特別推進研究ニュース No. 1

緒　言

GRC の超高圧実験・第一原理計算分野の研究者による大型科学研究費「特別推進研究」(平成 20 年度～24 年度) が採択されて約 1 年。「Fe 系物質の超高圧下での挙動と最下部マントル～内核の物質科学」を研究課題とする本研究では、GRC が生み出した世界最硬ナノ多結晶ダイヤモンド（ヒメダイヤ）の、超高圧実験への本格的応用を試みています。また、焼結ダイヤモンドアンビルや、単結晶ダイヤモンドアンビルを用いた従来の実験技術を発展させ、Fe 系物質に焦点をおいたマントル下部～内核に至る地球最深部の物質科学的研究を目指します。このような実験分野に加えて、第一原理計算分野の研究者による理論予測や実験の解釈を通じ、より確かな地球最深部の物質像やダイナミクスを明らかにすることを目的とした研究をすすめています。本欄では、特別推進研究により得られた成果の解説や、最新のニュースを掲載します。

研究組織と主な研究テーマ・役割分担

研究代表者：
　入舩徹男（GRC 教授）
　　全体統括・ヒメダイヤ合成
研究分担者：
　土屋卓久（GRC 教授）
　　第一原理計算による Fe 系の挙動
　西山宣正（GRC 准教授）
　　ヒメダイヤを用いた装置開発
　大藤弘明（GRC 助教）
　　ヒメダイヤ DAC による高温高圧発生
　丹下慶範（GRC 助教）
　　焼結ダイヤを用いたマントル物質探査
　桑山靖弘（GRC 助教）
　　DAC による内核条件下での Fe 系の挙動
　石河孝洋（GRC 助教）
　　第一原理計算による Fe 系物質構造探査
　肥後祐司（JASRI 研究員）
　　X 線その場観察によるマントル物質探査
連携研究者：
　臼井佑介（GCOE 研究員）
　　地震学と第一原理計算による深部構造

BOTCHAN-6000 の始動と大型ヒメダイヤ合成

本年 3 月末に完成した世界最大マルチアンビル装置 BOTCHAN-6000 は順調に稼動をはじめ、直径、長さともに 6-7mm 程度のヒメダイヤの合成が可能になりました(J. Phys., submitted)。このようにして得られた大型ヒメダイヤを加工し、ドリッカマー型超高圧発生装置への応用をすすめています。

(BOTCHAN により合成されたヒメダイヤ)

6-8-2 型 MA による 125 万気圧の発生

ヒメダイヤを第 3 段アンビルとして用いた 6-8-2 型 3 段階加圧方式のマルチアンビル装置において、常温～1000K の高温領域での 125 万気圧の発生と、このような条件における放射光 X 線その場観察実験による相転移実験が可能になりました(J. Phys., submitted)。この圧力はマルチアンビル装置において記録された圧力の世界最高記録であり、ほぼマントル全域の深さに対応するものです。

マントル最深部～核領域での新しい状態方程式

MgO、Au、Pt など、従来から圧力標準物質として利用されてきた単純な化合物に関する、新しい状態方程式が実験グループと理論グループの共同研究により提案されました(J. Geophys. Res., 2009; Phys. Rev. B, in press)。これらのスケールは「EHIME スケール」と称され、現存する実験データを最も良く再現する信頼性の高い圧力スケールとして、下部マントル深部～核領域の物質科学的研究に大きな威力を発揮すると期待されます。

特別推進研究現地調査実施

７月15日の午後、3時間余りに渡り調査委員2名と学術振興会研究助成課職員2名がGRCを訪問、本研究課題の現地調査が実施されました。入舩代表を中心とした過去1年間の研究取り組みの現状について報告がなされ、この間に研究装置の整備や体制を整えるとともに、いくつかの重要な成果があがりはじめており、研究が順調に進展していることが説明されました。調査委員からは研究活動に対する高い評価とともに、他プロジェクトとの仕分けに関する点などのご指摘をいただきました。

特別推進研究ニュース No. 2

CMB の温度を制約

土屋教授は、マントル深部 D”層の横波速度構造を、第一原理計算で決定した $MgSiO_3$ ペロヴスカイトおよびポストペロヴスカイトの高温弾性特性を用いて再現し、これまで不確定性の大きかった核ーマントル境界の温度を 3800±200K と制約しました。またマントル深部で観測される大きな地震波速度不均質が主に温度異常のみで説明できることを示しました。本研究は地震学の専門家（河合研志学振特別研究員・現パリ地球物理学研究所）との共同研究として行われ、2009 年 12 月 29 日付けの「米国科学アカデミー紀要（PNAS)」誌に発表されました。

