用のセットアップを J-PARC BL11 高压中性子ビームラインに設置して、中性子イメージング測定を行った。小型 PE プレスを回転・並進ステージの上に乗せ、中性子カメラ(Ultimage, Toshiba)を下流に設置した。プレス上流側には3つの中性子ミラー(スリット)が設置されている。複数種類の含水鉱物($\text{Mg}(\text{OH})_2$, FeOOH , AlOOH)と無水鉱物(MgO , Mg_2SiO_4 , FeO , Fe)の試料を高压セルに封入し、プレスに入れた。イメージング測定では、ミラースリット条件や試料-カメラ間距離、試料サイズ(直径 2~4 mm)、試料組成などを変化させて、中性子イメージングについてのビーム分布、分解能、イメージコントラスト、必要な試料サイズの評価を行った。

(3) 中性子トモグラフィー測定

(2) の中性子イメージ最適化条件のもと、複数種の含水($\text{Mg}(\text{OH})_2$, AlOOH , $\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$)・無水鉱物(Mg_2SiO_4)を高压セルに封入して、トモグラフィー測定を行った。測定は、5°刻みで 0~180° の範囲で撮像した。

4. 研究成果

研究成果について項目ごとに下記に述べる。

(1) 高温高压中性子トモグラフィー測定用装置の開発

研究方法でも触れたようにプレスの加圧・加熱機構は回転動作に対応し、かつ検出器と干渉しないことが必要となるため、下記のそれぞれ用途に応じた機構を開発した。

油圧クランプ機構の設計：高压プレスを測定中に油圧ユニットから独立して回転させるため、L字型油圧配管をプレス下から取り出し、フレキシブルホースで繋いだバルブを閉めてクランプすることで高荷重を保持しつつ油圧ユニットから切り離し可能な機構を設計した。

回転機構付き加熱ユニット、水冷機構の開発：高温下でのトモグラフィー測定の際、加熱ケーブルをプレスに接続したままプレスを回転させる必要があるため、電氣的接続を保持したまま回転時にもケーブル位置が動

かない回転動作に対応させた加熱ユニットを開発した。また加圧部となる超硬アンビル及びプレス自体の高温摩耗防止のため水冷機構をアンビル周囲に設置した。これらの機構はイメージングの視野となるプレス水平方向には干渉せず、かつ加熱用電極と水冷部とは電気的絶縁が保てるように設計がなされている。この機構により小型プレスを用いた長時間の高温高圧実験が初めて可能となった。

さらに実際に上記の機構を使用し、グラフィット抵抗ヒーターを入れた高圧セルを用いて、加熱実験を行った(図1)。この結果、用いる高圧セルの600°Cまでの温度と電力の関係性を明らかにした。

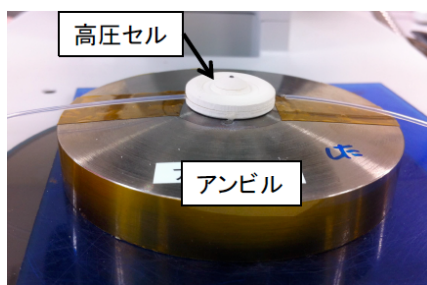


図1.高温発生用高圧セル

試料位置微調ステージの導入: プレス内の試料位置は加圧に伴い動くため、高圧下で回転中心に試料位置を再調整して測定を行うことが必要となる。そこで試料位置微調用のXYステージを回転ステージ上に導入した。

