

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 8 日現在

機関番号：15301

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17795

研究課題名(和文) 高圧氷の原子拡散から探る大型氷天体の粘性構造

研究課題名(英文) Self-diffusion in high-pressure ices and implications for plastic flow in the interiors of the large icy bodies

研究代表者

野口 直樹 (Noguchi, Naoki)

岡山大学・惑星物質研究所・特別契約職員(助教)

研究者番号：50621760

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：大型氷天体の主要な内部構成物質は氷の高圧相であると推測されている。それらの自己拡散係数を決定することによって、低応力条件での塑性変形流動則を推測することが目的である。まず、氷中の同位体トレーサー濃度を顕微ラマン分光法で決定する方法を開発した。この技術をダイヤモンドアンビルセルを使った高圧実験に応用し、高圧氷の拡散実験を実施できるようにした。高圧氷VI相とVII相の水素と酸素同位体トレーサーの拡散実験を300～425 K、～17 GPaまでの温度圧力条件で行った。この結果を基にして、拡散クリップ領域での塑性変形流動則を導き、その温度依存性から氷天体内部の高圧氷層で対流が起きる条件を導いた。

研究成果の概要(英文)：The lifetimes of the internal ocean of large icy bodies till water freezes depend on the rheological properties of the high pressure polymorphs of H₂O ice layers (HP-ice layer) underlying the internal oceans. The differential stress driving the convections of the HP-ice layers is very low below 0.1 MPa. The rheological properties at low-stress condition can be inferred from their diffusivities and the theory of diffusion creep. Here, we have developed the method to determine diffusion coefficients of the high-pressure ices using a DAC and micro-Raman spectroscopy. First, to conduct the diffusion experiments, we have constructed the instrumental platforms such as a micro-Raman mapping system, and a Peltier-cooling DAC. Further, we determined the pressure-temperature dependences of the diffusion coefficients of ices VI and VII. The viscosities of HP-ices were inferred from their diffusivities, and the critical layer thickness below which convection cannot occur was estimated.

研究分野：地球惑星物質学

キーワード：高圧氷 拡散 レオロジー 氷天体 粘性 プロトン

1. 研究開始当初の背景

現在見つかっている氷天体の大きさや密度、分化の程度は様々で、なかにはタイタンやガニメデ、カイパーベルト天体などのような半径が 2000 km を超える大型の氷天体も多数存在する。それらの中心圧力は少なくとも 3 GPa(3 万気圧)に達し、主要なマントル構成物質は H₂O 氷の高圧相(II,V,VI,VII 相)であると推測されている。このため、高圧氷の塑性流動特性(=変形し易さ)を知ることは、大型氷天体内部の粘性構造とダイナミクスを解明するうえで非常に重要である。しかし、大型氷天体の対流運動の流動応力は 0.1 MPa 以下と推定されており、そのような低応力条件下の変形流動則を決める研究は、実験技術が未発展のために大きく立ち遅れているのが現状である。

2. 研究の目的

本研究では高圧相の 相、 相、 相、 相の多結晶体について、水素と酸素の拡散係数を実験で測定し、その結果から低-中応力条件下で卓越する拡散クリープの流動則を決定する。そして、流動則の温度依存性から、高圧氷層内で対流が起きる条件を導き出し、大型氷天体内部のダイナミクスを解明する。

3. 研究の方法

固体の拡散クリープの流動則は自己拡散係数から導くことが可能である。これに着目して、変形実験では決定困難な拡散クリープ領域の高圧氷の流動則を原子拡散実験に基づいて推測することにした。そのため顕微ラマン分光法による拡散係数測定法を、ダイヤモンドアンビルセル高圧発生装置(DAC)を使ったその場高圧実験に拡張し、高圧氷多結晶体の水素および酸素の拡散係数を測定した。顕微ラマン分光法は励起光にレーザーを使うため 1 μ m サイズの局所分析が可能で、DAC 試料室内のマッピング分析が可能である。また、DAC は顕微鏡下での試料の組織観察が可能である

ため、氷多結晶体の粒界の場所を確認でき、ラマン分光による局所分析と組み合わせれば、体拡散(単結晶内部で起こる原子の拡散)と粒界拡散(多結晶体の粒界で起こる原子の拡散)を区別して測定することができる。これによって、流動則を決定するのに必要な粒界拡散係数と体拡散係数の両方を決定できる。

