

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 05 月 15 日現在

機関番号：13101
 研究種目：挑戦的萌芽研究
 研究期間：2011～2012
 課題番号：23654186
 研究課題名（和文） 地球深部をアナログとした Fe-C 系高温高压実験における炭素同位体分別の研究
 研究課題名（英文） Experimental determination of carbon isotope fractionation in the Fe-C system under HPHT conditions.
 研究代表者
 M. Satish-Kumar（エム サティッシュークマール）
 新潟大学・自然科学系・教授
 研究者番号：50313929

研究成果の概要（和文）：

本研究では、地球コアに含まれる軽元素の主な成分を炭素と想定し、高温高压実験から Fe-C 系の状態図について検討した。高压実験は、出発物質に粉末の鉄と同位体比が既知の粉末のグラファイトを使用し、川井型マルチアンビル装置を用いて 5~14 GPa, 1200~2100 °C の条件で反応実験を行った。この実験より鉄の炭化物-固体炭素間における超高温高压条件での炭素同位体分別を定量化し、炭化物-固体炭素間の炭素同位体分別係数を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：

Equilibrium carbon isotope fractionation between graphite/diamond and iron carbide melt at 5 and 10 GPa and in the temperature range between 1200 and 2000 °C was determined. The results suggest that iron carbide melt will preferentially accumulate ¹²C rather than ¹³C. We proposed that the temperature-dependent fractionation of carbon isotopes between iron carbide melt and graphite/diamond might have created a “¹²C-enriched core” with a significant difference in the distribution of carbon isotopes between the carbon in the metallic core and bulk silicate Earth during the accretion and differentiation of early Earth.

交付決定額

（金額単位：円）

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|-------|-----------|---------|-----------|
| 交付決定額 | 2,800,000 | 840,000 | 3,640,000 |

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・岩石・鉱物・鉱床学

キーワード：岩石・鉱物・鉱床学，炭素同位体，Fe-C 系，高温高压実験，同位体分別

1. 研究開始当初の背景

鉄合金で構成されている地球コアは液体である外核と固体である内核に分けられる。液体である外核においては地震波による密度の計算などにより、純鉄よりも密度が 10 % ほど低く、水素・炭素・酸素・珪素・硫黄などの軽い元素の存在が考えられている。これらのうち「炭素」は熔融状態の鉄に融解しやすいことから、地球コアに含まれていると考えられている。しかしながら、地球コアにおける炭素含有量については未だに定量化さ

れていない。

地球コアを含む地球全体の炭素量の見積もりは地球システムの炭素循環を考えるうえで非常に重要である。そのためには初期地球における炭素の分布を理解し、地球内部の炭素の存在について考えることが必要であるといえる。

2. 研究の目的

本研究では、鉄粉と粉末のグラファイトを出発物質とした高温高压実験を行い、高压条件

下での Fe-C 系の状態図および、核形成時における炭素安定同位体比の分別について検討する。そして全地球炭素循環モデルにおける重要な基礎データの構築を行う。

3. 研究の方法

(1) 試料準備(出発物質の生成): 出発物質はメノウ乳鉢を用いて、エタノール下で鉄粉とグラファイトをすり合わせることで生成した。高压条件での Fe-C 系状態図より、それぞれ異なる量比の混合粉末を生成した。また、溶融鉄に溶け込むことのできる炭素の最大量を確認するため、カプセル内の容積が半分ずつになるように Fe ワイヤ+粉末のグラファイトの試料を準備した。高压実験は岡山大学地球物質科学研究センターが所有する川井型超高压発生装置 (USSA-1000) を用いて行った。試料の合成は一段目アンビルに MgO+Cr₂O₃ の一辺 18mm の正八面体圧力媒体を使用し、出発物質を MgO カプセルに詰めた。二段目アンビルにはタングステンカーバイドアンビルを用いて、11mm のトランシェーションを持つタングステンカーバイドで加圧した。また、加熱に関してはグラファイトヒーターを用いて行い、温度の測定はタングステン・レニウム熱電対で測定した。

(2) 分析・測定: 合成した試料は半分に切断し、研磨した後、以下の分析・測定を行った。微小部 X 線分析 (XRD): 合成した試料の相を確認するために、試料をダイヤモンドペーストで研磨し、表面の組織について微小部 X 線分析を行った。XRD に関する設備・機器は岡山大学地球物質科学研究センター所有のものを使用した。

(3) 電子線マイクロプローブ分析 (EPMA): 合成した試料の鉄の含有量を定量的に分析するために、静岡大学所有の EPMA を使用し、XRD 分析の結果と EPMA 分析の結果から合成した試料の相について検討した。また、千葉大学所有の EPMA により炭素の含有量の定量分析及びマッピングを行い鉄と炭素の割合を把握することで、試料の平衡関係を明らかにした。

