

## 自己評価報告書

平成 23 年 4 月 28 日現在

機関番号：82401

研究種目：新学術領域研究（研究領域提案型）

研究期間：2008～2012

課題番号：20103005

研究課題名（和文） 高圧下における含水鉱物、マグマ、水の量子シミュレーション

研究課題名（英文） Quantum simulation of hydrous mineral, magma and water under high pressure

研究代表者

飯高 敏晃（IITAKA TOSHIAKI）

独立行政法人理化学研究所・戒崎計算宇宙物理研究室・専任研究員

研究者番号：60212700

研究分野：地球惑星科学

科研費の分科・細目：

キーワード： (1)高圧力 (2)中性子散乱 (3)液体 (4)含水鉱物 (5)マグマ  
(6)ナノダイヤモンド (7)第一原理分子動力学 (8)水素結合

## 1. 研究計画の概要

原始地球の形成過程においては、地球の表面が高温の熔融状態（マグマオーシャン）になり大量の水（水素）を貯蔵し水圏の形成に大きな役割を果たした可能性がある。現在の地球においては、水素は水(H<sub>2</sub>O)や含水鉱物（OH 基）などの化合物、あるいは無水鉱物やマグマに侵入した不純物として存在する。水（水素）の存在は鉱物やマグマの構造や融点・粘性・反応性などの物性に大きな影響を与えるので、そのメカニズムの原子レベルでの理解は地球形成史、地球深部ダイナミクスや火山噴火の解明に本質的な役割を果たす。本計画研究では、最先端の量子シミュレーションを駆使することにより、鉱物、マグマ、水の構造と物性に対する水素や水素結合の影響を明らかにすることを研究目的とする。また、中性子散乱実験用多結晶ナノダイヤモンドの材料特性を研究する。

## 2. 研究の進捗状況

(1) 含水鉱物(phase D (MgSi<sub>2</sub>O<sub>6</sub>H<sub>2</sub>), δ-AlOOH, InOOH)における水素位置の検証を行った。含水鉱物の弾性定数に対する水素結合対称化の影響を計算した。

蛇紋石（高温・低温型）を多く含む蛇紋岩は地球内部における水の主要な貯蔵・運搬相とされる。蛇紋石の構造および弾性特性に関する第一原理電子状態計算を行い、SiO<sub>4</sub> 六員環層が引き起こす弾性異常の存在とその機構を明らかにした。

(2) 高温高圧下の水の構造と回転・拡散：常温常圧では、水は分子が作る水素結合のため氷に類似した構造をとる。我々は高温高圧下の水の構造と運動を第一原理分子動力学計算により調べた。高温高圧下では分子間の

水素結合が切断され、分子が高速に回転するので、水は球状原子からなる単純液体のように振る舞うことが明らかになった。X線回折による酸素原子の動径分布関数とも良く一致した。今後、中性子線回折による水素を含む動径分布関数の測定、高圧 NMR による回転運動の測定により、高温高圧水の地球深部で役割を解明することが期待される。

(3) 地球内部の間隙水など水分子凝集系の秩序化機構の解明を目的として、氷 Ih 相から XI 相への秩序化相転移において巨視的電場が果たす役割および不純物が強誘電秩序相の安定性に果たす役割を、第一原理電子状態計算に基づいた考察により明らかにした。

(4) オリジナルコードを用いたオーダーN電子構造計算により、欠陥を含むナノダイヤモンド系を有限温度下で[111]方向および[100]方向に伸張することで、ダイヤモンド→グラファイト変換がおり、両者の競合系を得た。これは多結晶ナノダイヤモンド形成・破壊メカニズム理解の第一歩となる。

(5) 高圧力下のシラン(SiH<sub>4</sub>)と水素分子の複合系における新しい化学結合を明らかにした。

## 3. 現在までの達成度

②おおむね順調に進展している。

（理由）量子シミュレーションにより含水鉱物、高圧水、水素化合物、ナノダイヤモンドの高圧物性に関する有用な知見が得られた。マグマの物性に関する研究のさらなる進展が求められる。

## 4. 今後の研究の推進方策

震災により実験の遅れが予想されるので、高

圧中性子散乱実験に限らず、広く高压下での水（水素）の挙動に関する解析を行う。

(1) 高温高压領域において（含水・無水）鉱物に含まれる水素が物性（弾性、光学的性質、レオロジー、電気伝導度、拡散係数など）に与える影響の予測を行う。第一原理 Generalized Stacking Fault (GSF)法を用いた含水鉱物（例えば lizardite）の流動特性を評価する。

