

令和 4 年 6 月 7 日現在

機関番号：32606

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22369

研究課題名（和文）地球深部マグマの物性の理解へ向けたケイ酸塩ガラスの高温高压その場物性測定

研究課題名（英文）High pressure and high temperature in situ measurements of physical properties of silicate glasses toward understanding the physical properties of magmas in the deep Earth

研究代表者

大平 格 (Ohira, Itaru)

学習院大学・理学部・助教

研究者番号：90873159

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,200,000円

研究成果の概要（和文）：24GPaまでの高压下において、Al₂O₃-SiO₂系ガラスとCaAl₂O₄ガラスの弾性波速度を決定した。いずれのガラスでも、約7-10 GPaでAlを含まない酸化ガラスではみられない縦波・横波速度の急増を観察した。また、CaAl₂O₄ガラスについては高压その場放射光X線回折測定を行い、9.8 GPaまでの压力下で二体分布関数を取得することに成功した。この実験から、上述の圧力範囲でAlOの多面体とCaOの多面体が接近するような構造変化が生じることがわかった。上述の結果は、約7-10GPaでAlを含むガラスだけが経験する構造変化が存在する可能性を示している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球深部には周囲の固体マントルよりも高密度なマグマが存在している可能性がある。地球深部マグマの高密度化を促す要素の一つとして、高压での構造変化が挙げられる。しかし実験的困難さから、圧力が誘起する構造変化については、マグマ自体は勿論、その構造を凍結したガラスにおいても十分に研究されていない。

本研究では、マグマの主要構成元素の一つであるAlが、約7-10 GPaにおける構造変化・高密度化を引き起こす可能性を示すことができた。この圧力範囲は、地球深部マグマが多く存在するとされる410 km不連続面直上に相当するため、不連続面付近に滞留するマグマのふるまいを議論する上で重要な知見となる。

研究成果の概要（英文）：The elastic wave velocities of Al₂O₃-SiO₂ glasses and CaAl₂O₄ glass were determined up to 24 GPa. All of the glasses showed the rapid increase of velocities at ~7-10 GPa, which has not been reported in Al-free oxide glasses. High-pressure in situ synchrotron X-ray diffraction measurement was also performed on CaAl₂O₄ glass, yielding the pair distribution functions up to 9.8 GPa, successfully. From the XRD experiment, we found the structural change due to approach of AlO and CaO polyhedral. The present results suggest that the structural changes which only Al-bearing oxide glasses undergo likely exists at ~7-10 GPa.

研究分野：鉱物物理学

キーワード：ガラス 高压 弾性波速度 二体分布関数解析 放射光X線その場観察 地球深部マグマ

1. 研究開始当初の背景

日本列島に住む我々が頻繁に経験する地震や火山噴火は、地球内部でのマグマの形成や海溝から沈み込むプレート岩石の部分熔融や破壊などに起因する地球内部起源の現象である。このような地球内部の物質が引き起こす自然現象を物質科学的見地から理解するためには、大気圧下での実験だけではなく、地球内部の高圧下におけるその場観察実験が必要不可欠である。

高圧その場観察実験が必要とされる地球科学的問題の一つに、地球深部の高密度マグマの存在可能性が挙げられる。地球内部の地震波速度および電気伝導度の観測から、マントル中には地表へ向かって移動するマグマだけではなく、周囲の岩石よりも高密度となって地球内部に滞留するマグマの存在が提案されている。特に 410 km 及び 660 km 不連続面付近では、マグマの存在によると考えられている地震波の低速度異常が数多く報告されている (e.g., Tauzin *et al.*, 2010; Schmandt *et al.*, 2014)。しかし、地球深部で発生するマグマが重力的安定性をもって深部に滞留し続けるのか否かという点について、現状では高温高圧実験から十分な制約を与えることができていない。これは高圧下での融体の発生と保持が非常に困難であり、高温高圧その場でのマグマの構造・物性の測定が進んでいないことに起因する。

