

平成30年6月14日現在

機関番号：15101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K05213

研究課題名(和文) ラグランジュ描像でのテンソル的統計量を軸とする塑性流動と乱流の理論の共同展開

研究課題名(英文) Joint development of theories of plastic flows and turbulence pivoted on tensorial statistical quantities in Lagrangian description

研究代表者

大信田 丈志(OOSHIDA, Takeshi)

鳥取大学・工学研究科・助教

研究者番号：50294343

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：食品や化粧品のような非結晶物質の固体化と流動化の機構に関する理論的な基礎研究として、コロイド系(多数の微小な粒子が水中に分散した系)における粒子の集団運動の様子を理論的に調べた。乱流理論の手法をコロイド系に応用することにより、内発的な運動と外発的な運動の関係に関して矛盾を起こさず、また粒子の運動の方向性を考慮できる理論的な枠組みを構築した。これにより、粒子がおこなう渦状の運動を理論的に再現することに成功した。

研究成果の概要(英文)：As a basic study on mechanism of solidification and fluidization of non-crystalline materials, commonly encountered as foods and cosmetics, a theoretical investigation was performed on collective motions of particles in colloidal systems (typically consisting of numerous small particles dispersed in water). Application of methods borrowed from theories of fluid turbulence to colloidal systems has allowed construction of a theoretical framework for considering the directionality of motion of the particles, without causing inconsistency in regard to the relation between the endogenous and exogenous motions. As a result, a vortical motion of colloidal particles was successfully reproduced by the theory.

研究分野：物理学(特に流体物理学およびレオロジー)

キーワード：ラグランジュ記述 変位相関テンソル 伸長率相関 乱流 コロイド系 一列縦隊拡散 モード結合理論 揺動応答関係式

1. 研究開始当初の背景

(1)我々人間の身のまわりにある様々なものの性質や仕組みを、微小な粒子の物理法則にさかのぼって理解しようとする試みが、過去数百年にわたって営々と続けられてきた。多くの場合、粒子一個の性質を知るだけでは不十分で、多数の粒子の集合体について統計的な挙動を解明する必要がある。

①この方面での最初の成功例は19世紀の気体分子運動論であった。しかし顕微鏡でも見えないような分子の運動に基づく理論には納得しない科学者も多く、激烈な論争が展開された。この論争に決着をつけたのが、20世紀冒頭に現れたブラウン運動の理論だった。ブラウン運動とは、たとえば水中の微粒子が熱的な揺らぎによる力を受けて行う不規則な運動のことである。ブラウン運動の理論に対して顕微鏡による定量的な検証が行われた結果、分子の存在も、それに基づく統計物理的な考え方も受け入れられるようになった。

②ブラウン運動の理論の要となる式は、系に内在する熱的な揺らぎによる拡散と、外力への応答による粒子の流れとの間に成り立つ比例関係を示している。内発的な運動と外発的な運動の関係を示すこの式は、のちの世に言う揺動応答関係式の最初の例であった。

③やがて、統計物理の方法は、特に結晶固体の分野において華々しく発展した。現代の我々の身のまわりにある多数の電子機器は、その成果としての半導体物理の産物である。

④結晶固体に比べると、液体や非結晶固体などでの統計物理の研究は大幅に出遅れざるを得なかった。気体と違って多数の粒子どうしが常にとなりあって互いの動きを妨げていること、また結晶と違って粒子の配置が不規則であることが、問題を難しくしている。それでも、近年の実験技術や数値計算の進展に伴い、このような系をも統計物理的に解明しようとする機運が高まっていた。

(2)我々の日常は、一方では水や金属や半導体など、結晶からなる物質にあふれているが、他方では食べ物や化粧品から足下の大地に至るまで、さまざまな非結晶固体に囲まれている。非結晶固体は、液体が結晶化せずに固体化したものと考えられる。その最も身近な例のひとつが熔融ガラスが冷えて固まる現象であることから、非結晶固体やそれに近い状態

