

## 審査の結果の要旨

論文提出者氏名 石野 誠一郎

ガラスとは、原子配列が並進及び回転対称性を欠いているにもかかわらず、固体のような性質を示す物質群のことである。液体を融点以下に冷却してガラス転移点に近づいていくと、あたかも過冷却液体の構造緩和時間が有限温度で発散的するかのよう増大するが、その物理的機構は長年の研究にもかかわらず、いまだ未解明である。本研究は、特に、このような急激なダイナミクスの減速（スーパーアレニウスの挙動）をもたらす構造的要因とそれによりもたらされる粒子運動モードの特徴の関係を明らかにすべく行われた。

第一章では、研究の背景、目的について述べられている。

第二章では、本研究で用いられたモデル系である 2 次元 2 成分非相加ソフトディスク系、分子動力学シミュレーション法、構造・ダイナミクスの解析法について記述されている。また、制御パラメータとして、非相加性因子と 2 成分系の組成の様々な組み合わせについて、臨界冷却速度を測定し、このパラメータ空間における臨界冷却速度と液体中で好まれる回転対称性の関係について調べた。また、液体のフラジリティを評価し、それが低温で形成される構造の種類の影響を強く受けることを見いだした。具体的には、12 回対称性の発達する領域では、多分散系の研究から期待されるように液体はフラジイルとなったが、4 回対称性の発達する領域では、液体は常にストロングであることが明らかとなった。

第三章では、フラジイルな液体の示すスーパーアレニウスのダイナミクスの構造的起源について議論されている。具体的には、典型的なフラジイルな液体とストロングな液体について、様々な物理量の測定を通じて、フラジリティの決定要因が何であるかを調査した。その結果、両者で顕著な違いが認められたのは、欠陥濃度の温度依存性、局所安定構造クラスタのサイズ分布、非ガウスパラメータ、局所安定構造に対する拡散の異方性の四つであった。配位数とボンド間角度を用いた局所構造解析を通じて欠陥濃度を解析したところ、構造緩和時間と同じ発散温度を持つ Vogel-Fulcher-Tammann 則によって欠陥濃度の温度依存性をフィットできることが分かった。このことから、構造緩和時間と欠陥濃度はベキ乗則の関係にあることが明らかとなった。また、上述の局所構造解析により局所安定構造のクラスタ解析を行ったところ、低温におけるクラスタサイズが、フラジイル組成では冪乗則に、ストロング組成では指数関数則に従うことが分かった。冪乗分布はフラクタルな臨界クラスタの特徴であることから、フラジイル液体のガラス転移が臨界現象的な特徴を有することが示唆された。また、動力学に関しては、粒子変位の尖度の指標である、非ガウスパラメータが顕著な違いを示した。このパラメータはフラジイル組成においてのみ顕著に増大した。このことから、フラジイルな液体においては、変位した粒子が更に変位しやすくなるという、一粒子レベルでの正のフィードバックが生じていることが示唆された。両者の間に、静的な量と動的な量の両方に顕著な違いが見られたことから、それらの量の結合を捉えることによって、更に本質的な知見が得られるのではないかとの考えのもとに、新たに「ボンド配向 van Hove 相関関数」という量を導入し解析を行った結果、フラジイル組成にお

いては、構造と結合した拡散モードが存在することが示唆された。

第四章では、以上の結果をもとに、フラジイルな液体の示すスーパーアレニウスの挙動の構造的起源について考察を行っている。上述の構造に結合した拡散モードが具体的にどのようなものであるかを解析したところ、正十二角形準結晶におけるフェイゾンフリップと同様の粒子再配置であることが明らかとなった。このモードにおいては、少なくとも 3 個の粒子が、時間と方向の両方から見て協同的に変位する。このような再配置は、欠陥を新たに生じさせることなく局所密度の変化を小さく保ったまま達成される。したがってフラジイル液体の構造緩和は、構造秩序を破壊しないような拡散モードによって特徴づけられることが明らかとなった。

以上のように、ガラス転移における、構造とダイナミクスの相関に着目し、多様な構造の発現を制御可能な 2 成分非相加ソフトディスク模型の研究を通じて、低温で発達する構造の種類が液体のフラジリティに顕著な影響を与えることが明らかにされた。特に、急激なダイナミクスの減速をもたらす構造的要因と構造に規制された粒子運動モードの特徴の関係を解明することで、ガラス転移に伴う急激なダイナミクスの減速の物理的起源について、新しい有用な知見を得ており、物理工学上も重要なものである。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。