

圧力下における含水ナトリウム珪酸塩融体の構造 Structure of hydrous sodium silicate melt under pressures

大橋智典^{1,*}, 坂巻竜也¹, 舟越賢一², 村主樹¹, 市東力¹, 柴崎裕樹³, 鈴木昭夫¹

¹東北大学大学院理学研究科地学専攻, 〒980-8578 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3

²総合科学研究機構 中性子科学センター, 〒319-1106 茨城県那珂郡東海村白方 162-1

³物質材料研究機構, 〒305-0044 茨城県つくば市並木 1-1

Tomonori OHASHI^{1,*}, Tatsuya SAKAMAKI¹, Ken-ichi FUNAKOSHI², Miki MURANUSHI¹,
Chikara SHITO¹, Yuki SHIBAZAKI³ and Akio SUZUKI¹

¹ Department of Earth Science, Graduate School of Science, Tohoku University,
6-3 Aoba, Aramaki, Sendai, 980-8578, Japan

² Neutron Science and Technology Center, Comprehensive Research Organization for Science and
Society (CROSS), 162-1 Shirakata, Tokai, Naka, Ibaraki, 319-1106, Japan

³ National Institute for Materials Science (NIMS), 1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki, 305-0044, Japan

1 はじめに

地震波観測などの地球物理的探査によって地球深部におけるマグマの存在が示唆されている。これは周囲のマントルに対してマグマが重力的に安定である事を示唆している。マグマの密度や粘性度に代表される巨視的物性は、その微視的な構造と密接に結び付いており、量子ビームと高圧実験を組み合わせたマグマのその場構造解析によって、地球内部で生成されるマグマの物性を考察する際に重要な知見を得ることが出来る。地球深部においてマグマは加水融解によって生成され、深部マグマは水を含むと考えられる。更に、水（水素）はマグマの構造にも影響を与え、またこの構造的変化によって密度や粘性度をも著しく低下させることが報告されている。この為、含水マグマの高温高圧下におけるその場の構造を知り、理解することは、深部マグマの振る舞いを考える上で大変興味深い。

我々は今回、含水ナトリウム珪酸塩 ($\text{Na}_6\text{Si}_8\text{O}_{19}$: NS8/3) メルトに関して、約 2, 3 GPa における高温高圧その場 X 線回折実験を行った。本レポートでは、これらの実験で得た構造的な情報と、それから得られた考察を報告する。

2 実験

出発試料は粉末試薬の SiO_2 , Na_2CO_3 の混合物を 1100 °C で数時間熔融、 CO_2 を揮発させた後に急冷回収し、再び粉末状にしたガラスを用いた。水は、液体の蒸留水として加えた。X 線回折実験は PF-AR の NE5C で実施し、高圧発生装置には当該ビームライン設置のマルチアンビルプレス MAX80 と、MA6-6 セルを併用して二段式の加圧方法を採用した。一段目のアンビルの先端は $\square 27 \text{ mm}$ 、そして先端 $\square 6 \text{ mm}$ 二段目アンビル用いて、試料を加圧した。圧力媒体はボロンエポキシ製、ヒータは円筒形グラファイト、試料容器は白金と単結晶ダイヤモンド管の複合容器[1]を使用した。また、幅広い波数 Q 領域で

のデータを得るため、白色 X 線 (20–140 keV) を使用し、回折角 2θ を 3–25° まで取った。各回折角における散乱パターンを MCEDX 法 [2]によって重ねて足し合わせ、構造因子 $S(Q)$ を $Q \leq 15 \text{ \AA}^{-1}$ の領域において得た。そして、構造因子のフーリエ変換である動径分布関数 $G(r)$ を求め、局所構造 (半径約 5 Å 以内) に関する平均的な構造の情報を得た。

3 結果および考察

得られた $S(Q)$ は図 1 の通りである。約 2 \AA^{-1} ($= Q_1$) に見られる比較的鋭いピークは FSDP (First Sharp Diffraction Peak) と呼ばれ、非晶質体の中距離構造の周期 ($\approx 2\pi/Q_1$) を反映している。ここで言う「中距離構造」とは、 SiO_4 四面体が成すネットワーク同士の「面間距離」のような繰り返し周期性に起因していると考えられる[3]。この FSDP は圧力上昇に従ってより高波数側へ移動しており、メルトの持つ中距離構造が収縮していることを示唆している。加えて、いずれの含水量でも FSDP が圧力増加に伴って鋭くなっており、中距離構造の周期性が圧力に起因して秩序化することを示唆している。

