PRESS RELEASE（2026/04/22）

同位体によるラマンスペクトル変化の起源を体系的に解明

―フォルステライトの酸素同位体効果を第一原理計算で明らかに―

ポイント

① フォルステライト(※1)（Mg_2SiO_4）の酸素同位体(※2)効果を理論計算で体系的に解明
② ラマンスペクトルのピーク位置、分裂、広がりを生む物理機構を明らかに
③ 隕石・惑星物質の非破壊同位体分析の実現に期待

概要

酸素同位体比は、地球環境や生命活動、さらには太陽系形成過程を解明するための重要な指標です。しかしながら、微小な鉱物粒子に対し、試料を破壊せずに同位体情報を取得することは難しく、新たな分析手法の確立が求められています。

九州大学 大学院理学研究院の荒川雅 准教授は、かんらん石の一種であるフォルステライト（Mg_2SiO_4）において、含まれる酸素同位体（^{16}O, ^{17}O, ^{18}O）比の違いがラマンスペクトルに与える影響を、第一原理計算(※3)により体系的に解明しました。

これまで、同位体に応じて振動数が変化することは知られていましたが、部分的な同位体置換によってラマンスペクトルのピーク位置、分裂、広がりがどのように変化するのかについては、定量的かつ統一的な理解が十分ではありませんでした。

本研究では、周期境界条件に基づく密度汎関数理論（DFT）計算を用いて、広い同位体組成範囲にわたるラマンスペクトルを再現し、スペクトル変化の起源を詳細に解析しました。その結果、

・質量効果によるピークの低波数シフト
・対称性低下によるラマン不活性モードの活性化
・置換サイト依存性によるピーク分裂
・多様な配置の平均化によるスペクトルの広がり

という複数の要因が組み合わさり、スペクトルが変化することが明らかになりました。

さらに、既報の実験スペクトルとの比較により、主要な Si–O 伸縮振動（約 820、880、920 cm^{-1}）の同位体依存性を定量的に再現することに成功しました。

酸素同位体がラマンスペクトルのピーク位置、分裂、広がりをどう変えるのか、その物理的起源を第一原理計算で初めて体系的に示した本研究成果は、マイクロラマン分光による高空間分解能同位体分析の理論基盤を提供するものであり、隕石中のプレソーラー粒子(※4)や地球深部物質の非破壊同位体分析への応用が期待されます。

本研究成果は米国の雑誌「The Journal of Physical Chemistry C」に 2026 年 4 月 22 日（水）（日本時間）に掲載されました。

【研究の背景と経緯】

酸素同位体比は、地球環境や生命活動、さらには太陽系形成過程を解明するための重要な指標です。例えば、海洋堆積物やサンゴに記録された酸素同位体比は古気候の復元に用いられ、また隕石中に含まれるプレソーラー粒子（太陽系形成以前に形成された鉱物粒子）は、特異な同位体組成を示し、恒星内部での元素合成や星形成、惑星系形成に関する情報を保持しています。

こうしたプレソーラー粒子は非常に微小であるため、非破壊かつ高空間分解能で同位体情報を取得できる手法が求められています。その有力な手法として、振動数が原子の質量に依存することを利用したマイクロラマン分光法(※5)が注目されています。

しかしながら、部分的な同位体置換によってラマンスペクトルがどのように変化するのか、すなわちラマンスペクトルのピーク位置、分裂、広がりがどのような物理機構によって生じるのかについては、これまで定量的かつ体系的な理解が十分ではありませんでした。特に、実際の試料に対応するランダムな同位体分布を考慮した理論的解析は限られていました。本研究は、このような課題に対し、第一原理計算に基づいてラマンスペクトルの同位体依存性を体系的に解明することを目的としています。

【研究の内容と成果】

本研究では、周期境界条件に基づく密度汎関数理論（DFT）計算を用いて、フォルステライトにおける酸素同位体置換がラマンスペクトルに与える影響を体系的に解析しました。特に、広い同位体組成範囲にわたってスペクトルを再現し、ラマンスペクトルのピーク位置、分裂、広がりがどのような物理機構に由来するのかを詳しく調べました。

その結果、同位体置換による質量分布の変化が動力学的対称性を低下させ、通常はラマン不活性な振動モードの活性化を引き起こすことを明らかにしました。さらに、酸素の置換サイトの違いが振動モードに強く影響し、ピーク分裂やスペクトルの広がりを生じることも分かりました。これにより、同位体置換に伴うスペクトル変化を、質量効果、対称性低下、置換サイト依存性、そして多様な原子配置の平均化という観点から統一的に理解できることを示しました。

さらに、既報の実験スペクトルとの比較により、主要な Si–O 伸縮振動（820, 880, 920 cm^{-1} 付近）の同位体依存性を定量的に再現することに成功しました。本研究は、部分的な同位体置換によって生じる複雑なスペクトル変化の起源を理論的に明らかにしたものであり、マイクロラマン分光による高空間分解能同位体分析に向けた重要な理論基盤となります。隕石や惑星物質中の微小鉱物を対象とした非破壊同位体分析の実現に貢献することが期待されます。