(4) 同位体分析: 炭素安定同位体測定は静岡大学が所有する質量分析計 (MAT250) を用いて炭化鉄・鉄-炭素のメルト及び固相について分析を行った。MAT250 は非常に微量 (2 × 10⁻⁶ リットル) の二酸化炭素を測定することができる世界でも数少ない分析装置である。そこで、微細な組織ごとの変化を把握して同位体分別について検討を行った。また、炭化鉄及び鉄-炭素のメルトの炭素同位体比の測定については前例がないため、その手法も確立をした。

4. 研究成果

(1) 5 GPa, 1200 °C の条件では炭素を 8.4

wt.% 含む鉄の炭化物 (Fe₇C₃) を確認することができた。

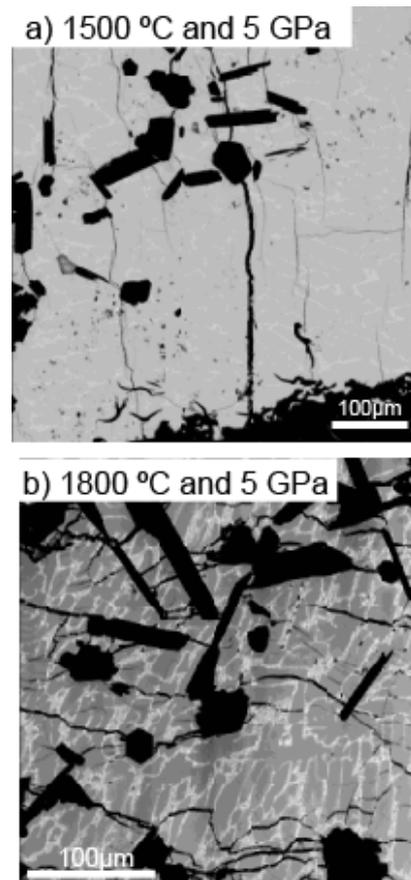


Fig. 1 Back scatter electron images of run products of experiments in the Fe-C system, showing Fe₃C (in grey) and euhedral graphite crystals (in black).

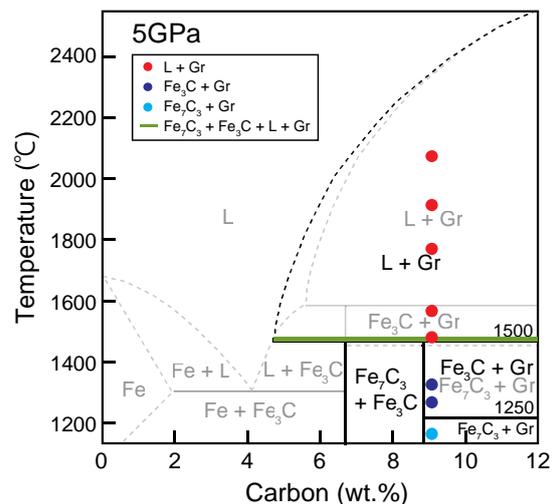


Fig. 2 Phase relations in the Fe-C system at 5 GPa and 9 Cwt.%. The stability of the phases in the Fe-C system are consistent with the published results, shown in light grey.

(2) また炭素を多量に含む場合、5 GPa, 1500 °C 以上の条件で Fe-C 系の状態図は液体

とグラファイトが共存することが明らかになった。

(3) 状態図を基にした鉄の炭化物-固体炭素間における超高温高压条件での炭素同位体分別については 5 GPa, 1500 °C の条件で $\Delta^{13}\text{C}=3.64\text{‰}$, 10 GPa, 2100 °C の条件で $\Delta^{13}\text{C}=2.66\text{‰}$ の値を示し, 先行研究の鉄隕石における鉄の炭化物-固体炭素間の炭素同位体分別係数を加え, 以下の式を得ることができた。

$$\Delta^{13}\text{C} (\text{gr/dia} - \text{iron carbide melt}) = 8.87\{10^6/T^2(\text{K})\} + 0.96$$

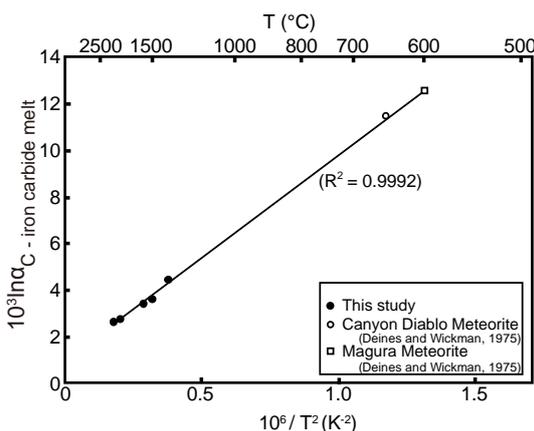


Fig. 3 Equilibrium fractionation of carbon isotopes between graphite/diamond and iron carbide melt as a function of temperature.

