

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年4月25日現在

機関番号：15401

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2011

課題番号：22740257

研究課題名：液体中における横波発生のメカニズム～第一原理分子動力学法

研究課題名：Transverse wave in liquid studied by ab initio molecular-dynamics simulation

研究代表者：

宗尻 修治 (MUNEJIRI SHUJI)

広島大学・大学院総合科学研究科・准教授

研究者番号：90353119

研究成果の概要（和文）：

液体中の横波発生の起源を解明するために、第一原理および古典分子動力学シミュレーションを用いて単原子からなる液体のダイナミクスを詳細に調べた。その結果、液体中に発生するマイクロな横波の起源には、原子間の斥力による cage 効果があることを明らかにした。さらに、横波と各原子の運動の相関について、視覚的な理解を得るために、液体中の横波の可視化法を考案し、横波と原子の運動の関係を示すコンピュータグラフィックスを作成した。

研究成果の概要（英文）：

We investigated transverse wave in liquid by ab initio molecular-dynamics simulations. We have found a cage effect is important to the transverse wave in liquid. Furthermore we have invented a new method for visualizing transverse waves by computer graphics to study the correlation between transverse waves and atomic motions.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2011年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,100,000	630,000	2,730,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・数理物理・物性基礎

キーワード：不規則系、計算物理学

## 1. 研究開始当初の背景

高校物理の教科書にも明確に書かれているように、液体中では縦波のみが伝わり、横波は存在しない。しかし、原子のスケールでは、必ずしもそうではないことが、1970年代から分子動力学（MD）法によって予想されて

いた。最近、広島工大の細川らは非弾性 X 線散乱実験によって液体ガリウムの動的構造因子を測定し、液体中に横波が存在することを実験的に発見した（Phys. Rev. Lett. 102,105502 (2009)）。動的構造因子は密度ゆらぎの時空相関を表す量であるので、密度の粗密波である縦波（いわゆる液体の音波）の

情報は得られる。一方、横波は本来、密度ゆらぎとは直接結びつかない量であるため、動的構造因子の中に直接は現れない。つまり横波の振動スペクトルそのものは、非弾性散乱実験からは得られない量である。しかし、液体ガリウムの場合には、横波が起こると、その波の振動に近い振動数を持つ縦波が生起 (Mixing 現象) し、それが動的構造因子に現われ、実験により液体中の横波が観測されたと推測されている。しかし、このような Mixing 現象および、液体中の横波がどのような機構によって発生するのかは、全く明らかにされていない。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、第一原理 MD 法により、横波の起源を局所的な原子配置に基づきミクロに解明することである。横波が生じるためには、液体中の原子配置にズレが生じた際に復元力が働かなければならない。その力が生じる機構を局所的な構造と原子に働く力の相関を詳細に分析し明らかにする。そのために相互作用が等方的な単純な液体 Na や、14 族元素液体を対象として系統的に調べる。Si の結晶構造は配位数 4 のダイヤモンド構造であり、液体状態においても強い共有結合を持っており、配位数の少ない (6 程度) 異方的な原子配置をとる。共有結合性は Si、Ge、Sn の順に弱くなり、また Na は金属結合により等方的な充填構造 (配位数 12 程度) をとる。また、配位数の少ない液体も高温高压状態にすることで、次第に充填構造に変化していくことが知られている。したがって 14 族元素液体の局所構造は、物質により、また、温度圧力により連続的に様々に変化させることが可能であり、横波の起源を調べるのに適している。

## 3. 研究の方法

- (1) 第一原理分子動力学法により液体の動的構造因子、横波、縦波の振動スペクトルを計算し、横波の存在を調べる。
- (2) 横波の起源の解明。横波の起源となる局所的な構造の機構をするため、注目する局所構造内のダイナミクスを詳細に調べる。
- (3) 温度圧力依存性。高温高压の第一原理 MD 法を実施し、横波発生の温度、圧力依存性を調べる。

本研究の第一原理 MD 法は、密度汎関数法、擬ポテンシャル法、一般化された密度勾配近似に基づいた方法を用いた。これは第一原理 MD 法としては、最も精度の高い方法であるため、通常は扱える原子数は 100 個程度が限度となる。MD 法は通常、周期境界条件を課した立方体セルに原子を入れて行われるが、少な

い原子数で効率的に長距離の相関を調べるため、細長い MD セルを用いる工夫を行った。

## 4. 研究成果

(1) 単原子からなる液体について、原子間相互作用や液体構造と横波の関係を系統的に調べるために、相互作用が等方的な液体 Na、共有結合による異方的相互作用を持つ液体 Si、また、Si に比べて弱い共有結合性を持つ液体 Sn を対象として、第一原理分子動力学法により横波の特徴を調べた。図 1 に transverse current correlation function のスペクトル  $c_t(k, \omega)$  の結果を示す。

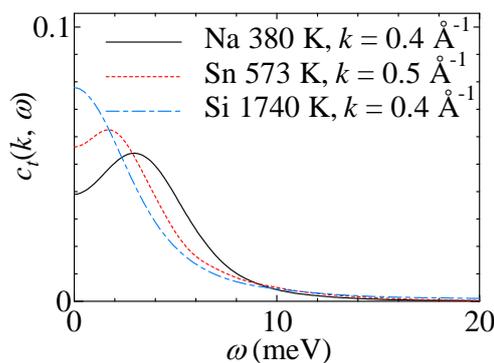


図1 液体Na, Sn, Siの横波のスペクトル

液体 Na では、横波の振動数を表すピーク (4meV 付近) が存在するが、Sn、Si と異方的相互作用が強くなるにつれて、ピークは見られなくなることが分かった。これは、Na、Sn、Si の順に配位数が減少しケージ効果が弱くなることに関連していると考えられる。つまり、異方的な相互作用のもとでは、各原子の周りの原子の数が少なくなるため、原子のずれに対して、もとに戻す力が周囲から働きにくいからであると考えられる。

