

分子動力学計算による氷VIから氷VIIへの相転移の観察

Observation of phase change from H₂O ice VI to ice VII using molecular dynamics calculation

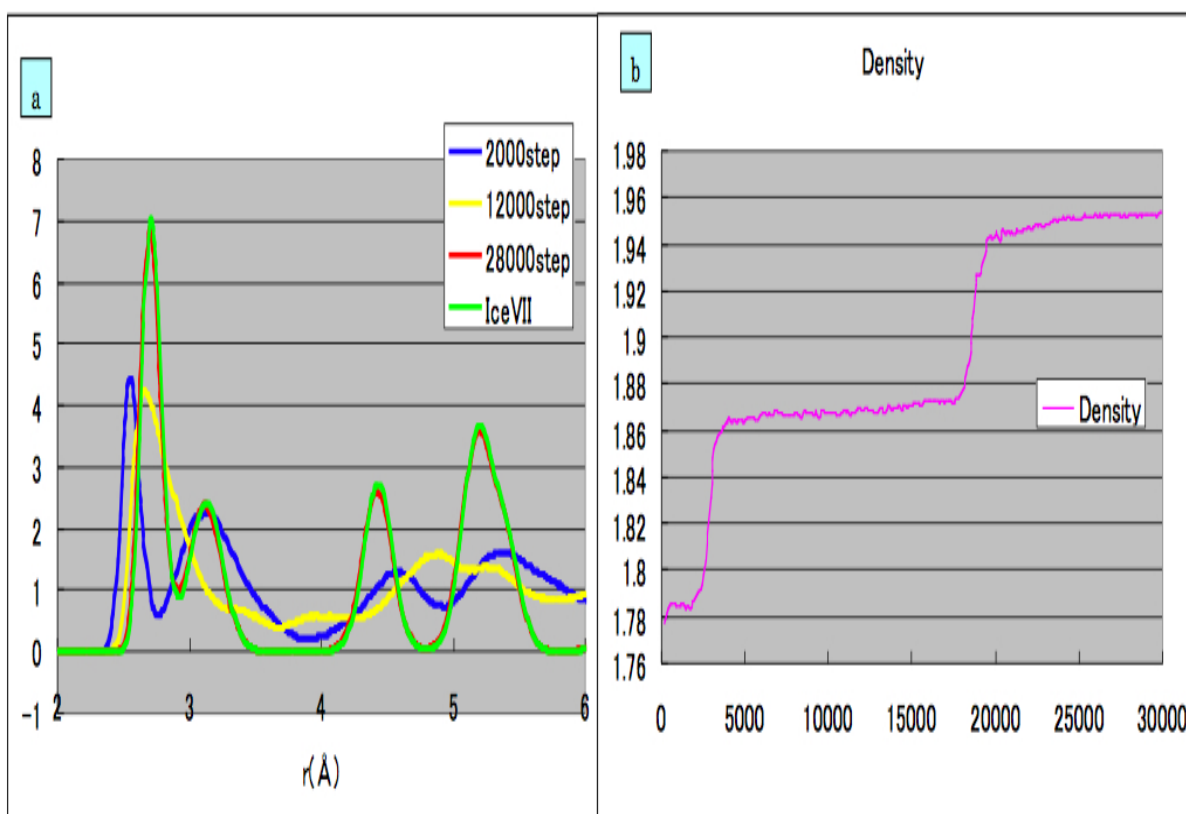
熊谷 仁孝¹, 川本 竜彦^{1*}

Yoshitaka Kumagai¹, Tatsuhiko Kawamoto^{1*}

¹京都大学理学研究科地球熱学

¹Inst. Geothermal Sci., Kyoto Univ.

Figure (a) Distribution function of oxygen - oxygen of ice VI (2000 steps), an unknown intermediate structure (12000 steps) and ice VII (28000 steps and reference ice VII). (b) Density change from ice VI through an intermediate structure to ice VII. This calculation is a result at 20 GPa and 300 K.



東京工業大学の河村雄行先生の作成したMXDORTOというプログラム（平尾一之・河村雄行著、パソコンによる材料設計、裳華房、1994、P. 230）を用いて、高圧条件下での水の分子シミュレーション計算を行った。MXDORTOは分子動力学法を用いた分子シミュレーションを行うプログラムである。分子動力学法とは、系を構成する原子・分子（粒子）間の相互作用モデルから求めた個々の粒子の運動方程式を解いて粒子を運動させ、新たな粒子の配置を生み出していく、そこから系の安定構造や物性、さらに動的性質（振動スペクトル、粘性率など）を求める手法である。この分子動力学法の計算結果は、粒子間の相互作用モデルに依存して大きく左右される。本研究では河村(2005、低温科学、64、3-10)の相互作用モデルを用いて計算を行った。このモデルは水の物性（密度、自己拡散係数や振動スペクトルなど）を定量的に再現している（河村、2005、低温科学、64、3-10）。氷Ⅵは室温で約1GPaまで加圧することでえられる氷であるが、氷Ⅵを室温のままさらに加圧すると、約2GPaで相転移を起こし氷Ⅶへと構造を変える。

分子動力学法で氷Ⅵを加圧して計算を行ったところ、2GPaの圧力では相転移は起こさなかったが、20GPaまで加圧すると中間的な構造を経てある構造へと相転移を起こした（図）。この構造の二体分布関数と結晶データから氷Ⅶを作成し計算した二体分布関数を比較するとほぼ一致する。これよりこの構造は氷Ⅶであることがわかり、分子シミュレーションでも氷Ⅵから氷Ⅶへの相転移という実際の水でも起きている現象を観察することができる。ただし相転移の起こる圧力は実際のものとは大きく違い、これは相互作用モデルのパラメータによるものと思われる。分子シミュレーションは適切なモデルを用いることで、その物質に起こるであろう変化を少なくとも定性的には観察でき、定量的な解析にはモデルのパラメータが重要になっている。

キーワード:水,氷,高圧,分子動力学,分子シミュレーション, H2O

Keywords: water, ice, high pressure, molecular dynamics, molecular simulation, H2O