

令和 4 年 6 月 3 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03767

研究課題名(和文) エネルギー地形および非平衡相転移描像を用いた、固体の力学応答に関する統一的理解

研究課題名(英文) Unified understanding of the mechanical response of solids by energy landscape and non-equilibrium phase transition picture

研究代表者

川崎 猛史 (Kawasaki, Takeshi)

名古屋大学・理学研究科・講師

研究者番号：10760978

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、幅広い温度範囲に対して熱平衡状態を実現するコンピュータシミュレーション手法を導入することにより、粒子構造の安定性を系統的に変化させた固体の力学応答を調べた。その結果、変形を加える前の熱平衡な粒子構造と、降伏が起こる際の粒子構造に関するエネルギーの大小関係により、延性破壊的(連続)、脆性破壊的(不連続)な降伏が起こることが一意に決まることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

アモルファス固体材料の降伏現象や破壊現象は、材料の安定性、すなわち初期構造の安定性によって、脆性破壊型、延性破壊型の降伏現象がそれぞれ現れることが経験的に知られているがその物理機構は未解明であった。本研究ではミクロな側面から多大な知見を与える分子動力学法による数値計算を幅広く行うことにより脆性破壊型、延性破壊型の降伏現象が起こる要因を、粒子軌道の可逆性やエネルギーランドスケープ描像などの物理学の知見を適用することにより解明した。本研究は、材料の力学特性の根源的な部分を解明したことから、基礎的に重要であるのみならず、工学や産業上の応用にも繋がり、極めて高い意義があるものと考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this study, the mechanical response of solids with systematically varying stability was investigated by introducing a computer simulation method that achieves thermal equilibrium over a wide range of temperatures. It was found that ductile (continuous) and brittle (discontinuous) yielding are uniquely determined by the relationship between the energy of the structure in thermal equilibrium before deformation (initial structure) and the energy of the structure when yielding occurs.

研究分野：ソフトマター物理学

キーワード：アモルファス固体 破壊 降伏 分子動力学シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

結晶, アモルファスに関わらず, 一般的にアモルファス固体材料の降伏や破壊などの力学特性は, その粒子構造の安定性に依存することが知られている. 特に, ガラス転移点近傍の低温状態でアニールされた材料は, 不連続的な脆性破壊的降伏が起こり, 高温状態でアニールされた材料は, 連続的な延性破壊的降伏が起こる. 特に, 実験においては, 幅広い温度でのアニール温度を幅広く変化させることが可能であるが, 力学応答に対する原子/分子のダイナミクスを直接追うことは難しい為これらのミクロな側面からの理解は乏しい. 一方, ミクロな側面からの研究に最適な分子動力学法などの数値計算においては, 大規模なものであっても構造緩和時間を高々ミリ秒オーダーまでの計算にとどまるため, 実験系に匹敵するだけの低温状態へのアニールが難しく, 特に脆性破壊に関する研究例が少ない. 実際に, 理論・数値計算による研究においては, 近年に至るまで降伏現象が, ある種の相転移現象として解釈可能であり, とりわけ, 臨界現象であるという説[C. Liu, et al., Phys. Rev. Lett. 116 (2016)], スピノーダル分解であるという説[G. Parisi, et al., PNAS 114 (2017)], 1次相転移(不連続転移)であるという説[P. K. Jaiswal, et al., Phys. Rev. Lett. 116 (2016)] がほぼ同時期に提唱されているが, 統一的理解は得られていなかった.

近年, フランスのモンペリエ大学を中心とした研究グループにより, アニール温度を従来研究に比べて幅広く設定し, 脆性破壊と延性破壊の両方を観測可能な分子動力学シミュレーションによる研究に成功している[M. Ozawa, et al., PNAS 115 (2018)]. ここでは, 通常の熱運動より極めて効率の良い, 熱平衡状態へのサンプリング手法である Swap モンテカルロ法を用いることで, 初期構造を構築し, 実験系におけるガラス転移点, あるいはそれ以下温度でアニールすることに成功している. そして, アニール温度を幅広く変化させることにより, 連続的な延性破壊的降伏現象と, 不連続的な脆性破壊的降伏現象が観測されている. この様に, 分子動力学シミュレーションにおいて, 脆性破壊と延性破壊を包括的に研究することが可能になったが, アニール温度の違いによって, この様な力学特性に変化が生じるミクロな物理機構は未解明であった.

