

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 20 日現在

機関番号：82626

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K13530

研究課題名(和文)パーシステントホモロジーを用いた非晶質の統計物理学

研究課題名(英文)stochastic physics of disordered systems by persistent homology

研究代表者

中村 壮伸(Nakamura, Takenobu)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員

研究者番号：10642324

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,100,000円

研究成果の概要(和文)：パーシステントホモロジーが非晶質構造の記述に有効であることを発見した。特筆すべき成果としては、(1)シリカガラス、金属ガラスと呼ばれる質的に異なる形態をとる非晶質構造を統一的に扱うことが可能であること(2)乱れた構造の中に隠された秩序構造を抽出することが可能であることなどがあげられる。さらに乱れた構造の記述手法を用いて物性との相関を議論する枠組みの構築した。具体的にはパーシステントホモロジーのような抽象的に定義された変数に対し、自由エネルギー計算を行う手続きを、確率過程を用いて定式化した。

研究成果の概要(英文)：We have found that persistent homology is useful for describing amorphous structures. As a remarkable result, (1) it is possible to handle amorphous structures that take qualitatively different forms called silica glasses, metallic glasses in a unified way (2) a hidden structure embedded in the disordered structure can be extracted by the persistent homology. Furthermore, we have developed a framework to express the physical properties by using the method to represent disordered structure. Specifically, we have developed the procedure to calculate free energy landscape for abstractly defined variables such as variables in persistent homology by using stochastic process.

研究分野：統計物理学

キーワード：統計物理学 パーシステントホモロジー トポロジカルデータ解析 確率過程 自由エネルギー

1. 研究開始当初の背景

(1) 非晶質(アモルファス)構造をもつ物質は工学的な目的から実験、理論ともに数多くの研究がなされているが、理論的な定式化は結晶固体や液体と比べると現在においてもなお発展途上の段階である。結晶では原子配置の構造と巨視的物性の対応、散乱実験のデータ解析などはすべて動径分布関数や散乱因子という量で定式化できることが知られているが、非晶質に典型的に現れるとされている構造は上記の量だけでは十分良く記述することができないということが主な原因である。そのため新たな数学的な記述言語が待望されている。

(2) 本研究計画ではパーシステントホモロジーという、21世紀に入って誕生した数学的手法を用いて、非晶質構造の新しい定式化を試みる。非晶質を特徴付ける構造の担い手と信じられている多様な多体構造を記述するには、従来の手法では原子数や原子間距離に閾値のチューニングが必要であった。パーシステントホモロジーは閾値の変遷を系統的に追う手法であるため、構造の汎用的な記述手段となる可能性を持っている。しかしながらこの手法の基礎が従来理論物理で標準的に用いられている数学と異なることが分野横断型研究の障壁となり、申請時の時点では材料科学への適用例は国外では数例、国内では申請者をはじめとした数名しか研究していなかった。さらに、構造の特徴付けの先にあるべき物性との関係を与える普遍的枠組み(すなわちパーシステントホモロジーによる統計熱力学)は存在しなかった。

2. 研究の目的

本研究の目的は典型的な非晶質構造の記述を例として、物性構造相関を記述するための汎用的な枠組みの構築を目指すことである。そのためにやるべき戦略として以下の課題が考えられる。

(1) まず、汎用性のある表現手法による代表的な非晶質構造の記述枠組みの構築が必要である。代表的なガラス構造は2種類の極端な構造として表される。金属ガラスや分子性液体のような方向性のない相互作用、もしくは有効半径がほぼ均一であるとみなせる相互作用をしめす原子・分子から形成されるガラス構造はランダム充填構造と呼ばれ、最近接原子数である配位数がゆらぐ。他方、シリカガラスに代表される共有結合性の材料では連続ランダムネットワークとよばれる構造をとり配位数一定のままネットワーク構造がゆらぐ。これらの構造は従来まったく異なるデータ解析手法で特徴の評価がなされていた。パーシステントホモロジーは穴に注目する数学的手法であるが、連結成分、リング、空隙という異なる次元の穴を統一的に扱う手法である。この性質に注目し、の構造を統一的に扱いかどうかを問う。