にある系は（広い意味で）ガラス系と呼ばれる。ガラス系が固体化する機構は古くからの難問である一方、20世紀末から21世紀冒頭にかけて新たに活発な研究が進められた。

①ガラス系の素直な理論モデルは低温の分子液体の運動方程式だが、20世紀末になって、粉粒体など、分子以外の構成要素からなる非結晶物質との統一的研究の枠組みが提案された。もともとのガラスでは温度を下げたときの固化を考えていたが、広い意味でのガラス系では、密度の増大による固化や、非結晶固体に外力を加えることによる流動化（塑性流動）が議論されるようになった。

②実験技術や数値計算の進展に伴い、液体の研究においてコロイド系が格好の題材となった。コロイド系は多数のブラウン粒子からなる系であり、現代の技術なら、顕微鏡で3次元的な粒子配置を見ることができると言える。またブラウン運動の源となる熱揺らぎの性質は分かっているため、数値計算も比較的簡単に実装できる。特に濃密コロイド系はガラス系の典型例として注目されるようになった。

③分子液体やコロイド系に対する統計理論として、モード結合理論（MCT）が注目を集めた。MCTでは、系の流動性を、密度場（局所的な密度）の二時刻相関が熱揺らぎで消失する速さとして定量化する。二時刻相関とは、初期時刻での密度場と後の時刻での密度場とを比べ、同じ変動が生き残っている度合いを示すものである（全く無関係なものに置き換わった時点で相関はゼロとなる）。MCTによれば、温度の低下や密度の上昇に伴い、密度場の相関が消えるまでにかかる時間は無限大に発散するので、これでガラス系の固まる仕組みが解明できたかと思われた。よく調べてみると、これはガラスが本当に固まる場所ではなく単にその入り口をとらえたに過ぎないことが分かったが、それでもMCTはガラス系への重要な手がかりを与えるものという期待が生じ、その導出法を整備する試みや塑性流動への応用などが活発に議論された。

④ガラス系における粒子の運動には時間と空間の両方にまたがる相関があることが発見された。この相関は、直感的には粒子が集団的に（徒党を組んで）動くことを示しており、これについては次項(3)で改めて説明する。

(3)流動性が失われる機構としては粒子配置に何らかのパターンが生じると考えるのが自然

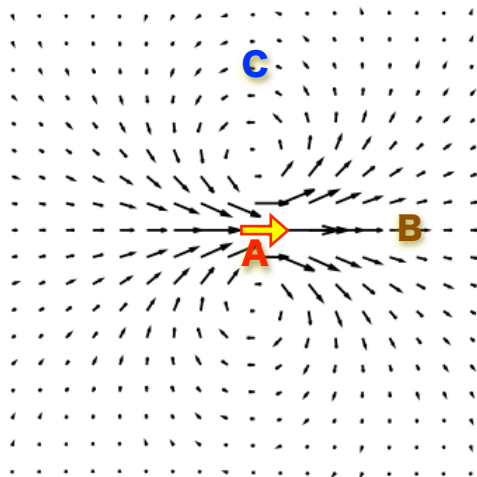


図1：コロイド粒子系の数値計算によって求めた変位相関。ある粒子Aが矢印の方向に動く場合に、それに伴って周囲の粒子がどの方向にどれだけ動くかを統計的に求めた。たとえば位置Bにいる粒子はAと同じ方向に動き、Cの位置ではAと逆方向に動くので、全体として渦状の動きになる。(Doliwa & Heuer, Phys. Rev. E, **61**, 6898 (2000), Fig. 8 を参考に、Ooshida et al., Phys. Rev. E **94**, 022125 (2016), Fig. 1 に基づいて作成)

だが、そのような配置パターンはなかなか見つからない。他方、粒子の配置（ある時刻での位置データ）ではなく、**変位**（ふたつの時刻での位置の差）に着目して濃密コロイド系の数値計算や顕微鏡画像を解析したところ、変位には明らかな空間的パターンがあることが分かった。たとえば、時刻 t_1 における粒子Aの位置が $\mathbf{r}_A(t_1)$ で、粒子Bの位置が…というデータがあったとして、ひとつの時刻 t_1 での位置だけを解析してもパターンは見いだしがたい。ところが時刻 t_1, t_2 の間の変位

$$\mathbf{R}_A = \mathbf{r}_A(t_2) - \mathbf{r}_A(t_1)$$

に着目すると、ある空間的な範囲にわたって粒子の動きに相関が見いだされた。

①多くの研究者は変位の大きさに着目し、大きく動いた粒子の隣には大きく動いた粒子がいる確率が高いこと、動かない粒子の隣には動かない粒子がいることを見いだした。つまり、変位の大きさに粒子を色分けすると、まだらな模様が見られる。このまだら模様は“動的不均一”と名付けられ、注目を集めた。

