

# 準安定結晶構造探索とパーシステント・ホモロジー解析による アモルファス構造と結晶構造の橋渡し

○小林 正人<sup>1,2</sup>・宮越 洸二<sup>3</sup>・齊田 謙一郎<sup>1</sup>・小野寺 陽平<sup>4</sup>・

志賀 元紀<sup>5</sup>・小原 真司<sup>6</sup>・武次徹也<sup>1,2</sup>

(北大院理<sup>1</sup>、北大 WPI-ICReDD<sup>2</sup>、北大院総化<sup>3</sup>、京大複合研<sup>4</sup>、東北大 UDAC<sup>5</sup>、物材機構<sup>6</sup>)

ガラスをはじめとするアモルファスの構造秩序を定量的に評価する手法の一つとして、構造に内在する「穴」の特徴量を抽出するパーシステント・ホモロジー (PH) 解析が注目されている[1]。小野寺らは、 $\text{SiO}_2$  ガラスと様々な  $\text{SiO}_2$  結晶の PH を比較し、ガラスに含まれる穴には結晶に見られる穴が内包されていることを指摘している[2]。しかし、一般に知られている結晶構造は熱力学的な準安定構造のごく一部でしかないため、ガラスにみられる穴には起源の不明なものも散見される。そこで本研究では、人工力誘起反応法で網羅的に求められた 100 以上の  $\text{SiO}_2$  結晶構造[3]に対して PH 解析を行い、ガラス  $\text{SiO}_2$  の結果と比較した。さらに、単独ではガラスを形成しない  $\text{TiO}_2$  についても同様の手法で結晶構造とその PH 解析結果をデータベース化し、 $\text{SiO}_2$  と比較することでフラジリティ (ガラス形成能) との関連を調べた。

図(a)は MD 計算のスナップショット構造から得たガラス  $\text{SiO}_2$  のパーシステンス・ダイアグラム (PD) であり、図(b)は 1 atm の条件で得られた  $\text{SiO}_2$  結晶構造のうちヘルムホルツエネルギーで最安定な構造から  $0.25 \text{ eV}/\text{SiO}_2$  以内に含まれる 12 個の準安定結晶構造の PD を重ね合わせてプロットしたものである。ガラス構造で Birth = 0 付近で縦に伸びるプロファイル ( $C_P$ ) や Birth = 0.5~1.5 にかけて対角線の上部に二次元的に広がるプロファイル ( $B_0$ ) などが、結晶構造の重ね合わせでもよく再現されていることがわかる。図(c)は  $\text{TiO}_2$  結晶構造に対して図(b)と同様にして重ね合わせ PD を描いたものである。 $\text{TiO}_2$  の準安定結晶構造の数はこのエネルギー範囲で 24 個と  $\text{SiO}_2$  よりも多かったものの、 $\text{SiO}_2$  の重ね合わせ PD とは大きく異なり、プロットは特定のスポットに集中している。フラジリティには、構造の柔軟性ではなく、穴の柔軟性、特に 0 原子についてパッキングが低い構造を取りうることが重要であり、これは準安定結晶構造からも推定できることを示唆している。

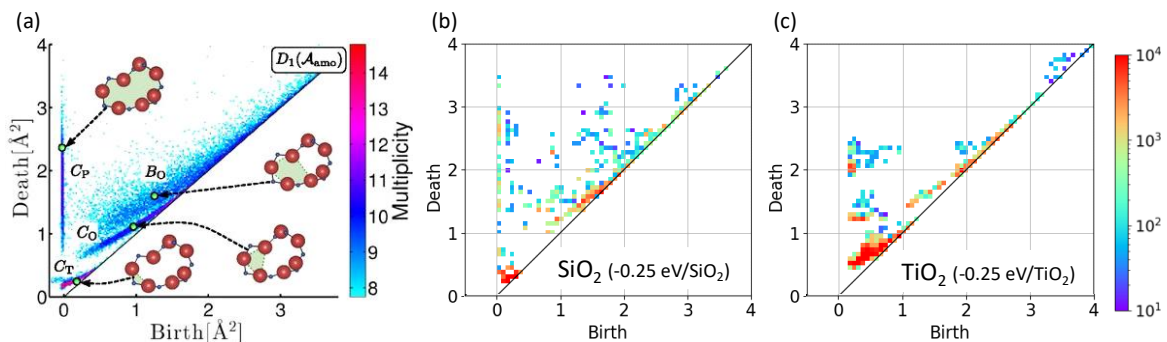


Fig. (a) PD of amorphous  $\text{SiO}_2$  from MD structure [1]. Superposition of PDs of crystalline structures of (b)  $\text{SiO}_2$  and (c)  $\text{TiO}_2$ .

[1] Y. Hiraoka *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci.* **113**, 7035 (2016).

[2] Y. Onodera *et al.*, *J. Ceram. Soc. Jpn.* **127**, 853 (2019).

[3] H. Nabata, M. Takagi, K. Saita, and S. Maeda, *RSC Adv.* **10**, 22156 (2020).