

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 2 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24740284

研究課題名(和文) ガラス化の起源とメソスコピック輸送：ソフトマター物理の視点から

研究課題名(英文) The mesoscopic nature of anomalous hydrodynamic transport and its relation to the glass transition: Insights from soft matter

研究代表者

古川 亮 (Furukawa, Akira)

東京大学・生産技術研究所・助教

研究者番号：20508139

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,700,000円、(間接経費) 810,000円

研究成果の概要(和文)：本研究プロジェクトにおいて、私は過冷却液体の"流体"輸送異常における非局所なメソスコピック性と、その協同運動との関わりについて研究を行った。一連の研究では、波数に依存した流体輸送係数の直接的な解析によって、流体輸送そのものが有する時空階層性とそのスケーリング特性を数値的に明らかにした。さらに、これらのシミュレーション結果に基づいて、動的スケーリング理論を構築した。ここでは、過冷却液体の流体輸送異常が相関構造の協同拡散という物理描像によって自然に理解できることを論じた。

研究成果の概要(英文)：In this project, I have studied the nonlocal mesoscopic nature of anomalous hydrodynamic transport and its relation to the collective dynamics in supercooled liquids. In a series of studies, by directly analyzing the wavenumber-dependent hydrodynamic transport coefficient, I revealed evidence for the nonlocal mesoscopic nature and the scaling properties of hydrodynamic transport. Based on the simulation results, I constructed dynamic scaling theory for anomalous hydrodynamic transport, which can explain anomalous hydrodynamic transport in terms of the collective diffusion of a correlated structure.

研究分野：物理学

科研費の分科・細目：生物物理・化学物理

キーワード：ガラス化 ソフトマター メソスコピック 流体輸送 動的スケーリング

## 1. 研究開始当初の背景

ガラス転移に伴う劇的な諸現象の解明は統計力学、物性物理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。これまで、世界的に多くの研究者により様々な視点から実験や数値計算が行われ、幾多の理論や概念が提案されてきたが、この現象が有する高度な非線形性・非平衡性は我々の理解を強く阻んできた。これまで、種々の理論的アプローチが提案されたが、統一的なリファレンスとなりうるような枠組みは現在も存在しないと見てよい。他方、過去 20 年の間に、主に数値シミュレーションや実験の立場から、動的不均一性の概念が整備された。この動的不均一性に付随した粒子スケールを凌駕する動的相関長の存在がガラス、過冷却液体において普遍的な現象として認識され、この分野での今日的な話題として盛んに研究がなされている。しかし、動的不均一性を主題とした幾つもの国際会議が開催され、多くのレビュー論文が出版された現下の状況でも、このような動的相関がガラス化に伴うスローダイナミクスに本質的であるか否か、輸送異常に主体的に関与しているか否かについてのコンセンサスすら得られていない。

## 2. 研究の目的

このような状況下でブレークスルーを模索するためには、既存のアプローチとは異なる視座に立った研究が必要となる。特に、申請者は、本研究計画においてソフトマター物理的な視点からガラス化の起源に迫ることを目的とした。動的不均一性の存在は、過冷却液体やガラスが協同運動の問題であるという側面を強調する。協同運動が物性を能動的に支配する物理系(特にソフトマター、複雑液体など)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、その結果としてマクロな輸送異常、非線形輸送が観測されることは、これらの系で本質的であった。申請者の研究以前に、このような協同性とメソスコピック輸送という視点に立脚し、過冷却液体やガラス状物質の流体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。

この問題に対する従来のシミュレーション研究では、粒子運動とその相関の解析に主眼が置かれたが、そこに見られる揺らぎの相関と流体輸送の関係は明らかではない。換言すれば、流体輸送の異常それ自体がガラス化を定義する上で中心的な役割を果たすにも関わらず、従来、その不均一性や時空階層性に直接的にアクセスした研究はなかったのである。申請者は、このような問題意識のもとに、過冷却液体における粘性係数や粘弾性応答の顕著なスケール依存性とその空間階層性について、初めての研究成果を 2009 年に報告した。そこでは、(i) 動的相関長が

ミクロとマクロの粘性輸送のクロスオーバーを与えること、(ii) 粘性輸送、粘弾性緩和はメソスコピックな時空スケールに顕著な非局所性を示すことの 2 点を明確にした。