以上の開発した機構を組み立てた装置の外観写真を図2に示す。これらの開発により、高温高圧下でも問題なく中性子トモグラフィー測定を実施することが可能となった。

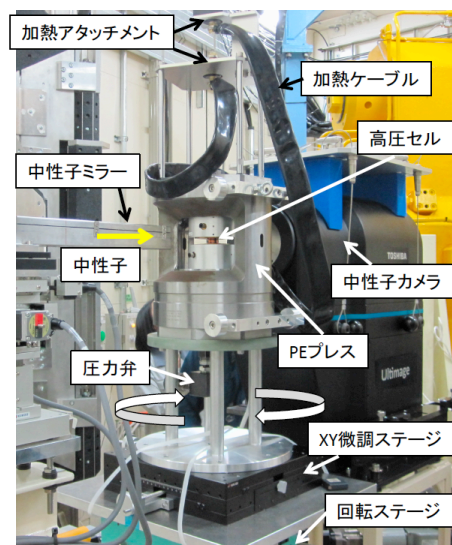


図2. 高温高圧中性子トモグラフィー装置外観

(2) 中性子イメージング測定

光学系の最適化: ビームライン設置の3つの中性子ミラー(スリット)は回折実験用に設計されているため、3つのスリットサイズの組み合わせを変えて、イメージング用のスリット条件の最適化を行った。各スリットサイズを5~55mmの範囲で変化させることで中性子ビームサイズと光量、空間分解能(ぼけ)、ビーム分布を変えて、それに伴うイメージシャープネスやノイズを評価した。この結果、光量・試料のイメージコントラストに最適なスリット条件を得た。

試料組成、サイズによるイメージコントラスト変化: 含水鉱物のBrucite($Mg(OH)_2$)と無水鉱物MgOをペレット状に成形し高圧セルに入れて、撮影した結果を図3に示す。ペレットのサイズは直径4mmから2mmまで変化させ、イメージは30秒露光の像を10~30枚積算している。図3からいずれのサイズにおいても $Mg(OH)_2$ とMgOは、はっきりコントラストがついて区別でき、水素を含む $Mg(OH)_2$ で中性子がより吸収されて観察されることが確認できた。特に試料サイズが2mm径の比較的小さなサイズにおいても、コントラスト差が明瞭に観察された。これより中性子イメージングを行う場合には、中性子回折の場合と異なり、2mmΦ程度のサイズの試料でも十分にイメージング観察できることがわかった。同様の実験で、FeOOH/FeO/Fe試料についてもはっきりとしたイメージコントラストが確認できた。

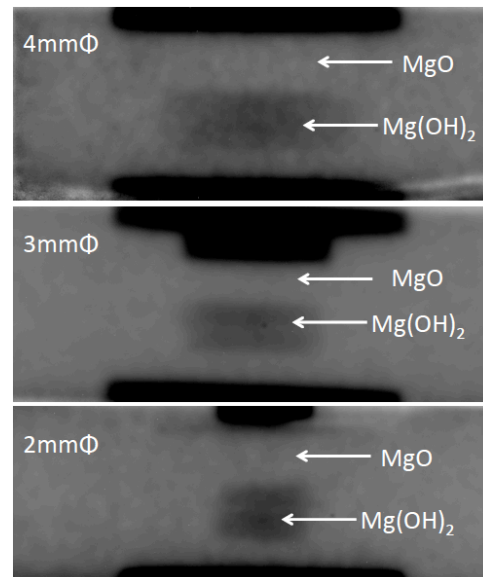


図3. $MgO/Mg(OH)_2$ 試料の中性子影像
図中の試料の横幅が試料径に相当する

(3) 中性子トモグラフィー測定
含水鉱物である Brucite($Mg(OH)_2$), Diaspore($AlOOH$), Silica-gel($SiO_2 \cdot nH_2O$)および無水鉱物である olivine($(MgFe)_2SiO_4$)を高圧セルに封入して、トモグラフィー測定を行った。測定は、一つの角度条件においてイメージ一枚につき露光時間は30秒で20枚のイメージを積算した。それを 5° の角度ステップで $0\sim 180^\circ$ の角度範囲で撮影を行い、中性子トモグラフィーデータを得た。

