

令和 5 年 6 月 22 日現在

機関番号：84502

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02004

研究課題名(和文) X線非弾性散乱法による下部マントル条件での含鉄ブリッジマナイトの結晶弾性定数測定

研究課題名(英文) Single crystal elasticity of iron-bearing bridgmanite under lower-mantle conditions by the inelastic x-ray scattering method

研究代表者

福井 宏之 (FUKUI, Hiroshi)

公益財団法人高輝度光科学研究センター・精密分光推進室・テニューアトラック研究員

研究者番号：90397901

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：含鉄ブリッジマナイトは下部マントル主要構成物質である。下部マントル条件下での単結晶弾性率は地球下部マントルを物質科学的に理解するために必要不可欠な物理量である。物質の弾性定数を決定する手法にはいくつかあるが、光学的に不透明である含鉄ケイ酸塩に対し、極限条件下において、単結晶弾性定数を決定する手法として、線非弾性散乱に着目した。我々はこれを実現するべく、含鉄ブリッジマナイト単結晶の合成およびその単結晶評価の観点と高圧単結晶に対する線非弾性散乱測定技術開発の観点から並行して研究を推進し、最終的に高圧下での含鉄ブリッジマナイト単結晶に対する線非弾性散乱測定を実施し、重要なデータを得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

含鉄ブリッジマナイトは下部マントル主要構成物質である。下部マントル条件下での単結晶弾性率は地球下部マントルを物質科学的に理解するために必要不可欠な物理量である。

研究成果の概要(英文)：Iron-bearing bridgmanite is one of main components of the Earth's lower mantle. The single crystal elasticity of this material under the lower mantle conditions is essential to understand the lower mantle from the viewpoint of material sciences. There are several techniques to determine elastic property of materials. We have used inelastic x-ray scattering (IXS) technique which can be adopted to opaque and tiny single crystal under extreme conditions. We have performed the synthesis and characterization of iron-bearing bridgmanite single crystals and developed IXS techniques on high-pressure single crystals in parallel. Finally, we have obtained precious data on the single crystal elasticity of the iron-bearing bridgmanites under high-pressure conditions.

研究分野：高圧物質科学

キーワード：ブリッジマナイト 弾性波速度 X線非弾性散乱 下部マントル 単結晶 ダイヤモンドアンビルセル

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

地球内部構造は地震波速度構造として観測によって決められている。この構造を物質科学的に理解するためには、地球を構成する鉱物の弾性定数を地球内部条件で測定しなければならない。実験室において温度・圧力・組成に対する鉱物の弾性定数の依存性がわかれば、地震波速度構造を温度構造・鉱物化学組成構造として解釈できる。

地球内部に成層的な地震波速度構造が存在することは以前からよく知られていたが、近年における観測網の整備と解析手法の革新により、地震波構造の局地的な不均質性や異方性が明らかとなってきた。これまで弾性的に一樣等方的であると思われていた下部マントルにおいても、その不均質性や異方性の報告がなされてきている。下部マントルについて理解を進めるためには、その主要構成鉱物である含鉄マグネシウムアルミノケイ酸塩ペロブスカイト、即ちブリッジマナイト(Mg,Fe)(Si,Al,Fe)O₃の弾性波速度を下部マントル条件で測定する必要がある。特に下部マントルの異方性について議論するためには、ブリッジマナイトの結晶弾性定数の実験的データが不可欠である。

2. 研究の目的

本研究の目的は下部マントル条件下での含鉄ブリッジマナイトの単結晶弾性定数を測定し、下部マントルの温度構造および鉱物化学組成構造モデルの構築を行うこととした。そのために以下の個別目標を設定した。第一は含鉄ブリッジマナイト単結晶合成とその結晶学的特性決定であった。第二は単結晶を高圧条件まで結晶性を悪化させることなく加圧させるための技術開発であった。第三は高圧下の微小単結晶に対する線非弾性散乱測定技術開発であった。