(2) この異方的相互作用と横波の関係をより明確にするために第一原理 MD ではなく、2 体力と 3 体力の和からなる Stillinger-Weber 型のモデルポテンシャルを用いた古典 MD 法を行い、3 体力の強さを変化させて横波の有無を調べた。その結果、予想通り、異方的な力である 3 体力を強くすると、配位数が減少し、ケージ効果が弱くなり、横波が生じにくくなることを明らかにした。

(3) 次に、液体 Sn の横波の温度圧力依存性を第一原理 MD 法により調べた。液体 Sn

は融点近傍では、横波が存在するが、温度を上げると、次第に横波が見られなくなるが、高温においても、圧力をかけると再び横波が現れるようになることを理論的に示した。このような現象は、現在のところ実験では測定されておらず、横波に関する新たな知見である。

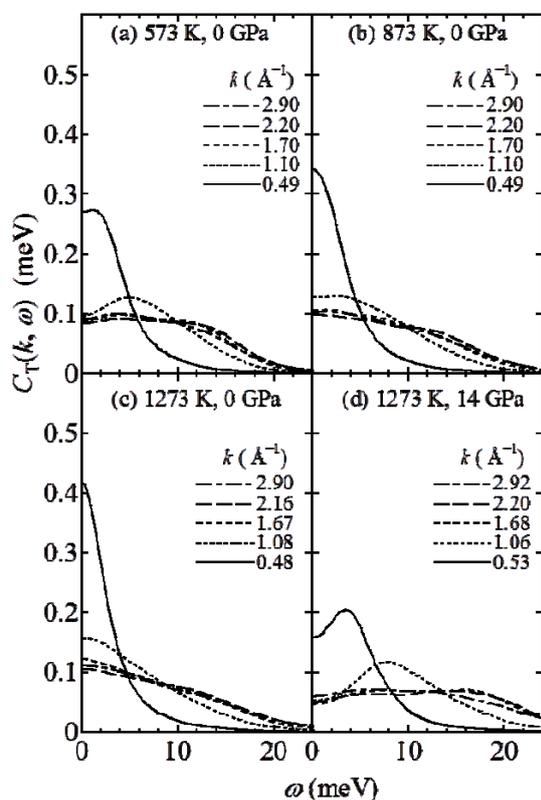


図2 高温高圧下における液体Snの横波のスペクトル

(4) 横波と各原子の運動の相関について、視覚的な理解を得るために、横波の可視化法を考案し、横波と原子の運動の関係を示すコンピュータグラフィックスを作成した。液体中の横波の可視化は、これまでに例がなく、横波発生メカニズムの解明にも役立つものと期待できる。

(5) 原子集団が縦波（横波）を作ると、その波と同程度の振動数をもつ横波（縦波）が生じることが予想されていたが、本研究における第一原理および古典的MDによっても、そのことが確認され、これは、横波のもうひとつの起源になっていることを明らかにした。この縦波と横波のミキシング現象は、液体一般に起こる現象なのかを明

らかにするために、原子間相互作用が2体力のみの場合、および、3体力を含む場合のモデルポテンシャルを用いた古典MDシミュレーションを実行した。その結果、単純液体の代表である液体アルゴンでさえミキシングが起こることが分かった。このことは、1971年のLevesqueらの先駆的なMDによって液体中にも横波が存在することが発見されて以来、これまで全く指摘されていなかった現象である。また、相互作用が異方的である液体シリコンの方が、より顕著にミキシングが現れることも明らかにした。

#### 5. 主な発表論文等

(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2件)

① S Munejiri, F Shimojo and K Hoshino  
Visualization of Nano-Scale Transverse Wave in Liquids Studied by Molecular-Dynamics Simulations

Proceedings of the 11th Asian Symposium on Visualization, 査読有、巻無 2011, CD-ROM

② S Munejiri, F Shimojo, K Hoshino  
Real-space investigation of a transverse wave in a liquid system generated by a molecular-dynamics simulation  
査読有、182 巻, 2011, pp58-61  
Computer Physics Communications

[学会発表] (計7件)

① 宗尻修治、星野公三  
液体中の縦波と横波の Mixing 2  
日本物理学会第67回年次大会  
2012年3月24日  
関西学院大学

② 宗尻修治、星野公三  
液体中の縦波と横波の Mixing  
第25回分子シミュレーション討論会  
2011年12月6日  
東京工業大学

③ 宗尻修治、星野公三  
液体中の縦波と横波の Mixing  
日本物理学会2011年秋季大会  
2011年9月23日

富山大学

④S Munejiri, F Shimojo and K Hoshino  
A new visualization method of transverse  
wave in liquid  
8th Liquid Matter Conference  
2011年9月9日  
ウィーン大学(オーストリア)

⑤S Munejiri, F Shimojo and Ko Hoshino  
Visualization of Nano-Scale Transverse  
Wave in Liquids Studied by  
Molecular-Dynamics Simulations  
The 11th Asian Symposium on Visualization,  
5-9 June, 2011, Niigata, Japan

⑥宗尻修治, 下條冬樹, 星野公三  
第一原理分子動力学法による液体の横波の  
研究  
第66回日本物理学会年次大会  
2011年3月25日  
新潟市

⑦宗尻修治, 下條冬樹, 星野公三  
液体中における横波の可視化  
第24回分子シミュレーション討論会  
2010年11月26日  
福井市

[その他]  
ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

宗尻 修治 (MUNEJIRI SHUJI)  
広島大学・大学院総合科学研究科・准教授  
研究者番号：90353119

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：