

令和 6 年 6 月 17 日現在

機関番号：15101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2023

課題番号：18K03459

研究課題名(和文) 流れない液体の時空構造の第一原理的解明を目指す液体論と乱流理論の共同展開

研究課題名(英文) Joint development of theories of liquids and turbulence toward first-principles-oriented clarification of space-time structures in liquids that do not flow

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) 2,700,000円

研究成果の概要(和文)：液体を濃密にすると流動性が失われて非結晶固体となる現象の機構を理論的に解明するために、液体を構成する粒子の運動の時空構造を調べた。コロイド粒子の変位の計算に乱流理論の手法を応用することで、粒子の協同運動を示す統計量に対する解析的なアプローチが可能となる。これと数値計算を組み合わせ、たとえ流動性が失われるには至らない程度の濃度であっても、粒子が互いの運動を妨げ合う効果が、ある程度の広がりをもつ時空相関として検出できることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

非結晶固体や濃密液体は、我々の日常生活に欠かせない存在でありながら、その挙動の第一原理的な解明は統計物理における難問であり続けている。他方、数値計算や実験技術の進展に伴い、前世紀末から今日に至るまで多くの研究が報告されており、非常に関心の高い分野である。このような分野において、本研究は、基礎方程式に基づく解析的な手法の開拓と具体化を目指した。その過程で得られた変位相関の挙動に関する知見は、今後、この分野での第一原理志向の理論の構築に手がかりを与え、また理論の試金石となることが期待される。

研究成果の概要(英文)：With the aim of theoretical clarification on the phenomenon that densified liquids lose fluidity to become amorphous solids, we investigated space-time structures of the motion of particles comprising the liquid. Application of methods from theories of turbulence to calculation of colloidal particle displacements allows us to approach, in an analytical manner, statistical quantities indicating cooperative motions of the particles. By combining this approach with numerical calculations, it is found that the effect of the particle interactions, mutually blocking the motion, can be detected in the form of space-time correlations extending for some distance, even in liquids with density so modest that the fluidity still remains.

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：ラグランジュ的な相関 揺動応答関係 変位相関 剪断歪み相関 応答関数 コロイド液体 一列縦隊 拡散 乱流

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

(1) コロイド液体や粉粒体ペーストなどは、液体的なランダムさを持った系でありながら、溶質粒子の密度を上げるにつれて流動性を失い、"流れない液体"とも言うべき非結晶固体の状態に転移する。さらに、外力をかけると、塑性変形の形で流動性が復活し"流れる固体"とも呼ぶべき挙動を示す。このとき溶質粒子のスケールで何が起きているのか、結晶化以外の何がどうやって流動を妨げているのかという問題は、古くからの難問であるとともに、化粧品や食品から地震の機構にまで波及する重要なテーマである。

(2) 前世紀末以来の数値計算や実験技術の進展に伴い、上記のような"流れない液体"への転移を示す代表的な例である剛体球コロイド液体などにおいて、粒子スケールでの運動の様子を詳しく調べる研究が盛んに行われた。このような系では、まだ流動性のある通常の液体状態の範囲内であっても、粒子が互いの運動を妨げあうために、個々の粒子のバラバラな運動が抑制され、多くの粒子が協調した運動が生じる。

このような協同運動の指標として、時間と空間にまたがるさまざまな統計量が提案され、数値的に調べられた。たとえば、粒子の変位（ある時刻から別の時刻までの位置の変化）に基づいて、基準値以上の大きな変位を生じた粒子が空間的にどのように分布しているかを示す統計量などが活発に研究され、少なくとも数値的なデータとしては、協同運動の様子が次第に分かってきた。

(3) 近年になって、コロイド液体における協同運動すなわち粒子の運動の時空構造と、より高濃度で見られる固体的な挙動との関係を探るために、変位の大きさだけでなく方向を重視する研究が行われるようになった。方向が重要となる理由は、圧縮に対する弾性は液体にも固体にも存在する一方、剪断に対する弾性は固体の特徴であり、圧縮と剪断を区別するには何らかの形で変位の方向の情報が必要だからである。

