

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 11 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K18641

研究課題名（和文）中性子イメージングを活用した沈み込み帯におけるマントル 水反応の直接観察

研究課題名（英文）Direct observation of mantle-water reaction in subduction zone using neutron imaging

研究代表者

坂巻 竜也（Sakamaki, Tatsuya）

東北大学・理学研究科・助教

研究者番号：30630769

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,800,000円

研究成果の概要（和文）：中性子回折実験を利用することで、X線回折では不可能であった含水のナトリウムケイ酸塩メルトの構造（水素位置も含む）の直接的な決定に成功した。5 GPaまでの圧力条件下におけるマグマの構造データを取得し、各結合の圧力依存性を解明することができた。水素-酸素間の距離は圧力に対して敏感であり、圧力起因の重合化が起きていることを突き止めた。長時間安定に高温高压条件を保持できる実験セルを構築し、中性子イメージングを高温高压条件下で取得することに成功した。水素量とイメージングにおける濃淡（吸収度合い）に相関があることを確認し、試料中における水素の分布を直接的に観察することが可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球科学という観点に立つと、軽い元素を対象にした研究を避けることはできない。特に地球という惑星を考えた場合、「水」は極めて重要な物質である。そこで、水を研究する上で有効な中性子ビームを活用することに目を付けた。本研究で実現した地球内部を再現した高温高压条件下における中性子イメージングは、世界的に見ても非常に珍しく、先導的な研究・技術である。高温高压発生プレスと中性子イメージング技術を組み合わせた測定システムの構築・最適化は大きなブレイクスルーであり、他の研究テーマにも適用されることが期待される。つまり、高温高压中性子イメージングを利用した今後の地球科学の発展にも繋がり、極めて波及効果が高い。

研究成果の概要（英文）：Using neutron diffraction experiments, I succeeded in directly determining the structure of hydrous sodium silicate melts (including hydrogen positions), which was not possible by X-ray diffraction. I obtained structural data of silicate melts under pressure conditions up to 5 GPa, and I'm able to understand the pressure dependence of each bond. I found that the hydrogen-oxygen bond distance is sensitive to pressure and I concluded that pressure-induced polymerization occurs.

I constructed an experimental cell that can maintain stable high temperature and high pressure conditions for a long time, and succeeded in obtaining the neutron imaging under high temperature and high pressure conditions. I confirmed that there is a correlation between the amount of hydrogen and the intensity in the imaging (degree of absorption), which enables us to directly observe the distribution of hydrogen in the sample.

研究分野：高圧地球科学

キーワード：中性子イメージング 水 高圧 高温

1. 研究開始当初の背景

代表者は中性子回折実験を利用することで、X線回折では不可能であった含水マグマの構造(水素位置も含む)の直接的な決定に成功した。この実験を通して、水素(水)を検出することができる中性子ビームの有効性を認識した。この中性子ビームは、当然ながら回折実験以外にも利用することが可能であり、高温高压条件下(高压プレス内の試料中)の水の挙動を直接観測するために中性子イメージングの導入の必要性を感じた。

代表者のこれまでの研究は、主に地球内部のマグマを対象としていた。地球内部での熔融現象は特定の条件に限られており、岩石の融点降下を引き起こす水の存在が特に重要である。マンツルの熔融現象を議論する上でマンツル-水反応を正しく理解することは避けられない。しかしながら、従来のX線イメージングではケイ酸塩鉱物と水流体間のコントラストが小さく、実験的にマンツル条件を再現することができても、試料中の水の挙動を直接的に見ることが不可能であった(右図)。

以上のような背景から、新しく中性子イメージングに挑戦することを思い立った。そして、本研究では日本が世界に誇る大強度陽子加速器施設であるJ-PARC内にある高温高压発生プレスが利用可能なBL11(PLANET)ビームラインにおいて、マンツル中の水の挙動の直接観察を目指した中性子イメージング実験を実施する構想に至った。

