

Na<sub>2</sub>O-MgO-BO<sub>1.5</sub>系ガラスの分子動力学シミュレーション○宮本 大輔<sup>1</sup>、澤口 直哉<sup>1</sup>、河内 邦夫<sup>1</sup>、佐々木 眞<sup>1</sup>、河村 雄行<sup>2</sup><sup>1</sup>室蘭工業大学大学院 工学研究科(〒050-8585 室蘭市水元町 27 番 1 号)<sup>2</sup>岡山大学大学院 環境学研究科(〒700-8530 岡山市北区津島中 3-1-1)

**【緒言】**原子力発電所から廃出される使用済核燃料のうち、高レベル放射性廃棄物は、ガラス固化体として地下埋設することが検討されている。ガラス固化体には、熱的・化学的に安定であり、耐放射線性、中性子閉じ込め性があるホウケイ酸塩ガラスが用いられる。しかし各種イオンを取り込んだガラスの分子構造や安定性に関しては未だ不明なことが多い。当研究室では分子動力学(MD)法を用い、1価～3価の各種陽イオンを含む、ホウケイ酸塩ガラス、ホウ酸塩ガラスについて構造解析を行ってきた。本研究では、1価のNa<sup>+</sup>と2価のMg<sup>2+</sup>を含むNa<sub>2</sub>O-MgO-BO<sub>1.5</sub>系ガラスについて構造解析を行った。

**【方法】**MDシミュレーションのソフトウェアにMXDORTO<sup>1)</sup>を用い、原子間相互作用には二体間ポテンシャル関数(1)に三体間ポテンシャル関数(2)<sup>2)</sup>を追加したモデルを用いた。粒子数約5000、圧力0.1MPa一定とし、温度は1800Kの融体状態から300Kのガラス状態まで300Kずつ温度を下げシミュレーションを行った。(1-y){xMgO-(1-x)Na<sub>2</sub>O}-yBO<sub>1.5</sub>(x=0.1~0.9, y=0.8)組成のガラスについて、ガラス転移温度、Bの配位数などについて解析を行った。

$$U_{ij}(r_{ij}) = \frac{z_i z_j e^2}{r_{ij}} + f_0(b_i + b_j) \exp\left(\frac{a_i + a_j - r_{ij}}{b_i + b_j}\right) - \frac{c_i c_j}{r_{ij}^6} + D_{1ij} \exp(-\beta_{1ij} r_{ij}) + D_{2ij} \exp(-\beta_{2ij} r_{ij}) \quad (1)$$

$$U_{jj}(\theta_{jj}) = f_k \left\{ \frac{1}{\exp[d(\theta_{jj} - \theta_0)] + 1} \right\} \times \sqrt{k_1 \cdot k_2}, \quad k_{1,2} = \frac{1}{\exp[g_r(r_{ij(1,2)} - r_m)] + 1} \quad (2)$$

**【結果と考察】**密度の温度変化の屈曲点から求めたガラス転移温度はxの増加にともない上昇した。4配位のBはxの増加にともない減少し、3配位のBは増加した。同時に非架橋酸素(NBO)は増加していたことから、Na<sup>+</sup>よりもMg<sup>2+</sup>の方がB-O結合を解離させる傾向が強いと考えられる。Fig. 1に300KにおけるNa<sub>2</sub>O-BO<sub>1.5</sub>系とMgO-BO<sub>1.5</sub>系の混合エンタルピーを示す。混合エンタルピーの値はすべての組成において負となり、このMDシミュレーションにおいてNa<sub>2</sub>O-BO<sub>1.5</sub>系とMgO-BO<sub>1.5</sub>系は熱力学的に均質に混合する傾向にあることを示唆していると考えられる。

**【参考文献】**

- 1) K. Kawamura, MXDORTO, *Japan Chemistry Program Exchange*, #29.
- 2) K. Yamaguchi, *et al.*, *5<sup>th</sup> Pac Rim Conf. Rheology*, (2010) Aug2-p-44.
- 3) W. H. Zachariasen, *J. Am. Chem. Soc.*, **54**, (1932), 3841-3851.

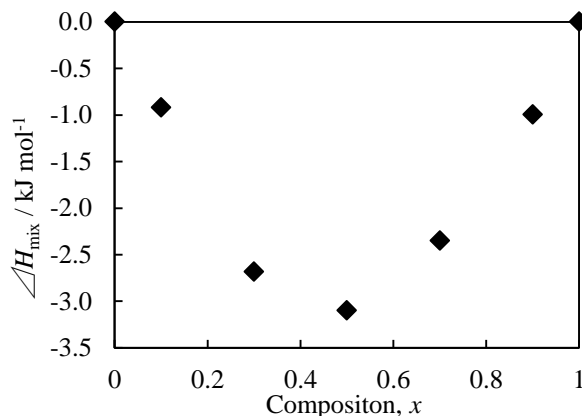


Fig. 1. Mixing enthalpy of (1-y){xMgO-(1-x)Na<sub>2</sub>O}-yBO<sub>1.5</sub>(y=0.8) glass system at 300 K.