Fe の新しい高温高圧安定構造

石河助教らは、第一原理計算法と構造探索法（FEST）や自由エネルギー計算法（多配置サンプリング法）を組み合わせた独自の手法を用いて、地球内核における純鉄の安定構造予測を行いました。その結果、地球内核に相当する数千 K の高温では、従来考えられてきた単純な最密充填構造よりも積層欠陥を無秩序に含む乱層構造が安定となることを見出しました。この結果は 2009 年 12 月に行われた米国地球物理学連合の秋季大会で発表され、極めて大きな反響を得ました。

下部マントルにおける Fe 分配

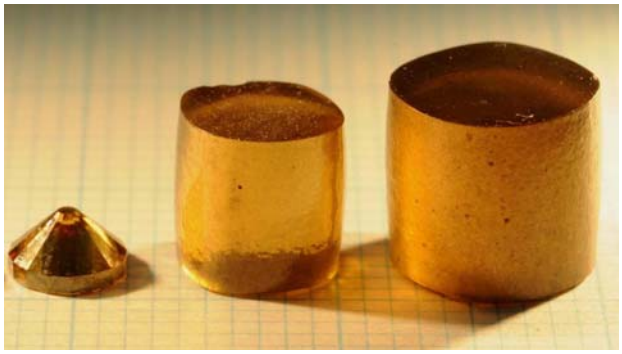
入舩教授らは、マントルの代表的化学組成であるパイロライト組成に対し、共存する高圧相間の Fe の分配とその酸化状態に関して、マルチアンビル装置を用いて約 50GPa, 2100K の下部マントル領域まで詳細に決定しました。この結果、スピン転移に伴うと思われる Fe の分配係数の変化を見い出すとともに、パイロライトの密度が観測値とよく一致することを明らかにしました。本研究はバイロイト大学地球科学研究所との共同研究としておこなわれ、2010 年 1 月 8 日付け（電子版は 2009 年 12 月 3 日）の「Science」誌に発表されました。

ヒメダイヤを用いた DAC 中のレーザー加熱

大藤助教らは、ヒメダイヤを DAC 用のアンビルとして用いた場合のレーザー加熱効率を測定し、単結晶ダイヤモンドアンビルとの比較をおこないました。この結果、ヒメダイヤの加熱効率が単結晶を上回り、100GPa を越える圧力下で比較的容易に 5000K 領域の加熱が可能であることが明らかになりました。この結果は、ヒメダイヤの熱伝導率が通常の単結晶に比べて 1 桁程度小さいことを反映したものと考えられ、より高圧下での高温実験へのヒメダイヤの応用が期待されます。この結果は高圧力科学の国際誌「High Pressure Research」に印刷中です。

ヒメダイヤの更なる大型化

GRC で研究をすすめる理工学研究科修士課程の磯部太志君らにより、BOTCHAN-6000 によるヒメダイヤ合成の第 2 段階として、従来の 52mm 角アンビルを更に大きくした 65mm 角アンビルを用い、圧力発生試験や合成方法の改良をおこなうことにより、直径・長さともに約 8mm のこれまでで最大のクラック等のないヒメダイヤの合成に成功しました。合成はプレス荷重 4000 トン程度でおこなわれましたが、BOTCHAN の能力をフルに活かすことにより更に 1cm 級のヒメダイヤ合成が期待され、新しい超高圧装置などへの応用がすすめられつつあります。関連する成果は「J. Phys. (Conf. Ser.)」に印刷中です。



SPring-8 におけるパワーユーザー採択

本特別推進研究の一層の推進をめざし、今秋から公募が始まった SPring-8 のパワーユーザー募集に、入舩教授を代表とする本研究の分担者などからなるグループが申請し、書類審査・ヒアリングを経て、採択の通知がありました。パワーユーザー制度は、SPring-8 において高い研究実績を有する研究グループに対し、優先的にビームタイムを配分するなどの優遇措置をおこなうものです。SPring-8 で研究をすすめる数百のグループのうち、これまでに 4 つのグループがパワーユーザーに指定されています。

特別推進研究ニュース No. 3

$MgGeO_3$ポストペロヴスカイトの弾性、振動特性

$MgGeO_3$ は、地球下部マントルの主成分である $MgSiO_3$ の低圧アナログ物質としてよく用いられています。土屋と臼井らは、$MgGeO_3$ の弾性特性および格子振動特性を第一原理計算法により決定し、これらの性質について実際に両者がどの程度類似するのかを調べました。この結果、ペロヴスカイト相、ポストペロヴスカイト相ともに $MgSiO_3$ とよく似た弾性特性の特徴を持つこと、また相境界の勾配もほぼ同じであることが明らかになりました。一方で、相転移に伴う弾性波速度変化は $MgSiO_3$ の場合と異なり、P 波･S 波･バルク音速のすべてで負になることがわかりました。$MgGeO_3$ は $CaIrO_3$ などに比べれば珪酸塩のとてもよいアナログ物質と考えられていましたが、すべての性質に類似性があるというわけではないと結論できます（J. Geophys. Res., 2010.）。