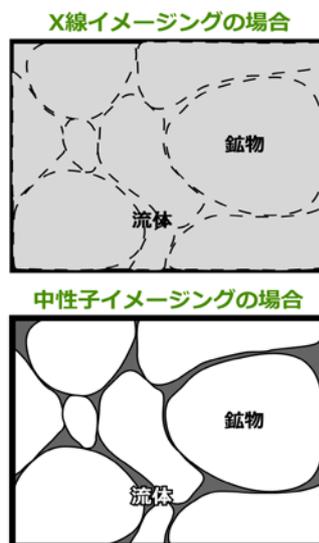


図1. X線と中性子イメージングの違い

2. 研究の目的

本研究の目的は、高温高压下における「ケイ酸塩鉱物」と「水流体」の間の相互作用の直接観察である。従来のX線イメージングではコントラストが小さく、観察が困難であったため、水の検出に特化した「中性子イメージング」に挑戦する。

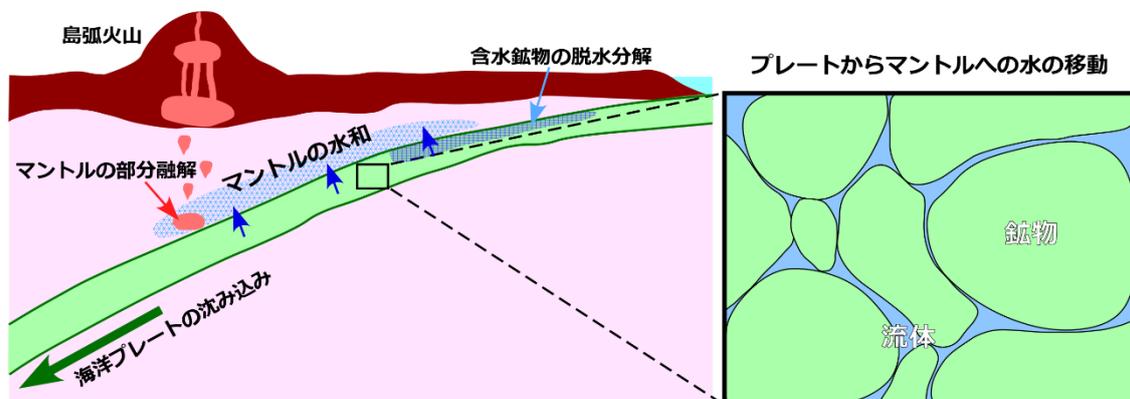


図2. マンツル-水反応の模式図

水の惑星とも呼ばれる地球において、マンツル-水反応は普遍的な現象であり、火山や地震なども含めた地球内部活動に多大に影響を及ぼす。マンツル中での水の挙動を知ることは極めて重要であるため、本研究では特に重要な下記の2つに焦点を当てて研究を進める。

(1) プレートからマンツルへの水の移動

海嶺で生成された海洋プレートは海溝から地球内部へ沈み込む。そのプレートには蛇紋石などの含水鉱物が含まれているが、それらの含水鉱物の多くは地球内部の高温高压条件下で脱水分解を起こす。そのときに放出された水(超臨界流体)の挙動が地球内部現象を理解する上で極めて重要である。流体の移動は、流体と周囲の鉱物間の二面角によって支配される。固液二面角が60度以上の場合、流体は鉱物粒間にトラップされて、その挙動は流体の体積分率に依存することになる。反対に固液二面角が60度以下なら、鉱物の稜を濡らし、流体が連結する。つまり、鉱物粒間にネットワークを形成し、効率的な分離が可能となる。そこで本研究では、流体の3次元ネットワーク形成過程をその場観察することで、どのような条件でプレートから水が分離し、マンツルへ移動するのかを明らかにすることを目的としている。

(2) マンツルの水和

上の過程でプレートから分離・上昇しマンツルウェッジに到達した流体は、マンツルを水和させる。このマンツル-水反応は地球の沈み込み帯において普遍的かつ重要な現象である。そこで

本研究では、上部マントルの主要構成鉱物であるカンラン石に着目して、水との反応をその場観察する。そして、カンラン石中への水の拡散係数や蛇紋石化の反応速度を明らかにすることを目的としている。

本研究では、上記の(1)と(2)のアプローチから、日本のような沈み込み帯の直下における地学現象の可視化を目指す極めて挑戦的な研究である。最終的にはマントルウェッジ周辺での流体の挙動と役割を解明する。

3. 研究の方法

本研究の目的を達成させるためには、水の挙動を直接観察することが不可欠である。そこで水の検出に強い中性子イメージングを活用する着想に至った。中性子イメージング実験は、茨城県の東海村にある大強度陽子加速器施設 J-PARC 内の物質・生命科学実験施設 MLF の BL11(PLANET)ビームラインで実施した。高温高压発生にはビームラインに設置されている6軸プレス圧室を利用した。