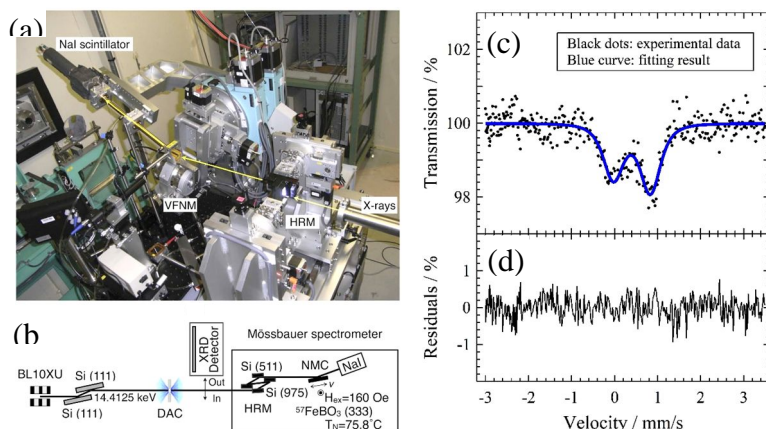
3. 研究の方法

含鉄ブリッジマナイト単結晶は岡山大学地球物質研究所の大容積高圧発生装置を用いて研究分担者の芳野が合成した。合成された試料は山口大学の4軸線回折装置等を用いて分担者の中塚が結晶性評価や組成の決定を行った。いくつかの試料については放射光メスバウア測定を実施する機会があったので、これにより鉄の価数の決定も行った。単結晶加圧技術については研究代表者が「遠隔操作型ダイヤモンドアンビルセル加圧・加熱制御装置」を開発した。これにより、ダイヤモンドアンビルセル中の単結晶を加熱しつつ、圧力をモニタしながら加圧することが原理的には可能となった。高圧下の微小試料に対する線非弾性散乱測定技術開発および測定は主にSPring-8のビームラインBL43LXUにて行った。ブリッジマナイトではないいくつかの試料についての測定もBL35XUにおいて実施した。

4. 研究成果

(1) 含鉄ブリッジマナイト単結晶合成と結晶学的特性決定について

沈み込みスラブを形成する中央海嶺玄武岩(MORB)組成を出発物質として、大容積高圧発生装置により鉄とアルミニウムに富むブリッジマナイトを合成した。この単結晶試料に対してEPMAによる化学分析と放射光メスバウア分光測定(下図)による鉄の価数決定を行った。また線を用いた単結晶精密構造解析も実施した。これらの結果から、MORBから転移したブリッジマナイトには鉄は3価として含まれ、同原子数のアルミニウムも含まれていることが明らかとなった。即ち、鉄とアルミニウムの固溶メカニズムは(Fe³⁺, Al³⁺)ペアと(Mg²⁺, Si⁴⁺)ペアによるTschermak型の電荷カップル置換であると考えられた。また結晶構造解析から、Fe³⁺はMg²⁺のサイトに、Al³⁺はSi⁴⁺のサイトに入ることが確かめられた。含鉄ブリッジマナイトの弾性定数は鉄の固溶(置換)様式に依存することが示唆されており、試料のキャラクタリゼーションをこのレベルで実施することは非常に重要であると考えられた。



図(a)本研究で使用した放射光メスバウア分光装置と(b)その模式図。(c)ブリッジマナイト単結晶のメスバウアスペクトルと(d)そのフィッティング残差。この測定から、合成されたブリッジマナイト中の鉄(Fe)はすべて3価の高スピン状態であることが分かった。

(2) 単結晶を高圧条件まで結晶性を悪化させることなく加圧させるための技術開発

単結晶試料を高圧下へと加圧する方法論の確立は本研究を実施するための重要なポイントである。我々はガス駆動型ダイヤモンドアンビルセルと外熱加熱装置および分光手法による圧力測定装置を組み合わせた「遠隔操作型ダイヤモンドアンビルセル加圧・加熱制御装置」を開発した。この装置のデモンストレーションとして、SPRING-8の課題「高温下における金属鉄単結晶のbcc-hcp相転移の観察」(課題番号2021A1119)において、ヘリウム圧力媒体中でのbcc鉄単結晶の加圧実験を行った。ここでは約700Kでの加圧に成功した。実験結果から、bcc-hcp-fccの三重点は過去に提案された圧力よりも高いことが予想された。また過去の論文では三重点の温度は約780Kと報告されているため、今回開発された装置を用いることでこの三重点の精密決定も可能であると期待できる。

