

令和 2 年 5 月 19 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2019

課題番号：16K05530

研究課題名（和文）2段階ダイヤモンドアンビル装置によるテラパスカル超高压実験技術の開発

研究課題名（英文）Development of the ultrahigh pressure generation technique using double stage diamond anvil

研究代表者

八木 健彦（Yagi, Takehiko）

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・客員共同研究員

研究者番号：20126189

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：今まで最も高い圧力での静的な超高压実験が可能とされてきたダイヤモンドアンビルを越えて、地球中心部の圧力を越す400GPa以上の超高压を発生できる新たな実験技術の開発に取り組んだ。通常のダイヤモンドアンビル装置の中にミクロンサイズのアンビルを入れる2段階加圧法の開発により、400GPaを越す圧力の発生までは達成したもの、まだ500GPaを越えることには成功していない。しかしミクロンサイズの試料を超高压下までルーチンに加圧する手法は確立され、今後さらに改良を加えることにより、新しい超高压科学の研究の可能性が高まった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超高压実験技術の進歩は、物理学、地球科学、材料科学など多方面において新たな研究の展開を可能にした。その結果はダイヤモンドの人工合成が可能になってダイヤモンドが広く社会で使われるようになったり、超高压下で新しい高温超伝導体が発見されるなど、社会にも大きな影響を及ぼしている。今まで超高压発生限界の拡大は、常に新たな研究の展開に結びついてきた。現在の400GPaとされる限界を越す圧力技術の開発は、また新たな超高压科学の進展に結びつくこと期待され、本研究で得られた知見を元に今後さらなる発展が期待される。

研究成果の概要（英文）：We developed a new experimental technique that can generate ultra-high pressures of more than 400 GPa, which exceeds the pressure at the center of the Earth and the pressure considered to be the upper limit of the diamond anvil apparatus. By developing a two-stage pressurization method to place a micron-sized anvil in a conventional diamond anvil apparatus, we have succeeded in generating a pressure in excess of 400 GPa, but have not yet succeeded in exceeding 500 GPa. However, a method for routinely pressurizing micron-sized samples to ultra-high pressure has been established, and further refinements in the future will increase the potential for new high-pressure science research.

研究分野：超高压物理学、超高压地球科学

キーワード：超高压実験 ダイヤモンドアンビル 2段階

## 1. 研究開始当初の背景

ダイヤモンドアンビル装置は 1950 年代に発表された後大きな発展を遂げ、当初 3GPa 程度とされた圧力限界も 2000 年頃には 300GPa を越え、超高压科学における主要な高压発生装置として広く使われてきた。その圧力領域の拡大は常に新たな高压科学の展開を生み、100GPa を越す「マルチメガバール領域」ではそれまでの科学の常識を覆すような多様な研究が生み出されてきた。しかしその後も圧力領域拡大の努力は続けられたにもかかわらず、400GPa を越す圧力の発生には誰も成功せず、これがダイヤモンドアンビル装置の限界と考えられていた。ところが 2012 年にドイツのグループが「2 段式ダイヤモンドアンビル」という装置を開発して 640GPa の超高压発生に成功したという論文を発表し、高压科学界に衝撃を与えた。ただし彼らの行った実験手法は極めて再現性に乏しく、彼ら自身も数多くの試みを繰り返した中でたまたま成功した例を報告しただけで、他グループによる追試はどこも成功していなかった。そこで我々は、集束イオンビーム(FIB)による微細加工と高品質ナノ多結晶ダイヤモンドの組み合わせにより、再現性の高い 2 段式ダイヤモンドアンビル実験技術を確立し、先行グループの結果の追試とさらなる圧力領域の拡大を試みることにした。

## 2. 研究の目的

従来のダイヤモンドアンビルの限界と考えられている 400GPa を越す超高压力が発生できる新しい実験技術を確立すること。ダイヤモンドのような超硬物質でもミクロン精度の精密な加工をすることができる FIB を用いて、愛媛大グループが作成した高品質ナノ多結晶ダイヤモンドを加工し、通常のダイヤモンドアンビルの試料室中に入れられるミクロンサイズのアンビルを作成して 2 段式で加圧することにより、400GPa を越す超高压領域で X 線測定が可能な、再現性のある実験技術の確立を目指した。