4. 研究成果

中性子回折実験を利用することで、X線回折では不可能であった含水のナトリウムケイ酸塩メルトの構造(水素位置も含む)の直接的な決定に成功した。5 GPaまでの圧力条件下におけるケイ酸塩メルトの構造データを取得し、各結合の圧力依存性を解明することができた。

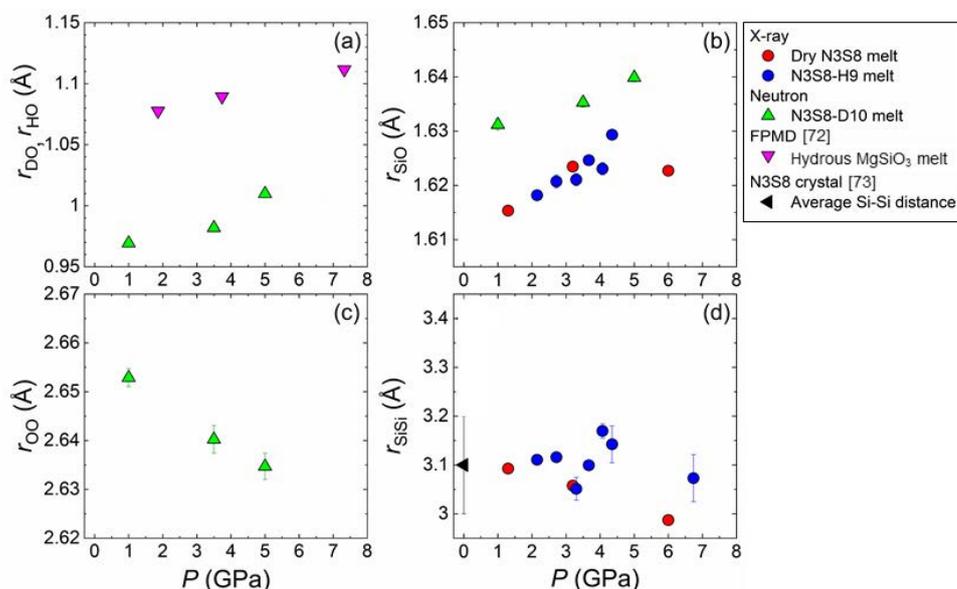


図 3. 各結合の平均原子間距離の圧力依存性 (a) r_{D-O} and r_{H-O} , (b) r_{Si-O} , (c) r_{O-O} , (d) r_{Si-Si}

D-O, Si-O, O-O, Si-Si 結合の平均原子間距離 r_{D-O} , r_{Si-O} , r_{O-O} , r_{Si-Si} の圧力依存性を、図 3(a)、(b)、(c)、(d) にそれぞれ示す。 r_{D-O} は圧力増加とともに伸びており(図 3(a))、この傾向は第一原理計算で報告されている r_{H-O} の傾向と一致している。無水および含水 N3S8 メルトの r_{Si-O} は、圧力増加とともに伸びている(図 3(b))。無水と含水の $g^X(r)$ の r_{Si-O} はほぼ同じであり、 SiO_4 四面体中の Si-O 距離は H_2O の有無によって変化しないことを示している。含水メルトの r_{O-O} は、圧力が増加すると単調に減少している(図 3(c))。Si-Si 相関については、無水メルトでは圧力が増加すると r_{Si-Si} が縮小し、Si-O-Si 角度の減少に対応していると考えられる。一方、含水メルトでは r_{Si-Si} の変化に関する明確な圧力依存性が見られない(図 3(d))。これは水によってネットワークが切断されることで SiO_4 四面体同士の連結の程度が低下した非重合メルトにおいて、Si-O-Si 角度の減少以外の変化が優先的に起こるためであると考えられる。

