

フラジリティを系統的に制御できる過冷却液体モデルの提案

(筑波大数理物質) 尾澤 岬 (新潟大理) ○金 鋼 (名大理) 宮崎 州正

ガラス転移点近傍で粘性係数や緩和時間など動力学が急激に増加するが、その背後にある普遍性を探索するため Angell はあらゆるガラス形成液体の物質について粘性係数の温度依存性を調べた。特にガラス転移温度で規格化した温度を用いており、これは現在 Angell plot として広く知られるようになっている。これによりガラスを形成する物質の化学組成による違いが大きく分けて 2 種類に分類されることが明らかになった。ひとつはアレニウスの式にしたがう物質で、例えば分子間のネットワークがしっかりと保持されたシリカガラス (SiO_2) などである。もう一方で、*o*-terphenyl のようなファンデルワールス力など相互作用が等方的な分子性液体では特に低温でアレニウス挙動に従わず超アレニウス挙動を示すことがわかっている。このようなガラスの物質による動力学の温度依存性の違いを整理するために、ガラスの「フラジリティ」という概念が提案されている。幅広い温度領域でアレニウス挙動を示すシリカガラスではフラジリティが大きくこれを **strong** 液体と分類し、一方で特にガラス転移点近傍で超アレニウス挙動を示す分子性液体などではフラジリティが小さくこれを **fragile** 液体と分類する。

ガラス転移に対してコンピュータシミュレーションは重要な位置を占めている。MD, MC いずれにしてもシミュレーションをおこなうには何らかのモデル化をしなければいけない。例えば、**strong** 液体であるシリカガラスを対象とすれば第一原理計算に基づいた **BKS** ポテンシャルが用いられれば良い。一方で、**fragile** 液体に対しては典型的に **Lennard-Jones(LJ)** ポテンシャルを用いられることが多い。それぞれ独立に研究がおこなわれ知見が集積されているが、そもそもガラス転移の普遍性を追究するための概念であるフラジリティの決定因子を未だ見極められていないのが現状である。

本研究では、これまでの研究とは異なるアプローチでフラジリティを理解することを目指している。特に、フラジリティを系統的に変化させることのできるシミュレーションモデルの提案をおこなっている。そこで、近年提案されたシリカガラスを模した 2 成分系を出発点としている[1]。そこでは異種成分間 (Si-O 間) に強い引力がはたらき、これにより 4 面体ネットワーク構造を形成し **strong** 液体の振る舞いを示すが、本研究ではこの引力部分を調整することによりフラジリティを変化させ、**fragile** 液体の振る舞いを示すモデルになることを示している[2]。つまり、異方的なネットワーク液体から等方的な分子性液体まで橋渡しできるシミュレーションモデルのモデルの提案をしている。これによりフラジリティの起源を明らかにする端緒を開くことができたと考えている。講演では、シミュレーション結果の詳細を提示し、今後の展望について議論したい。

【参考文献】

- (1) D. Coslovich, D. and G. Pastore, *J. Phys.: Condens. Matter*, 21, 285107 (2009).
- (2) M. Ozawa, K. Kim, and K. Miyazaki, in preparation.