

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 6 月 5 日現在

機関番号：12601
 研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2009～2011
 課題番号：21740309
 研究課題名（和文） ガラス形成物質のレオロジー

研究課題名（英文） Rheology of glassy materials

研究代表者

古川 亮（AKIRA FURUKAWA）
 東京大学・生産技術研究所・助教
 研究者番号：20508139

研究成果の概要（和文）：

ガラス形成物質の非線形輸送現象（特にそのレオロジー挙動）について理論的に研究を行った。主な成果は以下のとおりである。(i) 分子動力学シミュレーションにより、過冷却液体の異常粘性輸送および粘弾性特性のメソスコピック性を初めて明らかにした。この発見は動的不均一性に伴う相関構造がスローダイナミクスにおいて本質的に重要であることを強く示唆するものである。(ii) アモルファス物質の破壊現象を記述する新しい粘弾性モデルを提案した。このモデルに基づき、破壊に伴う非線形現象が密度揺らぎと変形の動的結合に起因しうることを示した。

研究成果の概要（英文）：

Nonlinear transport phenomena of glassy materials (especially the rheological behaviors) have been theoretically investigated. The main results are as follows. (i) Using molecular dynamics simulations, we for the first time showed clear evidence for the mesoscopic nature of the anomalous viscous transport and viscoelasticity in a supercooled liquid. Our finding strongly suggests that the correlated structure associated with dynamic heterogeneity is of fundamental importance in the slow dynamics of supercooled liquids. (ii) A novel viscoelastic model of fracture of amorphous materials was provided. On the basis of this model, we demonstrated that nonlinear behavior associated with fracture can be a consequence of the dynamic coupling between density fluctuations and deformation fields.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2010年度	900,000	270,000	1,170,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学、生物物理・化学物理

キーワード：ガラス、過冷却液体、レオロジー、粘弾性、ソフトマター

1. 研究開始当初の背景

ガラス転移現象とは 100K 程度の温度冷却に伴い、粘性係数（構造緩和時間）が 10 桁以上も増大する劇的な物理現象である。そこに現

れる異常なダイナミクスや非線形応答などを理解することは基礎物理・工学に残された未踏の大問題であると言っても過言ではない。今日までに様々な方法による実験や数値

シミュレーションが報告され、幾多の理論や概念が提案されてきた。しかしながら、この現象が有する極めて高度な非線形性・非平衡性は、ガラス化の起源はもとより、ガラス状物質の性質すら明確に理解することを困難にしている。

2. 研究の目的

本研究課題では、特に重要な以下の2つの動的問題の解明を目指した。

(1) 【過冷却液体の非局所輸送】

過冷却液体における顕著なスローダウンに由来する異常輸送現象に対する理解は、モード結合理論に代表される“粒子スケールの運動の凍結”に本質を求める考え方が主流であった。一方で、この20年ほどの間に、主に数値計算および実験の立場から、“動的不均一性”の概念の整備と、それに付随した粒子スケールを凌駕する長さスケール(動的相関長)の存在が様々な過冷却液体系で認識されるようになったが、このような動的効果が輸送物性に主体的な影響を与えうるか否かについて、十分な理解は得られていない。有り体に言えば、過冷却液体やガラスは協同運動の問題である。協同運動が物性を能動的に支配する物理系(特に複雑流体(ソフトマター)系など)の研究においては、動的ないし静的な協同運動のスケールが存在し、その結果として輸送異常が観測されることは、これらの系で本質的であった。2008年当時、このような輸送の非局所性と協同運動の関連という視点に立脚し、過冷却液体やガラス状物質の輸送現象における空間スケール依存性、時空階層性を明確に意識した研究はなかった。研究代表者は、この点を強調して動的不均一性および、それに付随する協同運動の問題について、分子動力学計算を援用した局所粘弾性測定などの徹底的な数値実験により、ガラスの根源的な問題である粘性輸送の異常に対して、その空間階層的な起源を解明する手がかりを得ることを目的とした。