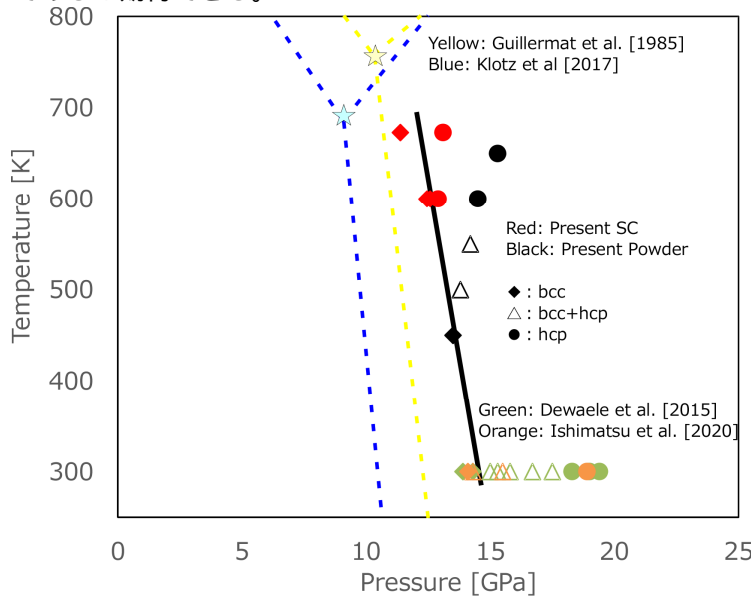


図. 「遠隔操作型ダイヤモンドアンビルセル加圧・加熱制御装置」を用いて測定した鉄のbcc-fcc相境界(黒線)、黒は粉末試料、赤は単結晶試料でのデータ。ダイヤモンドはbcc相、丸はhcp相、△は2相共存を示す。破線および星印は先行研究によるbcc-hcp-fcc相境界および三重点。こまた緑およびオレンジの印は室温での実験結果。今回得られたbcc-hcp相境界は室温での研究結果と調和的であり、三重点の位置は先行研究よりも高い圧力にあることを示唆する。

(3) 高圧下の微小単結晶に対する線非弾性散乱測定

NaClの単結晶弾性定数測定

NaClは古くから多くの研究にて圧力マーカーとして用いられている。本研究では、NaCl単結晶に足してX線非弾性散乱測定を実施し、絶対圧力スケールを決定した。また、NaClの圧縮挙動をモデル化するには、非常による用いられている3パラメータの状態方程式ではなく、高次の圧力依存性を取り入れた4パラメータモデルを用いる必要性が示された。

