

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 13 日現在

機関番号：33903

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24654126

研究課題名(和文) 過冷却液体における縦波と横波の伝搬速度のシミュレーションによる観測

研究課題名(英文) The observation of the longitudinal and transverse wave velocities by the molecular dynamics simulation on a model supercooled liquid

研究代表者

村中 正 (Muranaka, Tadashi)

愛知工業大学・工学部・教授

研究者番号：00267890

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,000,000円、(間接経費) 300,000円

研究成果の概要(和文)：モデル過冷却液体を用いた分子動力学シミュレーションにより、2次元では縦波伝搬速度が $12 \sigma / \tau$ 位であり、3次元では $7 \sigma / \tau$ 位であった。また、縦波伝搬速度は温度上昇に伴って、徐々に速くなることも分かった。それら成果は、国内開催ではあるが2件の国際会議において発表し、論文も掲載予定である。一方、横波伝搬速度は、横波を発生させる際に、どうしても縦波も同時に発生し、横波の観測が将来の課題となってしまった。

研究成果の概要(英文)：By the molecular dynamics simulation on a model supercooled liquid, the longitudinal wave velocity in 2 dimension is about $12 \sigma / \tau$ and 3 dimension is about $7 \sigma / \tau$. The longitudinal wave velocity slightly becomes high for increasing temperature. The results have been published in two international conferences although domestic conferences, and a new paper will be published in the near future.

On the other hand, the transverse wave velocity remains as a subject in future. Because the longitudinal wave generates simultaneously when I want to create the transverse wave in a model system.

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：過冷却液体 ガラス 縦波 伝搬速度 協同運動 分子動力学シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

(1) 分子動力学シミュレーションを用いたガラス転移の研究の過程で見出した「原子が周辺の原子を伴って動く協同運動(相関変位運動)」を調べていると、ガラス研究の専門家から「この原子運動の原因は音波(縦波)ではないか?」という質問を何度も受けた。そのため、縦波と協同運動の違いに関心を持って調べていると、縦波の伝搬速度と、協同運動の拡がりの速度が、かなり違うということに気が付いた。

(2) 縦波速度が求められるのであれば、横波速度も簡単に求められそうな気がしたため、モデル過冷却液体に実際に縦波と横波を起こして、その伝搬速度を求めてみようと思った。

(3) このようなシミュレーションが可能になったのは、2次元で16万粒子数などの巨大粒子数を含む計算が、容易にできるようになったためである。これまで結晶構造の破壊、格子欠陥の移動、ずれ応力を掛けるシミュレーションなどは行われてきたが、音速の測定やそれに似た計算を学会では聞かない。

2. 研究の目的

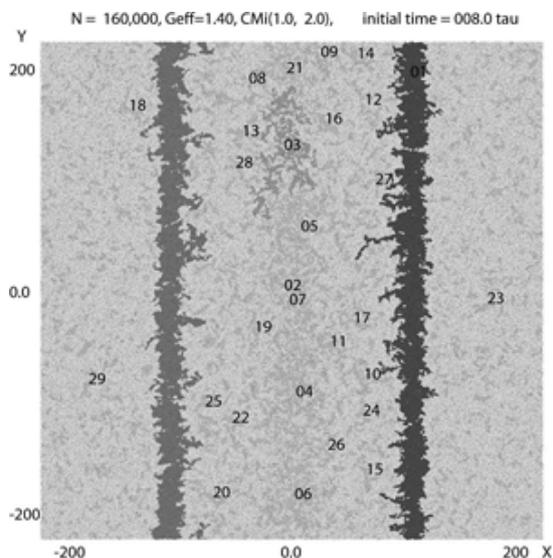
(1) ガラス転移は、動力学が変わることに依ると言われているが、過冷却液体の動力学に多大な影響を及ぼす原子の協同運動(相関変位運動)が、音波やフォノンによる運動なのではないことを明確にして、協同運動の原因が縦波でないことを明示する。

