

令和 2 年 6 月 20 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17H02984

研究課題名(和文) 高精度温度制御システムによる最下部マントルの実験岩石学

研究課題名(英文) Newly developed internal-resistive heated diamond-anvil cell with boron-doped diamond: Toward deep lower-mantle petrology

研究代表者

館野 繁彦 (Tateno, Shigehiko)

東京工業大学・地球生命研究所・研究員

研究者番号：30572903

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 25,440,000円

研究成果の概要(和文)：精密な温度制御が可能な内部抵抗加熱式ダイヤモンドアンビルセルを開発した。50万気圧において3600Kまで安定した高温発生を可能にし、技術論文としてまとめ発表した(Ozawa et al., 2018)。ホウ素添加導電性ダイヤモンドを発熱体として用いることで、2500Kを越える超高温状態を時間的(1時間以上)にも空間的(観察する40マイクロメートルの範囲内が $\pm 35$ K以内)にも安定的に保持することができた。これまで用いられてきたレーザー加熱によって決められた、鉱物の高压相転移や物性測定の研究をより精密に行うことができる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球の起源と進化を解明するため、その大部分を占める固体地球の構成元素、内部構造、物性を明らかにすることを目指している。そのために、地球深部の候補物質について様々な物理化学的情報を明らかにする必要がある。地球深部の高温高压環境を再現するために、ダイヤモンドアンビルセルが用いられてきたが、従来のレーザーを用いた高温発生方法には改良の余地があった。本研究では導電性ダイヤモンドを初めて加熱用発熱体として用いることで、高温発生の安定性の向上、精度と確度を向上させることができた。本実験技術により得られる信頼性の高い実験データを元に、地球科学の議論の精密化が可能になる。

研究成果の概要(英文)：We have developed an internal-resistive heated diamond-anvil cell (IHDAC) with a new resistance heater-boron-doped diamond (BDD)- along with an optimized design of the cell assembly, including a composite gasket. Our technique is capable of heating a silicate/oxide material with (1) long-term stability (>1 h at 2500 K) and (2) uniform radial temperature distribution ( $\pm 35$  K at 2500 K across a 40- $\mu$ m area), which are clear advantages over the conventional laser-heated and internal-heated DACs. In addition, the achieved temperature in this study was greater than 3500 K, which mostly covers the possible geotherm of the entire lower mantle. In situ X-ray diffraction (XRD) measurement and ex situ chemical analyses confirmed that weak XRD intensity from the BDD heater and chemical inertness (no boron diffusion into samples). This newly developed IHDAC with a BDD heater can be used to determine the phase diagrams of mantle materials with high precision and be used in lower-mantle petrology.

研究分野：地球深部物質科学

キーワード：高温高压実験

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

初期地球におけるマントルの分化、およびその現在に至る進化過程を解明し地球の起源物質特定につなげることであり、太陽系惑星形成論に物質科学の立場から貢献することを目指している。その鍵は下部マントルの底にあると考える。地球物理学者は地震波観測により大小様々なスケール(LLSVP, ULVZ)の化学的不均質を示唆し、地球化学者はマントルの非コンドライト的同位体組成の起源として Early Enriched Reservoir の所在をマントル最下部に求める。これら観測事実が増える中、両者を結びつけ得る物質科学データの提示が今急がれている。

マントル最下部の物質科学的な研究はアクセスが唯一許されているダイヤモンドアンビルセル(DAC)によって進められてきた。ポストペロフスカイト相転移が2004年に発見され、地震波観測結果の解釈やマントルダイナミクスに与える多大な影響について理解が一気に進んだ。近年は初期地球の物質分化の理解を目指し、マントルの融解についての研究が始まっている。日本では申請者ら(Nomura+2011Nature, Tateno+2014JGR ほか)、海外では特にフランスの3グループ(パリ大学, パリ地球物理研究所, ブレーゼパスカル大学)を中心に盛んに当該研究が取り組まれている(Fiquet+2010 ほか)。しかしながら極めて重要なテーマであっても研究グループ間でコンセンサスが得られていない。例えばポストペロフスカイト転移はマントル圧力内で起こるかどうかさえも今や自明ではなくなってしまった(Grocholsky+2012 ほか)。初期地球のマグマオーシャン結晶化過程で重要な結晶-メルト間の鉄分配については、研究グループ間で正反対の結果が得られている(Andrault+2012)。これらは地球科学的重要性に加え、コミュニティの信頼を失い兼ねない極めて由々しき自体であり、早急な解決が求められている。