中性子イメージングでは長時間の撮影時間が必要となるため、ビームラインに設置されている6軸プレス圧室を用いた高温高压実験テストを行い、長時間安定に高温高压条件を保持できる実験セルを構築することができた。加えて、ビームライン担当者と研究打ち合わせも進め、中性子イメージングを高温高压条件下で取得することに成功した。水素量とイメージングにおける濃淡(吸収度合い)に相関があることを確認し、試料中における水素の分布を直接的に観察することが可能となった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 11件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Ikeda Osamu, Sakamaki Tatsuya, Mitsui Takaya, Fujiwara Kosuke, McCammon Catherine A., Suzuki Akio	4. 巻 92
2. 論文標題 Magnetic Spin-Flop Transition of -FeOOH at 8 GPa	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.92.043702	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 Takahashi Naoki, Sakamaki Tatsuya, Ikeda Osamu, Kakizawa Sho, Higo Yuji, Suzuki Akio	4. 巻 350
2. 論文標題 Elastic wave velocity measurements of sodium aluminosilicate glass and melt at high pressure and temperature	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physics of the Earth and Planetary Interiors	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.pepi.2024.107167	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 Okumura S., Uesugi K., Goto A., Matsumoto K., Sakamaki T.	4. 巻 50
2. 論文標題 A Molecular Scale Origin of Shear Thinning and Brittle Failure of Silicate Melt	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Geophysical Research Letters	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2023GL104083	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 Okumura Satoshi, Uesugi Kentaro, Goto Akio, Namiki Atsuko, Matsumoto Kazuhisa, Sakamaki Tatsuya	4. 巻 621
2. 論文標題 Molecular-scale structural changes of silicate melts under tension revealed by time-resolved X-ray diffraction	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemical Geology	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.chemgeo.2023.121372	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 Abeykoon Sumith, Howard Christopher, Dominijanni Serena, Eberhard Lisa, Kurnosov Alexander, Frost Daniel J., Ballaran Tiziana Boffa, Terasaki Hidenori, Sakamaki Tatsuya, Suzuki Akio, Ohtani Eiji, Sano Furukawa Asami, Abe Jun	4. 巻 128
2. 論文標題 Deuterium Content and Site Occupancy in Iron Sulfide at High Pressure and Temperature Determined Using In Situ Neutron Diffraction Measurements	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Geophysical Research: Solid Earth	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2023JB026710	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 Ikuta Daijo, Ohtani Eiji, Fukui Hiroshi, Sakamaki Tatsuya, Heid Rolf, Ishikawa Daisuke, Baron Alfred Q.R.	4. 巻 9
2. 論文標題 Density deficit of Earth's core revealed by a multimegabar primary pressure scale	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.adh8706	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 Sakamaki Tatsuya, Ohtani Eiji	4. 巻 87
2. 論文標題 High Pressure Melts	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Reviews in Mineralogy and Geochemistry	6. 最初と最後の頁 557 ~ 574
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2138/rmg.2022.87.11	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 Ikeda Osamu, Sakamaki Tatsuya, Mitsui Takaya, Fujiwara Kosuke, McCammon Catherine A., Suzuki Akio	4. 巻 92
2. 論文標題 Magnetic Spin-Flop Transition of α -FeOOH at 8 GPa	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.92.043702	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 Ohashi, T., Sakamaki, T., Funakoshi, K., Hattori, T., Hisano, N., Abe, J., Suzuki, A.	4. 巻 107
2. 論文標題 Structure of basaltic glass at pressures of up to 18 GPa	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 American Mineralogist	6. 最初と最後の頁 325-335
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2138/am-2021-7742	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 Ito, Y., Ikeda, O., Ban, R., Kubota, T., Sakamaki, T., Kuribayashi, T., Suzuki, A.	4. 巻 41
2. 論文標題 Phase transitions of ScOOH under high pressure	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 275-289
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/08957959.2021.1964495	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 Hamada, M., Kamada, S., Ohtani E., Sakamaki, T., Mitsui, T., Masuda, R., Hirao, N., Ohishi, Y., Akasama, M.	4. 巻 103
2. 論文標題 Synchrotron Mossbauer spectroscopic and X-ray diffraction study of ferropericlae at high pressures of lower mantle region	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.174108	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20件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 13件)

