

水缺陷对叶蛇纹石弹性性质影响的第一性原理计算研究

孙士川^{1 2} 何宇^{1*}

1 中国科学院 地球化学研究所 地球内部物质高温高压实验室 贵阳 550081 贵阳 550081;

2 中国科学院大学 北京 100049

含水矿物的脱水过程是我们了解部分熔融和俯冲带地震等过程的关键。有报道显示脱水的过程中可以形成大量的水缺陷结构。然而，水缺陷对含水矿物性质的影响之前还没有考虑过。利蛇纹石是三种主要蛇纹石相之一，含水量高达 13 wt. %，这项工作中我们采用基于密度泛函理论（DFT）的第一性原理计算方法计算了叶蛇纹石中水缺陷的生成焓。含有 0.8125 wt. %水缺陷的利蛇纹石的生成焓在 0 GPa 到 7 GPa 均低于 0.5 eV。对比前人的研究，这个生成焓足够的低（Weber et al., 1965; McKelvy et al., 2006），它说明了水缺陷结构能够很容易形成，尤其是在高温条件下。同时水缺陷的存在对利蛇纹石的弹性性质有着很大的影响，它将导致更低的地震波速和明显更高的地震波速各项异性。我们同时也计算了 H⁺, Mg²⁺ 和 Si⁴⁺ 利蛇纹石中的迁移能。3 GPa 时，H⁺ 的迁移能是 1.16 eV（垂直于<001>方向）和 3.40 eV（沿着<001>方向），而 Mg 和 Si 的迁移能较高，分别是 5 eV 和 9 eV。这说明质子迁移在利蛇纹石中占据主导，并且平行于 Si-O 八面体层的层间邻近质子迁移占据主导。为了更进一步的了解含有少量水缺陷结构利蛇纹石的稳定性以及利蛇纹石中的质子电导情况，我们又做了基于第一性原理的分子动力学计算。计算结果表明，含水缺陷利蛇纹石在 2 GPa, 900 K 以内都是热力学稳定的，同时质子电导现象在利蛇纹石和含水缺陷的利蛇纹石中并不明显。

本研究由中国自然科学基金（No. 41774101）资助。

参考文献

- [1] McKelvy M et al. A novel approach to mineral carbonation: enhancing carbonation while avoiding mineral pretreatment process cost. Arizona State Univ., 2006, Tempe, AZ (United States).
- [2] Weber J et al. Dehydration of serpentine: heat of reaction and reaction kinetics at PH 2 0= 1 ATM. Am Miner, 1965, 50(3-4): 450-464.