Taの単結晶弾性定数測定

タンタルはbcc構造を取る金属である。この単結晶に対して、54万気圧までの圧力条件で線非弾性散乱測定を実施し、絶対圧力スケールを求めた。得られた圧力-体積の関係は先行研究と調和的であった。また本結果と先行研究による圧縮結果とを比較することにより、100万気圧付近で予言されている電子転移による弾性異常の兆候が80万気圧付近に表れることも示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計13件（うち査読付論文 13件／うち国際共著 1件／うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Akihiko Nakatsuka, Hiroshi Fukui, Seiji Kamada, Naohisa Hirao, Makio Ohkawa, Kazumasa Sugiyama, Takashi Yoshino	4. 巻 24
2. 論文標題 Incorporation mechanism of Fe and Al into bridgmanite in a subducting mid-ocean ridge basalt and its crystal chemistry	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 22839
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-00403-6	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 D. Bessas, H. Fukui, K. Sugimoto, K. Glazyrin, I. Sergueev, G. Levchenko, A. Dukhnenko, V. Filipov, O. Isnard, D. Ishikawa, H. Yoshikawa, O. Sakata, A. Q. R. Baron	4. 巻 130
2. 論文標題 Physical properties of YB66 and consideration of possible use for high-resolution X-ray optics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 25105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0054482	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 Hiroshi Fukui, Hirokazu Kadobayashi, Hirotaka Abe, Ryunosuke Takahashi, Hiroki Wadati, Naohisa Hirao	4. 巻 156
2. 論文標題 Equation of states for dense ice up to 80 GPa at low-temperature conditions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 64504
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0084278	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 Huimin Shao, Hiroshi Isobe, Ginga Kitahara, Hiroshi Fukui, Akira Yoshiasa	4. 巻 48
2. 論文標題 XAFS and XRD study on Fe, Ni, and Ge in iron meteorite NWA 859	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physics and Chemistry of Minerals	6. 最初と最後の頁 11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s00269-021-01136-8	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 Fukui Hiroshi, Yoneda Akira, Kamada Seiji, Uchiyama Hiroshi, Tsutsui Satoshi, Hirao Naohisa, Baron Alfred Q. R.	4. 巻 40
2. 論文標題 Elasticity of single-crystal NaCl under high-pressure: simultaneous measurement of x-ray inelastic scattering and diffraction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 High Pressure Research	6. 最初と最後の頁 465 ~ 477
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/08957959.2020.1806260	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 Fukui Hiroshi, Fujimoto Manato, Akahama Yuichi, Sano-Furukawa Asami, Hattori Takanori	4. 巻 75
2. 論文標題 Structure change of monoclinic ZrO ₂ baddeleyite involving softenings of bulk modulus and atom vibrations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Acta Crystallographica Section B Structural Science, Crystal Engineering and Materials	6. 最初と最後の頁 742 ~ 749
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S2052520619007923	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 Anh Le The, Wada Masahiro, Fukui Hiroshi, Kawatsu Tsutomu, Iitaka Toshiaki	4. 巻 9
2. 論文標題 First-principles calculations of the epsilon phase of solid oxygen	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 8731
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-45314-9	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 Fukui Hiroshi, Anh Le The, Wada Masahiro, Hiraoka Nozomu, Iitaka Toshiaki, Hirao Naohisa, Akahama Yuichi, Irifune Tetsuo	4. 巻 116
2. 論文標題 Electronic structure of dense solid oxygen from insulator to metal investigated with X-ray Raman scattering	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 21385 ~ 21391
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1073/pnas.1905771116	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 Sun Wei, Yoshino Takashi, Kuroda Minami, Sakamoto Naoya, Yurimoto Hisayoshi	4. 巻 124
2. 論文標題 H D Interdiffusion in Single Crystal Olivine: Implications for Electrical Conductivity in the Upper Mantle	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Geophysical Research: Solid Earth	6. 最初と最後の頁 5696 ~ 5707