① たとえば2粒子の変位の相関は、粒子の位置と変位の方向の関係を考慮すると、縦相関と横相関に分けることができる。実際、高密度の"流れない液体"においては、変位相関を縦相関と横相関に分けて調べることで、固体らしさの指標である剪断弾性の情報が得られる。

② 他方、剪断外力をかけた"流れる固体"の状態にある粉粒体の塑性流動の研究をきっかけに、弾性体の剪断歪みに基づく統計量（剪断歪み相関）が盛んに調べられた。その結果、剪断歪みの相関は特徴的な4倍角パターンを示すことが知られるようになった。これは局在した塑性変形に対する弾性体の応答として解釈できる一方、固体には程遠いような比較的低い密度のコロイド液体でも同様な4倍角パターンをもつ剪断歪み相関が検出され、マクロな弾性に先立つミクロな弾性の現れとして注目された。

(4) ここまでに述べてきたような協同運動の時空構造に関する研究は、大部分が数値計算によるものか、そうでなければコロイド粒子の顕微鏡観察によるものであり、基礎方程式に基づく解析的な研究は困難に阻まれていた。しかしそのなかで、本研究メンバーが2017年までに科研費（15K05213）の支援で行った研究により、そのような時空構造に関する統計量のひとつである変位相関の解析的計算を可能とするアイデアが示された。アイデアの要点は、空間に固定した座標系の代わりに、粒子の集団に貼り付いて動く曲線座標系を導入して、その曲線座標系のうえで統計量を考えるところにある。この方法は、コロイド液体系と同じくランダムな動的機構の挙動を扱う乱流の理論にヒントを得たもので、流体力学でいうラグランジュ的な記述（流体粒子を追跡する記述）を粒子スケールの液体論に持ち込む考え方である。

(5) 基礎方程式に基づいて濃密液体や乱流の統計量を扱う理論には、内発的な揺らぎの程度を示す「相関関数」と、外発的な変化の起きやすさを示す「応答関数」が現れる。両者の対応関係は揺動応答関係と呼ばれ、熱平衡系では両者は等価であることが分かっている。しかし、乱流

のような非平衡系での揺動応答関係は自明ではない。乱流の統計理論はさまざまなバージョンがあり、ある理論によれば平衡系と同じ揺動応答関係が成り立つが、別の理論ではそうになっていないなど、いささか混乱した状況が見られた。特に、乱流においては、オイラー記述（通常の空間固定座標系による記述）とラグランジュ記述の違いを反映して、ラグランジュ的な相関関数の重要性が古くから指摘されているが、対応するラグランジュ的な応答関数の挙動は実験や数値シミュレーションで確かめられていなかった。

2. 研究の目的

(1) 上記「研究開始当初の背景」で述べたとおり、非結晶固体での"固体らしさ"に迫るための手がかりは、粒子の運動の時空構造にある。本研究では、この認識を動機として、流体乱流の理論からラグランジュ的な相関の考え方を液体論に導入するというアイデアに基づき、コロイド液体における変位相関の解析的な計算手法を具体化することを当初の目標とした。この目標は、時空間的な統計量の解析的計算を通じて濃密コロイド系における剪断弾性の発現機構の解明につながる"流れない液体"の理論を構築するという遠大な研究目的の一部をなすものである。

(2) 流体乱流の統計理論の手法を輸入してコロイド液体の統計理論を発展させる過程で得られる知見には、乱流理論の発展にも役立つものが含まれると期待される。このような知見を乱流理論に還元することで、液体論と乱流理論の共同展開による相乗効果を狙う研究プロジェクトを進めた。

3. 研究の方法

(1) 理論の構築を主眼とする本研究プロジェクトの核心部分は、メンバーが集まってアイデアを出し合う会合にある。この会合の具体的な開催状況は以下のとおりであるが、残念ながらCovid19問題による深刻な影響を受ける結果となった。

① 当初の計画では、毎年5回のセミナーを実施し、そのうち1回は研究会形式で行うことになっていた。当初はこれに近い運営が可能であり、具体的には、2018年度は4回の会合（そのうち1回は研究会）を実施し、2019年度は6回にわたる会合（そのうち1回は研究会）を計画した。しかし2019年度の末にCovid19問題が発生し、6回めの会合はZoomによる遠隔会合とせざるを得なかった。

