

課題番号 : 2021A-E08  
利用課題名 (日本語) : 非晶質炭酸マグネシウムのポリアモルフィズムの解明  
Program Title (English) : Study on the polyamorphism in amorphous magnesium carbonate  
利用者名 (日本語) : 山本弦一郎, 興野純, 岡田慧  
Username (English) : G. Yamamoto, A. Kyono, S. Okada  
所属名 (日本語) : 筑波大学生命環境系  
Affiliation (English) : Graduate School of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba  
キーワード : CO<sub>2</sub>地中固定, 炭酸塩, 炭酸マグネシウム水和物, 非晶質炭酸マグネシウム,

## ・利用目的

近年, 重大な環境問題である地球温暖化の対策として CO<sub>2</sub> 地中固定技術に注目が集まっている. CO<sub>2</sub> 地中固定技術は, CO<sub>2</sub> を炭酸塩岩として地中に固定する方法であり, この方法が現在最も安定的に長期間 CO<sub>2</sub> を固定できる有力な方法と考えられている. 炭酸マグネシウム水和物は CO<sub>2</sub> を地下に注入した際に固定される主要な鉱物種の一つである. 炭酸マグネシウム水和物は, はじめに非晶質相炭酸マグネシウム(Amorphous Magnesium Carbonate; 略して AMC) が先駆物質として生成され, その後, 結晶性の炭酸マグネシウム水和物に変化することが明らかになっている. しかし, AMC の水溶液中での性質から, 水溶液中のアルカリ金属イオンの種類によって AMC は異なる構造を持つことが示唆されている. つまり, 地下水や海水に含まれるアルカリ金属イオンによって, AMC は異なった挙動をとることが考えられる. 結晶質物質の場合, 化学組成が同じで複数の結晶構造を持つことをポリモルフィズムと呼ぶが, 非晶質物質のこのような性質のことをポリアモルフィズムと呼ぶ. AMC のポリモルフィズムについては未だに不明な点が多い. そこで, 本研究では様々な条件で合成した AMC に対して, 放射光 X 線全散乱測定を実施し, 2 体相関分布関数 (atomic Pair Distribution Function, PDF) 解析を行なった. これによって, AMC のアルカリ金属イオンの影響を明らかにし, ポリアモルフィズムについて検証した.

## ・試料, 実験方法, 使用装置・実験測定条件

測定試料の AMC は, Mg 源として MgCl<sub>2</sub> 水溶液, 炭酸源として Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, K<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Rb<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Cs<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 水溶液を用いて合成した. それぞれの溶液を混ぜ合わせ, 5 分間の攪拌を行った. 生じた沈殿物を洗浄, ろ過し

室温で乾燥させた. 放射光 X 線全散乱測定は, BL22XU に設置された  $\kappa$  型多軸回折計を用いた. 波長を 60 keV にし, 測定範囲は  $0.7^\circ \leq 2\theta \leq 40^\circ$ , 2 $\theta$  ステップは Q 値に応じて  $0.01^\circ \sim 0.1^\circ$  刻みで測定を行った. 測定試料はカプトンフィルム製の試料キャピラリーに充填した.

## ・測定内容, 結果の概要

図 1 に, 合成した AMC の PDF パターンを示す. すべての AMC で 2 体相関分布関数の減衰がみられ, アモルファス相であることが確認できる. また, すべての AMC は, 1~4 Å の 2 体相関分布はほぼ同じプロファイルを示した. つまり, AMC の局所構造はアルカリ金属イオンの影響はほとんど受けておらず, ポリアモルフィズム化はしていない. 一方, 4 Å 以上の 2 体相関分布のプロファイルは, Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> 水溶液から合成した AMC とそれ以外とでは明らかな違いがみられた. したがって, アルカリ金属イオンの影響は, AMC の短距離構造よりもむしろ中距離構造に顕著に見られると言える. そして, その結果は, AMC から炭酸マグネシウム水和物が結晶化する際に, 周囲のアルカリ金属イオンの影響で, 結晶相や結晶化時間に顕著な違いが生じる可能性が示唆される.

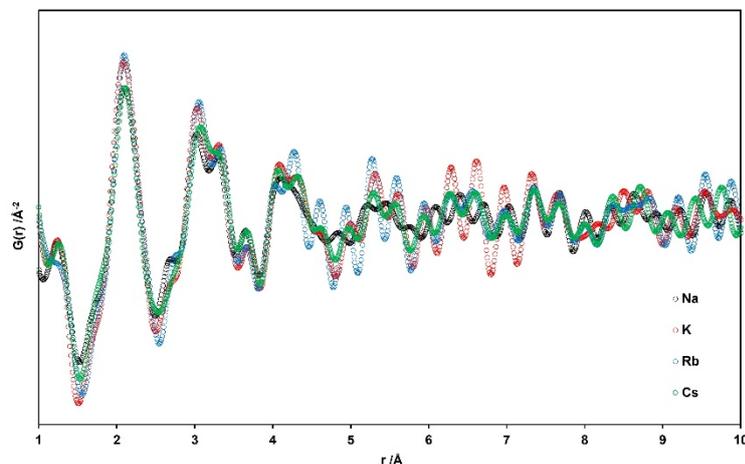


図 1. 各試料の PDF パターン.