以上より高温高圧下における中性子イメージングならびにトモグラフィー測定が可能となった。

本研究課題の初年度(平成23年度)は、東日本大震災で被災した J-PARC 中性子施設の復旧作業のため、高圧ビームラインでのユーザータイムは次年度に延長された。このため中性子を使用した光学系の調整、イメージング最適化実験は平成24年度から開始した。さらに高圧下での実験には、ブローアウト対策が必要とされ、施設側に認可されるまでに時間を要した。これに関しては試料セルの飛散防止シールドを製作して対応を行ったが、高温条件におけるトモグラフィー測定を実施するまでには至らなかった。今後は実際にこの測定システムを用いて、高温高圧下における中性子トモグラフィー測定を実施し、マントル鉱物中のフルイドの三次元分布を観察していく予定である。

中性子イメージ測定は連携研究者の井上徹教授(愛媛大学)および有馬寛博士(東北大学)、服部高典博士(原研)、佐野亜沙美博士(原研)と協力して実施した。

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6件)

1. Terasaki, H., E. Ohtani, T. Sakai, S. Kamada, H. Asanuma, Y. Shibazaki, N. Hirao, N. Sata, Y. Ohishi, A. Suzuki, K. Funakoshi, Stability of Fe-Ni hydride after the reaction between Fe-Ni alloy and hydrous phase (δ - $AlOOH$) up to 1.2 Mbar: Possibility of H contribution to the core density deficit, *Physics of Earth and Planetary Interiors*, 査読有, **194-195**, 18-24, 2012. DOI: 10.1016/j.pepi.2012.01.002
2. Shibazaki, Y., Ohtani, E., Terasaki, H.,

Melting relation of FeS-H system under high pressure: Implications for the core of Ganymede, *SPRING-8 Research Frontiers* 査読無, 2011, 102-103, 2012.

3. 寺崎英紀, 柴崎裕樹, 高温高圧下における FeSi および FeS 合金の水素化、高圧力の科学と技術、査読有, 21(3), 197-205, 2011. DOI: 10.4131/jshpreview.21.197
4. Sakamaki, T., E. Ohtani, S. Urakawa, H. Terasaki, Y. Katayama, Density of carbonated peridotite magma at high pressure using an X-ray absorption method, *American Mineralogist*, 査読有, **96**, 553-557, 2011. DOI: 10.2138/am.2011.3577
5. Shibazaki, Y., E. Ohtani, H. Terasaki, R. Tateyama, T. Sakamaki, K. Funakoshi, Effect of hydrogen on melting temperature of FeS at high pressure: Implications for core of Ganymede, *Earth and Planetary Science Letters*, 査読有, **301**, 153-158, 2011. DOI: 10.1016/j.epsl.2010.10.033
6. Terasaki, H., Y. Shibazaki, T. Sakamaki, R. Tateyama, E. Ohtani, K. Funakoshi, Y. Higo, Hydrogenation of FeSi under high pressure, *American Mineralogist*, 査読有, **96**, 93-99, 2011. DOI: 10.2138/am.2011.3628

[学会発表] (計17件)

1. Kondo, T., Yamashita, T., Yoshida, Y., Ishida, Y., Terasaki, H., Kikegawa, T., Iron alloy-water reaction and light elements in the Earth's core, Workshop on Approach to the centre of the Earth, Sendai, February 20-22, 2013.
2. Ohtani E., Ohira I., Terasaki H. (invited) Transport of water and hydrogen into the lower mantle and core. AGU Fall meeting

