

ガラス転移の構造的起源に新たな視点

1. 発表者： 田中 肇（東京大学 生産技術研究所 教授）

2. 発表のポイント：

- ◆分散剛体円盤液体（注1）において、ガラス転移点に近づくにつれ過冷却液体の中に潜む秩序構造のゆらぎが発達し、それがダイナミクスの空間ゆらぎを支配していることを発見した(図参照)。
- ◆粒子ピン留め法により抽出される構造が、実はダイナミクスを反映しておらず、この方法で抽出不可能なパッキングに起因した方向相関が、ダイナミクスを支配していることを明らかにした。
- ◆上記の成果は、乱雑かつ均質であると考えられてきた液体にこれまで知られていなかった構造ゆらぎが存在することを示唆しており、液体の基礎的理解に新たな視点を与える可能性がある。

3. 発表概要：

東京大学生産技術研究所の田中肇教授、John Russo 特任助教の研究グループは、多分散剛体円盤液体（注1）において、ガラス転移点に近づくにつれ過冷却液体の中に潜む秩序構造のゆらぎが発達し、それがダイナミクスの空間的なゆらぎを支配していることを発見しました。

融点以下の過冷却液体において、温度の低下とともに液体のダイナミクスが急激かつ連続的に遅くなり、ついには固体化するガラス転移現象の物理的起源は、長年の研究にも関わらず、未解明のまま難問として残っています。1つの有力な機構として、液体の中になんらかの構造が発達し、その大きさの増大が遅いダイナミクスを引き起こすという考え方があります。しかしながら、液体の構造の乱雑性のため、そのような構造をあぶり出すことは極めて困難でした。そのような液体の構造ゆらぎを検出する有力な方法として、液体の粒子をランダムにピン留めしその平均間隔を狭めていった時に、液体粒子の動きが凍結されはじめる長さを見積もり、それにより構造ゆらぎの特徴的大きさをあぶり出すという方法（以下粒子ピン留め法という）が最近提案されました。この方法は、構造の種類に依存せず、遅いダイナミクスの鍵となる構造の大きさを普遍的に抽出できる方法として大きな注目を集めています。同研究グループは、この方法では液体粒子の2体相関(注2)しか取り出せず、ガラス転移に重要な多体的な構造相関(注3)を見ることができないこと、また、剛体円盤液体においては、この方法で抽出不可能なパッキングに起因した方向相関が液体のダイナミクスを支配していることを明らかにしました(図参照)。

この成果は、ガラス転移に伴う遅いダイナミクスの起源が、液体の多体相関にもとづく構造化にあるという同研究グループが主張してきたガラス転移のメカニズムを強く示唆するだけでなく、これまで乱雑かつ均質と考えられてきた液体相の理解に新たな視点を提供し、過冷却状態にある液体についてより深い理解をもたらすものと期待されます。

4. 発表内容：

融点以下の過冷却液体において温度の低下とともに液体のダイナミクスが急激に低下し、最終的に連続的に固体化するガラス転移現象は、長年の研究にも関わらず、その物理的起源は未だ謎に包まれており、身近な問題であるにも関わらず、凝縮系物理学の最も難しい難問の一つとして知られています。このようなガラス転移点に向かって連続的にダイナミクスが低下、または粘性が増大していくという特徴は、ガラス形成物質の成形加工性の高さの大きな要因となっています。人類が古代からガラスを有用な材料として用いてきた大きな理由がここにあります。

このようなガラス特有の遅いダイナミクスの1つの有力なメカニズムとして、液体の中に温度の低下とともになんらかの構造が発達し、その特徴的サイズの増大が遅いダイナミクスを引き起こすという考え方があります。しかしながら、液体の構造の乱雑性のため、かりにそのような構造が存在しても、それをあぶり出すことは極めて困難でした。そのような液体の構造ゆらぎを見出す有力な方法として、最近、粒子ピン留め法が提案されました。この方法は、構造の種類に依存せず、遅いダイナミクスの鍵となる構造を普遍的に抽出できる有力な方法として大きな注目を集めており、多くの研究がなされてきました。

東京大学生産技術研究所の田中肇教授らの研究グループは、粒子ピン留め法は液体粒子の2体相関（並進秩序の相関長）を取り出しているだけで、ガラス転移に重要な多体的な構造相関を見ることができないことを明らかにしました。このことは、粒子ピン留め法がガラス転移に関わる重要な長さを構造の種類のかんにかかわらず抽出可能であるという主張が正しくないことを、強く示唆しています。同研究グループは、粒子のピン留めの効果は、その粒子の周りの粒子の存在確率に2体相関の長さで減衰する振動を与え、その影響が近傍にあるピン留め粒子の作り出す振動と干渉しあった時に、粒子位置に対して幾何学的な拘束が生じるという機構で理解できることを、数値シミュレーションにより明らかにしました。同時に、同研究グループは、多分散剛体円盤液体においては、パッキングに起因した方向相関（六方格子的な方向秩序）が液体のダイナミクスと直接相関している、すなわち、方向相関の高い領域のダイナミクスは遅く、低い領域のダイナミクスは早いことを発見しました(図参照)。

このことは、少なくとも多分散剛体円盤液体におけるガラス転移点近傍のダイナミクスの低下は、液体の中の配向的な構造秩序のゆらぎの増大に起因していることを強く示唆しています。この構造ゆらぎの増大が、どのようにダイナミクスの低下を導くかというメカニズムの解明には今後さらなる理論的な研究が必要ですが、本研究成果は、ガラス転移に伴う遅いダイナミクスの理解に大きく資するものと期待されます。また、本研究成果は、これまで乱雑かつ均質と考えられてきた液体相の中に局所的に自由エネルギーの低い2体相関では見ることのできない構造が形成されることを示唆しており、これまでの液体に関する乱雑かつ均一という描像を大きく変える新たな視点を提供するものと期待されます。

