

C-H₂O-MgO 系高温高压相変化及びダイヤモンド生成過程の X 線その場観察In situ X-ray observations of diamond formation process in C-H₂O-MgO system

岡田 卓[1], 内海 渉[2], 舟越 賢一[3], 下村 理[1]

Taku Okada[1], wataru uthumi[2], Kenichi Funakoshi[3], Osamu Shimomura[1]

[1] 原研放射光, [2] 原研, [3] 高輝度光セ

[1] SPring-8/JAERI, [2] JAERI, [3] JASRI

地球内部起源天然ダイヤモンドの生成メカニズムを解明するために、本研究では Mg(OH)₂ ブルーサイトとグラファイトの混合粉末を出発物質とし、H₂O フルイド中でのダイヤモンド生成過程を X 線その場観察した。圧力増加と共にフルイド中の MgO 成分溶解量が増大することを示唆する結果が得られた。しかし炭素溶解量は劇的には上昇しておらず、ダイヤモンド生成にはフルイド生成後さらに温度上昇が必要であった。金属触媒とは異なるメカニズムでダイヤモンド生成が起こっていると考えられる。

地球内部起源天然ダイヤモンドの生成メカニズムを解明することは、地球形成・進化過程を明らかにする上で、また材料科学的により良い合成条件を探索する上でも重要である。採集されたダイヤモンドの産状やインクルージョンの研究から、天然ダイヤモンドの生成には H₂O, CO₂ を主成分とする流体相（フルイド）が重要な役割を果たしていたと考えられている。一方、金属触媒によるダイヤモンド合成の研究から、「金属溶融体中に炭素が溶解してダイヤモンドとして析出する」という生成メカニズムが一般に受け入れられている。マントルフルイド中でのダイヤモンド生成メカニズムが金属触媒と同じかどうか明らかにするために、本研究では、H₂O フルイド中でのダイヤモンド生成過程を X 線その場観察した。

マントル構成元素の 1 つとして Mg を採用し、C-H₂O-MgO 系で実験を行った。高温高压下で、炭素に富んだ H₂O 流体相を発生させるため、Mg(OH)₂ ブルーサイトとグラファイトの混合粉末を出発物質とした。180 トン一段式キュービックアンビルプレスをを用い、急冷回収法及び放射光 X 線その場観察法高压高温実験を行った。アンビルに WC、圧力媒体にボロンエポキシ、断熱材に LaCrO₃、ヒーターにグラファイト、試料カプセルにグラファイト及びモリブデンを用いた。温度は W/Re 熱電対、圧力は NaCl マーカーによって測定された。X 線その場観察は SPring-8 偏向電磁石ビームライン BL14B1 の白色放射光を用い、半導体検出器によるエネルギー分散法によって行った。回収試料は、SEM/EDS 及び微小部 XRD により観察・分析した。

急冷回収実験では、6-7GPa・約 2000 で 5-10 分間保持された試料の構成固相がグラファイトと MgO ペリクレーヌスであるのに対し、7.5GPa・2000 で数秒間保持された試料の構成固相はダイヤモンドのみであった。このことからダイヤモンド生成時にはペリクレーヌスは存在せず、H₂O フルイド中に MgO 成分及び炭素が溶解した環境であったと推測される。

X 線その場観察実験によると、3.6GPa では 950 以上でブルーサイトはペリクレーヌスと H₂O に分解した。しかし 6.1GPa では、1150 でブルーサイト回折線が消滅した時にペリクレーヌスは生成されなかった。この結果はブルーサイト単体の急冷回収実験及び DTA 実験の報告と異なる。この相違は、炭素が添加された系であるためか、又は急冷回収試料の情報からの高温高压相構成決定が困難であるためであろう。今回のその場観察実験は、C-H₂O-MgO 系において、圧力増加と共にフルイド中の MgO 成分溶解量が増大することを示唆する。

約 8GPa では、1150 でブルーサイトの消滅が観察されペリクレーヌスの生成は観察されなかった。ダイヤモンドピークが突然現れたのは、温度を更に 1835 まで上昇させた時であった。以上の観察結果はフルイド生成がダイヤモンド生成の十分条件ではないことを示す。この生成メカニズムは、ニッケル・コバルトなどの金属触媒では各触媒の溶融がダイヤモンド生成の引き金になるというメカニズムと異なる。またフルイド中の炭素溶解量は、グラファイト回折線ピーク強度の減少から見積もることができる。フルイド中の炭素量はダイヤモンド生成温度直前まで急激に増加してはいないことが確認された。MgO-H₂O フルイド中でのダイヤモンド生成は、金属触媒とはことなるメカニズムで起こっていると考えられる。