

(京大院理・名大院理) 永田勇樹、谷村吉隆、斉藤真司

1. はじめに

ガラス物質は不規則構造を取っている為、通常の結晶とも液体とも異なる動径分布関数や、First Sharp Diffraction Peak などのガラス特有の構造因子が実験から得られ、それらは不規則な構造から凡そ理解できる類の性質である。一方でガラス物質は異なる構成分子によって多彩な性質を有しており、不規則構造で説明できるものか、個々の分子の個性として理解すべきものか区別できない現象がある。その一例が Boson Peak と呼ばれる、ラマン散乱でガラス物質に普遍的に見られる、低エネルギー領域でのスペクトルのピークである。現在 Boson Peak を説明するための種々のモデルが提案されており、一見それらの説明は成功しているように思えるが、異なるモデル同士が互いに矛盾する仮定を含んでいながら両者とも正当化されているような場合もある[1]。これは Boson Peak が含む情報量が少ない、もしくは粗いために、どのような運動モードに起因するか特定できないことと、運動モードがどのように観測量として表れるか理解できていないことに起因していると考えられる。即ち、上記のようなモデルが乱立する状況は、モデルを否定するだけの情報がないために出来上がった状況と呼べよう。

このような現状を打破するために、私達はガラス物質を二次元分光法で観測することを提案したい。二次元分光法の有用性は理論的[2]にも実験的[3]に示されており、例えば液体の均一広がり・不均一広がりを明確に区別できる。これは二次元分光法が

$$\langle r(t_1)r(t_2)r(0) \rangle$$

で表されるような多体相関関数に起因する観測量なので、ダイナミクスの違いに敏感に反応することができるからである。モデル毎の差異が得られたならば、それを実際に実験的に確かめるとか、第一原理計算で確かめるとかすることによって、ダイナミクスを支配する要因が何であるか究明することができよう。それらの情報が、ガラスダイナミクスの本質は普遍的な性質であるのか、個々の分子の個性が非常に強く働くのかといった疑問に光を投げかけてくれるだろうし、Boson Peak についてもガラスに普遍的な現象と見るべきか、メカニズムは個々の物質ごとに異なると考えるべきか明確な解答を与えてくれるだろうと期待している。

本講演では、(1).2 つのガラスのモデルを用いて、通常のラマン分光では得られない情報が二次元分光ではどのように得られるか、(2).一般的に2 体ポテンシャル関数に関して多体応答関数はどのような挙動を示すか、について話す予定である。

2. ガラスモデルによる多体応答関数の違い

金属ガラスにしても、高分子ガラスにしても動径分布関数や2体相関関数は似たようなグラフが得られ、そのモデルから観測量に差を見出すことは難しい。しかし二次元分光では、それらのモデルの差がはっきり表れることを示す。用いるモデルの概要は以下の通りである。

1. r^{-6} の2体ポテンシャル関数を持つ粒子系、金属ガラスでソフトモードができることを前提にしたモデルである。
2. 高分子を意識し、それぞれの粒子をバネで繋いだモデルである。結合のない粒子同士は r^{-12} の2体ポテンシャルで相互作用する。

3. 2体ポテンシャルに対する多体応答関数の挙動

二次元分光法はポテンシャルの非調和性や分極率の非線形性が応答関数に表れるため、通常の分光では得られなかった情報が得られるという利点がある[4]。それらはBrown運動モデルで解析されていたが、分子動力学計算によっても研究され、例えば $t_1 = t_2$ の領域ではエコーシグナルが観測されるのに対して、 t_2 軸に沿った部分にはポテンシャルの非調和性が強く表れることが知られている[5]。これらはBrown運動に対する非調和性の観点から研究されているが、一方、従来の分子動力学計算では2体ポテンシャルの柔らかさ(Softness)がどのように2体相関関数に影響するか調べられてきた[6]。これらの立場からも2体ポテンシャルの柔らかさが多体相関関数にはどのように影響するのか調べることは有意義だと思われる。

4. 参考文献

- [1] H. R. Schober and B. B. Laird, Phys. Rev. B **44**, 6746 (1991); M. C. C. Ribeiro, M. Wilson and P. A. Madden, J. Chem. Phys. **109**, 9859 (1998).
- [2] Y. Tanimura and S. Mukamel, J. Chem. Phys. **99**, 9496 (1993).
- [3] K. Tominaga, and K. Yoshihara, Phys. Rev. Lett. **74**, 3061 (1995); A. Tokmakoff and G. R. Fleming, J. Chem. Phys. **106**, 2569 (1996).
- [4] K. Okumura and Y. Tanimura, J. Chem. Phys. **106**, 1687 (1997).
- [5] S. Saito and I. Ohmine, J. Chem. Phys. **119**, 9073 (2003).
- [6] Y. Hiwatari, H. Matsuda, T. Ogawa, N. Ogita and A. Ueda, Prog. Theor. Phys. **52**, 1105 (1974).