MADONNA による SD 実験の本格開始

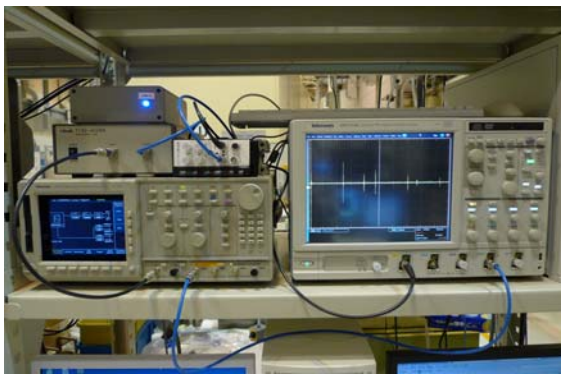
GRC に導入されている MADONNA-1500 の D-DIA 型ガイドブロックは、極めて高い精度で高圧下での均等加圧が可能であることがわかりました。このような均等加圧は、特に焼結ダイヤモンドを第 2 段アンビルとして用いる実験で重要です。丹下らは、この装置および GRC に新たに導入された同型の MADONNA-II を用い、60GPa･2000K 領域での急冷実験を本格的に開始しました。これにより、下部マントル領域において、高精度な高温高圧実験が可能になることが期待されます。また MADONNA 型ガイドブロックは、本グループの PU 課題の一部として SPring-8 に設置され、X 線その場観察や超音波測定、またヒメダイヤを用いた超高圧発生にも利用される予定です。

Fe-Ni 合金の核領域での結晶構造

内核条件下の Fe の結晶構造は、地球深部科学の重要な未解決問題です。近年ダイヤモンドアンビル装置（DAC）を用いて、Fe-Ni 合金が、230GPa･3400K という高温高圧条件下で、bcc 構造になるとする結果が報告されて議論を呼んでいます（Dubrovinsky et al., Science 2007）。桑山らは、この追試をおこなうべく、YLF レーザーおよび YAG ファイバーレーザーの 2 種類の加熱システムを用いて、同じ化学組成の試料で同様の温度圧力条件の実験を繰り返しおこないました。しかし、現在までのところ得られた相は hcp のみであり、上記の実験と異なる結果が得られています。DAC による核領域での実験では、大きな温度勾配の存在が避けられず、より精度の高い実験に基づき、更なる検討が必要であると考えられます。

下部マントル条件下での弾性波速度測定

JASRI の肥後らは、超音波と放射光 X 線を組み合わせた弾性波測定システムを用い、弾性波の精密測定をマントル遷移層に対応する、20GPa･1700K 程度の圧力温度条件下まで可能にしてきました。肥後らは最近このシステムに更に改良を加えることにより、下部マントル上部に相当する圧力 25GPa 以上、温度 1500K 以上の高温高圧下での測定に成功しました。この技術と GRC の高圧下での高圧相合成技術を組み合わせることにより、下部マントルを構成する主要鉱物の弾性波測定の予備的実験がすすめられており、下部マントルの化学組成の制約が期待されます。



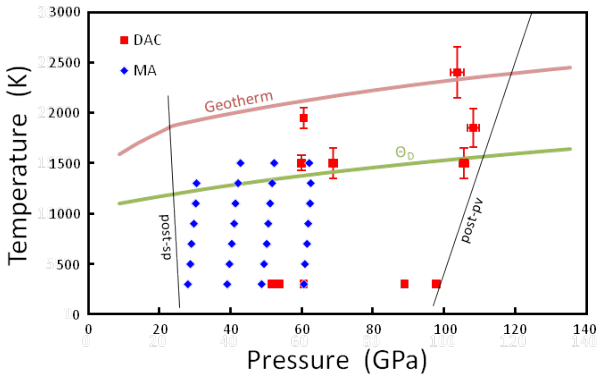
NPD 合成における出発物質結晶度の影響

ヒメダイヤは、2 種類の特徴的な微細組織よりなり、その硬度や靭性強度にはこれらの組織が深く関係していると考えられます。大藤らは、様々なグラファイト多結晶体を出発物質としてヒメダイヤ合成を行い、出発物質の微細組織・結晶度がヒメダイヤの微細組織に及ぼす影響を調べました。その結果、出発物質のグラファイト多結晶体は均質ではなく、比較的大きいフレーク状の粒子と、その間を埋める結晶度の悪い微粒子よりなることが分かりました。ヒメダイヤ変換後は、異なる相転移プロセスにより、前者の粒子はラメラ状組織を、後者は等粒状組織を形成します。また、グラファイトの結晶度が悪いほど、細粒な組織を持つヒメダイヤが得られました。今後、出発物質を選択することで、より高硬度ヒメダイヤの合成が可能になると期待されます。

