

アルカリ土類系アルミノケイ酸ガラスの架橋結合特性に関する分子動力学研究

Molecular Dynamics Study on Structural Properties of Bridging Oxygen in Alkali-Earth Aluminosilicate Glasses

*石井 良樹¹, 笠原 康平², 大鳥 範和²

M. Salanne³, T. Charpentier⁴, K. Okhotnikov⁴, D. Neuville⁵, L. Hanne⁶

¹新潟大院自然, ²新潟大理, ³UPMC and CNRS, ⁴CEA, ⁵IPGP-Paris, ⁶CNRS-CEMTHI

分子動力学法を用いてアルミノケイ酸ストロンチウムガラスの構造を評価した。その構造から得られた静的構造因子は、中性子回折実験で得られた実験値と非常に良い一致を示した。そこで本研究では、酸素の架橋状態に着目し、ストロンチウムイオンの添加がその架橋構造に及ぼす影響について議論する。

キーワード：放射性廃棄物, ガラス固化, アルミノケイ酸ガラス, ストロンチウム, 分子動力学

1. 緒言

高レベル放射性廃棄物の地層処分に用いるガラス固化材にはホウケイ酸ガラスが採用されているが、その一方で低レベル廃棄物では、地中の鉱物と同じ組成のアルミノケイ酸材料の利用が検討されている。そのため、アルミノケイ酸ガラスの力学特性や、架橋構造を形成する酸素の結合状態に関する知見の導出が近年求められつつある。そこで我々はこれまで、アルミノケイ酸ナトリウムガラスの構造を正確に再現できる相互作用モデルを開発し、それを用いた分子動力学 (MD) 計算から、ナトリウムイオンが酸素の架橋状態に及ぼす影響を明らかにしてきた。本研究では、同様の手法を比較的实验例の少ないストロンチウム系へと拡張することにより、アルカリ土類イオンが架橋構造に与える効果を評価し、ガラスの力学特性への影響について考察した。

2. 計算条件

$x_{\text{Al}_2\text{O}_3}/x_{\text{SrO}}=1$ の組成のアルミノケイ酸ストロンチウムの MD 計算を NPT 一定のアンサンブル条件下で実行し、4000 K の熔融状態から 300 K まで冷却してガラス状態を作成した。イオン間の相互作用モデルには、イオンの変形を考慮できる AIM[1]を適用した。

3. 結果

Fig.1 に $x_{\text{SiO}_2} = 76, 50, 33 \text{ mol\%}$ で得られた構造因子を示す。MD 計算で得られた挙動は実験値によく一致しており、ストロンチウムの濃度に関わらずにガラス中の結合状態を正確に再現できていることが分かる。そこで当日は、架橋酸素周りの配位環境について報告し、ストロンチウムの配位数を用いて、架橋酸素の結合の安定性に関して考察する。

参考文献

[1] M. Salanne, B. Rotenberg, S. Jahn, R. Vuilleumier, C. Simon, and P.A. Madden, *Theor. Chem. Acc.* **131**, 1143 (2012).

*Yoshiki Ishii¹, K. Kohei¹, N. Ohtori¹, M. Salanne², T. Charpentier³, K. Okhotnikov³, D. Neuville⁴, and L. Hanne⁵

¹Niigata Univ., ²UPMC and CNRS, ³CEA, ⁴IPGP-Paris, ⁵CNRS-CEMTHI

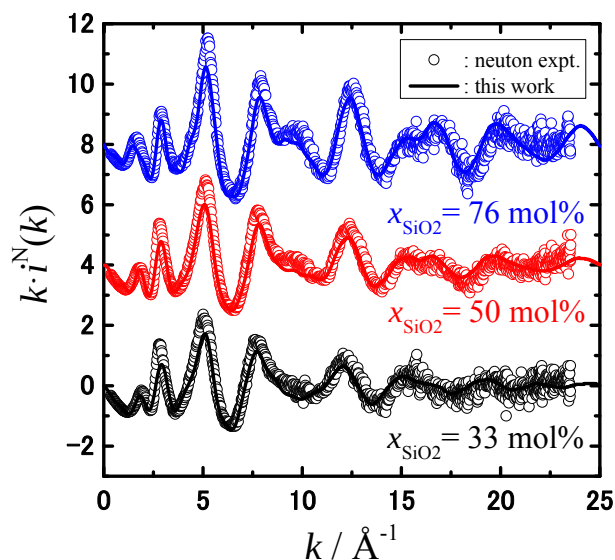


Fig.1 Calculated and experimental structure factors in the strontium aluminosilicate glasses.