

## 高圧下における Fe-FeO 融体の密度と熱弾性特性の解明

Measurements of density and thermal elasticity of molten Fe-FeO

田窪 勇作<sup>1)</sup> 下山 裕太<sup>2)</sup> 寺崎 英紀<sup>1)</sup> 鈴木 昭夫<sup>2)</sup> 西田 圭佑<sup>3)</sup> 大谷 栄治<sup>2)</sup>  
近藤 忠<sup>1)</sup> 片山 芳則<sup>4)</sup>

Yusaku TAKUBO, Yuta SHIMOYAMA, Hidenori TERASAKI, Akio SUZUKI, Keisuke NISHIDA, Eiji OHTANI, Tadashi KONDO, Yoshinori KATAYAMA

<sup>1)</sup>大阪大学 <sup>2)</sup>東北大学 <sup>3)</sup>東京工業大学 <sup>4)</sup>原子力機構

### (概要)

Fe-O 融体の密度を X 線吸収法により、2.3-3.0 GPa の圧力範囲における密度を測定した。測定した 2.3 GPa における Fe-O 融体の密度は純鉄の密度と比較して 1.8 - 2.0% 程度小さいことが分かった。また、上記に加えて X 線吸収法を用いて、1100K-2200K、1.5-6.5 GPa までの Fe-3.5wt% C 融体の密度を測定した。等温条件における圧力と密度の関係から、等温体積弾性率( $K_{OT}$ )を求めたところ、 $K_{0,1500K} = 55.3 \pm 2.5$  GPa となり、熱膨張率は  $\alpha = 0.86 \pm 0.04 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  となった。5.5 GPa、1800K にて密度の不連続変化が観察された。

キーワード : X 線吸収法、高温高圧、Fe-O 融体、Fe-C 融体、密度

### 1. 目的

地球の外核は鉄合金融体で構成されており、また近年では月にも液体外核が存在することが主張されている (Weber et al., 2011; Garcia et al., 2011)。これらの天体の核には軽元素が含まれると推定されるため、核の物性を解明するためには、溶融鉄に与える軽元素の影響を明らかにし、密度・体積弾性率の効果を定量的に評価する必要がある。ところが、核中の軽元素候補の中で酸素に関しては未だ高温高圧下での液体鉄の密度に対する影響について報告されていないのが実状である。そこで本研究では Fe-2.22wt% FeO 融体の密度測定を X 線吸収法により行い、鉄融体物性に対する酸素の効果を解明することを目的とする。

### 2. 方法

高圧発生には 180ton キュービックマルチアンビルプレス (SMAP-180, BL22XU 設置) を用いて行った。アンビル先端部の長さ: TEL (Truncated Edge Length) は 4 mm を使用した。単色 X 線 (35keV) を試料部に導入し、入射 X 線と透過 X 線の強度をイオンチャンバーを用いて測定した。このときプレスを X 線と直行方向に動かすことにより試料の吸収プロファイルを得ている。ランベルト・ベールの式より、密度は入射 X 線強度と透過 X 線強度の比で表すことができる。得られた吸収プロファイルをランベルト・ベールの式を用いてフィッティングすることにより試料の密度を求めた (例えば Nishida et al. 2011)。試料の加熱には円筒形グラファイト抵抗ヒーターを使用し、W/Re3-25 熱電対を用いて測温を行なった。また、圧力は MgO と h-BN の粉末を体積比 1:1 で混合したものをプレッシャーマーカーとして、イメージングプレートを用いて収集した X 線回折パターンから求めた。このとき密度を計算するには定数である質量吸収係数が必要であるため、溶融前の固体時の吸収プロファイルと密度から質量吸収係数を求めた。また Fe-C の場合はあらかじめ粉末 Fe-C 試料をコールドプレスにより固めてペレットを作成し、そのペレットの吸収プロファイルと密度から質量吸収係数を導出した。ここで固体と液体における試料の質量吸収係数に違いはないと仮定した。試料は Fe-2.2wt% FeO を使用し、2.2 - 3.0 GPa、2000 - 2200 K の圧力・温度条件で測定を行った。さらに Fe-3.5wt% C 試料についても、圧力条件は 3.5-4.8 GPa、温度条件は 1100K-2100K にて測定を行った。試料容器には高温高圧下においても変形しにくい円筒状の単結晶サファイアを用いた。

### 3. 研究成果

Fe-2.2wt% FeO の密度を 2.3-3.0 GPa、2220 K までの圧力・温度条件下で測定することができ、2.3 GPa、

2000 Kにおいて  $6.90 \text{ (g/cm}^3\text{)}$ であった。この密度結果は同じ温度圧力条件でのFeの密度よりも 2.0 %程度小さく、またFe-FeOの 3.0 GPa, 1300 Kにおける融解前の密度と比較して 9.2 %程減少することがわかった。