特別推進研究ニュース No. 4

$MgSiO_3$ ペロブスカイトの *P-V-T* 状態方程式

地球下部マントルの中で、最も多量に存在する鉱物相だと考えられているマグネシウムケイ酸塩ペロブスカイト(pv)の *P-V-T* 状態方程式や熱弾性特性は、地震学的観測結果を解釈し下部マントルの全岩組成や温度構造を議論するために、欠かすことのできない情報です。これまでわれわれは焼結ダイヤモンドマルチアンビル装置を用いて、25-65 GPa, 300-1500 K までの温度圧力範囲で、端成分である $MgSiO_3$-pv の *P-V-T* データ測定を行ってきました。今回われわれはこの精密に測定されたマルチアンビルによるデータを補完するため、SPring-8, BL10XU ビームラインにおいて、レーザー加熱ダイヤモンドアンビルセルを用い、新たに 50-110 GPa, 300-2500 K の温度圧力範囲でも測定を行いました。昨年度われわれが報告した MgO の状態方程式を圧力スケールとして用いることによって、これらの *P-V-T* データから $MgSiO_3$-pv の状態方程式が正確に決定されるものと期待されます。



MADONNA ガイドブロックの設置

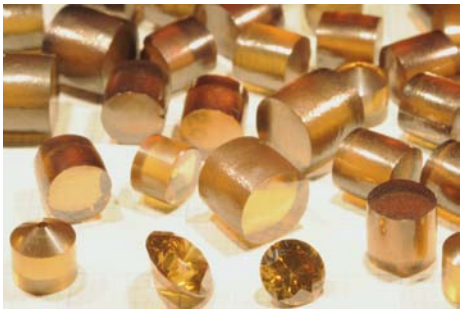
本特別推進研究の実験系分担者などを中心とする、SPring-8 のパワーユーザーグループ（代表：入舩特別推進研究代表）では、BL04B1 に設置されている超高圧装置 SPEED-MkⅡのガイドブロックを、愛媛大学でテストをすすめてきた MADONNA 型ガイドブロックと交換する作業を 9 月末におこないました。これにより、本特別推進研究の重要課題の一つである、焼結ダイヤモンドアンビルを用いた下部マントル領域における研究とともに、この領域における高圧相の弾性波速度測定や、レオロジーの研究において大きな進展が見込まれます。また今後、ヒメダイヤを用いた 6-6 加圧方式等による、超高圧下でのＸ線その場観察実験にも利用される予定です。

愛媛大ミュージアムにおけるアウトリーチ

アウトリーチ活動の一環として、昨年 11 月に設置された愛媛大学ミュージアムの「地球深部」展示において、GRC とともに研究活動の紹介をおこなっています。8 月には関連展示を全面的に入れ替え、現在使用されていない超高圧装置の実物の一部を展示するとともに、ナノ多結晶ダイヤモンド（ヒメダイヤ）関連の展示を増やしました。入口付近には、直径約 8mm のブリリアントカットされたヒメダイヤも飾られ、入館者の目を引いています。なお、本ミュージアムは開館後 1 年足らずの間に入館者 5 万人を越え、市民をはじめ多くの来訪者に、愛媛大学の最新の研究成果の発信や所蔵の貴重な資料の展示をしており、全国的にも大きな注目を集めています。

大型ヒメダイヤの大量合成

本特別推進における超高圧発生装置への応用を目指し、昨年 3 月に導入された BOTCHAN-6000 による超高圧合成技術の開発により、直径、長さともに 6.5mm～8.0mm 程度の大型ヒメダイヤのルーチン的合成が可能になりました。この技術開発においては、入舩特別推進研究代表の指導のもと、磯部太志（理工学研究科 D1)、新名亨 GRC ラボマネージャーの両氏が中心的役割を果たしています。すでにこれらのサイズの円柱形の試料が 50 個あまり合成されており、その一部はアンビルとして加工され、今後様々な超高圧発生装置への応用がおこなわれる予定です。



