

コロイド系のガラス転移と非線形レオロジー

研究代表者・筑波大学数理物質科学研究科物理学専攻・准教授 宮崎 州正

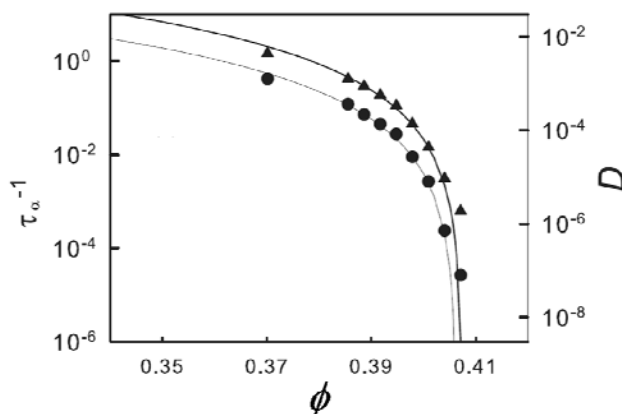
成果概要

本研究では、ガラス転移現象の基礎的な理解に向けた、解析的、数值的、実験的な研究を行った。解析的、数值的な研究としては、ガラス転移の平均場理論描像の確立に向けて、4次元ガラスのシミュレーション、および任意の次元のモード結合理論の解析を行った。その結果、(1) 高次元で系統的に理論とシミュレーション結果の定量的な一致が向上すること、(2) スピンガラスの平均場理論との類似性が成立しないことなどがわかった。また、実験研究として、ガラス転移の最も基本的な物性であるフラジリティの測定を、コロイドガラスに対して初めて行い、フラジリティの微視的起源の解明の糸口を与えた。

1. 4次元剛体球系のガラス転移[1]

ガラス転移の理解を妨げている理由の一つに、ガラス転移を起こす系の複雑さがある。今まで数值的に研究されているガラス系は、結晶化を防ぐため、ほぼ例外なく多分散系や2成分系などであった。我々は、この複雑さを回避するために、空間次元を一つ

上げ、4次元系のガラス系の数値実験を行った。一般に次元が大きくなると、核生成速度は遅くなり、過冷却状態がより安定するからである。我々は考え得る最も単純な液体、すなわち剛体球1成分系のガラス転移点近傍の遅いダイナミクスを観測することに初めて成功した。4次元ガラスは、純理論的にも重要な系である。現在、モード結合理論(MCT)はガラス転移の「平均場理論」の候補として考えられているが、実際の観測データとの整合性や不一致は常に議論の的であった。もしMCTが本当に平均場理論であれば、次元が上がるほど、理論と(数値)実験との整合性は良くなるはずである。我々は得られたデータを詳細に調べ、スケール則や指数などあらゆる点で、4次元が、2-3次元系よりMCTと一致することを見出した。ガラス系において、次元依存性を系統的に調べたのは本研究が初めてのことである。



図：構造緩和時間と拡散係数の密度依存性を示した。点は数値計算の結果。実線はMCTによるフィッティングの結果。MCTが予言する代数的な振る舞いを、数値実験は定量的に再現している。

観測データとの整合性や不一致は常に議論の的であった。もしMCTが本当に平均場理論であれば、次元が上がるほど、理論と(数値)実験との整合性は良くなるはずである。我々は得られたデータを詳細に調べ、スケール則や指数などあらゆる点で、4次元が、2-3次元系よりMCTと一致することを見出した。ガラス系において、次元依存性を系統的に調べたのは本研究が初めてのことである。

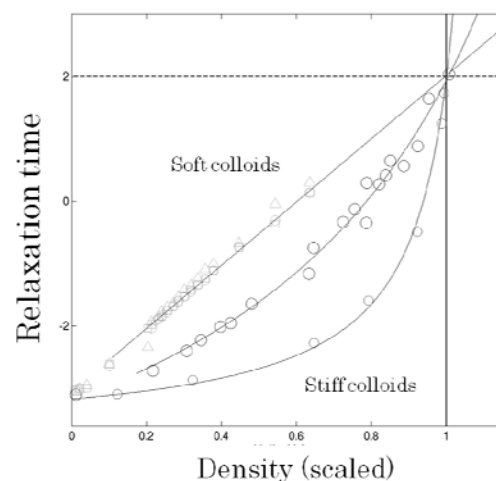
2. ガラス転移の平均場理論[2]

ガラス転移においては未だに平均場理論すら完成していない。現在のところ、スピンガラスにおける知見をヒントにした一種の平均場理論的な描像が提案されている。そ

れによると、高温・低密度側から低温・高密度状態になるに従い、まず自由エネルギーに準安定状態が無数に出現する動的転移が起こり、ついでさらに低温・高密度側で、レプリカ対称性の破れを伴う熱力学相転移が起こるといふ。後者は、Mezardらにより、液体系のレプリカ理論と呼ばれる、スピングラスとほぼ等価の静的平均場理論が定式化されている。一方、前者の動的転移は、モード結合理論 (MCT) により記述されると信じられている。これはスピングラスの動的理論が MCT と数学的に等価な方程式だからである。しかし、この証明は今までなされていない。私と共同研究者の池田昌司は、MCT と液体レプリカ理論を詳細に検討し、二つの理論の間の整合性を調べた。もし、MCT が真の動的平均場理論であるならば、レプリカ理論が予想する準安定状態が出現する温度が MCT 転移温度と一致してはならない。また、レプリカ理論のオーバーラップと呼ばれる量を用いて、MCT が予言する非エルゴードパラメータが記述されなくてはならない。我々は高次元における、スケール則などから、二つの理論に大きな相違があることを見出した。平均場理論は、より現実的なモデルや理論の出発点になっている。そのため、本研究は、構造ガラスをスピングラスとの類推で考えるという従来の考え方に深刻な疑問を投げかけるものである。

3. コロイドガラスのフラジリティとレオロジー[3]

ガラス転移温度近傍での粘性係数の温度依存性は、アレニウス則から大きく外れる。その目安はフラジリティと呼ばれており、ガラス転移における基本的なパラメータであると考えられている。しかし、その定量的な理解はほとんど進んでいない。我々は、フラジリティの微視的理解を得るために、単純な形状を持ち相互作用の制御も容易であるガラス、すなわちコロイドガラスを用いてフラジリティの観測を行った。我々はコロイドの1粒子の柔らかさとフラジリティの関係を調べた。その結果、剛体球のように硬いコロイドはフラジリティが高く、逆に柔らかいコロイドは、フラジリティが低いことを明らかにした (図)。非常に簡単な系で系統的なフラジリティの観測が可能になったことは、ガラス転移の理解に本質的な貢献をもたらす可能性がある。



<参考文献>

- [1] P. Charbonneau, A. Ikeda, J. A. van Meel, and K. Miyazaki, (submitted)
- [2] 池田昌司, 宮崎州正 “ガラス転移における次元性” (日本物理学会予稿集, 28aQL-5, 2009年)
- [3] J. Mattsson, H. M. Wyss, A. Fernandez-Nieves, K. Miyazaki, Z. Hu, D. R. Reichman, and D. A. Weitz, *Nature* 462, 83-86 (2009).