

## アルバイトの分子動力学シミュレーション

## Molecular dynamics simulation of albite

# 三宅 亮[1]

# Akira Miyake[1]

[1] 京大・理・地球惑星

[1] Earth and Planetary Sci., Kyoto Univ.

アルバイト( $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ )は1250K付近でC2/m - C-1相転移が、950K付近ではC-1のまま高温型 - 低温型アルバイトの相転移が存在すると考えられている。本研究では、こうした相転移について様々な秩序度を持ったアルバイトのMD計算を行い、その結果を2種類の秩序パラメーターを用いて解析を行った。その結果、高温型 - 低温型アルバイトの相転移は観察できず、C2/m - C-1相転移は格子変形とAl/Siの秩序化の両方の影響で2次の相転移であることが明らかとなった。

[はじめに] アルバイト( $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ )は、 $\text{SiO}_4$ と $\text{AlO}_4$ の四面体から構成される三次元のフレームワークとその隙間に入ったNa原子からなる構造を持ち、1250K付近でC2/m - C-1相転移が存在し、950K付近では空間群はC-1のまま高温型 - 低温型アルバイトのthermal crossoverが存在すると考えられている。前者のC2/m - C-1相転移は構造相転移であり、後者のthermal crossoverは温度のスムーズな関数として与えられるため1次の相転移ではないと考えられている。しかし、実際の試料ではAl/Si秩序度を制御することは難しいためこれらの相転移について、特にthermal crossoverが存在するかどうかについて、今だ理解されていない点が多い。一方、分子動力学シミュレーションでは任意にAl/Si原子の配置を選び、その配置を保ったまま加熱実験をすることが可能である。そこで本研究ではアルバイトの相変化について、様々なAl/Siの秩序度を持つアルバイトの分子動力学シミュレーションを行った。

[分子動力学シミュレーション] シミュレーションは分子動力学計算プログラム、MXDTRICL (Kawamura 1996, JCPD #077), を用いて行った。原子間相互作用モデルは、クーロン、近接反発、ファン・デル・ワールスおよびモース項からなる2体中心力形式を用い、パラメーターはアルバイトおよびアノサイトの格子定数を再現するように経験的に決定した (Miyake 1998)。クーロン力の計算にはエワルド法を用い、三次元周期境界条件を課し、2fs/stepにて運動方程式を解いた。初期構造として、Al/Si原子の秩序化の度合いを表す秩序パラメーター ( $Q_{od}$ ) が0 (完全に無秩序状態)、0.08, 0.22, 0.4, 0.5, 0.59, 0.74, 0.91, 1 (完全に秩序状態) の9種類の構造を用いた。それぞれの構造中のAl/Si原子は、アルミニウム排除則を満足するようにランダムに配置した。

[結果と考察] シミュレーションの結果から格子の歪みを表す秩序パラメーター ( $Q$ ) を見積もり、2種類の秩序パラメーター ( $Q_{od}$ ,  $Q$ ) を用いて解析を行った。その結果以下のことが分かった。高温 (本シミュレーションでは1400K以上) での安定相は $Q=Q_{od}=0$ を持つ、すなわち空間群C2/mである。温度低下により、低温相である空間群C-1へ相転移する。その相転移温度 (約1400K) 付近で、 $Q_{od}$ および $Q$ は温度に対してよく似た変化を示し、また両パラメーターとも連続的に変化していることから2次の相転移である。2種類の秩序パラメーターのカップリングの振る舞いが、Salje et al. (1985)で報告されているような曲線とは異なり直線的であった。そのことから本シミュレーションでは、高温型 - 低温型アルバイトのthermal crossoverは存在しないと考えられる。