- 2012, San Francisco, December 3-7, 2012.
3. Terasaki H., Urakawa S., Uesugi K., Ohtani E. (Invited) Permeability of core-forming melt in asteroids based on in situ X-ray tomography. G-COE International Symposium "Achievements of G-COE Program for Earth and Planetary Dynamics and the Future Perspective, Sendai, September 25-28, 2012.
 4. Ohtani E., Ohira I., Sakai T., Terasaki H., Hirao N. Stability of high Pressure Hydrous Delta-phase and its Roles under the Lower Mantle Conditions. Asia Oceania Geoscience Society (AOGS) – AGU(WPGM) Joint Assembly, Singapore, August 13-17, 2012.
 5. 寺崎英紀、西田圭佑、浦川啓、上杉健太朗、星野真人、田窪勇作、桑原莊馬、近藤忠、河野義生 高温高压下における液体の密度・音速同時測定法の開発、第 53 回高压討論会、大阪、2012 年 11 月 7-9 日
 6. 近藤忠、寺崎英紀、亀卦川卓美、張小威、中尾裕則 高温高压下における放射光を用いた複合測定、第 53 回高压討論会、大阪、2012 年 11 月 7-9 日
 7. 西原遊、寺崎英紀、地球深部研究に向けた高压物性測定の進展、Spring-8 シンポジウム 2012、大阪、2012 年 8 月 25-26 日.
 8. 増野いづみ、大谷栄治、境毅、寺崎英紀、村上元彦、平尾直久、大石泰生 放射光 X 線回折法およびスペクトロスコピーを併用した地球中心部の総合的解明 Spring-8 シンポジウム 2012、大阪、2012 年 8 月 25-26 日.
 9. Terasaki H., Shibazaki Y., Nishida K., Takahashi S., Ishii M., Ohtani E., Higo Y. Hydrogen solubility into Fe-C and Fe-Si alloys at high pressure. Japan Geoscience Union Meeting 2012, Chiba, May 20-25, 2012.
 10. Inoue T., Arima, H., Terasaki H., Hattori, T., Sano, A, Neutron Camera Installed in BL11 "PLANET" Beamline in J-PARC, Japan Geoscience Union Meeting 2012, Chiba, May 20-25, 2012.
 11. Terasaki H., Fate of water in the deep Earth interior, 日独先端科学シンポジウム, 10 月 28-30 日, 2011, ホテルニューオータニ、東京.
 12. Terasaki H., Urakawa S., Uesugi K., Nakatsuka A., Funakoshi K., Ohtani E., Boundary pressure of inter-connection of Fe-Ni-S melt in olivine based on in-situ X-ray tomography: Implication to core formation in asteroids, AGU Fall Meeting, 12/5-9, 2011, San Francisco, USA.
 13. Terasaki H., Urakawa S., Rubie DC., Funakoshi K., Sakamaki T., Shibazaki Y., Ozawa S., Ohtani E., Droplet size of liquid Fe-alloy in terrestrial magma ocean, Joint symposium of Misasa-2012 and Geofluid-2 (招待講演), 3/18-21, 2012, Blanc Art Misasa, Tottori.
 14. Inoue T., Urakawa S., Ohtaka O., Suzuki A., Mibe K., Terasaki H., Yamada A., Arima H., Magma studies towards pulse neutron utility, 日本地球惑星科学連合 2011 年大会, 5 月 22-27 日, 2011, 幕張メッセ、千葉.
 15. Ohtani E., Takahashi S., Shimoyama Y., Terasaki H., Suzuki A., Carbon in Planetary cores, 日本地球惑星科学連合 2011 年大会, 5 月 22-27 日, 2011, 幕張メッセ、千葉.

16. 中塚明日美, 浦川啓, 寺崎英紀, 舟越賢一, 上杉健太郎, 高压 X 線マイクロ CT を用いた吸収密度測定, 日本地質学会第 118 年学術大会・日本鉱物科学会 2011 年年会合同学術大会, 9 月 9-11 日, 2011, 茨城大学、茨城.
17. 寺崎英紀, 浦川啓, 上杉健太郎, 中塚明日美, 舟越賢一, 大谷栄治, 高温高压 CT 測定による Fe-Ni-S 融体の浸透特性に対する圧力・組成の効果, 第 52 回高压討論会, 11 月 9-11 日, 2011, 沖縄キリスト教学院、沖縄.

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

寺崎 英紀 (TERASAKI HIDENORI)

大阪大学・大学院理学研究科・准教授

研究者番号 : 50374898

(3) 連携研究者

井上 徹 (INOUE TORU)

愛媛大学・地球内部ダイナミクス研究センター・教授

研究者番号 : 00291500

