

ガラス構造のトポロジカル解析

P53 Topological analyses on the structure of glass

小原真司 KOHARA.Shinji@nims.go.jp

物質・材料研究機構(NIMS)

1. 従来のガラス構造の記述法

我々の身の回りには窓ガラスをはじめとして様々なガラスが存在する。X線や中性子といった量子ビームを用いてガラスの回折パターンを測定すると、ガラスには結晶のような周期性が欠如していることから、ブロードなパターンしか得られない。また、結晶のような空間群や格子定数といった記述子、パラメータが存在しないことからその構造の解釈には困難が伴う。しかしながら、ブロードなパターンといて、それらをひとくりにガラス(アモルファス)と表現する限り、ガラスの構造・物性研究は今以上の進化は望めない。

古くから、ガラスの構造を記述する関数として二体分布関数 $g(r)$ が用いられてきた。 $g(r)$ はあるひとつの原子が原点にあるときに、距離 r だけ離れたところにもうひとつの原子を見いだす確率を表し、量子ビーム実験から得られた回折パターンを規格化し、フーリエ変換することにより実験的に得ることができる。

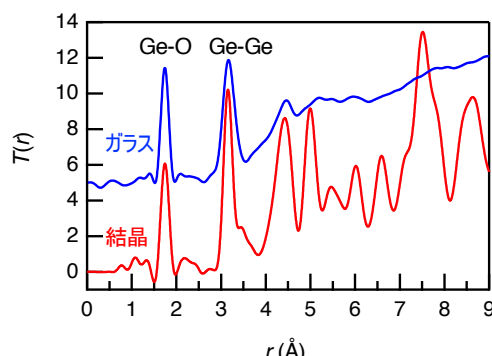
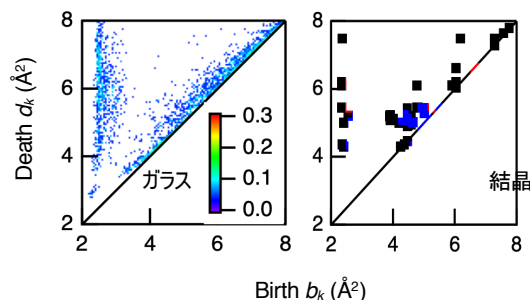
一例として、二酸化ゲルマニウム(GeO_2)ガラスと結晶のX線回折から得られた全相関関数 $\pi(r) (=4\pi r\rho g(r))$ 、 ρ は原子数密度)を図1に示す。 GeO_2 は単成分でも融体を急冷することによりガラスになるガラス形成物質であり、ガラスの短範囲構造は結晶と同じ GeO_4 四面体である。したがって図1に示すように 1.72 \AA に現れる Ge-O 相関のピークはほぼ等しい。この四面体が酸素を頂点共有して -Ge-O-Ge- のネットワーク構造を作ることが両者の共通点であるが、四面体のつながり方に規則性があるのが結晶であり、規則性が欠如しているのがガラスである。したがって、 $\pi(r)$ の 4 \AA 以上において、結晶はブラッグピークを反映した相関が長距離まで観測されるのに対し、ガラスはそういった相関を示さない。このデータはガラスの構造研究の困難さをよく表しており、実空間における二体相関による解析の限界を意味する。

近年では、計算機の演算能力の向上および計算機実験技術の進歩や解析コードの整備により、ガラスの計算機実験環境は大きく進歩した。また、データ駆動型構造モデリング法である逆モンテカルロモデリング(Reverse Monte Carlo, RMC)と分子動力学(Molecular Dynamics, MD)シミュレーションの組み合わせにより量子ビーム回折実験データを再現する構造モデルを構築することができるようになり、これらの構造モデルの3次元構造解析に我々は取り組んできた。

2. トポロジーに注目したガラス構造の記述

ブロードな回折パターンに隠れたガラス固有の中距離構造を考えるには $g(r)$ の二体相関では捕らえることのできないトポロジーを解析する必要がある。 GeO_2 ガラスのようなリングネットワークが支配的なガラスにおいて、我々はこれまでリングや空隙の解析を行ってきた

が、近年、リングサイズに加えて、リングや空隙の形を定量化できるパーシステントホモロジー法に注目し、二体相関に隠れたトポロジーの抽出に取り組んでいる。図2に SiO_2 結晶およびガラスの Si 原子のパーシステント図を示す。ガラスには death 軸に沿った特徴的なプロファイルが見られるが、このプロファイルは3つの結晶相のプロファイルを含んでいるところが興味深い。今後こういった解析を様々な系に適用することで、ガラス構造の特徴量の抽出ができると考えている。

図1 GeO_2 結晶・ガラスの全相関関数 $\pi(r)$ 図2 SiO_2 結晶(黒:クリストバライト、赤:石英、青:コーサイト)、ガラスの Si のパーシステント図

【共著者(所属)】

坂田修身(NIMS)・小野寺陽平(京都大学、NIMS)・平岡裕章(京都大学、NIMS)・大林一平(理化学研究所)・平田秋彦(早稲田大学)・志賀元紀(岐阜大学)

【関連プロジェクト】

情報統合型物質・材料開発イニシアティブ(MI²I)

【参考文献】

- [1] S. Kohara and P. S. Salmon, Adv. Phys.: X, **1**, 640–660 (2016).
- [2] S. Kohara, J. Ceram. Soc. Jpn. **125**, 799–807 (2017).
- [3] Y. Onodera et al., J. Ceram. Soc. Jpn. **127**, 853–863 (2019).