### 2. 研究の目的

これら不一致の原因は試料加熱に従来用いられてきたレーザー加熱法に帰着することに疑いの余地はない。レーザー加熱法は高温発生が比較的容易に行うことができる。しかしながら(1)照射するレーザー自体がガウシアンエネルギー分布を持っていることと(2)温度の時間変動が大きいこと、この2つが化学平衡の達成を妨げる本質的な原因となっていた。例えば温度勾配によって選択的な元素拡散が誘起されることはよく知られている(Sinmyo&Hirose, 2010)。とにかく加熱法を改善しない限りはこの混沌とした状況に終止符を打つことはできない。そこで、レーザー加熱の問題点を克服した加熱方法を確立し、これによる精密な温度制御に基づいた実験岩石学的研究を可能にする。そこで、DAC 試料室内に発熱体を導入した内部抵抗加熱法を確立する。これを応用し、マントル鉱物の相転移およびマントル物質の融解実験について熱力学的に信頼性の高いデータを取得し、未だ整合性を得られていないまたは解明されていないマントル深部における物質分化を明らかにする。

### 3. 研究の方法

まず発熱体の材料選定が鍵である。マントル物質の抵抗加熱実験においてヒーター材に求められる特性は下記の通りである。(1)マントル物質の融解実験 ケイ酸塩よりも優位に高融点な物質(2)発熱体との化学反応を抑える 化学的に不活性な物質(3)カプセル内の温度均質化 高電気/熱伝導率な物質(4)放射光 X 線を用いた実験が可能であること X 線の散乱能が低く透過率が高い物質。以上を全て満たすのはホウ素添加導電性ダイヤモンド(BDD)しかない。ダイヤモンドはホウ素をキャリアドープされることでその濃度に応じて絶縁体から半導体、そして金属として振る舞う。以上の特性を生かし、BDD を DAC 試料室内の発熱体として利用する。まずは岡山大学惑星物質研究所でマルチアンビル装置を用いた BDD の高圧合成を行った。得られた BDD を紫外レーザーによる微細加工を施し  $\phi 100\mu\text{m}$  を下回る DAC 試料室内に導入する。加熱効率などを考慮した上で、この形状の最適化を行う。次に抵抗加熱を行う上では、試料内のみ導通させるための絶縁ガスケットの開発が必要である。従来、電気抵抗測定などに用いられてきた絶縁ガスケットはシンプルである一方で、試料充填の難易度を上げていた。そこで、新規絶縁ガスケットを開発する。

### 4. 研究成果

高圧合成した多結晶 BDD を紫外レーザーで微細加工し、加熱効率や温度勾配を考慮した形状の最適化を行った。実験の再現性の向上、試料充填の簡素化、加熱効率向上のため、試料室およびガスケット構成を最適化した。ガスケットはタングステン箔に絶縁層を挟み込む三層構造にし、内部絶縁ガスケットにサファイア単結晶を用いた。半導体的振る舞いをするホウ素量 0.5wt%の BDD と金属的振る舞いをするホウ素量 3wt%の BDD を両方について実験を行った。ホウ素添加量によらず、10W 未満の低電力でも 3000K 以上の超高温が発生可能であり、高い加熱効率を確認できた。また、2500K を越える超高温状態を時間的(1時間以上)にも空間的(観察する  $40\mu\text{m}$  の範囲内が  $\pm 35\text{K}$  以内)にも安定的に保持することができた。以上を技術論文としてまとめ出版した(Ozawa et al., 2018 High Pressure Research)。