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1029/2019JB017576	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 Fukui Hiroshi, Yoneda Akira, Kamada Seiji, Uchiyama Hiroshi, Hirao Naohisa, Baron Alfred Q. R.	4. 巻 132
2. 論文標題 Single crystal elasticity and equation of state of tantalum up to 54 GPa	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 055902 ~ 055902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0089667	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 Sawada S., Okai K., Fukui H., Takahashi R., Ishimatsu N., Maruyama H., Kawamura N., Kawaguchi S., Hirao N., Seki T., Takanashi K., Ohmura S., Wadati H.	4. 巻 122
2. 論文標題 Lattice constants and magnetism of L10-ordered FePt under high pressure	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Applied Physics 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) 10.1063/5.0139441	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 Dominijanni S., McCammon C. A., Ohtani E., Ikuta D., Sakamaki T., Ishii T., Criniti G., Dubrovinsky L. S., Khandarkhaeva S., Fedotenko T., Glazyrin K., Uchiyama H., Fukui H., Baron A. Q. R.	4. 巻 49
2. 論文標題 Sound Velocity Measurements of B2 Fe Ni Si Alloy Under High Pressure by Inelastic X Ray Scattering: Implications for the Composition of Earth's Core	5. 発行年 2022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) 10.1029/2021gl096405	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 Ikuta Daijo, Ohtani Eiji, Fukui Hiroshi, Sakai Takeshi, Ishikawa Daisuke, Baron Alfred Q. R.	4. 巻 13
2. 論文標題 Sound velocity of hexagonal close-packed iron to the Earth's inner core pressure	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nature Communications	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) 10.1038/s41467-022-34789-2	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10件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 福井 宏之、米田 明、鎌田 誠司、Baron Alfred
2. 発表標題 Single crystal elasticity of minerals under high-pressure conditions determined by inelastic x-ray scattering
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 福井宏之、米田明、鎌田誠司、内山裕士、平尾直久、バロンアルフレッド
2. 発表標題 X線非弾性散乱によるNaCl B1相の単結晶弾性定数の圧力変化
3. 学会等名 第61回高圧討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 福井宏之・Le The Anh・和田正弘・平岡望・飯高敏晃・平尾直久・赤浜裕一・入舩徹男
2. 発表標題 固体酸素の電子状態変化
3. 学会等名 第60回高圧討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 福井宏之・米田明・鎌田誠司・平尾直久・辻野典秀・内山裕士
2. 発表標題 高温高压単結晶IXSに向けた温度压力発生技術開発
3. 学会等名 第60回高压討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鎌田 誠司・寺崎 英紀・福井 宏之・坂巻 竜也・内山 裕士・筒井 智嗣・大谷 栄治・BARON Alfred
2. 発表標題 高温高压下におけるFe ₃ S の音速
3. 学会等名 第60回高压討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 坂巻 竜也・大谷 栄治・福井 宏之・鎌田 誠司・BARON Alfred
2. 発表標題 高温高压条件下におけるFe-Ni 合金の音速- 密度関係
3. 学会等名 第60回高压討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 池田 理・坂巻 竜也・福井 宏之・内山 裕士・BARON Alfred Q.R. ・鈴木 昭夫
2. 発表標題 高温高压条件下におけるFe-Ni 合金の音速- 密度関係
3. 学会等名 第60回高压討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 赤浜 裕一・福井 宏之・河口 沙織・平尾 直久・大石 泰生
2. 発表標題 単斜晶ハフニアの高圧下の弾性ソフト化
3. 学会等名 第60回高圧討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 生田 大穰・大谷 栄治・坂巻 竜也・福井 宏之・内山 裕士・筒井 智嗣・BARON Alfred Q. R.
2. 発表標題 Sound velocity measurement of Fe-Ni-Si alloys at high pressure and high temperature
3. 学会等名 第60回高圧討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroshi Fukui, Le Te Anh, Masahiro Wada, Nozomu Hiraoka, Toshiaki Iitaka, Naohisa Hirao, Yuichi Akahama, Tetsuo Irifune
2. 発表標題 Electronic structure of dense solid oxygen from insulator to metal
3. 学会等名 第27回AIRAPT高圧科学技術国際会議（国際学会）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 日本高圧力学会	4. 発行年 2022年
2. 出版社 朝倉書店	5. 総ページ数 500
3. 書名 高圧力の科学・技術事典	

〔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)	大阪大学・理学研究科・招へい研究員 (14401)	
研究分担者	芳野 極 (Yoshino Takashi) (30423338)	岡山大学・惑星物質研究所・教授 (15301)	
研究分担者	中塚 晃彦 (Nakatsuka Akihiko) (80294651)	山口大学・大学院創成科学研究科・准教授 (15501)	
研究分担者	鎌田 誠司 (Kamada Seiji) (30611793)	東北大学・理学(系)研究科(研究院)・その他 (11301)	

	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
研究協力者	バロン アルフレッド (Baron Alfred)		
研究協力者	平尾 直久 (Hirao Naohisa)		

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