

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25246037

研究課題名(和文) 高圧中性子実験にもとづく地球コア中の水素の研究

研究課題名(英文) Study of hydrogen in the Earth's core based on the high-pressure neutron experiments

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)・特任研究員

研究者番号：20126189

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,800,000円

研究成果の概要(和文)：地球核に溶け込んでいる軽元素の有力候補のひとつとして挙げられている水素が、地球生成初期にどのようにして鉄に溶けたかを明らかにするために、鉄と含水鉱物の混合系を試料とした初めての高温高圧下中性子回折実験を、茨城県のJ-PARCで行った。その結果、地球生成初期に始源物質として水を含む隕石や隕鉄が集積すると、温度上昇に伴ってまず水素を溶かし込んだ熔融鉄が生成し、他の軽元素はその後に溶けた水素化鉄とケイ酸塩が反応して溶け込んだ可能性が高いことが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：In order to clarify the behavior of hydrogen in the early stage of Earth's evolution, which is regarded as one of the strong candidates of light elements in the core, a first neutron experiments under high pressures and temperatures on a mixture of iron and hydrous minerals were performed at J-PARC, Ibaraki. The results suggest that when primordial materials such as hydrous meteorite and siderites were accumulated, molten iron hydride was formed first with increasing temperature. It is likely that other light elements were dissolved into molten iron hydride after that.

研究分野：固体地球科学

キーワード：地球核 軽元素 水素 中性子回折実験 超高压 鉄水素化物

## 1. 研究開始当初の背景

水素は長年、地球のコア中の軽元素の有力候補のひとつと考えられながら、高压下でしか鉄中に存在しないこと、X線では観察できないこと、といった実験技術上の問題から直接観察することは難しく、その振る舞いは間接的な推論の積み重ねでしか議論ができなかった。しかし2008年から5年間かけて東海村のJ-PARC内に建設された新しい高压中性子実験用ビームライン”PLANET”を利用することにより、初めて直接的な観察が可能になった。本研究はその新しい装置の特徴を生かして、水素がどのようにして高温高压下で地球のコアに溶け込んだ可能性があるかを解明し、コアの軽元素問題に関して新たな展開をはかろうと試みたものである。建設された PLANET 装置はこうした新しい「中性子地球科学」分野の開拓につながるほか、鉄-水素系物質は材料科学・物質科学の分野でも注目されていることから、他分野への波及効果も期待された。

## 2. 研究の目的

本研究は、高温高压下における水素の振る舞いを中性子回折実験によって直接観察することにより、地球生成初期に水素がどのようなプロセスで地球のコアに溶け込んだ可能性があるかを、実験で直接解明することを目的とした。

地球は太陽系を形成した始源物質が次第に集積し、原始地球が作られ、その後さらに隕石などの落下により物質が付加されて質量が増大し、現在の姿になったと考えられている。水素は太陽系の木星、土星の軌道付近ではそのまま集積したが、地球軌道付近では温度が高くて希薄な気体状態になっており、そのままではコアに溶け込むことは考えられない。しかし H<sub>2</sub>O という形で隕石中には含まれていることが知られている。そこで本研究では、始源物質のモデルと考えられる

マグネシウムケイ酸塩と鉄に H<sub>2</sub>O を加えた系が高温高压下に置かれた時どのような反応が起きるかを、温度、圧力、時間の関数として高压中性子実験により解明した。さらに、得られた実験結果をもとに、地球生成初期において起きたであろう反応を考察し、議論を行った。

## 3. 研究の方法

まず本研究で必要とされる高温高压条件を安定に発生し、かつ H<sub>2</sub>O が分解して生成する水素が試料室中に保持できて、目的とする試料の中性子回折パターンが明瞭に観察できる、高压実験技術および試料構成の開発を行った。当初 PLANET で用いられていた高压発生用アンビルは、新品使用時は大丈夫なもの1回使用すると膨らみ変形によりマイクロクラックが入るらしく、2回目以降は破壊とブローアウトが頻発するという問題があった。そこで、ジャケットにより締め付けて変形を防ぐ新たな型のアンビルを開発し、この問題を解決した。さらに、試料構成に関しても数多くの予備実験により試行錯誤を繰り返した。その結果カプセルにはグラファイトを用い、出発物質としては始源物質のモデルとなる含水のエンスタタイト+金属鉄と化学組成として等価になる、Mg(OH)<sub>2</sub> + SiO<sub>2</sub> の混合物中に円柱状の Fe を埋め込んだものを採用した。これによって、含水鉱物と鉄の混合物の明瞭な中性子回折パターンを高温高压下で観察することが可能になった。中性子回折実験はJ-PARCのトラブルに起因する長期シャットダウンなどがあり、予定より大幅な遅れを余儀なくされたが、最終的には2回の各1週間ずつのマシントimeにおいて、必要とされる実験を行い、良好な結果を得ることができた。

## 4. 研究成果

出発試料を約 5GPa の高圧力下で加熱して

いったところ、まず  $Mg(OH)_2$  が分解して  $MgO + H_2O$  となり、その  $H_2O$  が Fe と反応して  $FeO$  と  $FeH_x$  が生成した。本研究において得られたもっとも重要な知見は、この反応が含水ケイ酸塩が熱分解して水を放出すると共に、従来考えられていたよりはるかに低温の 1000K 程度で起きることが明らかにされたことである。その後  $FeO$  は  $MgO$  や  $SiO_2$  と反応して鉄を含むパイロキシン ( $Mg, Fe$ ) $SiO_3$  やオリビン ( $Mg, Fe$ ) $_2SiO_4$  となり、Fe は水素の溶解によって融点が 500K 以上低下して、1300K 程度で融解する。