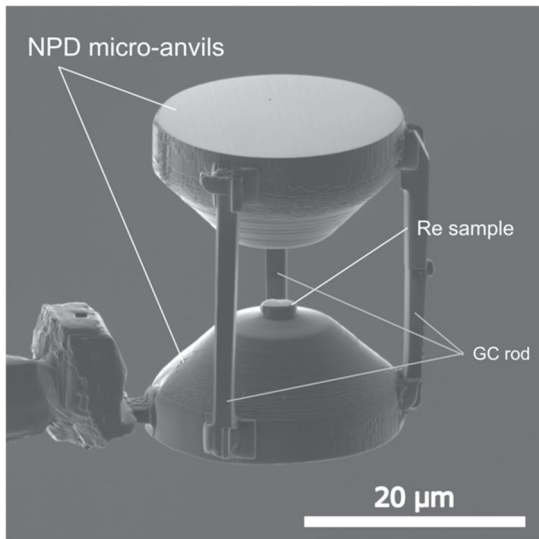
## 3. 研究の方法

本研究は代表者が 2012 年から 2 年間特命教授として在籍した愛媛大地球深部ダイナミクスセンター(GRC)の研究グループとの共同研究として、境毅助教や入舩徹男教授と協力して進めた。GRC では長年ナノ多結晶ダイヤモンドの合成に取り組んでおり、そこで作られた材料をいろいろな機関に設置された FIB 装置を借用してマイクロアンビルに加工し、さらに組み立てまで行った。組み上がった 2 段式ダイヤモンドアンビル装置を西播磨の SPring-8 に持ち込んで、BL10-XU の数ミクロンに絞った高輝度 X 線ビームを照射して X 線回折実験を繰り返し、高压発生実験を繰り返した。マイクロアンビルの作成には 1 組を完成させるのに 1 週間程度の FIB を用いた作業が必要とされ、X 線を用いた高压実験は 1 回の run に対してほぼ 24 時間程度が必要とされる。SPring-8 の BL10XU ビームラインで使用が認められたマシンタイムは年 2 度程度で、マイクロアンビルの形状や寸法などいくつかのパラメータを変化させながら、計画開始後今まで 30 回近い実験を繰り返し、様々な知見を得ることができた。

## 4. 研究成果

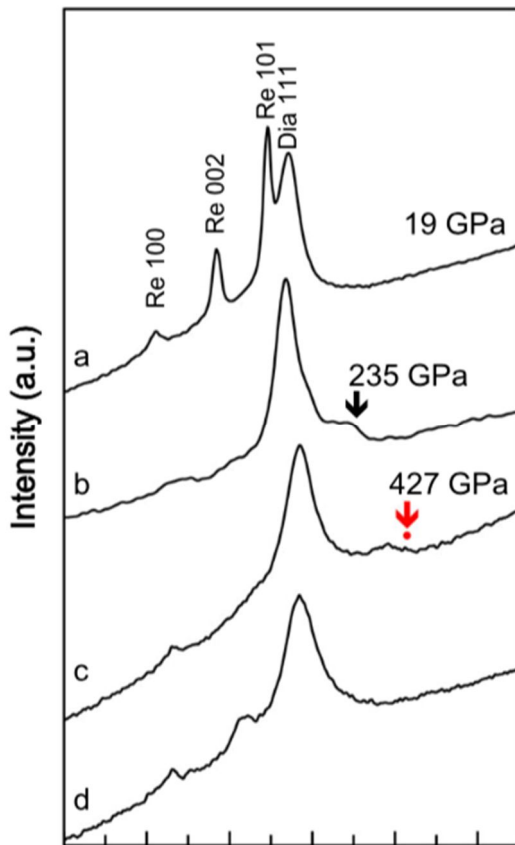
図 1 に組み立てたマイクロアンビルの一例を示す。このように直径、高さとも 20 $\mu$ m 程度のミクロンサイズのアンビルであるが、正確な形状に削り出し、それを対向させた状態で glassy carbon のロッドで固定し、中心に直径 3 $\mu$ m 厚さ 1 $\mu$ m に整形した試料を載せて固定するといった作業を、再現性を持って正確に行う加工技術が確立できた。このことにより、従来ダイヤモンドアンビルが破壊せずに到達できる確率が決して高くはない 300GPa 程度の圧力は、ほぼ確実に発生可能になった。