そこでマグマの構造を室温で凍結した酸化ガラス(特にケイ酸塩ガラス)をマグマのアナログ物質とみなし、室温下でガラスの高圧構造物性を測定する実験が試みられてきた。このとき、高圧構造物性に影響を与える要素の一つとなるのがガラスの化学組成である。そのため、様々な組成のガラスについて実験を行い、ガラスの高圧構造物性と組成の関係を明らかにしていくことが重要である。しかし、上部マントルやさらにその深部に対応する圧力下におけるガラスの高圧構造物性測定は、最も単純な組成のケイ酸塩である SiO_2 ガラスでは比較的多くの研究報告があるものの (e.g., Kono *et al.*, 2020)、多成分系のガラスの測定は非常に限られており (e.g., Sakamaki *et al.*, 2014)、ガラスの高圧構造物性変化の組成依存性は未だ不明な点が多い状況にある。

2. 研究の目的

本研究では、マルチアンビルプレスと超音波法を組み合わせた高圧その場 X 線弾性波速度測定と、パリ-エディンバラプレスをを用いた X 線回折測定という二つの実験を行い、上部マントルと下部マントルの境界に相当する 660 km の圧力 (24 GPa; 1 GPa = 1 万気圧) までの加圧過程における酸化ガラスの弾性波速度と構造(動径分布関数)を決定することを目的とした。サンプルにはマグマの主要構成元素の一つである Al を含むガラスを採用し、ガラスの高圧構造物性変化に対する各カチオンの寄与のうち、特に Al に着目して研究を進めた。

3. 研究の方法

(3-1) 実験試料の合成

Al_2O_3 - SiO_2 二成分系ガラスと CaAl_2O_4 ガラスを合成した。これらの Al に富むガラスはガラス形成能が低く、通常のとつば容器を用いた急冷法の場合、容器接触面からの結晶化によりガラス化が阻害される。そこで本研究では、無容器熔融法を用いてガラス試料を合成した。 Al_2O_3 と SiO_2 の混合粉末および CaAl_2O_4 粉末のペレットを空気中で浮遊させながら CO_2 レーザを照射して熔融させ、数秒間保持したのち急冷することで、 $\phi 1.5$ - 2.0 mm の均質なガラス球の合成に成功した。

(3-2) 高圧その場 X 線弾性波速度測定

本実験は放射光施設 SPring-8 の BL04B1 ビームラインで実施した。合成したガラスを上下二方向から鏡面研磨し、それを弾性波速度測定用高圧セル (Higo *et al.*, 2018; Gréaux *et al.*, 2019) に封入した。この高圧セルを BL04B1 ビームライン設置のマルチアンビルプレス SPEED-1500 に入れて加圧した。1 GPa から 24 GPa の加圧過程において、約 1 GPa の圧力間隔で試料中の P 波と S 波の伝播時間を測定し、同時に X 線ラジオグラフィ像を取得することでガラス試料の厚みも計測した。波の伝播時間と試料長から、各圧力点における V_P 、 V_S を決定した。

(3-3) 高圧その場マルチアングル白色 X 線回折測定

本実験はアメリカの放射光施設 Advanced Photon Source (以下 APS) の 16-BM-B ビームラインで実施した。なお本実験は現地に滞在するのではなく、日本からビームラインのコントロール PC を遠隔操作することで行った。今回のリモート実験では、まず $\phi 1.5$ - 1 mm に加工した CaAl_2O_4 ガラスを封入した高圧セルを日本で準備し、ビームラインへ郵送した。この高圧セルは実験当日に現地スタッフによってパリ-エディンバラプレスにセットされ、その後ビームライン PC を遠隔操作することで加圧・測定の操作を行った。1 GPa から 10 GPa の加圧過程において、 0.5 - 1 GPa の圧力間隔で試料の XRD パターン ($2\theta = 3$ - 35°) を取得した。実験から、各圧力点の構造因子を取得し、動径分布関数を決定することに成功した。