②一部の研究者は変位の大きさだけでなく方向も重要であることに気づいた。コロイド粒子系の数値計算結果を統計的に処理して変位の空間的なパターンを求めると、図1のような渦状の動きになる。中心に示されている粒子Aが矢印の方向に動いたとき、Bの位置にある粒子はAと同じ方向に動くが、同じ距離だけ離れたCの位置にある粒子はAとは逆方

向に動く。位置BとCの違いとは、位置ベクトルが粒子Aの変位に平行か垂直かという違いだから、両者を見分けるには変位の方向を考慮することが決定的に重要である。

(4)前項(2)(3)のようなガラス系の研究状況を背景に、直接には塑性流動の理論的解明を動機として、本研究代表者（大信田）らにより、流体力学の乱流の理論で用いられている手法をガラス系に応用する方法が提案された。これは「ラグランジュ記述」あるいは「ラベル変数の方法」という手法である。

①ラグランジュ記述とは、流体要素に仮想的なラベルを貼り、そのラベルを追跡する方法である。乱流の研究では、MCTに似た、速度の相関関数に対する「直接相互作用近似」という理論が作られていて、ここで通常の変数（オイラー記述）による相関関数を用いると実験と合わない結果が出るのに、ラグランジュ記述ならば実験と合う。これは、ラグランジュ記述により乱流中の渦構造の変化に焦点を合わせた理論が可能になるためである。

②ラグランジュ記述をガラス系に応用する可能性を探る科研費プロジェクトが「塑性流動の新理論に向けての統計力学と流体力学のコラボレーション」〔基盤（C）21540388〕として2009年に採択された。その成果として、まずは1次元のコロイド系の遅い拡散現象である**一列縦隊拡散**（SFD）の理論を作ることに成功した。この理論は2次元以上のコロイド系の理論の雛形となるもので、特に**変位相関**の計算を可能とする仕組みを含んでいる。

2. 研究の目的

申請時においては以下のことを目的とした。

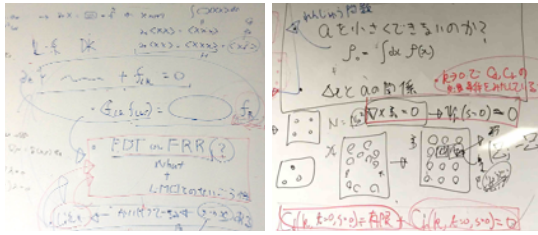


図2：実際の議論の跡を残すホワイトボードの写真

(1)既に述べたとおり、2009年からの一連の科研費プロジェクトによって、ガラス系の理論にラグランジュ記述の方法を持ち込むアイデアが有効である可能性が見いだされた。この可能性を、2次元のコロイド系に対する統計理論として具体化する。その際、旧来のMCTが密度というスカラー量（方向性を持たない物理量）を主に扱っていたのに対し、本研究ではベクトルやテンソルといった方向性を持つ量を主役として理論を組み直す。

(2)図1に示したような、コロイド粒子が徒党を組んで渦状の運動を行う様子を解明し、そこから読み取れる情報を定量化する。

(3)濃密コロイド粒子系に対し、外部から剪断応力をかけると、固体状態から流動状態への変化が起きる。このような流動化（塑性流動）に関する定量的な法則の導出を目指す。

(4)コロイド系の理論で得られた成果や方法を乱流理論にフィードバックする。たとえば剪断状態にあるコロイド系の理論は剪断乱流の研究に役立つことが期待される。

3. 研究の方法

(1)旧プロジェクト〔基盤 (C) 21540388 および 24540404〕の経験を踏まえて、メンバー全員が一堂に会して議論することを重視し、3年間に13回のセミナーを実施した。