4. 研究成果

D₂O もしくは H₂¹⁸O を同位体トレーサーとして使い、高圧氷 VI 相、 相の水素と酸素の拡散実験を実施した。まず、常圧低温下で DAC の試料室に H₂O 氷と同位体トレーサーの氷(D₂O もしくは H₂¹⁸O)を分けて詰めた後、氷の融点より十分に低温で、原子拡散が事実上起こらない条件下で加圧して高圧氷の多結晶体の拡散対を作製した(図 1)。試料を充填した後の DAC は電気炉の中に置き、一定の温度条件で保持して同位体トレーサーの拡散を促進させた。

VII 相の実験の温度圧力条件は 300 ~ 425 K, ~ 17 GPa に設定した。拡散後の試料室内の D と ¹⁸O 濃度分布は顕微ラマンマッピング装置を用いて、数 μ m ステップで DAC 試料室内全体を 2 次元ラマンマッピング測定することによって決定した(図 2)。VII 相の水素の拡散係数の圧力依存性は、11 GPa で極大値をとる特異なものであることが分かった。氷のプロトン拡散は、プロトンホッピングと分子回転の 2 つのメカニズムが協同して起こる現象であ

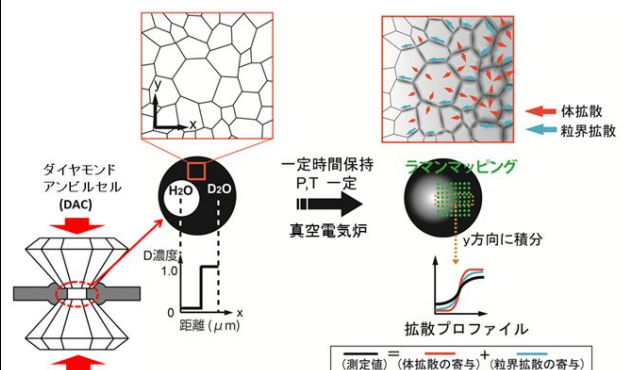


図 1 DAC を使った高圧氷の拡散実験の概略図。

る。本研究の結果は、11 GPa でプロトン拡散の律速過程がプロトンホッピングから分子回転に転移していることを示唆している (Noguchi and Okuchi 2016 JCP)。

VI相の実験の温度圧力条件については、300 ~ 320 K, 1 ~ 1.8 GPaの範囲に設定した。VI相中の水分子の体拡散係数と、その温度依存性から活性化エネルギーを決定できた。この結果を基にして、粒内拡散クリープの式を使って、VI相の低応力条件下での塑性変形流動測を導いた。その結果、タイタン内部のVI相マンツルの温度圧力条件と推定される1.5 GPa, 240 ~ 280 Kでの粘性は、平均粒径は1 cmとして仮定して計算すると $10^{17} \sim 10^{19} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ になった。また、VI相の粘性の温度依存性から、タイタン内部の高圧氷VI相マンツル内で対流が起きる条件(臨界厚み)を導いた(図3, Noguchi et al. in preparation)。現在のタイタン内部の高圧氷VI相の層の厚みは少なくとも100 km以上あることが予想されており(Tobie et al. 2006 nature)、対流が起きている可能性が