これらの結果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している。同時に、空間依存の情報を残した(波数空間での)非局所流体輸送の観測が、ガラス物理の根源的な問題である粘性、あるいは粘弾性緩和時間の発散について、その空間階層的な起源を解明する手立てとして有用たりうることを示している。

本研究課題ではこのような視座に基づいた研究をさらに発展させることで、ガラスのスローダイナミクスや種々の異常な動的効果(Stokes-Einstein 則の破れなど)における協同運動と付随するメソスコピック輸送の関連、役割について本質的な知見を得ることを目指した。

## 3. 研究の方法

本研究課題では、ガラス・過冷却液体のメソスコピック輸送とスローダイナミクスの本質的な関係を明らかにすることを主目的としたが、この複雑な問題を理解するためのリファレンスとなる理論的枠組みがない現状では、計算機を用いた数値実験的アプローチを中心とし計画を遂行することが最善と考えた。

前述のように、従来のシミュレーション研究では、ミクロスケール(波数  $k \sim$  粒子サイズの逆数程度)での粒子運動の解析、およびマクロスケール(波数  $k=0$  の成分)における輸送物性の解析に主眼が置かれていた。しかし、このようなメソスケールの輸送それ自体に着目しない従来のアプローチでは、マクロな粘性発散と粒子運動に発現するメソスケールの動的相関の関係性を明らかにすることはできない。本研究では、粘性発散の空間階層的な起源、さらには動的相関構造との関係を明らかにするために、長さスケール(有限波数)の情報を有する輸送係数、熱力学係数などを 3 次元モデルガラス系(2 成分ソフトコアポテンシャル系)の分子動力学計算によって系統的に調べることを行った。計算機実験的なアプローチで主張を明確にするためには、定量性を確保するために十分な数値データと、それに基づく精度の高い物理量の数量化が必要である。しかし、ガラス転移点近傍では、緩和時間が極めて長大になるために、輸送に関係する物理量を信頼ある精度で得ることが困難となる。これを克服するためには、大規模な数値計算によって、十分なアンサンブル平均を取ることが必須であるが、この目的のために長期間にわたって申請者が自由に使用することが可能な高性能の計算機資源(ワークステーション)を確保した。初

年度は、計算機環境の整備を行い、併せて、分子動力学計算のプログラムの効率化、高速化に関する改良等を適宜行った。

次年度は、初年度の数値計算主体の研究を進展させ、大規模シミュレーションにより得られた流体輸送のスケール依存性に関する解析結果から、メソスコピック輸送に対して現象論的な説明、予測を行うことに取り組んだ。その際、問題の本質に迫るために、ソフトマター物理の研究で蓄積された概念の援用は十分に有用であったと考えている。現象論の展開に際して、分子動力学計算による検証・確認を適切に行いモデルの妥当性をバックアップすることも並行して行った。

#### 4. 研究成果

申請者は、前述の通り、ソフトマター物理の視点からガラス化の起源に迫ることを目的として、特に流体輸送の異常とその時空階層性に着目した研究を遂行した。本研究課題以前の研究において、3次元分子動力学シミュレーションによる詳細かつ系統的な解析により、粘性流体輸送、粘弾性がメソスコピックな長さスケールに顕著な非局所性(相関)を有し、この(粘性)輸送の相関長において、マイクロ輸送からマクロ輸送へのクロスオーバーを示すことを明らかにした。本研究課題では、さらに研究を進めることにより、新たに以下の点を明らかにした。

- (1) 異常流体輸送(縦モード;密度拡散、横モード;粘性緩和)およびストレス緩和が単一の動的相関長(輸送の相関長);  $\xi$  で特徴づけられることを数値的に見出した。この結果は(特に脆いガラス形成物質の)過冷却液体ではこれまで認識されているよりもより一般的かつ重要な動的スケールリング則が成立しうることの意味する。さらにこの結果は、ガラス転移点に向かって、急激なスローダウンを示すマクロな流体輸送が、協同性の成長の仕方に強く関連することを示唆している。
- (2) メソスケールに展開する粒子の協同的な配置換えとストレス緩和が直接的な関連を持つことを示し、こ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。これらは動的な協同性が輸送異常に直接的に関連することを強く示唆するものである。
- (3) 数値実験により得られた動的スケールリングの概念は、種々の流体輸送現象に現れる異常を理解する手立てとなりうる。申請者はスケールリングの概念に基づき、ガラスのスローダイナミクスや種々の異常な動的効果について現象論的アプローチを展開した。特に、構造緩和時間が動的相関長の4乗で変化するという動的スケ

