

# A04 ガラス化における揺らぎの相関構造の発現メカニズムと その輸送異常に果たす役割の解明

東京大学生産技術研究所 古川亮

## 1. 輸送異常における相関構造が果たす役割の理解

流体輸送係数の時空階層性の直接解析は、特徴的な時間スケールと空間スケールの関係性を陽に提供する：このアプローチの優位性は、(様々なソフトマター系の非線形流体輸送においてもそうであったように)得られた時空スケール間の関係性は流体輸送異常のメカニズム(=運動方程式)それ自体を反映しているという点にある。換言すれば、この関係性の背後にある物理描像に正しく迫ることで、メカニズムそのものを理解することができるであろう。

これまでの一連の研究では流体輸送そのものが有する時空階層性を明らかにしたが、この成果は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。従来の4点相関関数法などの手法では、不均一性や空間相関と輸送異常との関係についての曖昧さが排除できなかったが、流体輸送の空間相関に直接的にアクセスすることで、これを回避できる。2014年度を通じて継続的に取得した膨大なシミュレーションデータの系統的な解析を行った結果、ガラス物質の緩和メカニズムについて、これまで見いだされていなかった重要な知見を得ることができたので、これを報告する予定である(1)。

## 2. 過冷却液体のマイクロレオロジー

上記の項目1に関連し、過冷却液体の輸送・レオロジー特性と空間相関・構造の関係性を理解する手段としてのマイクロレオロジー的アプローチについて、その妥当性について分子動力学シミュレーションにより詳細に検討した(2)：マイクロレオロジーは重要な粘弾性測定技術のひとつとしてみなされており、特にマクロなレオロジー測定では到達できない「(複雑液体やソフトマターを特徴づける)顕著な内部構造、内部自由度を反映した局所的な粘弾性測定」が可能であることが利点として挙げられる。そこでは、試験粒子に対する一般化されたストークス=アインシュタイン(SE)則の成立が暗黙裡に仮定される。しかしながら、この一般化されたSE則に現れる複素弾性率 $G(\omega; a)$  ( $\omega$ : 周波数、 $a$ : 試験粒子のサイズ)が真に(バルクの)局所測定を反映した物理量であるか否かは、本来、自明ではない。結論から言えば、過冷却液体に試験粒子を導入することにより、試験粒子の境界付近のダイナミクスは大きく変調する。そのため、試験粒子の運動はバルクの空間相関・構造より、むしろ境界付近のダイナミクス異常をより強く反映する。我々は系統的な数値実験的アプローチにより、以下の結果を見出した。

(i) 単純液体では、試験粒子の運動は、通常SE則によって、よく記述される。他方、過冷却液体では、拡散(摩擦)係数がSE則で予測される数値よりも格段に小さく(大きく)、その値は粒子サイズに依存する。これは、試験粒子の周りに形成される「遅い層」に起因する。その領域において粒子の再配置運動は、バルクのそれに比べてかなり遅くなる。さらに、その層の厚さは過冷却度の増大に伴い増加する。このような効果は、高温の単純液体状態では観測されない。これは、試験粒子の運動と、媒質を形成する粒子の運動の非対称性が過冷却状態で増幅されることに由来すると考えられる。(ii) この試験粒子周辺のダイナミクスの変調

は顕著な有限サイズ効果を引き起こす：高温の単純液体の場合には、重要な長さスケールがシステムサイズ $L$ と粒子サイズ $a$ の二つであることを反映して、拡散(摩擦)係数は $a/L$ によってよくスケールされる。これは、通常のNavier-Stokes方程式の枠組みで記述される有限サイズ効果として、よく知られている。ところが、過冷却液体では試験粒子により導入される新たな長さスケール(=遅い層の厚さ)を反映して、このようなスケーリング関係は成立しない。これは、遅い層を介した粒子間の動的な相互作用に起因する効果として捉えることができる。さらには、この動的な相互作用の結果、系の構造緩和そのものが強く阻害されることも併せて示した。

過冷却液体におけるマイクロレオロジー測定は、マクロレオロジーによる結果と著しく異なるのみならず、観測される粘弾性量は、バルクの局所構造を必ずしも反映しない。近年、静的なプローブ構造(あるいは長さスケール)を人工的に組み入れることで発生する動的性質の変化を解析することにより、ガラス化における相関の効果・実体を理解しようという試み(point-to-setなど)が注目を集めているが、このようなアプローチに見られる長さスケールや動的不均一性との関連も併せて考察した。

### 3. モデル微生物系における近接流体力学的相互作用の効果

(モデル)微生物系の集団運動に与える近接場の流体効果を数値実験的に研究した。流体力学的相互作用の長距離性、多体性、非定常性といった本質的な困難さは数値計算によるアプローチすら困難にしてきた。本研究では、近年大きく発展したハイブリッドシミュレーション法のひとつを援用することで流体力学的相互作用に起因する困難を克服し、泳動メカニズムの基本的特性を備えたミニマルモデルの系統的な数値実験を通じて、集団運動におよぼす多体の流体効果を検討した(3)。

流体力学的相互作用がある場合、アクティブ粒子は相互に影響し合い、自己推進性そのものが強く影響を受ける。特に、(多くのバクテリアで見られる)双極子的な自己推進力を備えたアクティブ粒子系では、流体力学的相互作用による自己トラップにより、引力的なポテンシャル相互作用のない場合でも、過渡的な巨大構造(クラスター)形成が促進されうる。このような流体効果を反映したアクティブ粒子のモビリティは密度や泳動メカニズムに強く依存する。

#### 参考文献:

- (1) In preparation.
- (2) A. Furukawa, K. Kim, and H. Tanaka, submitted.
- (3) A. Furukawa, D. Marenduzzo, and M.E. Cates, Phys. Rev. E **90**, 22303 (2014).