

forsterite における炭素溶解メカニズムの解明 Carbon dissolution mechanism in forsterite

三谷 彩木^{1*}; 興野 純¹
MITANI, Saki^{1*}; KYONO, Atsushi¹

¹ 筑波大学大学院生命環境科学研究科地球進化科学専攻

¹ Graduate School of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba

はじめに

珪酸塩鉱物は地殻・マントル中を構成する主要な鉱物であり、地球内部において重要な役割を担っている。また、炭素も地球内部に多量に存在し、珪酸塩鉱物中にわずかに固溶することが知られている。Shcheka et al. (2006) は、高温高压実験によってマントル鉱物への炭素溶解度を調べ、olivine では圧力が上昇するに伴って炭素溶解度は増加し、11 GPa で最大 12 ppm 溶解することを示した。このとき炭素は C^{4+} とし Si^{4+} と置換し、olivine の SiO_4 四面体内に CO_4 四面体として占有される可能性を示唆した。また、Sen et al. (2013) は非晶質のオキシ炭化ケイ素 ($SiOC$) の PDCs (Polymer-Derived Ceramics) を用いた実験によって、地球環境下では炭素と酸素の置換が低温高压領域の珪酸塩鉱物中で発生することを指摘し、熱力学的には炭素は Si^{4+} と置換するより酸素と置換しやすいことを明らかにした。このように、珪酸塩鉱物に炭素が溶解するとき、炭素は Si^{4+} の原子位置に取り込まれ CO_4 四面体となるのか、酸素の原子配置に占有され SiC_4 四面体となるのか、一部の酸素と置換し $Si(O,C)_4$ 四面体となるのか、その特性はまだ完全には明らかになっていない。

そこで、本研究では上部マントルの主要構成鉱物である forsterite における炭素置換メカニズムを解明することを目的とする。

実験方法

炭素溶解実験に使用した鉱物試料は、天然の forsterite (San Carlos, California, USA) である。Forsterite と炭素の反応剤 (graphite または活性炭) をそれぞれ混合し粉末にしたものを石英ガラスチューブに入れ真空封入し、1000 °C、2 日間加熱した。加熱後、粉末 XRD 測定によって生成物の格子定数の変化を調べた。赤外線吸収スペクトルでは SiO_4 四面体における分子の伸縮運動の変化から炭素が SiO_4 四面体に取り込まれた否かを分析した。EPMA 測定では生成物の炭素の定量分析を行った。さらに、第一原理計算によって生成物の構造の推定を行った。

結果・考察

粉末 XRD 測定より、炭素の増加に伴って b 値、 c 値の長さが収縮し、単位格子の体積が減少するという傾向があった。赤外線吸収スペクトル分析より、C-O 結合の伸縮振動が現れるスペクトルの領域にわずかなショルダーが見られた。EPMA 測定からは炭素が有意に認められ、反応前後で Si と C のイオン数に負の相関が認められた。第一原理計算より、炭素は SiO_4 四面体中の Si と置換して C-O 結合を形成したときがエネルギー的に安定した。Si-O 結合の距離と置換後の C-O 結合の距離を比較すると、結合距離は明らかに短くなった。本研究の結果から、forsterite には炭素を溶解することが可能であるということが示唆される。さらに、このとき炭素が SiO_4 四面体内の Si^{4+} と置換していることが考えられる。

しかしながら、個々の Forsterite 中で置換する炭素の量はわずかであるため、今後慎重な検証実験を繰り返し、結論を導くことが必要である。

キーワード: 珪酸塩鉱物, 炭素溶解, フォルステライト

Keywords: silicate mineral, carbon dissolution, forsterite