

Mode Propagation in Molten Silica and Silicate at High Pressures

竹内 靖 (東京大学 大学院 理学系研究科 地球惑星科学専攻)

Yasushi TAKEUCHI,

Dept. of Earth & Planetary Science, Univ. of Tokyo

E-mail; ytake@sys.eps.s.u-tokyo.ac.jp

熔融シリカ (SiO_2) および熔融シリケートは、シリコン-酸素結合により連結されるランダム・ネットワーク構造を有する。そのネットワーク連結度は組成により異なり、その違いは様々な性質の違いに反映される。粘性係数の特異な圧力依存性は、その一例である。実験の示すところによると、ネットワーク連結度の高い熔融シリケートでは、粘性係数は圧力とともに減少し、逆に、ネットワーク連結度の低い熔融シリケートでは、粘性係数は圧力とともに増加する [1]。

粘性係数は、一般に、集合モードとして定義される横方向速度場の輸送係数である。従って、横方向速度場の記憶関数は、流体力学的極限 (零波数および零周波数) において、動粘性係数 (粘性係数と質量密度の比) を与える [2]。これを拡張し、有限波数および有限周波数における記憶関数は、波数および周波数依存の、一般化動粘性係数を与える。

本研究では、先ず、熔融シリカ (SiO_2) および熔融マグネシウム・カンラン石 (Mg_2SiO_4) の、有限波数および有限周波数における横方向速度場の記憶関数を、分子動力学 (MD) シミュレーションにより、様々な圧力下において求めた。ネットワーク連結度は、前者では高く、後者では低い。得られた結果の示すところによると、特に小波数において、低周波数領域における励起およびその圧力による変化が両者では異なる。熔融シリカでは、励起領域は比較的広く、かつ励起は圧力とともに減少する。他方、熔融マグネシウム・カンラン石では、励起領域は狭く、かつ圧力による変化は小さい。これは、前述のネットワーク連結度と粘性係数の圧力依存性との関係と、整合的である。

また、横方向速度場のスペクトル密度も、同様に求めた。得られたスペクトル密度は、小波数において共鳴型を示すが、そのピーク幅の圧力による変化はネットワーク連結度により異なる。熔融シリカではピーク幅は圧力とともに減少するが、熔融マグネシウム・カンラン石では圧力による変化は小さい。これは、上述の記憶関数の圧力による変化、および粘性係数の圧力依存性と、整合的である。ちなみに、大波数においては、スペクトル密度は過減衰型を示す。

以上のように、MD シミュレーションにより求められた記憶関数およびスペクトル密度の圧力による変化は、実験結果と定性的に整合的である。しかし、求められた記憶関数、即ち一般化動粘性係数は、シミュレーションにおける制約のため、有限波数および有限周波数におけるものであり、流体力学的極限における動粘性係数とは異なる値を示す。前者は、熔融シリカおよび熔融マグネシウム・カンラン石の両者において、圧力にかかわらず、典型的な桁として $10^2 \text{Å}^2 \text{ps}^{-1} = 10^{-6} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ の値

を示す。これは、熔融シリカや熔融シリケートのように粘性係数の大きい液体よりはむしろ、液体アルゴンのように粘性係数の小さい液体のそれに近い値である。他方、後者は、常圧下における典型的な桁として、熔融シリカでは $1\text{m}^2\text{s}^{-1}$ 、熔融マグネシウム・カンラン石では $10^{-5}\text{m}^2\text{s}^{-1}$ の値を示し、圧力による変化は大きくとも一桁程度と推定される。このように有限な空間および時間スケールに制約された、有限波数および有限周波数での一般化動粘性係数から、流体力学的極限における動粘性係数へといかに移行するかが、現在の課題である。

次に、上述の圧力による変化のネットワーク連結度による違いを論ずるために、逆参与率 (IPR) を、MD シミュレーションにより同様に求めた。IPR は、周波数領域における粒子速度の四次モーメント和と二次モーメント和の二乗との比として定義される、モード局在性の指標であり、IPR が大きいほど、モードの局在性が高い [3]。得られた結果の示すところによると、モード局在性の圧力による変化が、熔融シリカと熔融マグネシウム・カンラン石では異なる。まず、両者において、プラズマ周波数近傍より高周波数側におけるモード局在性は比較的高く、低周波数側において比較的低い。前者は光学的モード、後者は音響的モードに、各々対応する。次に、局在-非局在境界の圧力による変化が両者では異なる。熔融シリカでは、低圧下において境界は明瞭であるが、高圧下において不明瞭になり、かつ、局在領域が圧力とともに低周波数側へと広がることにより非局在領域が狭まる。他方、熔融マグネシウム・カンラン石では、圧力にかかわらず境界は不明瞭であり、局在および非局在領域の圧力による変化は小さい。これは、上述の記憶関数が示すモード伝搬性の圧力による変化と、整合的である。以上の局在性の圧力による変化、即ち音響-光学モードの変化の違いは、以下のように説明出来る。符合の異なる電荷を有する原子 (イオン) 種同士の配位状態の圧力による変化は、双方のサイズ比により異なる。その違いが、原子運動におけるプラズマ振動的な逆位相運動の割合の変化に違いを生じさせ、音響-光学モードの変化に違いを生じさせる。

参考文献

- [1] G.H. Wolf and P.F. McMillan, in *Structure, Dynamics and Properties of Silicate Melts*, *Rev. Mineral.*, **32**, J.F. Stebbins, P.F. McMillan and D.B. Dingwell, Eds. (Mineralogical Society of America, Washington, D.C., 1995) pp.505-561
- [2] J.P. Boon and S. Yip, *Molecular Hydrodynamics* (McGraw-Hill, New York, 1980)
- [3] W.M. Visscher and J.E. Gubernatis, in *Dynamical Properties of Solids*, **4**, *Disordered Solids, Optical Properties*, G.K. Horton and A.A. Maradudin, Eds. (North-Holland, Amsterdam, 1980) pp.63-155