(4) 炭素同位体分別については溶融状態の鉄には選択的に軽い (^{12}C に富む) 炭素が溶け込んでいくこと, 2100°C という超高温条件においても同位体分別が起こることがわかった。以上の結果からマグマオーシャン環境で溶融鉄に炭素が融解し、地球コアが形成されたとすると、 ^{12}C に富んだ大量の炭素がコアに存在するのではないかと考察することができる。このことは ^{12}C に富む炭素がすべて有機物起源ではないことを示し、地球深部における炭素循環について見直すことが必要であるといえる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

(1) Satish-Kumar, M., So, H., Yoshino, T., Kato, M. and Hiroi, Y. (2013) Carbon isotope fractionation in the Fe-C system at HPHT experiments: Reply to the comment by Reutsky and Borzdov. *Earth and Planetary Science Letters*, 368, 222-224 査読有
DOI : 10.1016/j.epsl.2013.03.032

(2) Satish-Kumar, M., So, H., Yoshino, T., Kato, M., Hiroi, Y. (2011) Experimental determination of carbon isotope fractionation between iron carbide melt and carbon: ^{12}C -enriched carbon in the Earth's core? *Earth and Planetary Science Letters*, 310, 340-348. 査読有
DOI : 10.1016/j.epsl.2011.08.008

(3) Satish-Kumar, M., Yurimoto, H., Itoh, S., Cesare B. (2011) Carbon isotope anatomy of a single graphite crystal in a metapelitic migmatite revealed by high-spatial resolution SIMS analysis. *Contributions to Mineralogy and Petrology*, 162, 821-834. 査読有
DOI : 10.1007/s00410-011-0626-3

[学会発表] (計 7 件)

① Satish-Kumar, M., Yoshino, T., Mizutani, S., So, H. and Kato, M. Experimental studies on carbon isotope fractionation in the deep Earth. The 22nd V.M. Goldschmidt Conference, 2012年 06月 24日~2012年 06月 29日, Montreal, Canada

② Mizutani, S., Satish-Kumar, M., Yoshino, T. and Kato, M. High-pressure and high-temperature experimental study of carbon isotope fractionation in the Mg-Si-C-O system. The 22nd V.M. Goldschmidt Conference, 2012年 06月 24日~2012年 06月 29日, Montreal, Canada

③ Satish-Kumar, M., Yoshino, T., Mizutani, S., So, H. and Kato, M. Experimental determination of carbon isotope fractionation in the deep Earth. 2012年度日本地球化学会第 59 回年会, 2012年 09月 11日~2012年 09月 13日, 九州大学

④ Satish-Kumar, M., So, H., Yoshino, T., Kato, M., Hiroi, Y. Carbon isotope fractionation during the formation of the Earth's core. 日本地球惑星科学連合 2011 年大会, 2011年 5月 22日~27日, 幕張メッセ 国際会議場(千葉市)

⑤ Satish-Kumar, M., So, H., Yoshino, T., Kato, M., Hiroi, Y. Experimental determination of carbon isotope fractionation between iron carbide melt and carbon: ^{12}C -enriched carbon in the Earth's core? 日本鉱物科学会 2011 年年会, 2011年 9月 09日~11日, 茨城大学(水戸市)

⑥ Satish-Kumar, M., So, H., Yoshino, T., Kato, M., Hiroi, Y. Hidden light carbon in the Earth's core?: Evidence from high pressure high temperature experiments in the Fe-C system. 第 31 回極域地学シンポジウム, 2011年 11月 17日, 国立極地研究所 (立川市)

⑦ Satish-Kumar, M., Yoshino, T., Mizutani, S., So, H., Kato, M. Understanding carbon isotope

systematics in the deep Earth. Joint Symposium of Misasa-2012 and Geofluid-2: Dynamics and Evolution of the Earth's Interior: special emphasis on the role of fluids (招待講演), March 18-21, 2012, Institute for Study of the Earth's Interior, Okayama University, Misasa, Japan

6. 研究組織

(1) 研究代表者

M. Satish-Kumar (エム サティッシュューク
マール)

新潟大学・自然科学系・教授

研究者番号：50313929

(2) 研究分担者

芳野 極 (YOSHINO TAKASHI)

岡山大学・地球物質科学研究センター・准
教授

研究者番号：30423338