①セミナーでは、研究の進捗状況を報告するとともに、理論的な計算の内容や数値計算の方法、論文原稿の推敲、新たな着想などについて密度の高い議論を行った。つまり、準備した資料を配布したりスライドを見せたりするだけでなく、さらに、その場で具体的な数式などを書きながらアイデアを出し合う場としてセミナーを位置づけた。議論のあとは図2のようなホワイトボードの写真を共有し、その後の研究に反映させるようにした。

②夏には2泊3日の研究合宿の形でセミナーを開催した。講師として、ガラス系の理論に関する最先端の研究者を招き（図3）、最先

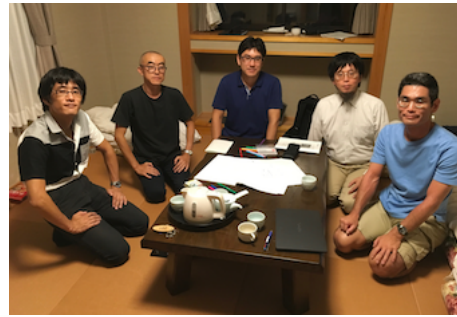


図3：夏合宿(2017年9月)。中央に写っているのが講師の川崎猛史氏である。机の上には、ホワイトボードの代わりに用いたスケッチボードとペンが見える。

端の知識を得る一方、我々の研究の内容や進捗状況について説明し、有益な助言を得た。

③毎年秋または冬には「鳥取非線形研究会」を開催し、コロイド系や流体・粉粒体はもちろん、破壊モデル、地震や火山、さらには歯車の非線形振動に至るまで多彩な分野の研究者を迎えて議論を行った。特に、将来を担う若手に研究成果を還元するため、大学院生の研究発表に対する支援枠を設けた。参加者からは「良い刺激になりました」「みなさんのコメントがどれも好奇心から発生した、レベルの高いもので、しかもことごとくポジティブである、という夢のような研究会でした」という感想が寄せられ、研究成果を今後の発展につなげる建設的な議論の場として研究会が有効に機能したことが伺える。

(2)コロイド系および乱流において、必要となる統計量を直接的な数値計算から求めるプログラムを開発し、実行と検証を行った。

①コロイド系のモデルである相互作用ありランジュバン方程式で、特に準1次元系を模擬した場合の数値計算をおこない、変位相関や伸長率相関などの統計量を計算した。

②2次元のコロイド系のモデル方程式の数値計算と、それに基づく変位相関テンソルの計算を行った。別々に開発した複数のプログラムで実行結果を比較したほか、前述したセミナーでの議論を通じて問題点を探し、静的構造因子を再計算するなどして、理論との整合性が確かめられるまで検証を続けた。

③流体乱流の基礎方程式であるナビエ・ストークス方程式の直接数値計算に基づき、速度場のオイラー相関およびラグランジュ相関と、対応する応答関数を数値的に求めた。プログラムの妥当性に関しては、位置関数や局所ヘリシティなどのラグランジュ的な量を含む恒等式を利用した検証を行った。

4. 研究成果

(1)変位相関を理論的に求める枠組みを定式化した (n 次元AP公式)。1次元AP公式では、密度の逆数のラグランジュ相関を考えていたが、これを単純に2次元以上に拡張してもうまくいかない。変位がベクトルであることを考え、密度場の代わりに変形勾配テンソルを用いるという旧プロジェクトでのアイデアを、きちんとした公式の形に仕上げ、応用例とともに論文にまとめた。

(2)図1に示したような2次元コロイド系での渦状の運動を、**変位相関テンソル**として理論的に計算することに成功した (図4)。

①変位相関テンソルを求めるには、変形勾配テンソルの相関を計算してAP公式に代入すればよい。必要な相関はラグランジュ的MCTによって得られるはずだが、非常に複雑でつかいにくい式となるため、まずは記憶積分と呼ばれる面倒な項を完全に省略した計算結果を用いて様子を見ることにした。すると、これだけで渦の大まかな形が再現できてしまった。ただし図の中心付近の様子だけは合わない。②続いて、次項(3)に示す解析結果を参考に、記憶積分の効果を単純な係数に置き換えて取り込んでみた。この方法で計算したのが図4であり、係数の値を調整すると、図1の結果をほぼ完全に再現できることが分かった。