さらにFe-3.5wt%Cの密度を 3.5-4.8GPa、1100K-2200Kの条件下で測定した。その結果温度上昇と共に密度が減少する傾向が見られ、Fe-3.5wt%Cの密度は 4.0 GPa, 1900 Kにおいて  $7.22 \text{ g/cm}^3$ となった。また、今までに行った測定結果と比較すると 5.5 GPa, 1800 Kにて密度の不連続上昇が見られ、前後において 1.2%の密度変化が見られた。不連続上昇前の密度と圧力の関係から等温条件において 3 次の Birch-Murnaghan状態方程式を用いてフィッティングを行った。その結果、1500 Kでは  $K_{0T}=55.3\pm 2.5 \text{ GPa}$ ,  $(dK_0/dP)_T = 5.15\pm 1.5$  となり、また熱膨張率は  $\alpha = 0.86\pm 0.04 \times 10^{-4} \text{ K}^{-1}$  となった。

#### 4. 結論・考察

本実験により 2.3-3.0 GPa における圧力条件において Fe-2.22wt%FeO 融体の密度を測定することができた。しかし、より高压条件の 4.6 GPa で行った実験では、試料熔融後に液体試料がカプセルから漏れ熱電対と反応したため、密度を得ることができなかった。本研究により熱膨張率に関しては、Fe-O 融体は液体純鉄の熱膨張率に近い値を取ることがわかってきた。さらに Fe-FeO 液体の体積弾性率を見積もるためには今後、3 GPa 以上の高压条件下の測定が必要となる。

本実験では加えて 1.5-6.5GPa、1100K-2200Kにおける Fe-C融体の密度の温度・圧力依存性が明らかとなった。得られた体積弾性率( $K_{0T}$ )と体積弾性率の圧力微分( $dK/dP$ )の値は  $\text{Fe}_3\text{C}$ (Fe-6.5wt%C)融体の密度測定結果(Terasaki et al., 2010)と調和的な結果となった。また、先行研究による熔融鉄の密度測定(Anderson and Ahrens, 1994)との比較により炭素が含有することで体積弾性率は著しく減少することが明らかとなった。そして、熱膨張率  $\alpha$  は常圧のFe-C融体の値(Jimbo and Cramb., 1993)と近い値を示すことから、5.5GPa以下ではFe-C融体の熱膨張率の圧力変化は小さいと予想される。

本研究にて観察された 5.5 GPaにおけるFe-C融体の密度の不連続変化はSanloup et al., 2011 でも報告されており、Sanloup らはこの密度変化を鉄の液相-液相相転移と主張している。もしそうであるならばFe-S, Siなどの他の鉄合金融体においても観察されるはずであるが、そのような現象は見られていない。このことから、Fe-C融体固有の現象である可能性が示唆される。5 GPaはGraphiteから  $\text{Fe}_7\text{C}_3$ へ不一致融解を起こし始める圧力に相当することから、晶出相の変化が影響している可能性はある。しかし、6GPa以上のデータが少ないことから、厳密な議論を行うためには、より高压下における圧力、温度に対する密度の変化を調べる必要がある。

#### 5. 引用(参照)文献等

Anderson and Ahrens, 1994, An equation of state for liquid iron and implications for the Earth's core. *J. Geophys. Res.* 99, 4273-4284

Jimbo, I., Cramb, A.W., 1993. The density of liquid Fe-C alloys. *Metall. Trans. B* 24, 5-10.

Nakajima, Y., Takahashi, E., Suzuki, T., Funakoshi, K., 2009, "Carbon in the core" revisited, *Phys. Earth Planet. Inter.*, 174, 202-211

Nishida, K., Ohtani, E., Urakawa, S., Suzuki, A., Sakamaki, T., Terasaki, H., Katayama, Y., 2011. Density measurement of liquid FeS at high pressure using synchrotron X-ray absorption. *American Mineralogist* 96, 864-868

Sanloup, C., W. van Westrenenc, Dasgupta, R., Maynard-Caselye, H., Perrillatf, J.-P., 2011. Compressibility change in iron-rich melt and implications for core formation models. *Earth and Planetary Science Letters*, 306, 118-122.

Terasaki, H., Nishida, K., Shibasaki, Y., Sakamaki, T., Suzuki, A., Ohtani, E., Kikegawa, T., 2010. Density measurement of  $\text{Fe}_3\text{C}$  liquid using X-ray absorption image up to 10 GPa and effect of light elements on compressibility of liquid iron. *J. Geophys. Res.* 115, B06207.