(2) 構造の安定性や変化を定量化するには構造を記述する汎用的手法開発に加えて、与え

られた記述変数を用いた自由エネルギーの評価が必要になる。パーシステントホモロジーの可視化手法の一つであるパーシステンスダイアグラムは分布関数として扱う事が可能であるが、変数の定義が従来の分子科学などで標準的に用いられて来た反応座標とは大きく異なる。具体的には分布を構成する穴という図形を構成するのに必要な原子の数が状況により可変であることや、分布に表れる点の数そのものが可変である事などがあげられる。前者により射影の具体的な関数形を与えて計算するような理論の構成が非常に困難となり、後者により粗視化記述がカノニカルアンサンブルとして取り扱う際に特別の注意が必要になる。これらの問題はパーシステントホモロジー固有の問題であるため、分布関数理論を使って自由エネルギー計算を行う際に従来の計算手法をそのまま使う事は許されず、パーシステントホモロジーの特殊性を尊重した統計力学への適用方法を開発する必要がある。

3. 研究の方法

(1) 前者の問いに対する研究として、シミュレーションによるガラスの代表構造の作成と得られた構造に対するパーシステントホモロジーによる解析を行った。Cu_xZr_{1-x}型合金とシリカガラスをそれぞれ充填構造とネットワーク構造の典型例として選び分子動力学計算によりガラス構造を得る。多くの場合、金属ガラスは三成分以上の合金によって達成される事が知られているが、本研究では簡単のため二成分系で例外的に金属ガラスが実現するCuとZrの合金型を例として選ぶ。相互作用は金属を表現する最も単純なモデルである embedded atom model(EAM)ポテンシャルを用いる。この系は金属ガラスのある種のモデル系とみなされており、構造によるガラスの特徴付けに関する多数の先行研究が存在する。本研究ではそれらの解析との整合性とおさえた上でパーシステントホモロジーによる新規な構造の表現があり得るかどうかを問う。シリカガラスはBeest Kramer Santen(BKS)ポテンシャルと呼ばれる相互作用モデルを用いる。このモデルではシリカの結晶多形(polymorphism)を比較的単純な相互作用だけで実現できることが知られている。そのため、このモデルの場合もシリカガラスの構造解析を行う際のある種のモデル系とみなされ、多数の構造解析の先行研究が存在するという利点がある。これらの系を十分高温の液体状態で平衡化した後、シミュレーションで標準的に許容される冷却速度で冷却した後にエンタルピーの温度依存性を通じてガラス転移を確認し、ガラス転移点から十分はなれた低温状態の構造に対してパーシステンスダイアグラムの計算を行った。

(2) 後者の問いに関して、パーシステンスダイアグラムが形を与える変数で与えられるという点に注目して、そのような変数を引数

に持つ熱力学関数(自由エネルギー地形)が満たすべき性質について理論的考察を行った。形を与える変数の分布から自由エネルギーを計算するという点では、動径分布関数が相対座標に関する平均力ポテンシャルを与えるという統計力学から得られる性質が知られているが、パーシステンスダイアグラムに対しても同様の性質を期待してよいのかどうかという点について比較検討を行った。

4. 研究成果

(1)金属ガラスでは液体状態の動径分布関数の第二ピークがガラス状態になると分離することが知られていた。またシリカガラスでは構造因子にするどい第一ピークをもつ

(first sharp diffraction peak : FSDP)ことが知られていた。我々はパーシステンスダイアグラムが(i)階層構造をもつ穴と持たない穴を区別できるという性質と(ii)ダイアグラム上の点が対角線からの距離(life parameter)が大きいほど外部からの摂動に対して頑健性をもつ、という2つの性質を満たすことに注目し、階層性を持ち大きな頑健性をもつ穴の長さスケールを計算した。その結果、そのような穴がこれらの構造の担い手になっているという事を確認した。金属ガラスの場合には対象とする穴は2次元ホモロジー群、つまり空隙のなかで階層構造を持つものが動径分布関数の分裂した第二ピークの長さスケールを与えることが、シリカガラスの場合は1次元ホモロジー群、つまりリングのなかで階層構造を持つものが FSDP の長さスケールを与えることがそれぞれ確認された。これによりガラスに表れる特徴的構造がパーシステントホモロジーを用いる事で階層性を持つ穴として統一的に扱う事ができるということがわかった。