一方, 近年, インドの研究グループの先行研究[P. Leishangthem, et al., Nat. Commun. 8 (2017)] においては, アニールによる熱履歴効果と, その後の変形による負荷履歴効果の両者と組み合わせた際のエネルギー地形上における安定構造が議論されている. ここでは, アニール温度を, 一方は融点より高温, そして他方, 通常シミュレーションで実現されるガラス転移点に近い温度で緩和させ, その後クエンチし初期構造を取得している(ここでのエネルギーを E_{ini} とする). ここでの最安定構造のエネルギー E_c はアニール温度に依存せず, 剪断振幅が更に大きな塑性領域においては, エネルギーに関する熱履歴効果が失われていることが示された. しかし, 本先行研究の様に, $E_{ini} > E_c$ の初期条件下で観測された各アニール温度での力学物性は, いずれも連続的な延性破壊的降伏に限ったものであった.

2. 研究の目的

上記の問題を理解する為に, 本研究ではさらに独自の観点から考察を与える. 申請者らは, 自らの先行研究[T. Kawasaki and L. Berthier, Phys. Rev. E 94(2016)] において, 周期剪断下にあるアモルファス固体中の「粒子軌道の可逆性」が, ある種の非平衡相転移としての舞いを見せ, 降伏現象が大いに関係することを見出している. 系に振動振幅の大きな周期剪断を掛けると粒子は不可逆な軌道で運動する. ところが, 振動振幅が小さい場合, 定常状態に至るまで, ある程度の構造緩和が起こるものの定常状態においては1周期を経て, 全ての粒子が元の場所に戻ってくる可逆軌道が得られる. そして, 可逆軌道と不可逆軌道は, 状態として大きな隔たりがあることから, ここでの振る舞いは, ある種の「非平衡相転移現象」であると申請者らは考えている. そこで, アニール温度を極低温とし, E_c より有意に低エネルギー状態にある初期構造に対して周期剪断を与える場合を考える. 歪みが小さな弾性領域においては, 粒子軌道が可逆状態にあるため, 構造緩和は殆ど起こらず, 一方, 降伏点を超えると, 不可逆な塑性変形により構造緩和が起こり, 剪断下での安定なエネルギー状態を取ることが予想される. このことから, 降伏点においてポテンシャルエネルギーは, 剪断状態での安定エネルギー E_c へと不連続に変化し, 同時に応力など巨視的な物理量にも不連続な変化が起こることが示唆される. このことから脆性破壊は, 初期構造のエネルギー E_{ini} が塑性領域における最安定エネルギー E_c に比べて優位に小さい場合に起こる, 初期構造に対する履歴効果に起因したものであるという仮説を立てることができる. これを踏まえ, 本研究では, この仮説を, 多様なアモルファス固体に対して幅広く検証することを主な目的とする.

3. 研究の方法

本研究では, 「熱的なアニール」および「変形」によって得られる粒子構造に起因するエネルギー間の競合により, 降伏に伴う脆性(不連続性)の有無が一意に決まるという仮説を,

大規模な分子動力学計算により広く検証する。特に、アニール過程においては、非常に効率のよい熱平衡サンプリング技法である、Swap モンテカルロ法を積極的に活用することにより、実験に匹敵する極低温での熱平衡構造を取得する。更に、この初期構造に対して準静的に周期剪断を与えた際の粒子軌道の可逆性から、初期構造に対する履歴効果を評価し、マクロな力学応答との関係を明らかにする。

4. 研究成果

本研究では、強力な熱平衡化手法である Swap モンテカルロ法を用いることで、ガラス転移温度近傍の極低温から、高温の液体状態でアニールした安定度が系統的に異なるアモルファス固体を用意し、それぞれに準静的に周期剪断を与えた際の力学特性を調べた。主な成果は以下の通りである(1)-(3)。

(1) 剪断強度を大きくしていくと、高温でアニールしたアモルファス固体は、周期剪断に対して不可逆にしばらく運動し、定常状態で可逆に運動するという振る舞いが見られた。そのため、周期剪断にたいする構造緩和が起こり、剪断強度に対して、徐々にエネルギーが下がり、降伏点で最小値を示した。さらに剪断強度を大きくすると、降伏後、粒子間ポテンシャルエネルギーは再び上昇することを確認し(剪断強度に対してV字型の曲線を描く)。一方、極低温でアニールしたガラスは、低エネルギーを示す安定状態から始まり、周期剪断に対して可逆的運動することでエネルギーの緩和はほとんど起こらず、降伏までエネルギーはほぼ一定となった。そして、降伏の際、大規模な塑性変形をともなう不連続なエネルギーの増大が観測され、その後は、粒子は不可逆に運動することで構造緩和が起こり、高温でアニールしたサンプルと同様な振る舞いを見せることが分かった。