1. 発表者名 Tatsuya Sakamaki
2. 発表標題 Neutron diffraction study of hydrous sodium silicate melt at high pressure and high temperature
3. 学会等名 Goldschmidt 2023 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Shino Hayafune, Tatsuya Sakamaki, Tomonori Ohashi, Akio Suzuki
2. 発表標題 Effect of CO ₂ on the structure of sodium silicate melt at high pressure
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Naoki Takahashi, Tatsuya Sakamaki, Osamu Ikeda, Sho Kakizawa, Yuji Higo, Akio Suzuki
2. 発表標題 Elastic wave velocity measurement of a sodium aluminosilicate glass and melt at high pressure and high temperature
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Daijo Ikuta, Eiji Ohtani, Hiroshi Fukui, Tatsuya Sakamaki, Izumi Mashino, Daisuke Ishikawa, Alfred Q. R. Baron
2. 発表標題 Sound velocity measurement of B2 Fe-Ni-Si alloys at high pressure and high temperature
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 坂巻 竜也、大橋 智典、高橋 直生、服部 高典、有馬 寛、舟越 賢一
2. 発表標題 含水ケイ酸塩メルトの中性子回折構造解析と鉄メルトの中性子イメージング
3. 学会等名 第64回 高圧討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高橋 直生、坂巻 竜也、池田 理、柿澤 翔、肥後 祐司、鈴木 昭夫
2. 発表標題 高温高圧下におけるナトリウムアルミノ珪酸塩ガラス・メルトの弾性波速度測定
3. 学会等名 第64回 高圧討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 早船 紫野、坂巻 竜也、鈴木 昭夫
2. 発表標題 放射光X線回折実験に基づく高圧下におけるCO ₂ を含むナトリウムケイ酸塩メルトの構造解析
3. 学会等名 2023年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 有馬 寛、服部 高典、佐野 亜沙美、町田 真一、阿部 淳、舟越 賢一、坂巻 竜也
2. 発表標題 高圧下における水の定量評価：高圧中性子CT法の開発
3. 学会等名 2023年度量子ビームサイエンスフェスタ
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Sakamaki, T
2. 発表標題 Longitudinal wave velocity of sodium aluminosilicate melt at high pressure
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Sakamaki, T
2. 発表標題 H ₂ O-induced melting at the uppermost lower mantle
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ohashi, T., Sakamaki, T., Funakoshi, K., Hattori, T., Suzuki, A.
2. 発表標題 Pressure-induced structural change of basaltic glass up to 18 GPa
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2022
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Ban, R., Sakamaki, T., Suzuki, A.
2. 発表標題 Density of Fe ₂ O ₃ -bearing magma under high pressure
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 池田 理、坂巻 竜也、福井 宏之、内山 裕士、三井 隆也、藤原 孝将、BARON Alfred、鈴木 昭夫
2. 発表標題 e-Fe ⁰ OH の鉄スピン転移と弾性波速度
3. 学会等名 第63回高圧討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大谷 栄治、生田 大穰、福井 宏、坂巻 竜也、増野 いづみ、境 毅、石川 大輔、BARON Alfred
2. 発表標題 超高压下における X 線非弾性散乱法による鉄合金およびレニウムの音速測定とその地球内部への適用
3. 学会等名 第63回高压討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Sakamaki, T
2. 発表標題 Viscosity of silicate melts under high pressures
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Sakamaki, T
2. 発表標題 Elastic wave velocity of silicate glasses at high pressure
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ohashi, T., Sakamaki, T., Funakoshi, K., Hattori, T., Hisano, N., Abe, J., Suzuki, A.
2. 発表標題 Pressure-induced structural change of basaltic glass up to 18 GPa
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ban, R., Sakamaki, T., Suzuki
2. 発表標題 Density of Fe2O3-bearing magma under high pressure
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ikeda, O., Sakamaki, T., Fukui, H., Uchiyama, H., Baron, A.Q.R., Suzuki, A.
2. 発表標題 Elastic wave velocity of α -FeOOH across the pressure-induced spin transition of iron
3. 学会等名 Japan Geoscience Union Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Abeykoon, S., Howard, C.M., Dominijanni, S., Eberhard, L., Frost, D.J., Ballaran, T.B., Kurnosov, A., Terasaki, H., Sakamaki, T., Suzuki, A., Ohtani, E., Sano-Furukawa, A., Abe, J.
2. 発表標題 Deuterium content and site occupancy in iron sulphide at high pressure and high temperature: Implications for the oxidation of early Earth's mantle
3. 学会等名 Goldschmidt 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Yingwei Fei, Michael J. Walter	4. 発行年 2022年
2. 出版社 Cambridge University Press	5. 総ページ数 418
3. 書名 Static and Dynamic High Pressure Mineral Physics	

〔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
---------	---------