

氏名	則竹 史哉
授与した学位	博士
専攻分野の名称	学術
学位授与番号	博甲第5163号
学位授与の日付	平成27年 3月25日
学位授与の要件	環境生命科学研究科 環境科学専攻 (学位規則第5条第1項該当)
学位論文の題目	Silicate liquid at the Conditions of the Earth's Interior : From Atomic Scale (原子スケールから見る地球内部環境下におけるケイ酸塩液体の物性)
論文審査委員	教授 河村 雄行      教授 西山 哲      准教授 浦川 啓

### 学位論文内容の要旨

Knowledge of the properties of silicate liquid is essentially important in Earth science, metallurgy and glass industry. The transport properties and densities of silicate liquids at pressure are used for the study of magmatic process and early Earth process.

I show the relationship between structure and properties of silicate liquids at pressure, and silicate liquid/ crystal interface in this paper by using force-field molecular dynamics simulations.

In chapter 4, the relationship between structure and properties of  $\text{Na}_2\text{O} \cdot n\text{SiO}_2$  liquids at pressure is investigated by using empirical molecular dynamics simulations.

In the compression, Si-O and Na-O distance remains constant, however Si-Si distances shorten and coordination numbers of O atoms around M atom increase. Adding to those, 3 and 4 membered rings in -Si-O- network decrease with increasing pressure. Those suggest that densification of silicate liquids consist of increasing of flexibility of -Si-O- network, bending of Si-O-Si and increase of coordination number of M atoms. Up to 6 GPa, the decrease of Si-O-Si angle and distortion of  $\text{SiO}_4$  tetrahedra in acidic silicate liquids ( $n < 3$ ) are obviously confirmed. Decrease of Si-O-Si angle by densification causes distortion of  $\text{SiO}_4$  tetrahedra and weakening of Si-O bonding. These structural change might cause the softening of silicate liquids under high pressure.

In chapter 5, structure and properties of the forsterite- $\text{MgSiO}_3$  liquid interfaces are investigated by using molecular dynamics simulations. It is essential to know the structure and physical properties of forsterite- $\text{MgSiO}_3$  liquid interfaces since forsterite is the liquidus mineral of primordial magmas.

By these simulations, characteristic structures in the forsterite- $\text{MgSiO}_3$  liquid interface are observed. The layered structure of alternated crystal surface, Si-rich and Mg-rich layers in the crystal-liquid interface was observed. The layered structure was formed by energy difference between Si-O semi-covalent bonds and Mg-O ionic bonds. Si-O-Si bridging and free oxygen atoms are excessively formed and in the near surface since the energy of Si-O bonding is much lower than that of Mg-O bonding. The difference of layered structure by thickness of  $\text{MgSiO}_3$  liquid film might be caused by the difference of the degree of freedom of configuration in liquid film. The two-dimensional diffusivity of oxygen atoms is controlled by two factors. The one is the thickness of liquid film that decreases oxygen diffusivity with decreasing the film thickness because of decrease of degree of freedom of configuration in liquid film. The other is composition of sliced layer where oxygen diffusivity increases with increasing the Mg/Si ratio since Si-O bonding is much stronger than Mg-O ones.

## 論文審査結果の要旨

学位論文研究において、地球科学における重大な問題である：

- ・地球初期のマグマオーシャンにおけるマグマの物性
- ・海洋玄武岩などによる火成活動の主体である輝石組成溶融体とカンラン石結晶の共存系

について、則竹氏は主として分子シミュレーション法を用いて、構造・物性の研究を行った。

分子シミュレーション計算の実施に先立ち、化学結合を定量的に古典力学で用いるため、固体電子論計算・分子軌道法を用いて、実効的な原子間相互作用モデルを導出した。それを用いて、カンラン石-輝石溶融体、共存系の大規模分子動力学計算を行った。

カンラン石結晶表面近傍のケイ酸塩溶融体の構造の詳細が解析され、表面からの距離の関数としての元素分布、自己拡散係数、粘性係数の局所値が得られた。この中で粘性の計算手法についてその手法の開発も行っている。けい酸塩溶融体-共存結晶の平衡系の分子シミュレーションは同氏のものがほぼ始めてであると思われる。

このように則竹氏は博士論文研究としての十分な成果を行っている。また、国際学会誌に査読付きの筆頭著者論文2報を出版しており、その他の論文を含めて、研究問題提案、遂行、発表等に博士として十分に優れているので、報告します。