4. 研究成果

(4-1) 高圧その場 X 線弾性波速度測定

$x\text{Al}_2\text{O}_3-(100-x)\text{SiO}_2$ ガラス (以降 AS ガラス; $x = 28, 36, 43, 50, 60$, mol%) と CaAl_2O_4 ガラスについて、各ガラスの圧力に対する V_P と V_S の変化挙動をみると、まず常圧から約 7 GPa まではガラスネットワーク中の空隙 (void) の収縮に伴う速度低下が観察された (図 1)。しかしより高圧の 7–10 GPa では、一転して速度が急増する様子が AS ガラス、 CaAl_2O_4 ガラスの両方で観察された (図 1)。AS ガラスでは Al_2O_3 量が最も多い $x = 0.60$ のガラスで特に速度の急増が明瞭であり、 Al_2O_3 量の減少と共に SiO_2 ガラスの速度曲線に近づいていった。11 GPa を上回る圧力条件になると、速度の増加は緩やかになった。この実験結果は、約 7–10 GPa の圧力範囲において、Al に富むガラスだけが経験する構造変化が存在する可能性を示している。

なお、当初は高温での測定も行い、温度が弾性波速度変化に与える影響も研究する予定であったが、新型コロナウイルスの流行に伴い BL04B1 ビームラインを利用した実験計画を修正する必要が出たため、本研究課題の期間中は弾性波速度の組成依存性の検証に注力した。

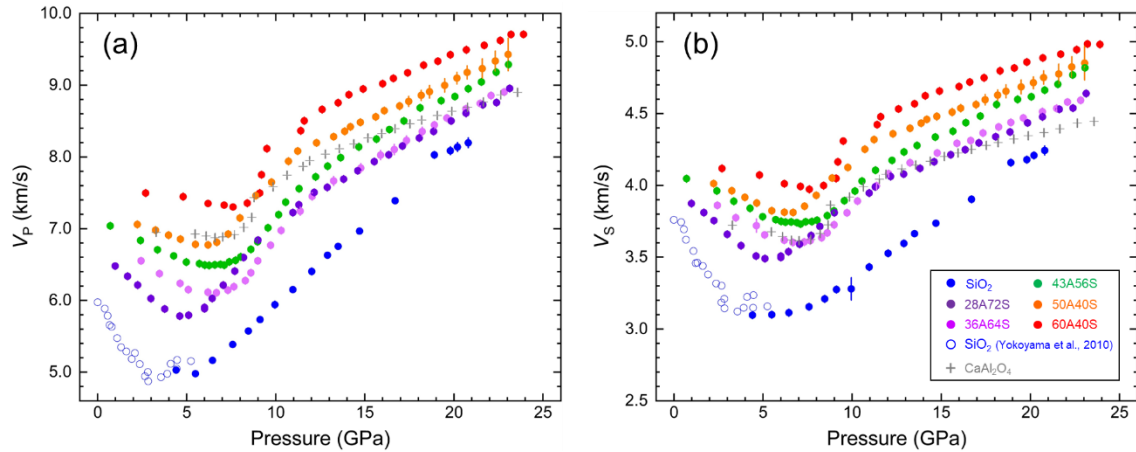


図 1. AS ガラスと CaAl_2O_4 ガラスの各圧力点における (a) V_P と (b) V_S .