(2) 【変形下のガラス状物質の不安定化現象】

過冷却状態あるいはアモルファス状態にある極端な高粘性流体の変形下での挙動は、材料科学の諸分野における膨大な実験研究の蓄積にも関わらず、現状では系統的な理解が著しく困難である。研究代表者は2006年に、粘性の圧力微分の逆数を超える剪断率を与えたとき、正の圧縮率で特徴づけられる熱力学的に安定な液体のよう状態であっても、不安定化し、遂にはキャビテーションやシアバンドといった非線形現象に至るという全く新たな機構を提案した。この機構は特に粘性の大きな液体系について広く成立しうるものであると予想し、この研究で得られた知見を拡張し、過冷却状態あるいは、ガラス状態にある極めて高粘性な液体や固体(金属ガラスや地球マントルなど)の変形誘起の不安定

化現象に一般化することを考えた。ガラス状物質の塑性、破壊などの非線形流動現象について、理論の現時点での到達点はマイクロな平均場理論であるが、マイクロなパラメータの多さは定量的な予測を困難にする。さらに、これらの平均場理論は空間相関の効果を無視しているため、空間構造の形成ダイナミクスを記述しえない。このような困難を克服するために、研究代表者は破壊やシアバンド形成の粗視化した連続体モデルの構築により問題の本質的な解決を図ることを目的とした。

3. 研究の方法

(1) 【過冷却液体の非局所粘弾性】 ガラス・過冷却液体における異常輸送現象と協同運動の関係の本質に迫るためにモデルガラス系における数値実験的アプローチを主とする。具体的には3次元分子動力学シミュレーションにより波数に依存した種々の輸送量の計算を行う。議論の定量性や正確な数量化を保証するために十分なデータを得る必要があり、そのために十分な計算機資源を確保しなければならない。系統的な数値計算によって得られる知見をもとに、モード結合理論をはじめとする既存のアプローチ問題点を検証し、新たな提言を行う。

(2) 【変形下のガラス状物質の不安定化現象】 ガラス形成物質では一般に緩和時間(粘性係数)が密度(自由体積)に強く依存する。このような粒子レベルの事象を有効的に粗視化し組み入れた連続体モデルの構築を行う。連続体モデルの利点は粘性、弾性率、圧力等の観測可能な測定量だけで閉じた物性予測や現象の予言を可能にすることである。これにより、マイクロな平均場理論が持つ困難を克服することが期待できる。空間的な不均一性が本質的となる非線形問題の解決には、大規模な数値計算を援用した粗視化モデルの検討、発展が不可欠である。

4. 研究成果

(1) 【過冷却液体の非局所輸送】

本研究計画では、協同性とメソスコピック輸送という観点から過冷却液体やガラス状物質の輸送現象における空間スケール依存性、時空階層性について研究を進めてきたが、本研究課題の遂行によって、以下の点を明らかにした。① 3次元分子動力学シミュレーションによって得られた粘性係数および複素弾性率の波数依存性の詳細な解析により、メソスケールに展開する粒子の配置換えと構造緩和が直接的な関連を持つ証左を得た。② 粘弾性応答を、波数依存の緩和時間とプラトー弾性率に分解することによって、構造緩和のメソスコピックな性質はストレス自体の空間相関(静的特性)ではなく、緩和イベントの空間相関(動的特性)に由来することを明らかにした。これらはメソスケールに展開する

動的な協同性が輸送に本質的な寄与をもたらすことを強く示唆する。従来のモード結合理論では粘弾性応答の異常は粒子スケールのスローダウンに由来することを予測するが、これは我々の結果と著しい対照を成す。また、これまでの数値シミュレーション研究は粒子運動とその不均一性の研究が主であり、粘性や粘弾性それ自体がガラスを定義する上で中心的な役割を果たすにも関わらず、そのスケール依存性や不均一性に直接的にアクセスした研究はなかった。本研究課題の一連の研究は、流体輸送(粘性)の非局所性という全く新しい視点で動的不均一性の役割に迫った最初の研究であることも明記しておく。