② 2020年度には、Covid19のため実際の会合ができなくなり、代わりにZoomによる1時間程度の打ち合わせを基本的に隔週で行うことで研究を進めた。状況は2021年度になっても変わらなかった。

③ 2022年度になっても依然としてCovid19問題による制約は大きく、Zoomによる遠隔での打ち合わせを中心とせざるを得なかった。それでも2022年の8月と12月に短時間ながら現地対面での議論を行い、研究を進めるうえでの実際の出張による議論の有効性を改めて実感した。また2023年11月と12月にも対面での議論を行った。

(2) 数値計算の面では、斥力粒子系のLangevin方程式（コロイド液体のモデル方程式）および非圧縮Navier-Stokes方程式（流体乱流の基礎方程式）の数値計算を行い、それぞれの系において必要な統計量を計算した。

(3) 理論的には、上記の方程式に加えて、斥力粒子系のLangevin方程式を密度場で書き換えたDean-Kawasaki方程式に基づく考察をおこなった。さらに、必要に応じて現象論的なモデル化を加味した解析も行った。

4. 研究成果

(1) 一列縦隊拡散と呼ばれる1次元または擬1次元のコロイド系の挙動を対象に、変位相関の挙動を詳しく調べ、いくつかの解析的な結果を得た。これらの結果や、それを得るための計算手法は、より現実に近い2次元や3次元の系での時空構造の解析方法の雛形を与える。

① 非平衡な初期条件の影響のもとでの揺動応答関係を解析的に求めた。もう少し具体的にいうと、初期時刻には結晶のように完全に等間隔に配置されていた粒子が、熱的揺動力を受けて次第に平衡状態に緩和する"エイジング"と呼ばれる挙動において、変位相関とそれに対応する応答関数を両方とも解析的に求め、数値的に検証した。その結果、変位相関には非平衡性の影響が現れるが、応答関数には（線形近似の範囲内では）影響が現れず、そのために相関と応答の等価性が破れる様子を具体的に示すことができた。さらに、非線形性の影響も含めた形の揺動応答関係式を、ラグランジュ的なモード結合理論の形で導出した。

② 粒子が位置を入れ替える"追い越し過程"の影響を調べた。追い越し過程を全く許さない理想的な一列縦隊拡散の場合は、それぞれの粒子は自分の前後の粒子にはさまれた狭い空間に閉じ込められた状態にあり、いわゆる"ケージ効果（鳥籠効果）"の1次元モデルになっている。稀な事象として追い越し過程を許すのはケージからの脱出を許すことであり、これが変位相関にどのような影響を与えるのかを調べた。その結果、追い越しの影響が及ぶのは短い距離に限られ、それよりも離れた粒子のあいだの変位相関は全く変わらないことが示された。言い換えれば、追い越しがあっても、空間的に広がりのある形でケージ効果が生き残ることが分かった。

③ 一般に平衡状態のもとでは相関関数と応答関数の等価性が成り立っているはずであるが、追い越しを許した一列渋滞拡散の変位相関については、揺動応答関係が修正を受けることが分かった。これは、ある種の"見かけの非平衡性"を示すもので、変数の取り方によって揺動応答関係の見かけが変わり得る例となっている。

(2) 流体乱流において、速度相関関数とそれに対応する応答関数を調べ、両者の対応関係（揺動応答関係）について考察した。

① 数値計算の結果により、オイラー的な場合でもラグランジュ的な場合でも、相関関数と応答関数の等価性が破れていること、つまり乱流の揺動応答関係は平衡系とは系統的に異なることが分かった。他方、相関関数と応答関数の時間尺度（半減期）に着目し、その波数依存性を調べると、たとえばラグランジュ的な相関関数の半減期の波数依存性は対応する応答関数のものと同じになるという意味で両者の等価性が生き残ることも示された。