(2) モデル過冷却液体のシステムの中に、縦波や横波を発生させて、その伝搬の様子を調べ、伝搬速度を求める。

(3) 原子の協同運動の拡がりの速度を詳細に観測する。そのことから、縦波との違いが明確になると期待する。

3. 研究の方法

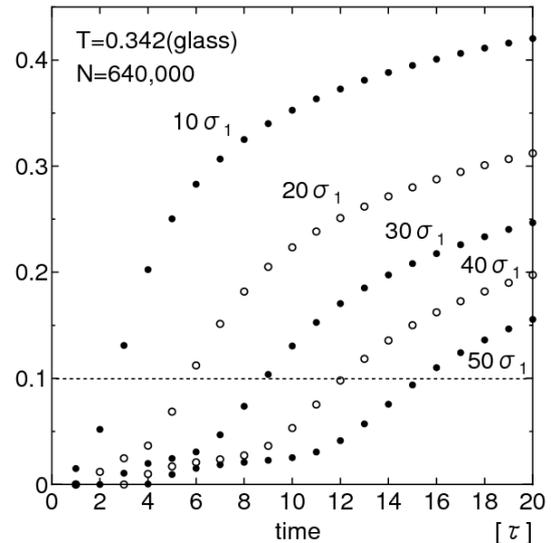
(1) 分子動力学シミュレーションを用いて、モデル過冷却液体やガラスなどのガラス形



成物質の中に、縦波や横波を発生させた後、その伝搬速度を観測する。

初めの図が実際に縦波を伝搬させたときの様子である。縦縞2本が縦波の波面を表し、これから波面の中心位置を特定し、時間の関数として求めることで、その伝搬速度が観測できる。

(2) 原子が周囲の原子を伴って動く協同運動(相関変位運動)の計算を行う際に、計算する中心原子(i原子)からの距離に応じて、相関を計算するための周辺原子(j原子)を選び、相関(相関変位運動係数)の強さの距離依存性を求めてみると、下図のようになる。



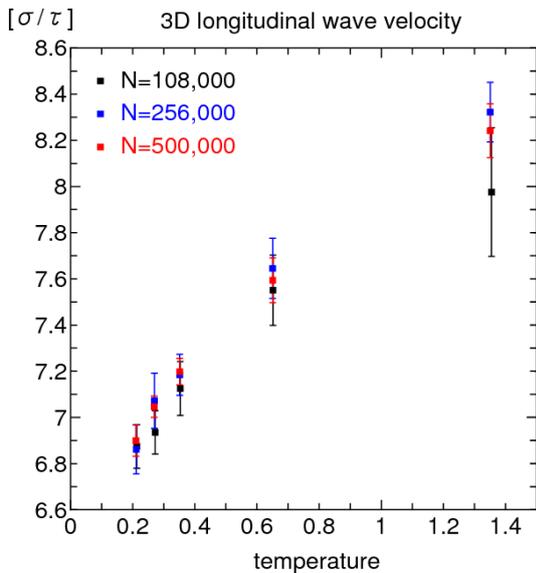
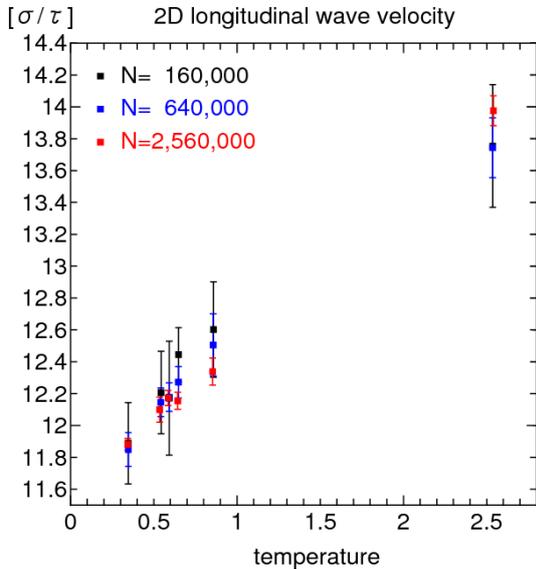
この図より、i原子からj原子までの距離が遠ければ遠いほど、相関を現す時間が遅くなることがわかる。これが意味することは、相関領域が時間経過に伴い拡大しているということである。つまり、その拡大の速さを求めることができるのである。

4. 研究成果

(1) 2次元と3次元のモデルガラスや過冷却液体の温度領域の試料において、人工的に発生させた縦波の伝搬速度を観測した。その結果、観測された縦波伝搬速度は、2次元で、 $12\sigma/\tau$ 位であるのに対して、3次元では $7\sigma/\tau$ 位であった。次の図に2次元と3次元における複数システムサイズでの縦波伝搬速度を示す。赤色データで示す最も大きなシステムが、2次元で256万粒子を含むシステムであり、3次元では50万粒子を含むシステムである。しかし、シミュレーションを行う実セルの一辺の長さは、2次元256万粒子系で 1789σ に対して、3次元50万粒子系では 85.5σ であり、縦波の伝搬する距離は2次元の方が1桁以上大きい。