5. 発表雑誌：

雑誌名： PNAS（米国アカデミー紀要）

論文タイトル： Assessing the role of static lengthscales behind glassy dynamics in polydisperse hard disks

著者： John Russo, Hajime Tanaka*

6. 注意事項：

日本時間 5 月 19 日（火）午前 4 時（（米国東部時間：18 日（月）午後 3 時）以前の公表は禁じられています。

7. 問い合わせ先： 東京大学 生産技術研究所 教授 田中 肇

Tel: 03-5452-6125

Fax:03-5452-6126

e-mail: tanaka@iis.u-tokyo.ac.jp

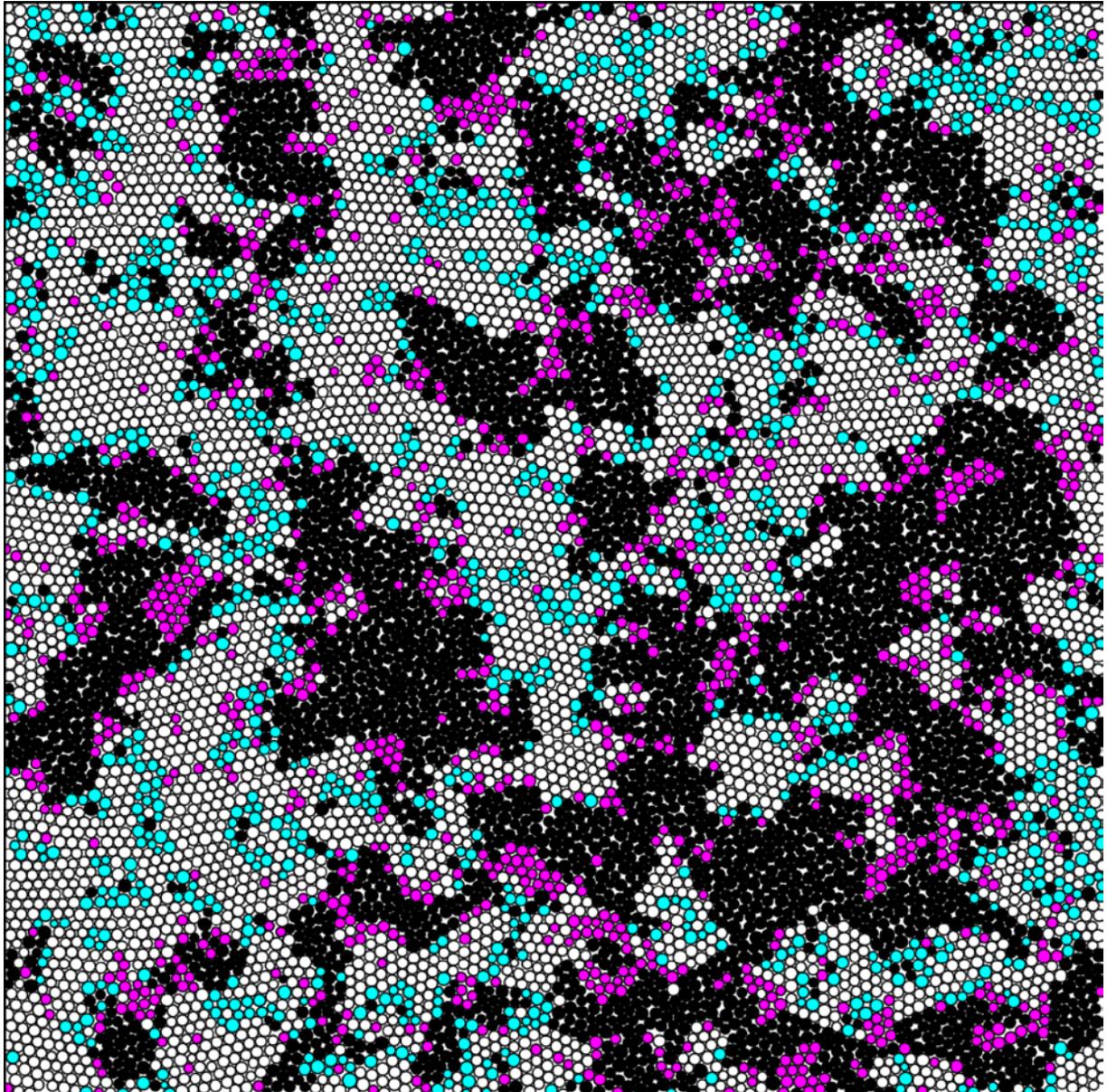
8. 用語解説：

（注 1）多分散剛体円盤：結晶化を阻害するために剛体円盤の大きさにばらつきを与えた系。

（注 2）2 体相関：粒子から見て、その中心からの距離の関数として、周りの粒子がどのようぐらい遠くまで位置の相関を持って分布しているかを表す指標。

（注 3）多体的な構造相関：2 体相関で見られるのは、あくまで二つの粒子の間の距離の相関だが、方向を含めた 3 つ以上の粒子の相関など、2 体の相関であらわせない高次の相関をこのように呼ぶ。

9. 添付資料：



図：密度 0.97 における粒子の構造秩序と運動性の相関。白い粒子：低い運動性で高い秩序、黒い粒子：高い運動性で低い秩序、シアン色の粒子：低い運動性で低い秩序、マゼンダ色の粒子：高い運動性で高い秩序。