(2) 【変形下のガラス状物質の不安定化現象】本研究計画ではガラス形成物質の変形下での不安定化現象を理解することを目指し、破壊やシアバンド形成の粗視化した連続体モデルの構築を行ってきた。研究課題の遂行によりより以下のような成果を得た。前述のとおり、研究代表者はこれまでに系の粘性係数が密度に顕著に依存する流体系では、微小な剪断率の流れであっても、一様状態が容易に不安定化するという新しい機構を提案した。この不安定化機構を一般の粘弾性体やアモルファス固体の不安定化、破壊現象の理論的な記述に発展させるために、汎用的な粘弾性モデルの構築、及びその解析を行った。その結果、破壊に伴う非線形現象が密度揺らぎと変形の動的結合に起因しうることを示した：輸送係数あるいは熱力学係数の強い密度(自由体積)依存性に起因して密度揺らぎは自己増殖的に増大し、ついには破壊などの劇的な非線形現象に至りうる。さらに、このモデルの線形解析により延性破壊から脆性破壊まで記述しうる不安定化の発生条件を定式化した。

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 6 件)

- ① Akira Furukawa and Hajime Tanaka, Direct Evidence of Heterogeneous Mechanical Relaxation in Supercooled Liquids, *Physical Review E*, 査読有, 84 巻, 2011 年 061503(1-7)
DOI:10.1103/PhysRevE.84.061503
- ② Akira Furukawa and Hajime Tanaka, Key Role of Hydrodynamic Interactions in Colloidal Gelation, *Physical Review Letters*, 査読有, 104 巻, 2010 年 245702(1-4)
DOI:10.1103/PhysRevLett.104.245702
- ③ 古川亮、田中肇、単純剪断流が誘起する

液体の一様状態の不安定化現象、日本物理学会誌、査読有, 65 巻 6 号, 2010 年 pp. 432-437

<http://ci.nii.ac.jp/naid/110007619540>

- ④ Akira Furukawa and Hajime Tanaka, Nonlocal Nature of the Viscous Transport in Supercooled Liquids: Complex Fluid Approach to Supercooled Liquids, *Physical Review Letters*, 査読有, 103 巻, 2009 年 135703(1-4)
DOI:10.1103/PhysRevLett.103.135703
- ⑤ Akira Furukawa and Hajime Tanaka, Inhomogeneous flow and fracture of glassy materials, *Nature Materials*, 査読有, 8 巻, 2009 年 pp.601-609
DOI: 10.1038/NMAT2468

[学会発表] (計 18 件)

- ① Akira Furukawa, Mesoscopic natures of the anomalous viscous transport and viscoelasticity in supercooled liquids, French-Japanese meeting on Jamming, Glasses and Phase transitions, 2011 年 12 月 7 日、フランス パリ
- ② Akira Furukawa, Dynamic Correlations in Anomalous Transport in Supercooled Liquids, International Workshop on Dynamics in Viscous Liquids, 2011 年 4 月 2 日、イタリア ローマ
- ③ Akira Furukawa, Inhomogeneous flow of glassy materials, TMS2011, 2011 年 3 月 1 日、アメリカ合衆国 サンディエゴ
- ④ 古川亮、遅い流動下における高粘性流体の不均一化、日本学術会議機械工学委員会主催第 15 回キャビテーションに関するシンポジウム 2010 年 11 月 23 日、大阪府立大学
- ⑤ Akira Furukawa, Inhomogeneous flow of glassy materials, ISSP International Workshop on Soft Matter Physics, 2010 年 8 月 10 日、東京大学物性研究所
- ⑥ Akira Furukawa, Inhomogeneous flow and fracture of glassy materials, XXIV IUPAP International Conference on Statistical Physics, 2010 年 7 月 22 日、オーストラリア ケアンズ
- ⑦ Akira Furukawa, What time-scale is responsible for rheological properties in glassy liquids?, Franco-Japanese Joint Workshop "Deformation, Flow and Rapture of Soft matter", 2010 年 7 月 8 日、フランス リヨン
- ⑧ Akira Furukawa, What time-scale is

responsible for rheological properties in glassy liquids?, KITP program: "The Physics of Glasses : Relating Metallic Glasses to Molecular, Polymeric and Oxide Glasses", 2010年6月28日 アメリカ合衆国 サンタバーバラ

- ⑨ 古川亮、・ソフトマター・液体・ガラス系における新規な輸送現象、日本物理学会、2010年3月21日、岡山大学

，
〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

○取得状況（計0件）

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

古川 亮 (AKIRA FURUKAWA)

東京大学・生産技術研究所・助教

研究者番号：20508139

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：