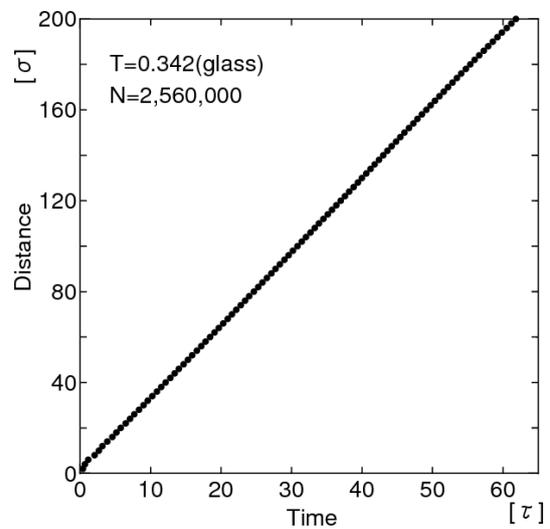
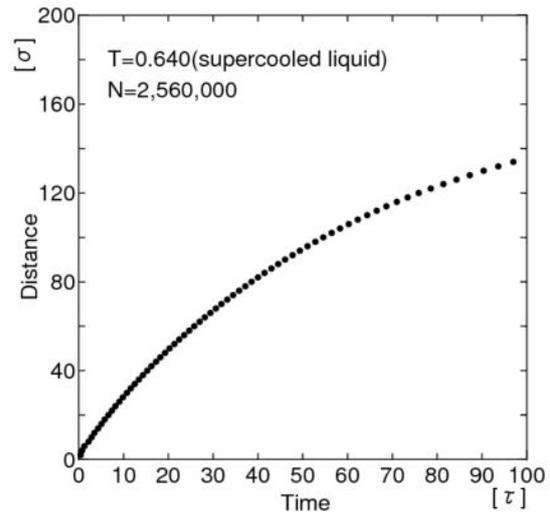
これらの図から、2次元でも3次元でも同様に、試料の温度上昇に伴い、縦波伝搬速度が若干速くなることがわかった。これは原子運動が活発になることから当然の結果である。また、誤差棒も同時に示しているが、緩和過程での縦波伝搬速度の変化を調べるため、シ

ミュレーション時間を分割して、複数の伝搬速度を求めたことによる。結果的に、緩和状態に依らず、各温度で縦波伝搬速度は、ほぼ一定であり、1つのデータとして平均値を図に示している。



(2) 原子が周辺原子を伴って動く協同運動(相関変位運動)の拡がり速度については、まだ、2次元のデータしか確証を得ていない。というのも、3次元のデータは(図示しないが)、過冷却液体やガラスでの値 $2\sigma/\tau$ 位よりも、液体になると極端に(10分の1)小さくなってしまふからである。3次元では最大の50万粒子系でもシステムサイズが小さく、伝搬していく距離が確保できない可能性(更に巨大システムサイズでの検証)や、拡がり速度の距離依存性が顕著になるためだろうと目星は付けているが、まだ計算中である。そのため、研究成果としては、2次元に限って図示する。