図 1. 加工されたマイクロアンビルの例 材料はナノ多結晶ダイヤモンド



このマイクロアンビルを通常のダイヤモンドアンビルの試料室に入れて加圧し、数ミクロンの太さに絞った X 線を照射することにより、試料が Re の場合は数秒の露出で次のような X 線回折パターンが得られる。

図 2. 数ミクロンに絞った X 線を照射して得られた Re の回折 X 線パターン。



このような実験を繰り返し様々な検討を行った結果、到達した最高圧力は 427GPa であるが、2012 年に 640GPa を発生したと報告された論文(Ref.1)で使われた圧力測定法には重大な問題点があり、図 3 に示したように、実際に Re に発生できた圧力は我々の実験の方が高いことが明らかにされた。

図 3 . 1 段目アンビルで発生した封圧 vs. マイクロアンビル間に発生した試料圧力。改訂された Re の圧力スケールを用いると、Ref.1 で報告された最高圧力は 420GPa 程度になる。

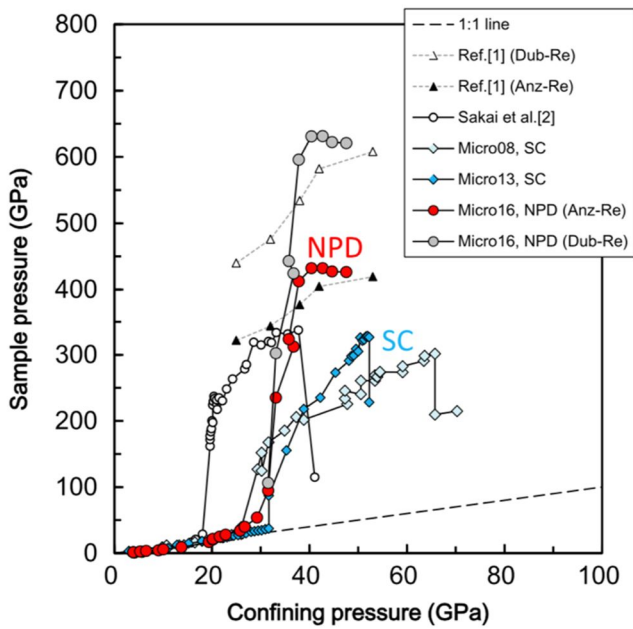
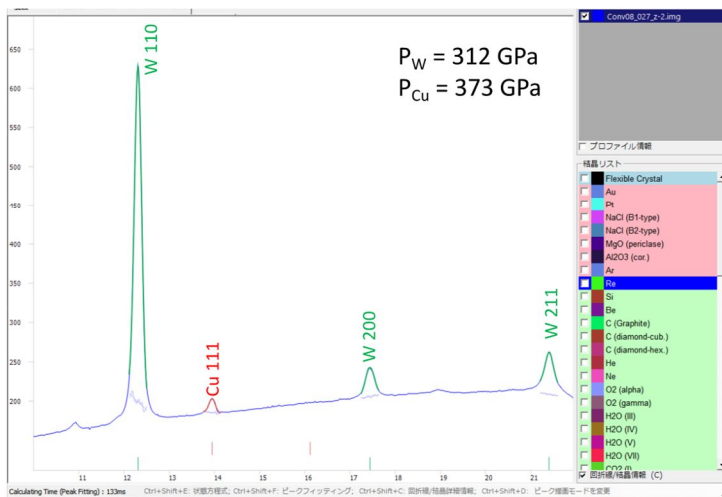


図 2 に示した回折パターンでは、X線を照射した試料中の圧力勾配が大きく、極めてブロードなX線パターンしか得られなかったが、最終年度に行った BL37XU での 100nm サイズのビームを使った実験では、図 4 に示すような、通常のダイヤモンドアンビル実験と比べて遜色のない高品質のX線回折パターンが得られることが明らかにされた。