特別推進研究ニュース No. 5

セミナー「新しい超硬物質の高圧技術への応用」

本特別推進研究では、日本高圧力学会との共催により、同学会の未来を拓く高圧力科学技術セミナーシリーズの一環として「新しい超硬物質の高圧技術への応用」を下記の要領で開催します。このセミナーでは、特に焼結ダイヤモンド（SD）やナノ多結晶ダイヤモンド（NPD = ヒメダイヤ）など、新しい超硬材料の合成と高圧技術への応用に関して、合成手法、特性、応用などに主眼を置いて講演と討論がなされる予定です。

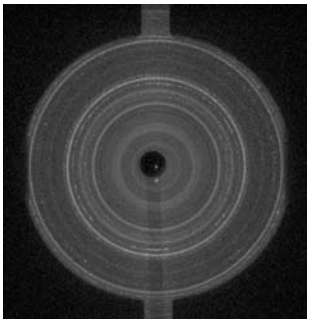
日時：2011 年 4 月 16 日（土）13：00～17：00（予定）
会場：大阪大学（予定）
定員：50 名
参加費：一般 3000 円、学生無料
実行委員長：愛媛大 GRC　入舩徹男
世話人：住友電工ハードメタル　戸田直大

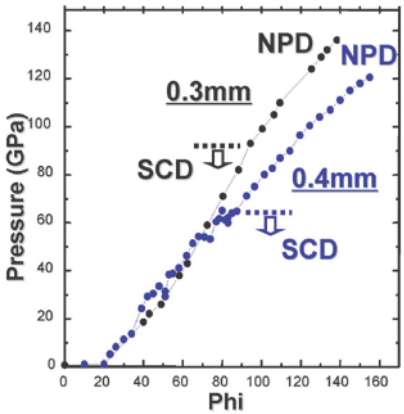
1cmヒメダイヤ合成に成功

GRC で研究をすすめている理工学研究科博士課程 1 年の磯部太志君と、 新名亨ラボマネージャー、入舩センター長らのグループは、このほどナノ多結晶ダイヤモンド（NPD=ヒメダイヤ）の 1cm 級の大型化に成功しました。ヒメダイヤは 2003 年に Nature 誌に発表当時は、直径 1mm、厚さ 0.4mm 程度の大きさでしたが、その後合成方法に改良をおこない、特に 2009 年 3 月に世界最大のマルチアンビル超高圧合成装置（BOTCHAN-6000）が導入されてからは、更なる大型化が図られていました。磯部君は既に昨年 8mm 程度の大型化に成功していましたが、様々な改良を重ねた結果、このほど直径、長さともに 1cm 程度のヒメダイヤ合成に成功しました。現在 GRC および関連研究機関で、大型ヒメダイヤを用いた新たな超高圧発生装置の開発がすすめられています。この成果は 11 月 24 日付けの愛媛新聞および同紙の WEB ニュースで紹介されるとともに、共同通信社からの配信により、各地の新聞および WEB ニュース等にも紹介され、大きな反響を呼びました。

SPring-8 における本格的高圧変形実験の開始

本特別推進研究の実験系分担者を中心として昨年夏に設置された MADONNA 型ガイドブロックと油圧システムにより、SPring-8 の BL04B1 において本格的な高温高圧下での変形実験が可能になりました。昨年秋にはこのシステムに放射光と IP 検出器を用いることにより、15 万気圧 1700K 領域の変形実験が行われました。現在更により感度の高い X 線 CCD 検出器の設置をすすめており、より効率的なデータ収集が可能になり、マントル遷移層～下部マントル領域のレオロジーに関する研究が進展すると思われます。また、MADONNA 型ガイドブロックでは、従来のガイドブロック程度以上の均等加圧が実現されており、SD や NPD を用いたマルチアンビル装置による Mbar 実験にも威力を発揮するものと期待されます。



ヒメダイヤ DAC の圧力発生効率

GRC 客員教授である住友電工エレ材研の角谷均、阪大極限センターの中本有紀らは、ヒメダイヤ(NPD)をダイヤモンドアンビル装置（DAC)のアンビルとして利用した場合、特にアンビル先端面が比較的大きい（0.3mm 以上）単結晶ダイヤモンド（SCD）の倍近い圧力の発生が可能であることを見出しました。この成果は第 51 回高圧討論会（仙台）で報告されましたが、大型 DAC やマルチアンビル装置用アンビルとして、ヒメダイヤの大きなポテンシャルを示すものとして注目されます。GRC では、6-6 方式のマルチアンビル装置用アンビルにヒメダイヤを用いた装置を開発中であり、今後の成果が期待されます。