図 2 には図 1 の $S(Q)$ を圧力毎にそれぞれフーリエ変換して得られた動径分布関数 $G(r)$ を載せている。フーリエ変換における Q の範囲は $0.01 \leq Q \leq 15 (\text{Å}^{-1})$ で、カットオフ距離は $r = 1.4 \text{ \AA}$ である。約 $r = 1.6 \text{ \AA}$ に位置する Si-O ピークは SiO_4 四面体内の共有結合による短距離秩序構造を表しているが、この相関に圧力や組成による目立った変化は見られなかった。一方で、 $r = 2.0\text{--}3.5 \text{ \AA}$ の領域において、含水量や、 $\text{H}_2\text{O} = 9 \text{ wt\%}$ の場合は圧力によって形が異なっている。これは、含水量の違いによって、メルトのネットワーク構造 (重合度など) や圧縮特性に違いが生じている為だと考えられる。

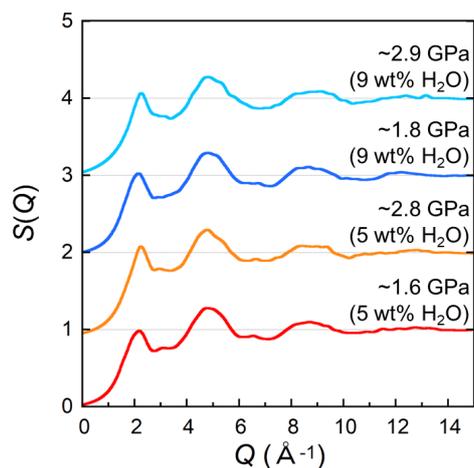


図 1: 含水 $\text{Na}_6\text{Si}_8\text{O}_{19}$ メルトの構造因子 $S(Q)$ 。

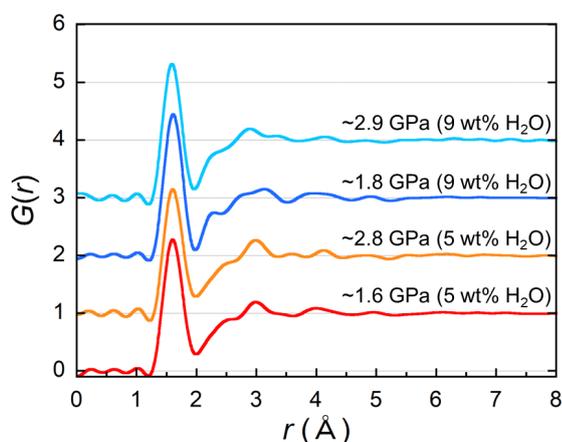


図 2: 含水 $\text{Na}_6\text{Si}_8\text{O}_{19}$ メルトの動径分布関数 $G(r)$ 。

4 まとめ

今回の実験では AR-NE5C ビームラインでの含水 NS8/3 メルトの高温高压その場 X 線回折によって、その微視的な構造を解析した。干渉関数 $S(Q)$ における FSDP に見られた圧力起因のシフト及びシャープニングから、中距離構造が加圧によって秩序化することが分かった。また、 $G(r)$ に見られた形の相違は、含水量の違いによって、重合度等のメルトの $\dots\text{-Si-O-Si-}\dots$ ネットワーク構造に差が生じ、またそれに起因して圧力による構造変化の機序に違いが生じている為だと考えられる。

謝辞

本研究は、高エネルギー加速器研究機構の補助に加え、若手研究 A (17H04860, 代表:坂巻竜也) 及び挑戦的研究(萌芽) (17K18797, 代表:坂巻竜也) の助成を受けて実現したものです。

参考文献

- [1] A. Yamada *et al.*, *Geophys. Res. Lett.* **34**, L10303 (2007).
- [2] K. Funakoshi, *PhD thesis*, Tokyo Inst. Technol. (1997).
- [3] S. Kohara *et al.*, *Nat. Commun.* **5**:5892 (2014).

成果

1. 本成果は FY2019 Core-Mantle Coevolution Annual General Meeting で報告しました。

* tomonori.ohashi.s8@dc.tohoku.ac.jp