ーリング則( $\tau_a \sim \eta \sim \xi^4$ )を得るが、このスケールリング則は、クラスター的な粒子集団の協同拡散として自然に捉えることができることを議論した。

- (4) このスケールリング理論において、特筆すべき点は、Stokes-Einstein 則の破れが、自然に理解できることである。多くの過冷却液体(特に脆いガラス形成物質)では、ガラス転移点に近づくに従い、Stokes-Einstein 則は大きく破たんすることが知られている。このStokes-Einstein 則の破れは、動的不均一性が直接的に関与する効果として引き合いに出されることが多いが、通常、語られる動的不均一性との関連は概念の域を出るものではない。また、モード結合理論をはじめとする既存の理論による明確な説明はなされていなかった。申請者はこの動的スケールリングの観点から、このStokes-Einstein 則の破れが動的相関構造の協同拡散(拡散係数 $\sim \xi^2/\tau_a$ )という見方により自然に理解できることを提示した。

一連の研究によって過冷却液体の“流体”輸送異常におけるメソスコピック性、時空階層性、さらには協同運動との関わりについて数値的に明らかにしてきたが、これらの成果は4点相関関数を用いた従来の動的不均一性の研究と相補的であったと考えている。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、なん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。その役割については、数値的証左を超えた本質的解明に向けてさらなる取り組みが必要である。また、このような相関構造の物理的実体とその発現メカニズムに関する問題は未解明のままである。ガラス転移現象の物理に、普遍的な枠組みが存在しうるのは明らかでないが、これらの疑問に対する明解な物理描像を得ることを目指して本研究課題後も取り組む。

#### 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3件)

- ① Akira Furukawa, Andrea Gambassi, Siegfried Dietrich, and Hajime Tanaka, Nonequilibrium Critical Casimir Effect in Binary Fluids、Physical Review Letter 誌、査読有、Vol. 111、2013年、Art-No. 055701、pp1-4  
DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.055701>
- ② Akira Furukawa, Simple picture of supercooled liquid dynamics: Dynamic scaling and phenomenology based on

clusters、Physical Review E 誌、査読有、Vol.87、2013年、Art-No.062321、pp1-11  
DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevE.87.062321>

- ③ Akira Furukawa, Hajime Tanaka, Dynamic Scaling for anomalous transport in supercooled liquids、Physical Review E 誌、査読有、Vol.87、2012年、Art-No.030501(R)、pp1-4  
DOI:<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevE.86.030501>

〔学会発表〕(計6件)

- ① 古川亮、せん断流動が誘起する不安定化現象-液体、ソフトマター、固体-、先端膜工学研究推進機構春季講演会、2014年3月7日、神戸大学(神戸市)
- ② 古川亮、過冷却液体の異常輸送の物理機構について、日本物理学会、2013年9月26日、徳島大学(徳島市)
- ③ 古川亮、過冷却液体の流体輸送における動的スケーリング、日本物理学会、2013年3月26日、広島大学(東広島市)
- ④ A. Furukawa、A possible Key Role of hydrodynamic interactions on colloidal gelation、Workshop on the Open Problems of the Glass Transitions and Related Topics、2012年12月18日、福岡市
- ⑤ A. Furukawa、Dynamic Scaling for Anomalous Hydrodynamic Transport in Supercooled Liquids、2012年10月18日、6th International Conference on Multiscale Materials Modeling、バイオポリス(シンガポール)
- ⑥ A.Furukawa、Key Role of hydrodynamic interactions on colloidal gelation、Workshop on flocculated suspensions、2012年6月29日、パリ(フランス)

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況(計0件)

名称：  
発明者：  
権利者：

種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等  
<http://www.iis.u-tokyo.ac.jp/~furu/paper.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

古川 亮 (FURUKAWA, Akira)  
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：