(3)ラグランジュ的MCTの具体的な取り扱いや解の定性的挙動に関する研究を進めた。

①今までの準備に基づいて素直にMCT方程式を導出すると、無限に遠い過去からの積分を含む項が現われる。このような非常に扱いにくい項を回避するための通常の方法は、方程式系の一部を捨てて揺動応答関係式に置き換えることであるが、我々は、それに代わる方法を見いだした。無限の過去からの積分の代わりに時刻ゼロで平衡状態に相当する条件を与えれば、あとは揺動応答関係がひとりで満たされる。液体や流体のラグランジュ記述では“ラベルを貼る時刻”を遠い過去には設定できないため、この方法で無限の過去からの積分を回避できるのは重要な意義がある。②複雑なラグランジュ的MCTを単純化して定性的な挙動を知るため、ロイトホイサー近似という方法で簡略化した方程式系を解析した。予備的な数値解析により記憶積分項の効果を検討し、上記(2)②につながる知見を得た。

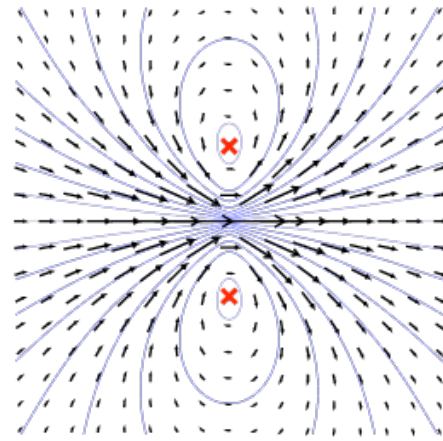


図4：本研究で開発した手法によって理論的に求めた変位相関。矢印の意味は図1と同じである。2次元コロイド系において粒子が渦状に動く様子が理論的に再現できていることが分かる。(Ooshida et al., Phys. Rev. E 94, 022125 (2016), Fig. 7 に基づく)

(4)コロイド粒子系の数値計算とラグランジュ的な理論を結ぶ、新たな解析法を提案した。

①濃密コロイド系の“固体らしさ・液体らしさ”に関する情報を図1や図4の渦の形から読み取れる可能性に着目し、図4に×印で示した渦中心の間の距離を用いたコロイド粒子系のデータの解析手法を提案した。この方法が確立されれば、ガラス系の固化に対する新たなアプローチの道が開けることになる。②有限の距離だけ離れた2個の粒子間の距離の時間変化に着目し、**伸長率相関**というラグランジュ的な統計量を定義した。伸長率相関は準1次元コロイド系(追い越しあり一列縦隊拡散)の解析で特に有効であることを示し、さらに塑性との関連についても論じた。

(5)コロイド系および流体乱流における揺動応答関係式についての研究を進めた。

①流体乱流の場合、エネルギー散逸がない仮想的なモデルでは平衡系の揺動応答関係が成り立つ一方、外力によるエネルギー注入と粘性による散逸がある通常の乱流では揺動応答関係は平衡系のものとは異なるはずである。この観点から、流体乱流における速度相関と応答関数の数値計算を行った。②一列縦隊拡散(1次元コロイド系)で、変位相関に対応する2粒子の応答関数に着目し、揺動応答関係式の導出と検証を行った。③一列縦隊拡散において、絶対零度に相当する初期条件(1次元完全結晶)から有限温度の平衡状態に緩和する場合を考え、非平衡な揺動応答関係式に関する研究を進めた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕（計4件）