② 乱流の基礎方程式に対し、コロイド系などと同様に熱的揺動力を加えた場合を考えると、応答関数に関する解析的な関係式を導き、その数値的検証を行った。これにより、乱流における相関関数と応答関数の等価性の破れが非線形エネルギー輸送に起因するという新たな知見を得た。さらに、数値的検証からは非線形項由来の高次相関関数が低次のもので表現できることが示唆されており、新規的な乱流完結モデルにつながる可能性がある。

(3) 剛体円盤系（2次元のコロイド液体のモデル）の数値計算によって変位相関および剪断歪み相関を求め、理論的に考察した。

① まずは変位相関の数値計算結果に着目し、これを粘弾性モデルの応答としてモデル化することを試みた。試行結果を重ねた結果、（限られた濃度や時間空間領域の範囲内ではあるが）変位相関の時間的な特徴と空間的な特徴を両方とも再現するモデルを見出すことに成功した。特に、横相関が近くで正となり遠くで負となるという、空間的に符号を変える挙動が再現された。定量的には、通常の意味では弾性を示さないような液体的な濃度であっても、弾性と解釈できるパラメータが大きな値をもつ可能性が示された。さらに、粘弾性モデルから得られた変位相関の形をよく見ると、変形Bessel関数が含まれているため、この式が短距離でも成り立つならば変位相関は対数的な挙動を示すことが示唆された。

② ラグランジュ的な相関を利用して変位相関の解析的な表示を与える手法を発展させ、変位相関と剪断歪み相関のあいだの関係式を導出した。さらに、変位相関について既に得られている近似的な結果をこの関係式と組み合わせることで、剪断歪み相関を近似的に求めた。

これらの結果を数値的に検証する過程で、我々は、変位相関のなかに、剪断歪み相関とは異なる情報が含まれる可能性に気づいた。実際、数値的に求めた剪断歪み相関には目立った濃度依存性が見られないのに、それに比べて変位相関は強い濃度依存性を示す。他方、我々が求めた関係式によると、もし変位相関が距離の関数として対数的な挙動を示すならば、その情報は剪断歪み相関から抜け落ちる。したがって、実際に数値的に求めた変位相関が対数的な挙動を示し、その部分に濃度依存性の情報が含まれるなら、数値計算結果は整合的に解釈できる。

③ 上記のような考察を動機として、我々は粒子系の数値計算に基づく変位相関の挙動を詳細に調べ、変位相関が実際に短距離側で対数的に振る舞うことを確認した。ここで、我々が構築してきた変位相関の解析的な理論に従い、変位相関の対数挙動の意味するところを検討した結果、これはある種のケージ効果の現れだと解釈できることが分かった。つまり、濃度があまり高くなく流動性が残っている場合、粒子は近傍の粒子と入れ替わることができるという意味でケージからの脱出が許されているが、それよりも空間的に少しだけ広がった範囲では、ケージ効果に伴う時空間的な相関が生き残り、その効果が、2次元系では変位相関の対数的な挙動として現れることを解析的に示した。