(2) 広範囲の温度圧力領域の水中におけるイオンの水和構造とそのメカニズムを明らかにする。これは含水マグマにおける水の役割を理解する基礎となることが期待される。常温常圧の水および超臨界水の分子動力学シミュレーションを実施し、既に報告がある赤外スペクトルおよびラマンスペクトルの解析を行う。

(3) 第一原理計算法を用いた Peierls-Nabarro-Galerkin モデルに基づく含水 wadsleyite の流動特性を評価する。大規模な MgO-SiO<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O 系に対して量子シミュレーションを行い、マグマの局所原子構造、ネットワーク構造、水分子の存在形態が粘性・拡散係数などの物性に与える影響を調べる。第一原理2相分子動力学計算法を用いた含水メルト (Albite-H<sub>2</sub>O 系) の第2臨界点3のシミュレーションを行う。含水メルト (peridotite-H<sub>2</sub>O 系) の第一原理シミュレーションを行う。

(4) 10nm サイズの多結晶ナノダイヤモンドのシミュレーション結果を実験結果と比較・解析し、DAC 用多結晶ナノダイヤモンド生成法の改良に役立てる。sp<sup>3</sup>(sp<sup>2</sup>)ドメイン形成を量子論に基づいて自動的に判定する定量的理論手法を開発する。

## 5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 37 件) 以下全て査読有

(1) Jun Tsuchiya, and Taku Tsuchiya, "First-principles prediction of a high-pressure hydrous phase of Al<sub>100</sub>H", Phys. Rev. B 83, 054115 (2011) .

(2) Wai-Leung Yim, John S. Tse, and Toshiaki Iitaka, "Pressure-Induced Intermolecular Interactions in Crystalline Silane-Hydrogen", Phys. Rev. Lett. 105, 215501 (2010).

(3) Ikeda, T., Katayama, Y., Saitoh, H., and Aoki, K., High-temperature water under pressure, J. Chem. Phys. 132, 121102, (2010).

(4) Takeo Hoshi, Toshiaki Iitaka, Maria Fyta, "Large scale simulation of

quantum-mechanical molecular dynamics for nano-polycrystalline diamond", J. Phys.: Conf. Ser. 215, 012118 (2010).

(5) Guoying Gao, Artem R. Oganov, Yanming Ma, Hui Wang, Peifang Li, Yinwei Li, Toshiaki Iitaka, and Guangtian Zou, "Dissociation of methane under high pressure", J. Chem. Phys. 133, 144508 (2010).

[学会発表] (計 114 件)

(1) 池田 隆司, 高压下の水の第一原理分子動力学シミュレーション, 日本物理学会第 65 回年次大会, 岡山 (2010 年 3 月 20-23 日)

(2) 土屋 旬, 第一原理電子状態計算による地球深部水の研究, 愛媛大学上級研究員センターシンポジウム, 愛媛大学上級研究員センター (2010 年 4 月)

(3) 張 静雲, 郭 哲来, 飯高 敏晃, "高压下の水素ハイドレート", 日本地球惑星科学連合 2010 年度大会 千葉 日本 (2010 年 5 月) 千葉 日本 2010 5

(4) 土屋 旬, 土屋 卓久, Perovskite and post perovskite phase relation in the MgSiO<sub>3</sub>- Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> system, 日本地球惑星科学連合大会, 幕張メッセ (2009 年 5 月) (招待講演)

(5) 星健夫, 飯高敏晃, フィタ・マリア, 多結晶ナノダイヤモンドの大規模量子シミュレーション, 第 49 回高压討論会, 姫路商工会議所 (姫路), 2008 年 11 月 12 日-14 日

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

(1) ホームページ

<http://www.iitaka.org/~neutron/theory.html>

(2) 新聞発表: 日経産業新聞 (2010/3/30)、科学新聞 (2010/4/16)、日刊工業新聞 (2010/4/28)。

(3) 教員研修: 「土星を見上げて授業をしよう===シミュレーションで惑星内部に迫る===」 (5月30日)

<http://www.iitaka.org/20100530leaveanst.pdf>

(4) 理化学研究所広報誌

“Hydrogen gas: Under pressure”

<http://www.rikenresearch.riken.jp/eng/rikenresearch/6495>

「水素ガス：プレッシャーに押し潰されて…」

<http://www.rikenresearch.riken.jp/jpn/rikenresearch/6496>