- ① Ooshida Takeshi & Michio Otsuki: “Effects of Cage-Breaking Events in Single-File Diffusion on Elongation Correlation”, *Journal of the Physical Society of Japan* **86** (2017) 113002 [査読あり]
DOI: 10.7566/JPSJ.86.113002
- ② Ooshida T., S. Goto, T. Matsumoto, & M. Otsuki: “Calculation of displacement correlation tensor indicating vortical cooperative motion in two-dimensional colloidal liquids”, *Physical Review E* **94** (2016) 022125 [査読あり]
DOI: 10.1103/PhysRevE.94.022125
- ③ T. Ooshida, S. Goto, T. Matsumoto, & M. Otsuki: “Insights from single-file diffusion into cooperativity in higher dimensions”, *Biophysical Reviews and Letters* **11** (2016) 9-38 [査読あり]
DOI: 10.1142/S1793048015400019
- ④ Ooshida T., S. Goto, T. Matsumoto, & M. Otsuki: “Displacement correlation as an indicator of collective motion in one-dimensional and quasi-one-dimensional systems of repulsive Brownian particles”, *Modern Physics Letters B* **29** (2015) 1550221 [査読あり]
DOI: 10.1142/S0217984915502218

〔学会発表〕（計22件）

- ① 大信田丈志ほか：「コロイド液体における横変位相関の符号持続長」日本物理学会第73回年次大会（東京理科大2018年3月）
- ② 松本剛ほか：「流体乱流のEuler速度相関関数とLagrange速度相関関数をめぐる数値的考察」鳥取非線形研究会2017
- ③ 大信田丈志ほか：「一列縦隊拡散における伸長率相関とその2次元系への拡張」日本物理学会2017年秋季大会（岩手大）
- ④ Ooshida T. et al.: “Calculation of displacement correlation tensor indicating vortical collective motion in two-dimensional systems of Brownian particles”, *Liquids 2017: 10th Liquids Matter Conference* (Ljubljana, Slovenia)
- ⑤ T. Ooshida et al.: “Collective motion of repulsive Brownian particles in single-file diffusion with and without overtaking”, *SigmaPhi 2017: International Conference on Statistical Physics 2017* (Kerkira, Greece)
- ⑥ Ooshida T. et al.: “Calculations of deformation gradient correlation in a 1D system of Brownian particles”, *Nara Workshop on Nonlinear Dynamics 2016 Dec.*
- ⑦ Ooshida T.: “Analytical treatment of collective motion in colloidal liquids”,

International Workshop on Hydrodynamic Flows in/of Cells（首都大2016年11月）

- ⑧ 松本剛ほか：「一様等方乱流のフーリエモードの揺動応答関係の一表現」流体物理学学会年会2016（名古屋工業大学）
- ⑨ 大信田丈志ほか：「非平衡な一列縦隊拡散における揺動応答関係とLagrange的MCT」日本物理学会2016年秋季大会（金沢大学）
- ⑩ 大信田丈志：「協同運動による異常拡散としての一列縦隊拡散」研究会《異常拡散現象をめぐる最近の進展》（慶應大2016年9月）
- ⑪ T. Ooshida: “Analytical calculation of displacement correlation tensor: toward Lagrangian mode-coupling theory unifying liquid-based and solid-based approaches to colloidal glasses”, *Statphys26 satellite meeting: Statistical physics of materials* (Aussois, France, 2016)
- ⑫ 大信田丈志ほか：「エイジングのある一列縦隊拡散とLagrange的MCT」日本物理学会第71回年次大会（東北学院大2016年3月）
- ⑬ Ooshida T.: “Calculation of displacement correlation indicating vortical cooperative motion in two-dimensional colloidal liquids”, *YITP Workshop: Avalanches, plasticity, and nonlinear response in nonequilibrium solids* (2016)
- ⑭ 大信田丈志ほか：「ゼロ振動数モードを含む一般化Leutheusser方程式の漸近挙動」日本物理学会2015年秋季大会（関西大学）

6. 研究組織

(1)研究代表者

大信田 丈志 (OOSHIDA Takeshi)
鳥取大学・工学研究科・助教
研究者番号：50294343

(2)研究分担者

後藤 晋 (GOTO, Susumu)
大阪大学・基礎工学研究科・教授
研究者番号：40321616
松本 剛 (MATSUMOTO, Takeshi)
京都大学・理学研究科・助教
研究者番号：20346076

大槻 道夫 (OTSUKI, Michio)
島根大学・総合理工学研究科・講師
研究者番号：30456751

(3)連携研究者

狐崎 創 (KITSUNEZAKI, So)
奈良女子大学・自然科学系・准教授
研究者番号：00301284