

コロイド系のガラス転移と非線形レオロジー

所属機研究代表者：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

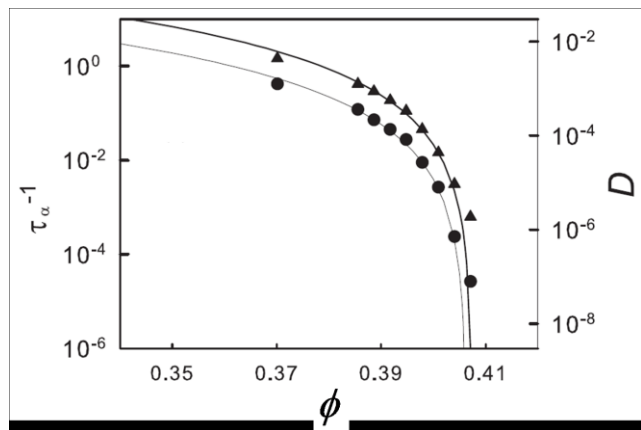
1. 初期の研究目標と実際の研究推進

本研究は、(a) コロイドガラスのフラジリティと (b) ガラス系とジャミング系の非線形レオロジーの微視的な理解の 2 つのテーマを初期の研究目標とした。実際に研究を推進する途上で、ガラス転移の平均場描像の確立と言う、より基礎的な疑問に立ち返り、その問題に対する成果を多く得た。また実験グループとの共同研究により、コロイドガラスのフラジリティとレオロジーに関する新規現象を見出した。

2. 研究成果

2-1. 4次元剛体球系のガラス転移[1]

モード結合理論(MCT)は、ガラス転移の平均場理論と信じられている。それが真実であれば、次元が大きいほど、MCTは現実のガラス系をより良く説明するはずである。我々は、4次元剛体球系のガラス系の数値実験を行い、その予想を検討した。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。



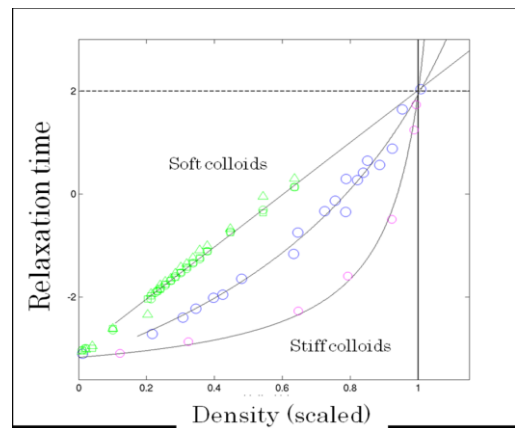
図：構造緩和時間と拡散係数の密度依存性を示した。点は数値計算の結果。実線はMCTによるフィッティングの結果。MCTが予想する代数的な振る舞いを、数値実験は定量的に

2-2. 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、熱力学的な議論としては、スピングラスをヒントに発展したレプリカ液体論と、その動力学版であるモード結合理論(MCT)が、平均場理論の候補と信じられている。これはスピングラスの熱力学と動的の理論との関係が、レプリカ液体論とMCTとの関係に数学的に酷似しているからである。しかし、この証明は今までなされていない。我々は、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いなくてはならない。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が予想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。

2-3. コロイドガラスのフラジリティとレオロジー[3,4]

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)。また、レオロジー実験により、弾性率とフラジリティに強い相関があることを示唆する結果も得た。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。



図： 緩和時間の密度依存性。コロイドが柔らかいほど、アレニウスの振舞いになることがわかる。

また、レオロジー実験により、弾性率とフラジリティに強い相関があることを示唆する結果も得た。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。

2-4. ガウスコア模型のガラス転移[5]

最近、粒子どうしが重なれるほど弱い斥力を持つ系、いわゆる柔らかい相互作用系が関心を集めている。その熱力学的・動的振舞いは、通常の強い短距離斥力を持つ系に比べて、多彩で豊かな振舞いを示す。我々はその最も単純なモデルである、ガウスコア相互作用系のガラス転移をシミュレーションにより調べた。その結果、密度を大きくしていくと、核生成が阻害され、ガラス転移に特有のスローダイナミクスが観測されることがわかった。また、その動的性質は、今までのモデルガラス系と比べて、モード結合理論の予想との一致が向上する。さらに、非ガウス因子やストークスアインシュタイン則の破れが弱く、動的不均一性が抑えられていることも示された。強調すべきことは、これが単成分系で観測されたことである。これらの結果は、ガウスコア模型は、現存のガラスモデル中、最もクリーンな系であると同時に、平均場的な振舞いを最もよく再現する系であることを示唆している。

<参考文献>

- [1] P. Charbonneau, A. Ikeda, J. A. van Meel, and K. Miyazaki, *Phys. Rev. E* 81, 040501(R) (2010).
- [2] A. Ikeda and K. Miyazaki, *Phys. Rev. Lett.* 104, 255704 (2010); *ibid.* 106, 049602 (2011).
- [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).
- [4] J. C. Conrad, H. M. Wyss, V. Trappe, S. Manley, K. Miyazaki, L. J. Kaufman, A. B. Schofield, D. R. Reichman, and D. A. Weitz, *J. Rheol.* 54, 421-438 (2010).
- [5] A. Ikeda and K. Miyazaki, *Phys. Rev. Lett.* 106, 015701 (2011)