(2)(1)で粒子間ポテンシャルエネルギーに対する剪断強度の依存性を調べたが、ここでは、応力と剪断強度との関係(応力歪み曲線)を調べた。高温でアニールしたサンプルにおける応力歪み曲線は、ポテンシャルエネルギーと同様に連続的に振る舞い、また、極低温でアニールしたサンプルは、降伏で不連続に振る舞うことを確認した。さらに、ここでの不連続な振る舞いは、エネルギーが不連続に増大することと対応していることを明らかにした。

(3)降伏の不連続性の有無は、初期状態のエネルギーが降伏時におけるエネルギーとの大小関係から一意に決まることを示すことができ、仮説が正しいことが実証できた。

以上の通り、(1)-(3)の研究ではアニールにより得られた熱平衡状態である初期粒子構造と、歪みを加え降伏が起こった際の粒子構造のエネルギーの大小関係を比較することにより、力学応答が脆性的となるか、あるいは延性的となるかが一意に決まるという極めて明解な結果を得た。特に、脆性的になる領域は未踏であったが、粒子軌道の可逆性やエネルギーランドスケープ描像を併せて考えることで、この様な力学応答の差異が生じるメカニズムの一端を明らかにした。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計16件（うち査読付論文 16件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Saitoh Kuniyasu, Kawasaki Takeshi	4. 巻 8
2. 論文標題 Critical Scaling of Diffusion Coefficients and Size of Rigid Clusters of Soft Athermal Particles Under Shear	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Frontiers in Physics	6. 最初と最後の頁 99-1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3389/fphy.2020.00099	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 Yeh Wei-Ting, Ozawa Misaki, Miyazaki Kunimasa, Kawasaki Takeshi, Berthier Ludovic	4. 巻 124
2. 論文標題 Glass Stability Changes the Nature of Yielding under Oscillatory Shear	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 225502-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.124.225502	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Yu Ji Woong, Rahbari S. H. E., Kawasaki Takeshi, Park Hyunggyu, Lee Won Bo	4. 巻 6
2. 論文標題 Active microrheology of a bulk metallic glass	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eaba8766-1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.aba8766	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 該当する
1. 著者名 Kawasaki Takeshi, Onuki Akira	4. 巻 16
2. 論文標題 Acoustic resonance in periodically sheared glass: damping due to plastic events	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 9357-9368
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0SM00856G	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takeshi Kawasaki and Kang Kim	4. 巻 9
2. 論文標題 Spurious violation of the Stokes-Einstein-Debye relation in supercooled water	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 8118 p1- p9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-44517-4	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 Takeshi Kawasaki and Kang Kim	4. 巻 2019
2. 論文標題 Classification of mobile- and immobile-molecule timescales for the Stokes-Einstein and Stokes-Einstein-Debye relations in supercooled water	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment	6. 最初と最後の頁 084004 p1-p14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1742-5468/ab3114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kentaro Nagasawa, Kunimasa Miyazaki, and Takeshi Kawasaki	4. 巻 15
2. 論文標題 Classification of the reversible-irreversible transitions in particle trajectories across the jamming transition point	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 7557-7566
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9SM01488H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Norihito Oyama, Takeshi Kawasaki, Hideyuki Mizuno, and Atsushi Ikeda	4. 巻 1
2. 論文標題 Glassy dynamics of a model of bacterial cytoplasm with metabolic activities	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 032038 p1-p6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.1.032038	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 Shiba Hayato, Kawasaki Takeshi, Kim Kang	4. 巻 123
2. 論文標題 Local Density Fluctuation Governs the Divergence of Viscosity Underlying Elastic and Hydrodynamic Anomalies in a 2D Glass-Forming Liquid	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 265501 p1-p6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.123.265501	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ikeda Atsushi, Kawasaki Takeshi, Berthier Ludovic, Saitoh Kuniyasu, Hatano Takahiro	4. 巻 124
2. 論文標題 Universal Relaxation Dynamics of Sphere Packings below Jamming	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 058001 p1-p6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.124.058001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Oyama Norihiro, Kawasaki Takeshi, Saitoh Kuniyasu	4. 巻 9
2. 論文標題 Dynamic Susceptibilities in Dense Soft Athermal Spheres Under a Finite-Rate Shear	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Frontiers in Physics	6. 最初と最後の頁 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3389/fphy.2021.667103	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Matsuyama Hiromichi, Toyoda Mari, Kurahashi Takumi, Ikeda Atsushi, Kawasaki Takeshi, Miyazaki Kunimasa	4. 巻 44
2. 論文標題 Geometrical properties of mechanically annealed systems near the jamming transition	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The European Physical Journal E	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1140/epje/s10189-021-00142-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kawasaki Takeshi	4. 巻 50
2. 論文標題 Nonlinear Rheology in Dense Suspensions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nihon Reoroji Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 63 ~ 67
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1678/rheology.50.63	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 Sakae Yoshitake, Kawasaki Takeshi, Okamoto Yuko	4. 巻 7
2. 論文標題 Distribution and Structure Analysis of Fibril-Forming Peptides Focusing on Concentration Dependency	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 10012 ~ 10021
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.1c04960	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 Takae Kyohei, Kawasaki Takeshi	4. 巻 119
2. 論文標題 Emergent elastic fields induced by topological phase transitions: Impact of molecular chirality and steric anisotropy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Proceedings of the National Academy of Sciences	6. 最初と最後の頁 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1073/pnas.2118492119	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Klongvessa Natsuda, Ybert Christophe, Cottin-Bizonne Cécile, Kawasaki Takeshi, Leocmach Mathieu	4. 巻 156
2. 論文標題 Aging or DEAD: Origin of the non-monotonic response to weak self-propulsion in active glasses	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 154509 ~ 154509
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0087578	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 該当する

