

論文審査の結果の要旨

氏名 若林 大佑

本論文は4章からなる。

第1章は序論で、研究背景と本論文の学問的な位置づけが述べられている。地球や惑星の進化や内部ダイナミクスを解明する上で、ケイ酸塩メルトの密度と粘性の圧力変化を、その構造の変化と併せて理解することは重要である。古くからケイ酸塩ガラスをアナログ物質としたメルトの構造の変化に関する研究が行われてきたが、上部マントルと下部マントルの違いを特徴付けるSiの配位構造の変化に比べて、 SiO_4 四面体が形成するネットワーク構造の変化は、これまでほとんど注目されてこなかった。本論文では、典型的なネットワークガラスである SiO_2 ガラスをアナログ物質とした高圧実験を行い、得られた実験結果からケイ酸塩メルトの構造の高圧下での変化を推定し、既存の密度および粘性率データの説明を試みた。

第2章では、 SiO_2 ガラスを対象としたダイヤモンドアンビル装置による2種類の高圧実験について述べ、ネットワーク構造の変化が密度と流動性に与える影響について考察している。まず、ネットワーク構造を予め高密度化させたガラスに対して静水圧条件での加圧実験を行い、バルク試料の体積の圧力変化から、高密度化ガラスが弾性的に振る舞うことを示し、状態方程式を決定している。高圧下で測定したX線回折およびラマン散乱では、ネットワーク構造に対応する第一回折ピークおよびメインバンドに変化が見られ、体積の圧力変化と整合的な結果が得られている。次に、一軸加圧の実験を行い、ネットワーク構造の変化（高密度化）が始まる8-10 GPa付近から、 SiO_2 ガラスの流動性が急激に増加し、破壊せずに大きく塑性変形することを新たに見いだしている。さらに、回収試料のX線回折測定から、変形後の試料に、ネットワーク構造のみに3%もの大きな異方性が残留していることを示している。最後に、これらの相転移的变化が、圧力や応力の印加に伴うSi-Oの共有結合の弱化や、Si-O-Si結合角の低下によってネットワークの繋ぎ換えが促進されることに起因するとの考察がなされている。

第3章では、第2章の実験結果に基づいてケイ酸塩メルトの構造の圧力変化を推定し、その推定の妥当性について、密度および粘性率の文献データを精査することで検証している。 SiO_2 ガラスの密度と流動性がネットワーク構造の変化によって相転移的に変わることが明らかになったことを受けて、ケイ酸塩メルトにおいても、ネットワーク構造（中距離

構造)の変化によって同様の相転移的な変化が起こると推定している。この推定に基づいて、上部マントル深部の圧力条件における中距離構造が高密度化した状態(相)のケイ酸塩メルトの状態方程式を決定し、この状態方程式が、これまでに報告されている大型プレスを用いて測定された 8-22 GPa の SiO_2 成分を 35-55 mol%程度含む全ての密度データと整合的であることを示している。一方、衝撃圧縮による密度データは、この状態方程式では説明されず、静的圧縮データと動的圧縮データの間には系統的な食い違いがあることを述べ、動的圧縮データに含まれる問題について考察をしている。また、粘性に関しては、 SiO_2 成分に富むケイ酸塩メルトの粘性率が負の圧力依存性を示すことが古くから指摘されていることに対して、中距離構造が高密度化した低粘性の状態(相)への転移によるものであるとする新しい解釈が述べられている。

第 4 章では、本研究の地球科学的な意義が述べられている。まず、上部マントル条件におけるケイ酸塩メルトの密度と粘性の圧力変化は、中距離構造の圧力変化を考慮することによって統一的に理解することができると結論付けている。次に、地球内部のマグマの挙動やマグマオーシャンのダイナミクスおよび結晶化の考察において、中距離構造の変化に起因する密度および粘性の相転移的な圧力変化を考慮することの必要性を指摘している。本研究によって得られた知見は、ケイ酸塩メルトに関する今後の実験技術の開発および諸性質の測定において重要な指針を与えるものであると主張されている。

本論文の第 2 章、第 3 章の一部は、4 編の論文としてまとめられ、船守展正准教授、関根利守教授、佐藤友子博士、谷口尚博士との共著で出版されているが、いずれも若林氏が主体となって研究を遂行し執筆したもので、論文提出者の寄与が十分であると判断できる。

本研究は、高圧下での中距離構造の変化に起因する SiO_2 ガラスの相転移的な挙動を発見し、ケイ酸塩メルトの構造と物性の変化を考察する上での新しい指針を与え、その学術的価値を高く評価できる。

以上の理由により、博士(理学)の学位を授与できると認める。