図 4. BL37XU のナノビームを使って得られたWと Cu の回折パターン。

Conv08\_027\_z-2



このように、本研究実施期間の間では 400GPa を大きく越える圧力発生までは至らなかったものの、このようなマイクロサイズのアンビルを用いた超高压発生実験に関して豊富な知見を得ることができた。今後これらの知見を生かすことにより、500GPa を越す圧力領域での実験が充分可能になると考えられ、高压科学のさらなる発展につながると期待される。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Sakai Takeshi, Yagi Takehiko, Takeda Ryosuke, Hamatani Toshiki, Nakamoto Yuki, Kadobayashi Hirokazu, Mimori Hideto, I. Kawaguchi Saori, Hirao Naohisa, Kuramochi Keitaro, Ishimatsu Naoki, Kunimoto Takehiro, Ohfuji Hiroaki, Ohishi Yasuo, Irifune Tetsuo, Shimizu Katsuya	4. 巻 40
2. 論文標題 Conical support for double-stage diamond anvil apparatus	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 12~21
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi.org/10.1080/08957959.2019.1691190	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 Yagi Takehiko, Sakai Takeshi, Kadobayashi Hirokazu, Irifune Tetsuo	4. 巻 40
2. 論文標題 Review: high pressure generation techniques beyond the limit of conventional diamond anvils	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 148~161
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) doi.org/10.1080/08957959.2019.1704753	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 Takeshi Sakai, Takehiko Yagi, Tetsuo Irifune, Hirokazu Kadobayashi, Naohisa Hirao, Takehiro Kunimoto, Hiroaki Ohfuji, Saori Kawaguchi-Imada, Yasuo Ohishi, Shigehiko Tateno & Kei Hirose	4. 巻 38
2. 論文標題 High pressure generation using double-stage diamond anvil technique: problems and equations of state of rhenium	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 107-119
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/08957959.2018.1448082	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 Takehiko Yagi	4. 巻 534
2. 論文標題 Hydrogen and oxygen in the deep Earth	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Nature	6. 最初と最後の頁 183-184
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	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8件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Takehiko Yagi
2. 発表標題 Development of Diamond Anvil in the Last 50 Years and its Future
3. 学会等名 50 Years at High Pressure, Carnegie Science Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takehiko Yagi, Takeshi Sakai, Tetsuo Irifune
2. 発表標題 Ultra-high pressure generation using double stage diamond anvil technique and the properties of
3. 学会等名 Science and Technology of Nano-Polycrystalline Diamond 2019 (STNPD-2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 境 毅・八木 健彦・門林 宏和・三守 秀門・武田 良介・濱谷 俊希・中本 有 紀・河口 沙織・平尾 直久・入船 徹男
2. 発表標題 コニカルサポート型2段式ダイヤモンドアンビルセルの開発
3. 学会等名 第59回高压討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Takehiko Yagi, Takeshi Sakai, Tetsuo Irifune
2. 発表標題 Developments of Diamond Anvils for the Study of High-Pressure Mineral Physics
3. 学会等名 Magmatism of the Earth and related strategic metal deposits 2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 T. Yagi, T. Sakai, H. Kadobayashi, N. Hirao, T. Kunimoto, H. Ohfujii, S. Kawaguchi-Imada, Y. Ohishi, S. Tateno, K. Hirose, T. Irifune
2. 発表標題 Double-Stage Diamond Anvil Cell Technique for Ultra-High Pressure Generation
3. 学会等名 High Pressure Mineral Physics Seminar (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 境 毅・八木 健彦・門林 宏和・國本 健広・大藤 弘明・平尾 直久・河口 沙織・大石 泰生・入舩 徹男
2. 発表標題 2 段式ダイヤモンドアンビルセルの技術的問題点
3. 学会等名 第58回高圧討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 T. Yagi, T. Sakai, T. Irifune, N. Hirao, Y. Ohishi
2. 発表標題 Challenge of generating pressures beyond the limit of diamond anvil: Double stage anvils fabricated using FIB
3. 学会等名 54th EHPRG Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 Takehiko Yagi
2. 発表標題 Synchrotron Facilities and High Pressure Science in Japan
3. 学会等名 2016 IUCr High-Pressure Workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 Takehiko Yagi	4. 発行年 2020年
2. 出版社 Cambridge University Press	5. 総ページ数 250
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
--	---------------------------	-----------------------	----