〔学会発表〕 計13件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Takeshi Kawasaki
2. 発表標題 Identifying time scales for violation/preservation of Stokes-Einstein relation in supercooled water
3. 学会等名 The 5th international conference on molecular simulation (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Takeshi Kawasaki
2. 発表標題 Shear jamming and shear melting in mechanically trained frictionless particles
3. 学会等名 2019 international workshop on glass physics in Beijing (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 Takeshi Kawasaki
2. 発表標題 Reversible-Irreversible transition in particle trajectories near the jamming transition
3. 学会等名 2019 International Workshop on Soft Matter and Biophysics Theories (SMTB2019) BTG Fragrance Hill Hotel (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 川崎猛史, 宮崎州正
2. 発表標題 機械的強化を施した高密度分散系におけるジャミング転移と力学応答
3. 学会等名 日本物理学会 2020年度年会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 川崎猛史, 宮崎州正
2. 発表標題 機械的アニールを施した高密度粒子系におけるShear JammingとShear Melting
3. 学会等名 第9回ソフトマター研究会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 川崎猛史, 宮崎州正
2. 発表標題 機械的アニールを施した高密度粒子系におけるShear JammingとShear Melting
3. 学会等名 日本物理学会 2019年度年秋季大会
4. 発表年 2019年～2020年

1. 発表者名 別所秀将, 川崎猛史, 宮崎州正
2. 発表標題 ジャミング転移点近傍における非線形力学応答
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 朱川聖人, 松山洋道, 川崎猛史, 宮崎州正
2. 発表標題 過冷却液体のInherent structureにおける密度揺らぎの抑制
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 黒田裕太, 松山洋道, 川崎猛史, 宮崎州正
2. 発表標題 慣性項を持つアクティブブラウン粒子系の流体相における揺らぎの長距離相関II
3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 黒田裕太, 松山洋道, 宮崎州正, 川崎猛史
2. 発表標題 慣性項を持つアクティブブラウン粒子系の流体相における揺らぎの長距離相関
3. 学会等名 日本物理学会 第77回秋季大会
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 川崎猛史
2. 発表標題 異方粒子系における創発弾性場とトポロジカル相転移
3. 学会等名 凝縮系の理論化学 研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 川崎猛史
2. 発表標題 キラル古典異方粒子系におけるトポロジカル相の制御
3. 学会等名 第5回QLC若手コロキウム 「古典的液晶と量子液晶の関係探索」 (招待講演)
4. 発表年 2021年～2022年

1. 発表者名 Takeshi Kawasaki
2. 発表標題 Nonlinear Rheology of Jammed Particles
3. 学会等名 ガラスおよび関連する複雑系の最先端研究（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年～2022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

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			
フランス	モンペリエ大学			
フランス	リヨン第一大学			