課題番号　　:2019B-E11
利用課題名（日本語）　　:炭酸マグネシウム水和物（ネスケホン石）の熱分解過程
Program Title (English)　:Thermal decomposition of magnesium carbonate hydrate, nesquehonite
利用者名（日本語）　　:山本弦一郎 [1)], 興野純 [1)], 米田安宏 [2)]
Username (English)　　:G. Yamamoto[1)], A. Kyono[1)], Y. Yoneda[2)]
所属名（日本語）　　:1) 筑波大学生命環境, 2) 日本原子力機構
Affiliation (English)　　:1) University of Tsukuba, 2) Japan Atomic Energy Agency
キーワード： 炭酸マグネシウム，ネスケホン石, 熱分解, X 線回折, PDF 解析

1. 概要（Summary）

地球温暖化は極めて重要な地球環境問題の一つである. CO_2 地中固定技術は大気から回収した CO_2 を，炭酸塩岩として地中に固定する技術であり，最も安定的に長期間 CO_2 を地下に固定できる技術として注目を集めている．ネスケホン石 [$MgCO_3 \cdot 3H_2O$]は CO_2 地中固定で地下に形成される代表的な炭酸塩鉱物である．しかし，長期的な CO_2 地中固定には，地下の温度や圧力に対するネスケホン石の評価は必須である．これまでにネスケホン石の熱分解過程では非晶質相を含めた多様な相を経ることが分かっているが (Jauffret et al., 2015)，未知相や非晶質相の構造の温度変化を捉えるとこはできていない．そこで本研究は，放射光 X 線全散乱測定と PDF 解析から，ネスケホン石の熱分解過程での構造変化を連続的に捉えることを目的に実施した．

2. 実験（目的,方法）（Experimental）

合成したネスケホン石を 150 °C，200 °C，250 °C，350 °C，450 °C で 1 時間熱処理した試料を測定に用いた．放射光 X 線全散乱測定は，Spring-8，BL22XU に設置された κ 型多軸回折計を用いた. 波長を 60 keV にし，測定範囲は 0.7° ≤ 2θ ≤ 40° ，2θステップは Q 値に応じて 0.01° ~ 0.1°刻みで測定を行った．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．

3. 結果と考察（Results and Discussion）

XRD 測定の結果，ネスケホン石は温度上昇に伴い，未知相，非晶質相，oxymagnesite [$MgO \cdot 2MgCO_3$]を経て，periclase [MgO]へ分解した（図 1）．この結果は，Jauffret et al. (2015)と調和的であった．図 2 に PDF パターンの温度変化を示す．150 °C で出現した未知相は，ネスケホン石の短距離秩序を維持していたが，5 Å 以上の中距離秩序（周期構造）は完全に変化していた．その後，200 °C で出現した非晶質相は，5 Å 付近に新たな周期性が認められ，5 Å 以上の中距離秩序は消失していた．さらに，250 °C の非晶質相では oxymagnesite の周期性に近い構造に変化し，350 °C の oxymagnesite では弱い中距離秩序が出現し，450 °C では脱炭酸した periclase に変化した．本研究の結果から，ネスケホン石は，熱分解過程で中距離秩序を大きく変化させるが，3 Å 以下の短距離秩序は維持することが分かった．

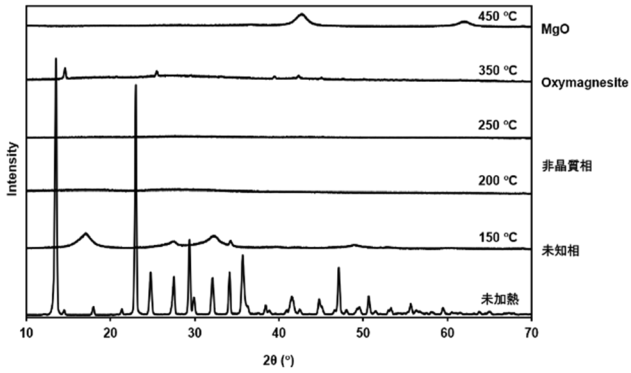

図 1. XRD パターンの温度変化

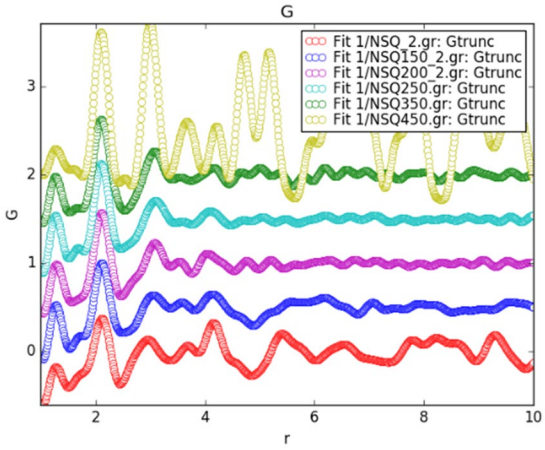

図 2.　PDF パターンの温度変化