特にシリカガラスの場合については2次元の散布図であるパーシステンスダイアグラムのサポートが局所的に一次的になっている箇所が見つかった。これは穴の形状に拘束条件がある事に対応することが明らかになった。ここで見つかった拘束条件は乱れた構造の中に隠された秩序構造の存在を意味する。力学的な変形や熱揺らぎなどはこの拘束条件を満たす範囲で起こるという事もシミュレーションの結果からわかった。この結果はガラスの構造が単なるランダムな構造ではないという事を表現するものである。

(2)(1)をふまえ、頑健性の大きな穴というのがガラスをよく表現する構造の単位であるという仮定のもと、剪断変形による降伏においてガラスの微視的構造がどのように変化するかについてパーシステントホモロジーによる解析を行った。その結果、降伏を起こさない限りは大きな頑健をもつ穴の数は統計的な誤差の範囲内で保たれており、降伏の前後でそのような穴の数が変化するという事を確認した。

(<https://arxiv.org/abs/1712.09785>)

(3)形を表す変数に基づく自由エネルギーの構築には、パーシステントホモロジー固有の問題以前に、そもそも形を表す変数を用いて自由エネルギーを定義する際にきわめて一般的な状況下で自由エネルギーが計量依存性を持つという理論的な問題が存在する事が知られていることがわかった。我々は自由エネルギーが反応経路や反応障壁を表現するものであるという条件から、計量を拡散テンソルで与えると良いという条件を同定した。(<https://arxiv.org/abs/1803.09034>)この結果をパーシステントホモロジーに適用するにあたり、パーシステンスダイアグラムの時系列データ解析が必要であることが確定し、原理的には quiver の表現論がデータ解析の実装に必須である事がわかった。さらに、対象とする系を有限時間で必ず緩和する巨視的一様系などに制限する事で、パーシステンスダイアグラムが特別な性質をもたせ、表現論を使う計算方法を避ける近似的な計算方法が可能である事を発見し、現在具体的な計算の実装方法の開発に着手している。以上の結果を組み合わせたものが、本研究計画が目的として設定した、統計力学とパーシステントホモロジーを組み合わせた構造物性相関を与える理論的枠組みのプロトタイプに相当するものである。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

PNAS June 28, 2016. 113 (26) 7035-7040; Y. Hiraoka, T. Nakamura, A. Hirata, E. G. Escobar, K. Matsue, and Y. Nishiura

〔学会発表〕(計 7 件)

日本物理学会 2015 年秋季大会 パーシステントホモロジーを用いた様々なアモルファス構造の記述 中村壮伸 平岡裕章 平田秋彦

日本物理学会 2016 年秋季大会 対象点除去法とパーシステントホモロジーを用いた局所構造の抽出 中村壮伸, 白井達彦

日本物理学会 2016 年秋季大会 パーシステントホモロジーを用いた乱れた系の構造物性相関の探索 白井達彦, 中村壮伸

日本物理学会 第 72 回年次大会 乱れた系で起こるシアバンドのミクロな構造から見た解析 白井達彦, 中村壮伸

日本物理学会 第 72 回年次大会 パーシステントホモロジーによる単成分系の構造の記述 中村壮伸, 白井達彦

日本物理学会 2017 年秋季大会 自由エネルギー地形を適切に与える反応座標の構成方法 中村壮伸

日本物理学会 第 73 回年次大会 深層学習を用いたガラスの特徴的構造抽出 大山倫弘, 中村壮伸

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

取得状況(計 0 件)

〔その他〕
ホームページ等
なし

6. 研究組織

(1)研究代表者
中村 壮伸 (NAKAMURA Takenobu)
産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員
研究者番号：10642324

(2)研究分担者
なし

(3)連携研究者
なし

(4)研究協力者
なし