また、発熱体由来のホウ素の試料室中への拡散を調べた。実験回収試料をイオンスライサによりイオン研磨し、その断面を北海道大学の二次イオン質量分析計(SIMS)を用いてマッピングを行った。ホウ素は試料であるケイ酸塩物質へは拡散しておらず、この加熱方法による試料のホウ素汚染がないことを確かめた。また、大型放射光施設 SPring-8 において、X 線回折実験を行った。

発熱体の BDD 由来の回折線は試料からのそれと比べると十分に弱いことが分かり、X 線回折を用いた研究も十分に可能であることを確かめた。

この技術は、精密な温度制御を必要とする相転移境界決定や状態方程式の研究に威力を発揮する。そのため、比較対象としてレーザー加熱を用いて以下の実験を行った。(1)マルチアンビルプレスを用いた Fe<sub>2</sub>S を高压合成し、レーザー加熱法を用いて結晶構造探索を行った。実験は 50GPa から 300GPa の広い圧力範囲で行い、150GPa 以上では Pmna 構造が安定であることを確かめた(Tateno et al., 2019 GRL)。(2)核の軽元素組成や密度を議論する上でも最も重要な純鉄の状態方程式の研究は、これまで 140GPa までしか行われてこなかった。そこで、本研究ではこの実験圧力を 210GPa まで拡大した圧縮実験を行った。この実験のために先行して CsCl 型 KCl の P-V-T 状態方程式を構築し(Tateno et al. 2019 Ame. Mineral.)、これを圧力媒体かつ圧力マーカーに用いた。既報の温度圧力条件を大幅に拡大し 210GPa、3500K まで実験を行った。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 2件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Tateno Shigehiko, Komabayashi Tetsuya, Hirose Kei, Hirao Naohisa, Ohishi Yasuo	4. 巻 104
2. 論文標題 Static compression of B2 KCl to 230 GPa and its P-V-T equation of state	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 American Mineralogist	6. 最初と最後の頁 718 ~ 723
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2138/am-2019-6779	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 該当する
1. 著者名 Tateno Shigehiko, Hirose Kei, Sakata Shuhei, Yonemitsu Kyoko, Ozawa Haruka, Hirata Takafumi, Hirao Naohisa, Ohishi Yasuo	4. 巻 123
2. 論文標題 Melting Phase Relations and Element Partitioning in MORB to Lowermost Mantle Conditions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Geophysical Research: Solid Earth	6. 最初と最後の頁 5515 ~ 5531
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2018JB015790	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 Sakai Takeshi, Yagi Takehiko, Irifune Tetsuo, Kadobayashi Hirokazu, Hirao Naohisa, Kunimoto Takehiro, Ohfuji Hiroaki, Kawaguchi-Imada Saori, Ohishi Yasuo, Tateno Shigehiko, Hirose Kei	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 Ozawa Keisuke, Anzai Miyuki, Hirose Kei, Sinmyo Ryosuke, Tateno Shigehiko	4. 巻 45
2. 論文標題 Experimental Determination of Eutectic Liquid Compositions in the MgO-SiO <sub>2</sub> System to the Lowermost Mantle Pressures	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Geophysical Research Letters	6. 最初と最後の頁 9552 ~ 9558
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2018GL079313	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 Ozawa Haruka, Tateno Shigehiko, Xie Longjian, Nakajima Yoichi, Sakamoto Naoya, Kawaguchi Saori I., Yoneda Akira, Hirao Naohisa	4. 巻 38
2. 論文標題 Boron-doped diamond as a new heating element for internal-resistive heated diamond-anvil cell	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 120 ~ 135
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/08957959.2018.1441407	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 Tateno Shigehiko, Hirose Kei, Sinmyo Ryosuke, Morard Guillaume, Hirao Naohisa, Ohishi Yasuo	4. 巻 103
2. 論文標題 Melting experiments on Fe-Si-S alloys to core pressures: Silicon in the core?	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 American Mineralogist	6. 最初と最後の頁 742 ~ 748
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2138/am-2018-6299	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 該当する