(4-2) 高圧その場マルチアングル白色 X 線回折測定

弾性波速度のデータから示唆された酸化物ガラスの高圧構造変化を直接観察するために、高圧での弾性波速度を決定した試料のうち、 CaAl_2O_4 ガラスについて高圧その場マルチアングル白色 X 線回折測定を行った。この実験では、常圧から 10 GPa までの約 1 GPa の圧力間隔で CaAl_2O_4 ガラスの構造情報 (二体分布関数) を決定することに成功した。各圧力条件の二体分布関数を比較したところ、7–9 GPa で Ca–Al 距離に対応するショルダーピークが、より短距離の Al–Al 距離に対応するピークに接近し、最終的に Al–Al のピークに吸収される様子が観察された (図 2)。また、最も短距離の相関である Al–O のピーク、すなわち Al–O 結合距離に対応するピーク的位置は、6 GPa までは変化せず、約 6–7 GPa からわずかに増加し始める様子が観察された。以上の結果は、 CaAl_2O_4 ガラスでは約 7–9 GPa の圧力で Ca–O 多面体と Al–O 多面体が接近するような構造変化が生じ、その変化が Al–O 配位数、すなわち短距離構造変化のトリガーとなっていることを示唆している。

なお、当初の計画では APS・13-BM-D で高圧その場 X 線トモグラフィ測定を行い、ガラスの密度測定を行う予定であったが、新型コロナウイルスの流行により 13-BM-D での滞り実験を行うことができなくなってしまった。しかし、その一方で 16-BM-B の X 線回折リモート測定システムの共同利用が開始された。高圧その場観察で得られるガラスの構造情報は、加圧過程における弾性波速度や密度の変化を解釈する上で非常に重要な情報となるため、当初の実験計画を変更し、上述の XRD 実験を実施した。

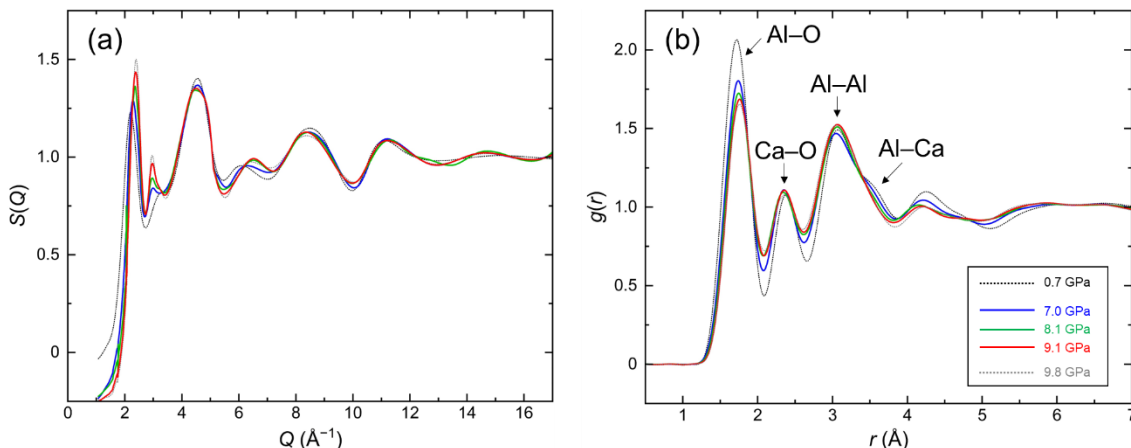


図 1. 高圧下における CaAl_2O_4 ガラスの (a) 構造因子 $S(Q)$ と (b) 二体分布関数 $g(r)$.

以上の二つの実験では、物性(弾性波速度)と構造がほぼ同じ圧力で急激な変化を示していることから、7-9 GPa の構造変化は、その圧力におけるガラスの物性を大きく変化させることが明らかとなった。しかしながら、高圧実験から得られた弾性波速度と二体分布関数の情報のみではガラスの3次元的な高圧構造モデルやその変化の様子を捉えることは困難である。今後はASガラスの二体分布関数も取得し、数値シミュレーションを取り入れた研究を展開することで、酸化物ガラスの高圧構造変化におけるAlとCaの役割の詳細について迫っていきたい。

補足. 引用文献

Gréaux *et al.* *Nature* **565**, 218–223 (2019).

Higo *et al.* *Rev. Sci. Instrum.* **89**, 014501 (2018).