(4) 追い越しのある一列縦隊拡散の結果と剛体円盤系での変位相関の対数挙動を考え合わせると、粒子が互いの運動を妨げ合う効果をうまく扱うためには、言わばケージが入れ子になったような構造を考え、スケールに合わせて記述を切り替える方法が有効であるように思われる。この考え方を円盤剛体系の場合にラグランジュ的モード結合理論の形で具体化し、さらに同様の考え方を渦の入れ子としての乱流の理論にフィードバックすることを我々は考えたが、既に述べたCovid19による困難などの理由により、どちらのアイデアも、本研究の期間内に成果を具体化するには至らなかった。これらの点は今後の課題として残されており、次の科研費プロジェクトで取り組む予定である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Matsumoto Takeshi, Otsuki Michio, Ooshida Takeshi, Goto Susumu	4. 巻 919
2. 論文標題 Correlation function and linear response function of homogeneous isotropic turbulence in the Eulerian and Lagrangian coordinates	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Fluid Mechanics	6. 最初と最後の頁 A9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1017/jfm.2021.357	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Ooshida Takeshi, Goto Susumu, Otsuki Michio	4. 巻 20
2. 論文標題 Collective Motion of Repulsive Brownian Particles in Single-File Diffusion with and without Overtaking	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Entropy	6. 最初と最後の頁 565
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/e20080565	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Ooshida Takeshi, Otsuki Michio	4. 巻 30
2. 論文標題 Two-tag correlations and nonequilibrium fluctuation?response relation in ageing single-file diffusion	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 374001
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1088/1361-648X/aad4cc	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計18件（うち招待講演 1件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛
2. 発表標題 斥力ブラウン粒子系における剪断変形相関と変位相関の濃度依存性の比較
3. 学会等名 日本物理学会 2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛
2. 発表標題 2次元コロイド液体の変位相関の短距離側での挙動: 剪断相関が見落としているもの
3. 学会等名 日本物理学会 2023年春季大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 T. Ooshida, S. Goto, T. Matsumoto, M. Otsuki
2. 発表標題 Transverse displacement correlations can be more informative than strain correlations about viscoelasticity of glassy liquids
3. 学会等名 LMC2020/2021: the 11th Liquid Matter Conference (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松本剛
2. 発表標題 乱流の線形応答関数をめぐる考察
3. 学会等名 阪大理学部セミナー
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛
2. 発表標題 2次元コロイド液体における変位相関を通じた剪断相関の計算
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛
2. 発表標題 コロイド液体における変位相関の粘弾性モデルの数値的検証
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 松本剛, 大槻道夫, 大信田丈志, 後藤晋
2. 発表標題 オイラー、ラグランジュ記述の乱流速度フーリエ成分の相関関数と線形応答関数の時間スケール
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛
2. 発表標題 コロイド液体の変位相関のモデルに現れる係数の濃度依存性
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takeshi Ooshida, Susumu Goto, Takeshi Matsumoto, Michio Otsuki
2. 発表標題 Effects of overtaking on collective motions in single-file diffusion
3. 学会等名 StatPhys27 satellite workshop: Yielding Phenomena in Disordered Systems (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takeshi Ooshida, Susumu Goto, Takeshi Matsumoto, Michio Otsuki
2. 発表標題 How to calculate two-particle four-point space-time correlations in 1D and 2D systems of repulsive Brownian particles
3. 学会等名 The 27th International Conference on Statistical Physics (StatPhys27) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大信田丈志・大槻道夫・後藤晋・松本剛
2. 発表標題 局在外力に対する応答の非対角成分：準1次元系から2次元コロイド系へ
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大信田丈志・大槻道夫・後藤晋・松本剛
2. 発表標題 コロイド液体の横変位相関の粘弾性モデルに基づく解析
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大信田丈志・大槻道夫・後藤晋・松本剛
2. 発表標題 コロイド液体の横変位相関を粘弾性モデルで再現できるか？
3. 学会等名 鳥取非線形研究会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大信田丈志・大槻道夫・後藤晋・松本剛
2. 発表標題 コロイド液体の横変位相関を再現する粘弾性モデル
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ooshida Takeshi
2. 発表標題 Insights from single-file diffusion into glassy dynamics
3. 学会等名 YITP (Yukawa Institute for Theoretical Physics) Workshop Part II (focus meeting): Rheology of disordered particles --- suspensions, glassy and granular materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛
2. 発表標題 エイジングあり一列縦隊拡散における密度場のLagrange相関
3. 学会等名 日本流体力学会 年会2018
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛
2. 発表標題 追い越しあり一列縦隊拡散における応答関数
3. 学会等名 日本物理学会 2018年秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大信田丈志, 大槻道夫, 後藤晋, 松本剛
2. 発表標題 横変位相関の符号持続長の密度依存性
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	後藤 晋 (Goto Susumu) (40321616)	大阪大学・大学院基礎工学研究科・教授 (14401)	
研究分担者	松本 剛 (Matsumoto Takeshi) (20346076)	京都大学・理学研究科・助教 (14301)	
研究分担者	大槻 道夫 (Otsuki Michio) (30456751)	大阪大学・大学院基礎工学研究科・准教授 (14401)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------