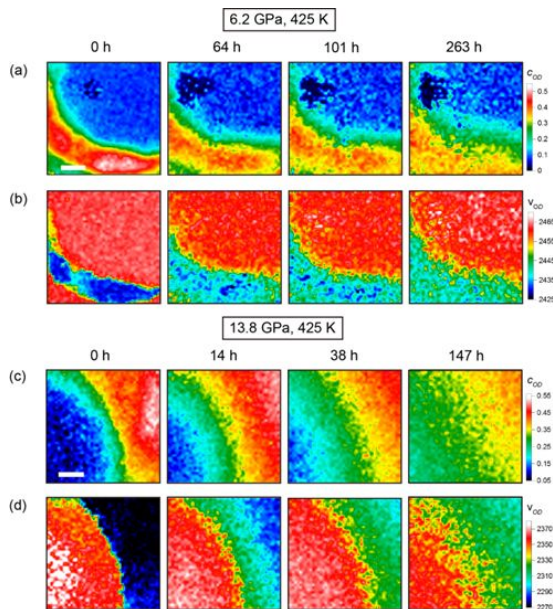


図2 高圧氷 VII 相の水素拡散実験の結果。(a),(c) 重水濃度(C_{OD})の時間変化。(b),(d) OD 伸縮振動ラマンバンドのピーク位置(V_{OD})の時間変化。(a),(b)の温度圧力条件は、6.2GPa, 425Kで、(c),(d)は 13.8GPa, 425K。スケールバーは $20 \mu\text{m}$ を表す(Noguchi and Okuchi 2016 JCP)。

高い(図3)。拡散クリープ領域での粘性は平均粒径に依存するため、対流条件についてより厳密な議論をするためには、VI相多結晶体の粒成長カイクス実験を行って、大型氷天体内部における平均粒径を制約する必要がある。

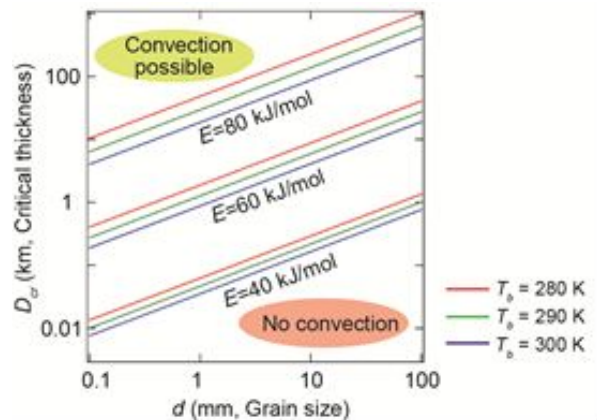


図3 タイタン内部の VI 相マンツルの対流条件(臨界厚み D_{cr})。 T_b はマンツル底部の温度を、 E は VI 相の体拡散係数の活性化エネルギーをそれぞれ表す。拡散実験によって求まる活性化エネルギーは約 60 KJ/mol である。

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計2件)

Noguchi N., Okuchi T., Self-diffusion of protons in H₂O ice VII at high pressures: Anomaly around 10 GPa, The Journal of Chemical Physics, 査読有, vol.144, 2016, pp.234503-1-9, DOI: 10.1063/1.4953688

Noguchi N., Okuchi T., A Peltier cooling diamond anvil cell for low-temperature Raman spectroscopic measurement, Review of Scientific Instruments, 査読有, Vol.87, 2016, pp. 12517-1-4, DOI: 10.1063/1.4972254

〔学会発表〕(計6件)

野口直樹、奥地拓生、原子拡散から探る氷とその高圧相のレオロジー、日本地球科学惑星連合 2017 年大会、2017.5.22、幕張メッセ(千葉県千葉市)

野口直樹、奥地拓生、ペルチエ素子を用いた低温 DAC の開発、日本鉱物科学会 2016 年年会、2016.9.25、金沢大学角間キャンパス(石川県金沢市)

野口直樹、奥地拓生、高圧氷 VII 相のプロトン拡散: 10 GPa における異常、日本鉱物科学会 2016 年年会、2016.9.25、金沢大学角間キャンパス(石川県金沢市)

Noguchi N., Okuchi T., Self-diffusion of protons in H₂O ice VII at high pressures: Anomaly around 10 GPa, 2016 International Union of Crystallography (IUCr) High-Pressure Workshop, 2016.9.21, Pohang(South Korea)

野口直樹、奥地拓生、高圧氷の水素の粒界拡散と体拡散、第 56 回高圧討論会、2015.11.10、アステールプラザ(広島県広島

市)

野口直樹、奥地拓生、富岡尚敬、高圧氷の水素自己拡散、日本地球科学惑星連合 2015 年大会、2015.5.26、幕張メッセ(千葉県千葉市)

6 . 研究組織

(1)研究代表者

野口 直樹 (NOGUCHI, Naoki)

岡山大学・惑星物質研究所・助教(特別契約職員)

研究者番号 : 50621760