



Charge disproportionation in iron-bearing silicate melts predicted from first-principles calculations

原始地球の成長過程において、微惑星の衝突によって大規模な融解が発生し、マグマオーシャン(MO)が形成され、このMOの中で核とマントルの分離、それに伴う地球の化学進化が進行したと考えられている。このため、核形成過程やその際の化学進化について、これまで様々な研究が行われてきた。中でもMO内部における鉄液滴形成メカニズムとしては、衝突した微惑星の核を起源とする説の他、ケイ酸塩メルト中での鉄の電荷不均化反応($3\text{Fe}^{2+} \rightleftharpoons 2\text{Fe}^{3+} + \text{Fe}^0$)により金属鉄が生成したとする説などが提案されている。最近になり実際にケイ酸塩メルト中での電荷不均化反応が高圧実験により測定され、後者の説が注目されるようになった。一方高圧実験測定に対し、理論研究では、含鉄ケイ酸塩メルトの熱力学モデルからMOの酸化還元条件を考察した例があるものの、液体中の鉄の電荷不均化反応の安定性について第一原理計算法等を用い直接計算を行った例は今のところ無い。そこで、本研究では熱力学積分法に基づく液体の第一原理自由エネルギー計算を実行し、電荷不均化反応の安定性や反応機構について調べた。

本研究からは電荷不均化反応は温度の増加に伴い生じにくくなり、一方圧力の効果は小さいという結果が得られた。この傾向は、実験で示唆された温度の影響は小さく高圧になるほど電荷不均化反応が生じやすくなるという温度圧力依存性とは異なっている。一方、ケイ酸メルト中の鉄濃度の影響に関しては、鉄濃度が小さいケイ酸塩メルト中では電荷不均化反応は全く起こらないという結果となり、鉄濃度が大きい程電荷不均化反応が生じやすいことが示唆された。実験との相違の原因や不均化反応機構の理解をより深めるため、現在さらなる計算を実行中である。

Mr. Kazushi Kitaguchi
Master Student (M2)
Geodynamics Research Center

2021.10.13 (Fri.) 16:30 ~

Venue: Zoom

A link will be sent @grc-all within 30 minutes before the beginning of the seminar.

Keywords:

1. Magma Ocean
2. Charge Disproportionation Reaction
3. Thermodynamic Integration Method