このことから、地球生成の初期に水を含む始源物質が集積し内部の温度が上昇し始めると、月と同程度の質量、つまり現在の地球のわずか数%程度の物質が集積した段階で、鉄中に水素が溶け込んだ可能性が考えられる。従来からコアに溶け込んでいる可能性があると考えられてきた O、S、C、Si などの軽元素は、いずれもケイ酸塩中に存在し、鉄が融解する高温下で溶融鉄と固体ケイ酸塩の分配によって鉄中に溶解したと考えられてきた。それに対し本研究では、従来考えられていたよりずっと低温でまず水素が鉄中に溶解し、それによる融点降下のため生成した溶融水素化鉄中に、他の軽元素が溶け込んだ可能性が高いという新しい地球生成初期のシナリオが得られた。

この研究成果は 2017 年 1 月に Nature Communications にオリジナル論文として発表され、いくつかの新聞でも報道された。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 10 件)

#1. Iizuka-Oku R., Yagi T., Gotou H., Okuchi T., Hattori T. and Sano-Furukawa

A. (2017) Hydrogenation of iron in the early stage of Earth's evolution. *Nature Communications*, **8**, 14096.

doi:10.1038/ncomms14096 (査読あり)

#2. Yagi, T. (2016) Hydrogen and oxygen in the deep Earth, *Nature*, **534**, 183-184.

doi:10.1038/534183a (査読無し)

#3. Shinozaki A., Kagi H., Hirai H., Ohfuji H., Okada T., Nakano S. and Yagi T. (2016) Preferential dissolution of  $SiO_2$  from enstatite to  $H_2$  fluid under high pressure and temperature. *Physics and Chemistry of Minerals*, **43**, 277.

DOI10.1007/s00269-015-0792-3 (査読あり)

#4. Yamamoto T., Ohkubo H., Tassel C., Hayashi N., Kawasaki S., Okada T., Yagi T., Hester J., Avdeev M., Kobayashi Y. and Kageyama H. (2016) Impact of Lanthanoid Substitution on the Structural and Physical Properties of an Infinite-Layer Iron Oxide. *Inorg. Chem.*, **55**, 12093-12099. DOI: 10.1021/acs.inorgchem.6b02513 (査読あり)

#5. 飯塚理子 (2016) 開口角の広い対向型アンピルの開発と  $Ca(OH)_2$  の圧力誘起相転移. *高圧力の科学と技術*, **26**, 128-139 (査読あり)

#6. 山田明寛、後藤弘匡、八木健彦、佐野亜沙美(2016) 大容量プレスを用いた高温高圧中性子回折実験に向けて、*高圧力の科学と技術*, **26**, 99-107 (査読あり)

#7. Shinozaki A., Kagi H., Hirai H., Ohfuji H., Okada T., Nakano S. and Yagi T. (2015) Preferential dissolution of  $SiO_2$  from enstatite to  $H_2$  fluid under high pressure

and temperature. *Physics and Chemistry of Minerals*, 43, 277-285.

DOI 10.1007/s00269-015-0792-3 (査読あり)

#8. Hattori T., Sano-Furukawa A., Arima H., Komatsu K., Yamada A., Inamura Y., Nakatani T., Seto Y., Nagai T., Utsumi W., Iitaka T., Kagi H., Katayama Y., Inoue T., Otomo T., Suzuya K., Kamiyama T., Arai M. and Yagi T. (2015) Design and performance of high-pressure PLANET beam line at pulsed neutron source at J-PARC. *Nuclear Inst. and Methods in Physics Research A*, **780**, 55-67.

<https://doi.org/10.1016/j.nima.2015.01.059>  
(査読あり)

#9. Pippinger T., Miletich R., Merlini M., Lotti P., Schouwink P., Yagi T., Crichton W.A. and Hanfland M. (2015) Puzzling calcite III dimorphism: crystallography, high pressure behavior, and pathway of single crystal transitions. *Physics and Chemistry of Minerals*, **42**, 29-43, doi:10.1007/s00269-014-0696-7 (査読あり)

#10. Okada T., Iitaka T., Yagi T., Aoki K (2014) Electric conductivity of ice VII, *Scientific Reports*, 4, 5778, DOI: 10.1038/srep05778 (査読あり)

[学会発表](計 3件)

#1 Iizuka-Oku R., Yagi T., Gotou H., Okuchi T., Hattori T., Sano-Furukawa A (2016) Dissolution of hydrogen into iron by the dissociation of hydrous minerals under pressure, Annual Meeting of the Japan Geoscience Union, Yokohama, Japan.

#2 Yagi T (2016) Synchrotron facility and high pressure science in Japan, International Union of Crystallography (IUCr) workshop Hoppan, Korea.

#3 Yagi T (2015) Materials in the Earth's deep interior, JSPS symposium, Osaka, Japan

## 6. 研究組織

### (1)研究代表者

八木 健彦 (YAGI Takehiko)

東京大学・大学院理学系研究科・特任研究員

愛媛大学特命教授・東京大学名誉教授

研究者番号：20126189

### (2)研究分担者

### (3)連携研究者

飯塚 理子 (IIZUKA-OKU Riko)

東京大学・大学院理学系研究科・特任助教  
研究者番号：80632413

後藤 弘匡 (GOTOU Hirotada)

東京大学・物性研究所・技術職員  
研究者番号：50596004

奥地 拓生 (OKUCHI Takuo)

岡山大学・惑星物質研究所・准教授  
研究者番号：40303599

井上 徹 (INOUE Toru)

広島大学・大学院理学系研究科・教授  
研究者番号：00291500

### (4)研究協力者

服部高典 (HATTORI Takanori)

原子力研究開発機構 J-PARC センター  
佐野亜沙美 (SANO-FURUKAWA Asami)

原子力研究開発機構 J-PARC センター