

ガラス系の遅いダイナミクスの分子動力学シミュレーション研究

大阪大学大学院基礎工学研究科 氏名 金 鋼

目的 ガラス系は金属・高分子・コロイド・セラミックスなど展開は多岐にわたり、したがってガラスの基本原理を解明することは、基礎科学の問題としても工学上の問題としても重要な課題である。申請者らはガラスに関連する様々な系について分子動力学シミュレーションによる研究をおこない、知見統合を通じた問題解決および原理解明を目指している。

内容 直鎖状高分子は絡み合いによってダイナミクスが理解されるが、環状高分子に対する理論モデルは未だ確立していない。近年になって、環状高分子溶液体においてランダムに複数の高分子鎖をピン留めすると拡散が完全に抑制されることから、ガラスの遅いダイナミクスとのアナロジーが示唆され注目を集めている。我々はこれまでの研究で、ガラス形成液体の動的不均一性を定量化するのによく用いられているノンガウシアンパラメーター(NGP)を解析し、直鎖と環とで比較することで動的不均一性における形状の効果进行调查し、高分子鎖間の相互作用がNGPによって特徴づけられることを明らかにした。本研究では、鎖の硬さ・系の数密度を変化させることで、環状鎖の慣性半径がNGPの振る舞いに大きく影響していることを示した。

結果 環状高分子の重心変位のNGPの密度依存性を調査した。以降、NGPのピークの値を α_{\max} と書く。典型的には、ガラス形成液体においてはケージ効果の影響によって $\alpha_{\max} > 1$ 程度の値を取ることが知られる。柔軟な鎖では密度に依らずNGPは極めて小さな値を取る($\alpha_{\max} \leq 0.1$)。これは高分子の変位分布がほとんどガウシアンに従っていることを意味する。しかしながら、硬い鎖では密度の増加に伴ってNGPが増大することが観測された($\alpha_{\max} \sim 1$)。このNGPの密度依存性に対する鎖硬さによる増大は、環状高分子の動力学は空間的に不均一になっていることを示唆している。構造特性に対する鎖硬さの影響を調べたところ、隣接する鎖同士が反発し動的不均一性を誘起していることがわかった。

利用した計算機 SQUID