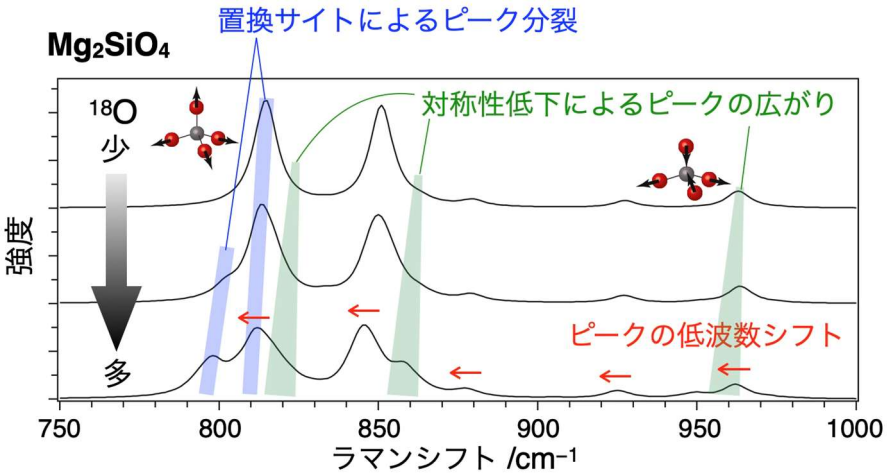

図 1. 同位体置換によるラマンスペクトル変化の模式図。酸素同位体の増加に伴い、ピークは低波数側へシフトし（質量効果）、置換サイトの違いによりピーク分裂が生じ、対称性の低下によりピークの広がりが生じる。

【今後の展開】

本研究では主に Si–O 伸縮振動領域に着目しましたが、今後は低波数領域や Fe を含むかんらん石固溶体系へ対象を拡張することで、より実試料に近い条件でのスペクトル解釈を進める予定です。これにより、天然鉱物や地球外物質に含まれる複雑な組成・構造をもつ試料に対しても、ラマンスペクトルから同位体情報をより高精度に読み取ることが可能になると期待されます。

特に、隕石中のプレソーラー粒子のような希少かつ微小な鉱物試料では、試料を損なわずに分析できる非破壊手法の重要性が高まっています。本研究成果は、そのような微小試料に対する非破壊・高空間分解能同位体分析の実現を後押しするものであり、将来的には隕石や惑星物質の起源や形成過程の解明に貢献することが期待されます。

【用語解説】

(※1)フォルステライト：化学式 Mg_2SiO_4 で表されるケイ酸塩鉱物で、かんらん石のマグネシウム端成分。地球や隕石中に広く存在し、惑星物質の形成や進化を考えるうえで重要な鉱物である。

(※2) 同位体：同じ元素でありながら、中性子の数が異なるため質量が異なる原子のこと。

(※3) 第一原理計算：実験に頼らず、量子力学の法則に基づいて原子や電子の振る舞いを計算する手法。物質の構造や安定性、スペクトルの起源などを理論的に調べることができる。

(※4) プレソーラー粒子：現在の太陽系ができる前に恒星や超新星などで形成された鉱物粒子。特異な同位体組成を持ち、星や太陽系の起源や形成過程を探る手がかりとなる。

(※5) ラマン分光法：物質にレーザー光を当て、散乱した光の変化から分子や結晶の振動状態を調べる分析手法。物質の種類や構造、結晶状態などを非破壊で測定できる。

【謝辞】

本研究は JSPS 科研費 （JP23K22559)、九州大学理学研究院 令和 1 号資金（21-02)、UBE 学術振興財団, マツダ財団の助成を受けたものです。計算には、東北大学金属材料研究所 MASAMUNE-II (202412-SCKXX-0006）および自然科学研究機構岡崎共通研究施設計算科学研究センターの計算資源（25-IMS-C137）を利用しました。

【論文情報】

掲載誌：The Journal of Physical Chemistry C

タイトル：Computational Analysis of Oxygen Isotope Effects on the Raman Spectra of Forsterite (Mg_2SiO_4)

著者名：Masashi Arakawa

D O I ：10.1021/acs.jpcc.5c08487

【お問合せ先】

＜研究に関すること＞

九州大学　大学院理学研究院地球惑星科学部門　准教授　荒川雅（アラカワマサシ）

TEL：092-802-4194　　Mail：arakawa@geo.kyushu-u.ac.jp

＜報道に関すること＞

九州大学　広報課

TEL：092-802-2130　　Mail：koho@jimu.kyushu-u.ac.jp

Kyushu University VISION 2030
総合知で社会変革を牽引する大学へ