Kono *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **125**, 205701 (2020).

Sakamaki *et al.* *Earth Planet. Sci. Lett.* **391**, 288–295 (2014).

Schmandt *et al.* *Science* **344**, 1265–1268(2014).

Tauzin *et al.* *Nature Geosci.* **3**, 718–721 (2010).

Yokoyama *et al.* *J. Appl. Phys.* **107**, 123530 (2010).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ohira Itaru, Jackson Jennifer M., Sturhahn Wolfgang, Finkelstein Gregory J., Kawazoe Takaaki, Toellner Thomas S., Suzuki Akio, Ohtani Eiji	4. 巻 11
2. 論文標題 The influence of $-(Al,Fe)OOH$ on seismic heterogeneities in Earth's lower mantle	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 12036
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-021-91180-9	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 該当する

1. 著者名 Yoshida Masashi, Miyahara Masaaki, Suga Hiroki, Yamaguchi Akira, Tomioka Naotaka, Sakai Takeshi, Ohfuji Hiroaki, Maeda Fumiya, Ohira Itaru, Ohtani Eiji, Kamada Seiji, Ohigashi Takuji, Inagaki Yuichi, Kodama Yu, Hirao Naohisa	4. 巻 56
2. 論文標題 Elucidation of impact event recorded in the Iherzolitic shergottite NWA 7397	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Meteoritics & Planetary Science	6. 最初と最後の頁 1729 ~ 1743
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1111/maps.13735	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5件（うち招待講演 3件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 大平 格、河野 義生、Greaux Steeve、近藤 望、桑原 秀治、Shen Guoyin
2. 発表標題 高压下におけるSiO ₂ -Al ₂ O ₃ ガラスの構造と弾性波速度
3. 学会等名 第62回高压討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kono Yoshio, Ohira Itaru, Shu Yu, Wang Yanbin, Shen Guoyin
2. 発表標題 Structure measurement of silicate and oxide glasses under ultrahigh pressure conditions to >100 GPa
3. 学会等名 10th Asian Conference on High Pressure Research（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hrubiak Rostislav, Shen Guoyin, Kenney-Benson Curtis, Park Changyong, Shu Yu, Ohira Itaru, Kono Yoshio
2. 発表標題 New developments in large volume static compression with in situ synchrotron x-ray diffraction at High Pressure Collaborative Access Team (HPCAT) at the Advanced Photon Source
3. 学会等名 10th Asian Conference on High Pressure Research (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Greaux Steeve, Kuwahara Hideharu, Kono Yoshio, Higo Yuji, Mitsu Keisuke, Ohira Itaru, Kondo Nozomi, Irifune Tetsuo
2. 発表標題 Sound velocities of mantle rock aggregates at simultaneous high pressure and high temperature: implications for the structure of the mantle transition region
3. 学会等名 10th Asian Conference on High Pressure Research (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Itaru Ohira, Yoshio Kono, Yu Shu, Yuki Shibazaki, Curtis Kenney-Benson, Rostislav Hrubiak, Atsunobu Masuno, Guoyin Shen.
2. 発表標題 X-ray diffraction measurements on aluminosilicate glasses at ultrahigh-pressure conditions
3. 学会等名 Japan Geoscience Union - American Geophysical Union Joint Meeting 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020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
研究協力者	河野 義生 (Kono Yoshio)	愛媛大学・准教授 (16301)	

6. 研究組織（つづき）

	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	Greaux Steeve (Greaux Steeve)	愛媛大学・助教 (16301)	
研究協力者	肥後 祐司 (Higo Yuji)	高輝度光科学研究センター・主幹研究員 (84502)	
研究協力者	Hrubiak Rostislav (Hrubiak Rostislav)	アルゴンヌ国立研究所・ビームライン研究者	

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		
米国	Advanced Photon Source	Argonne National Laboratory	California Institute of Technology