1. 著者名 Sakai Takeshi, Yagi Takehiko, Irifune Tetsuo, Kadobayashi Hirokazu, Hirao Naohisa, Kunimoto Takehiro, Ohfuji Hiroaki, Kawaguchi-Imada Saori, Ohishi Yasuo, Tateno Shigehiko, Hirose Kei	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 Greaux Steeve, Nishi Masayuki, Tateno Shigehiko, Kuwayama Yasuhiro, Hirao Naohisa, Kawai Kenji, Maruyama Shigenori, Irifune Tetsuo	4. 巻 274
2. 論文標題 High-pressure phase relation of KREEP basalts: A clue for finding the lost Hadean crust?	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physics of the Earth and Planetary Interiors	6. 最初と最後の頁 184 ~ 194
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.pepi.2017.12.004	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 SUMINO Hirochika, KISHI Satoshi, NOMURA Ryuichi, MIBE Kenji, TATENO Shigehiko, KAGI Hiroyuki	4. 巻 27
2. 論文標題 Constraints on Primordial Noble Gas Reservoir Deep in the Earth by High-Pressure and High-Temperature Experiments	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 The Review of High Pressure Science and Technology	6. 最初と最後の頁 266 ~ 277
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.4131/jshpreview.27.266	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 Nishi Masayuki, Greaux Steeve, Tateno Shigehiko, Kuwayama Yasuhiro, Kawai Kenji, Irifune Tetsuo, Maruyama Shigenori	4. 巻 -
2. 論文標題 High-pressure phase transitions of anorthosite crust in the Earth's deep mantle	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Geoscience Frontiers	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.gsf.2017.10.002	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 Kawaguchi Saori I., Nakajima Yoichi, Hirose Kei, Komabayashi Tetsuya, Ozawa Haruka, Tateno Shigehiko, Kuwayama Yasuhiro, Tsutsui Satoshi, Baron Alfred Q. R.	4. 巻 122
2. 論文標題 Sound velocity of liquid Fe-Ni-S at high pressure	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Journal of Geophysical Research: Solid Earth	6. 最初と最後の頁 3624 ~ 3634
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/2016JB013609	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 Mori Yuko, Ozawa Haruka, Hirose Kei, Sinmyo Ryosuke, Tateno Shigehiko, Morard Guillaume, Ohishi Yasuo	4. 巻 464
2. 論文標題 Melting experiments on Fe-Fe3S system to 254 GPa	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Earth and Planetary Science Letters	6. 最初と最後の頁 135 ~ 141
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.epsl.2017.02.021	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6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Shigehiko Tateno
2. 発表標題 Phase diagram of Fe-Si-S: Si in the core?
3. 学会等名 Japan Geoscience Union ( 国際学会 )
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 館野繁彦
2. 発表標題 ICB における PGE 分配
3. 学会等名 研究集会「高圧液体の挙動と初期地球進化」
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shigehiko Tateno
2. 発表標題 Fe <sub>2</sub> S: the most iron-rich Fe-S compound at pressures of the inner core
3. 学会等名 Joint symposium of Misasa 2019 & Core-Mantle Coevolution ( 国際学会 )
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tateno, S., Komabayashi, T., Hirose, K
2. 発表標題 Static compression of B2 KCl to 230 GPa and its P-V-T equation of state
3. 学会等名 Joint symposium of Misasa 2019 & Core-Mantle Coevolution ( 国際学会 )
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Shigehiko Tateno
2. 発表標題 Newly developed internal-resistive heated diamond-anvil cell with boron-doped diamond: Toward deep lower-mantle petrology
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Shigehiko Tateno
2. 発表標題 Melting experiments on Fe-Si-S alloys to core pressures
3. 学会等名 新学術領域研究「核 - マントル共進化」平成29年度国際シンポジウム (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔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 分担者	米田 明  (Yoneda Akira)  (10262841)	岡山大学・惑星物質研究所・客員研究員   (15301)	
研究 分担者	中島 陽一  (Nakajima Yoixhi)  (50700209)	熊本大学・大学院先導機構・助教   (17401)	