

## 高圧力下における $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ メルトの分子動力学シミュレーション Molecular dynamics simulations of sodium tri-silicate melt under high pressure

則竹 史哉<sup>1\*</sup>, 河村 雄行<sup>1</sup>

NORITAKE, Fumiya<sup>1\*</sup>, KAWAMURA, Katsuyuki<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 岡山大学大学院環境学研究所

<sup>1</sup> Graduate school of environmental science, Okayama University

火成活動およびマグマの起源、さらに初期地球におけるマグマオーションを理解する上で高圧力下におけるシリケートメルトの物性を理解しなければならない。高圧力下におけるシリケートメルトは特異な振る舞いをすることが知られている。代表的なものは粘性の圧力変化であり、シリカに富んだシリケートメルトは通常の液体と異なり、圧力と共に粘性が減少することが知られている (e.g. Scarfe et al 1979)。 に加え、ネットワーク構成元素である酸素とシリコンの自己拡散係数も圧力と共に増加することが知られている (e.g. Rubie et al. 1993)。 これらはシリケートメルトが高圧力下で柔らかくなることを示している。本講演では、分子動力学シミュレーションを用いた  $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3 \text{SiO}_2$  メルトの高圧力下における構造と物性の関係の研究について発表する。

分子動力学シミュレーションプログラムはMXDORTOを用い、NPTアンサンブルで行った。圧力範囲は0.1MPaから6GPaまで1 GPaごとに、温度範囲は2073Kから1473Kまで200Kごとに、運動方程式の時間刻みは0.5fsでシミュレーションを行った。原子間ポテンシャルモデルはクーロン相互作用、近接反発相互作用、双極子-誘起双極子相互作用、共有結合の効果を明示的に含むモデルで行った。

シミュレーションにおいて、0.1MPaから2 GPaまでの範囲で密度の急激な上昇が確認され、また  $Q^4$  種の増加が確認された。この結果は重合が密度の増加に影響を与えている事を示唆する。Si-Oネットワークの折りたたみはリングサイズ分布の大型化、Si-O-Si角の減少で構成されていると考えられる。小さなリングは小さな変形の自由度しか持たず、また大きなリングはより大きな変形の自由度を持つと考えられ、大きなリングほど変形しやすいと考えることができる。

シミュレーションにおいて、圧力の増加と共に小さなリングの存在度は減少し、大きなリングの存在度が増加することが確認された。それに加えSi-O-Si角が圧力の増加と共に減少していくことが確認された。そのため、シミュレーションにおいて圧力と共にSi-Oネットワークの変形の自由度が増加し、Si-Oネットワークが折りたたまれることが起きていると考えることができる。シリケートメルトの圧密化は、重合の増加とSi-Oネットワークの折りたたみによって起きていると考えることができる。

シミュレーションにおいて、酸素の自己拡散係数は1GPaまで減少し、その後圧力の増加と共に増加していくことが確認された。このことは1GPaまで粘性が増加し、その後圧力の増加と共に粘性が減少していくことを示している。このような特異的な粘性の振る舞いは、Si-Oネットワークの歪みによって起きていると考えることができる。Si-O-Si角は圧力の増加と共に減少していくことが確認されており、安定な角度からSi-O-Si角は減少し、 $\text{SiO}_4$ 四面体同士が接近することによって、Si-O結合が弱体化することが考えられる。またO-Si-O角が圧力の増加と共に減少していくこともシミュレーションの結果から明らかになった。この構造変化は、正四面体の角度から小さくなる方向への変化であり、 $\text{SiO}_4$ 四面体が歪んでいくことを示している。  $\text{SiO}_4$ 四面体が歪むことによって、酸素同士の反発が大きくなり、また  $sp^3$ 軌道も歪むので、Si-O結合が弱体化していくと考えることができる。

圧力の増加に伴い、シリケートメルト中のSi-Oネットワークの変形の自由度が高くなり、折りたたまれて歪むことによって密度が上昇し、Si-Oネットワーク、及び  $\text{SiO}_4$ 四面体が歪むことによってSi-O結合が弱体化し酸素の自己拡散係数の増加、および粘性の低下が起きていると考えることができる。

キーワード: 分子動力学シミュレーション, 分子動力学計算, シリケートメルト, 高圧

Keywords: Molecular dynamics simulation, silicate melt, high pressure

SMP47-P08

会場:コンベンションホール

時間:5月24日 13:45-15:15

