

A04 ガラス化における揺らぎの相関構造の発現メカニズムと その輸送異常に果たす役割の解明

東京大学生産技術研究所 古川亮

1. 輸送異常における相関構造の果たす役割の理解

流体輸送係数の時空階層性の直接解析は、特徴的な時間スケールと空間スケールの関係性を陽に提供する。このアプローチの優位性は(様々なソフトマター系の非線形流体輸送においてもそうであったように)粘性係数や拡散係数など流体輸送係数に現れる時間・空間スケール依存性が輸送異常のメカニズムそれ自体を直接反映していることにある。つまり、流体輸送異常の顕著なスケール依存性の解析・考察から、ガラス化における協同性の本質や緩和メカニズムに迫ることが可能であると考えている。本公募研究以前に研究代表者が遂行した一連の研究では、流体輸送そのものが持つ階層性(すなわちスケール依存性)やその過冷却度との相関を初めて明らかにしたが、この流体輸送異常の顕著な空間スケール依存性と付随する協同性は、ガラス化に伴うスローダイナミクスにおいて、何らかの相関構造の介在が本質的に重要であることを強く示唆している。平成26、27年度の公募研究期間を通じて継続的に取得した膨大なシミュレーションデータの系統的な解析を行った結果、ガラス物質の緩和メカニズムについて、これまで見いだされなかった重要な知見を得ることができた。特に本稿では、本報告書執筆時点(平成28年1月)で論文として投稿済みの内容について詳述する。

ガラス形成物質は経験的に“strong”と“fragile”の2種類に大別されることが認識されてきた(Angell's classification scheme)。strong液体では粘性係数(≡構造緩和時間)はアレニウスの温度依存性を示すのに対し、fragile液体では、非アレニウスのであり、(ガラス転移点近傍で)より急峻な粘性係数の増大を示す。これまで(特に数値計算研究によって)fragile液体はstrong液体に比べて、その粒子運動がより協動的であることが示唆されてきたが、この分類の背後にある決定的な物理描像の違いは、これまで明らかにされていなかった。今年度の研究において、研究代表者は縦流体緩和モード(特に密度場)の系統的解析により、これらの動的クラスの分類を理解する鍵となる特性の違いを見出した。ガラス化を研究する際に重要になる空間スケール(~動的不均一性が顕著に見られる空間スケール)において、strong液体の密度緩和ダイナミクスは非保存的に振る舞う一方で、fragile液体においては保存的(拡散的)に振る舞うことを見出した(図1)。この縦流体緩和モードに見られる決定的な差異は、それぞれのクラスにおける緩和の素過程の違いに直接的に由来している：後者では密度ゆらぎ(=縦モード)の緩和に対して、その再隣接粒子間の交換プロセス(=局所的な密度保存)が必須であるのに対し、前者の場合には、そのようなプロセスを必要とせず、非協動的に(かつ比較的自由に)その緩和が進行する。さらに、fragile液体では、その過冷却状態において密度の交換プロセスが協動的に発生するが(協同拡散)、この傾向は過冷却度の増大に伴い、より顕著になる。これらの結果は Phys. Rev. Lett 誌に投稿中である[1]。

本研究課題の目的は、ガラス化に伴う異常流体輸送の背後にあるメカニズムを明らかにす

ることであった。上記の結果を含む流体輸送の時空スケール依存性の膨大なデータ解析はこれについて重要な知見を与える。異常流体輸送の緩和メカニズムと相関構造の関係、さらには、strong 液体と fragile 液体におけるそれらの差異について、様々な物理量に関する十分な数値計算結果と、それに基づいたスケーリング理論から構成されるフルペーパーを投稿準備中である。

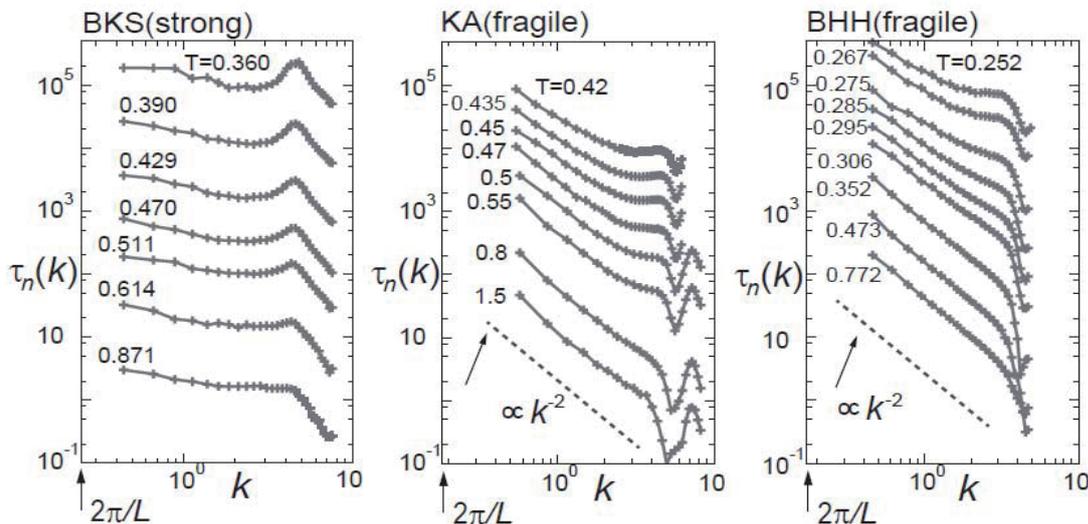


図 1. 種々のモデルガラス形成物質における密度揺らぎの緩和時間 $\tau_n(k)$ の波数 (k) 依存性。strong 液体 (BKS モデル) では、密度揺らぎのダイナミクスは拡散的振る舞いを示さず、考えている空間スケール全域で、ほぼ同じ時間スケールで緩和する(非保存的ダイナミクス)。他方、fragile 液体(KA、BHH モデル)では低波数側で拡散的振る舞い($\propto k^{-2}$)を示す(保存的ダイナミクス)。

2. 種々の分散系における、流体力学的相互作用の役割

前項の内容とは別に、種々の粒子分散系における流体力学的相互作用の役割について研究を行った。(i) コロイド分散系のゲル化に与える流体力学的相互作用の効果について、スーパーコンピュータを用いた大規模シミュレーションと実験との比較検討を行った(英・ブリストル大、Paddy Royall 氏他との共同研究) [2]。これにより、凝集初期における流体効果による(ゲル構造形成の核となる)異方的構造の形成促進を定量的に明らかにした。(ii) 非ブラウン粒子分散系の粒子抵抗に与える流体効果について、主に数値的に研究を行った(東大生産研田中研究室との共同研究)。溶媒流体を考慮する場合に(溶媒が無い場合と比較して)抵抗係数が劇的に増大し、その発散挙動は実効的に、より低密度側にシフトすることを見出した。これは(非圧縮性)溶媒の存在に伴い、協同性が増幅すること、力の伝搬構造の形成促進と安定化がもたらされることの2点から理解することができる。

参考文献：

- (1) Submitted.
- (2) C. P. Royall, J. Eggers, A. Furukawa, and H. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 258302 (2015).