

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(NaAlSi₃O₈)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(NaAlSi₃O₈)は、SiO₄とAlO₄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ー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。