次の2つの図に、最大サイズ256万粒子系で求めた、2次元過冷却液体とガラスにおける協同運動を表す相関変位運動係数が初めて0.1を越える時間と距離のグラフを示す。

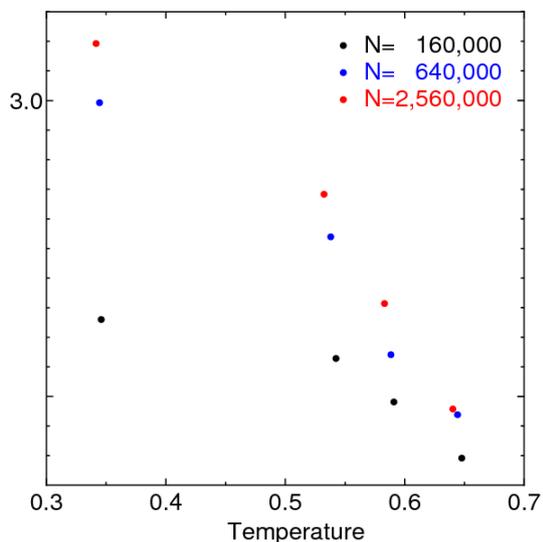


上図が、過冷却液体のものであり、下図が、ガラスのものである。両者には明らかな違いがあり、低温のガラスでは単調に相関距離が伸びている(拡がり伝搬速度が一定)のであるが、より高温の過冷却液体では、近距離の方が拡がり速度が速く、遠くなれば遠くなるほどゆっくりとしか拡大しないことがわかる。つまり、拡がりの伝搬速度が、過冷却液体の遠方では減速していくことがわかった。減速の加速度を調べる必要があるかもしれないが、当座の目的である拡がり速度を求めなければならない。そのためには、上の2つの図の傾きを求める必要がある。そこで、傾きがほぼ一定となっている距離100σまでのデータを用いて、拡がりの速度を求めてみた。それが次の最後の図である。

これから2次元モデルガラスにおける拡がり伝搬速度が $3\sigma/\tau$ 位であることがわかる。これは縦波の伝搬速度 $12\sigma/\tau$ と比べると $1/4$ 程度であり、かなり遅い。また、温度依存性も温度上昇に伴い低下する協同運動の拡がり伝搬速度に比べて、縦波伝搬速度は上昇しているため、全く逆の振る舞いであることがわかった。そのため、協同運動の原因が、縦波ではないだろうという結論が得られた。

また、システムサイズ依存性が顕著に出ているのは、実セルの一辺の長さが16万粒子系では 447σ であり、相関を計算するj粒子までの距離 100σ ということは、協同運動の範囲が 200σ の領域に広がることを意味していて、シミュレーションをする実セルのサイズの影響が現れているものと考えられる。限段階では、まだ緩和状態による拡がり速度の変化を調べていないが、一定ではないことはデータからわかってきた。

The Velocity of CMi [σ/τ] within 100σ



(3) 一方、横波の伝搬速度については、原子を強制的に動かす向きを 90° 回転させれば良いと思っていたのであるが、実際に動かしてみると、縦波がどうしても発生して、横波が見えなくなってしまうことがわかった。そのため、横波が伝搬していく様子は見えなかった。将来的には、今回得られた縦波速度を使い、縦波を強制的に消してしまう手法の開発と、原子運動の向きに応じて色を付けるなどして、横波が見えてこないか再度検討したい。

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 村中正、松井 淳、樋渡保秋、” The observation of the longitudinal wave velocity in a model supercooled liquid”, *Molecular Simulation*, 査読有り、掲載決定済み DOI: 10.1080/08927022.2014.932357
- ② 村中正、松井 淳、樋渡保秋、” The difference between the longitudinal wave velocity and the propagation velocity of a cooperative motion in a model supercooled liquid”, *4th International Symposium on Slow Dynamics in Complex Systems AIP Conf. Proc.*, 査読有り、1518, 772-775(2013),

DOI: 10.1063/1.4794677

[学会発表] (計 5件)

- ① 村中正、松井 淳、樋渡保秋、” The observation of the longitudinal wave velocity in a model supercooled liquid”, 3rd International Conference on Molecular Simulation (ICMS2013), 2013年11月19日、神戸国際会議センター
- ② 村中正、松井 淳、樋渡保秋、モデルガラスにおける縦波観測の再考、日本物理学会2013年秋季大会、2013年9月25日、徳島大学
- ③ 村中正、松井 淳、樋渡保秋、3次元モデルガラスにおける協同運動の伝搬速度、日本物理学会第68回年次大会、2013年3月26日、広島大学東広島キャンパス
- ④ 村中正、松井 淳、樋渡保秋、” The difference between the longitudinal wave velocity and the propagation velocity of a cooperative motion in a model supercooled liquid”, The 4th International Symposium on Slow Dynamics in Complex Systems, 2012年12月5日、東北大学片平キャンパス
- ⑤ 村中正、松井 淳、樋渡保秋、3次元モデルガラスにおける縦波の速度の測定、日本物理学会2012年秋季大会、2012年9月21日、横浜国立大学

6. 研究組織

(1) 研究代表者

村中正 (MURANAKA, Tadashi)
愛知工業大学・工学部・教授
研究者番号：00267890

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

松井 淳 (MATSUI, Jun)
九州大学・理学(系)研究科(研究院)・助教
研究者番号：10274424