

1P18

分子動力学法を用いたシリケートメルトの ナノ構造と物性の研究

○則竹 史哉¹、河村 雄行¹

¹岡山大学大学院環境生命科学研究科環境科学専攻
(〒700-8530 岡山市北区津島中一丁目1番1号)

【緒言】

シリケートメルトはその塩基度によって、粘性の圧力変化の挙動が異なることが知られている。単純な液体である場合は、圧力の増加と共に粘性が増加することが知られているが、塩基度の低いシリケートメルトでは圧力の増加により粘性が低下することが報告されている [1]。著者は分子動力学法を用いてシリケートメルトの高圧力下における構造と物性の関係について研究した。

【方法】

古典分子動力学法プログラム、MXDORTO [2] を用いて $\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ メルト、及び $\text{CaO} \cdot n\text{SiO}_2$ メルト ($n = 1, 2, 3$) の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電子状態計算を援用して独自に開発したモデルを使用している。計算条件は、粒子数は約 8000 粒子、圧力は 0.1 MPa から 6 GPa の範囲で、温度は 1473 K - 2073 K ($\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ メルト)、2773 K ($\text{CaO} \cdot n\text{SiO}_2$ メルト) の範囲で、NPT アンサンブル下で行った。粘性の計算には Kubo - Green の関係式を用いた。

【結果】

$\text{Na}_2\text{O} \cdot 3\text{SiO}_2$ メルトのシミュレーションにおいて、圧力の増加と共に粘性が低下し、ネットワーク構成元素の自己拡散係数の増加することが確認された。また、圧力の増加とともにリングサイズ分布がより大きい方向へ進み、Si-O-Si 角の減少、O-Si-O 角の減少が起きることが確認された。圧力による粘性の低下は、より変形の自由度の高い大きいリングからなるネットワーク構造へと変化すること、およびネットワーク自体が圧密化により歪むことによるものと推察される。 $\text{CaO} \cdot n\text{SiO}_2$ メルトのシミュレーションにおいては、塩基度の高いメルト ($n=1, 2$) では単調にネットワーク構成元素の自己拡散係数が減少していくことが確認されたが、 $\text{CaO} \cdot 3\text{SiO}_2$ メルトにおいては一度圧力の増加と共にネットワーク構成元素の自己拡散係数が減少した後に上昇を始めることが確認された。塩基度の高いメルトでは圧力共に重合度が増加し、またどのサイズのリングの絶対数も増えていくことが確認されたが、シリカに富んだメルトではより大きいリングが選択的に増加し、支配的になっている。そのため粘性の増加による重合の増加と、ネットワークの歪みのバランスが圧力による粘性の変化に対して影響を与えていると考えられる。

【参考文献】

- [1] C.M. Scarfe et al. (1979), Carnegie inst. Wash. Years B.
- [2] K. Kawamura (1984), Dr. thesis of Tokyo University