

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：17501

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K03771

研究課題名（和文）どのようにガラスは壊れるのか？：原子レベル破壊と機械学習の応用

研究課題名（英文）How does a glass break? : Atomic level fracture and application of machine learning

研究代表者

岩下 拓哉 (Iwashita, Takuya)

大分大学・理工学部・准教授

研究者番号：30789508

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：計算機シミュレーションや機械学習手法を用いて、ガラスの力学特性の微視的起源を明らかにし、ガラス転移現象の背後にある原子や分子の運動と巨視的な流動物性の関係性を導き出すことを目的とする。古典および第一原理分子動力学計算から、ガラス破壊における異常検知手法の適用可能性や電子物性と力学特性の関係性を明らかにし、大規模計算に向けた機械学習ポテンシャルの作成を行った。また、過冷却液体やガラスの流動状態における局所構造変化と流動粘度の関係性を明らかにした。さらに、塩誘起ガラス転移現象におけるレオロジーにおけるスケーリング則を実験的に見出した。これらの結果からガラスや液体の物性起源に関する理解が進歩した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

ガラスや液体のような構造不規則系は、我々の身の回りに多く存在するが、構造の不規則性のために十分な理解が得られていない部分が多い。特に、ガラス物性を構造から事前に予測することはできない。近年の計算機の進歩や機械学習手法の広がり、新たな展開を生み出しており、不規則構造に関する新規な知見を得ることが期待されている。本研究では、ガラス変形における電子物性と力学物性の関係性を明らかにしており、この結果は構造不規則系の科学の進歩に大きく貢献している。

研究成果の概要（英文）：The objective of this research is to uncover the microscopic origins of the mechanical properties of glass and establish a relationship between the motion of particles and the flow properties that underlie the glass transition phenomenon. Through classical and first-principles molecular dynamics simulations, we have investigated the applicability of anomaly detection methods for the fracture of glass and elucidated a correlation between electronic properties and mechanical characteristics. Furthermore, we have made significant progress in developing machine learning potentials to facilitate large-scale simulations. Also, our studies have delved into a connection between local structural changes and viscosity. Notably, our experimental analysis has also unveiled the presence of scaling laws in rheology across salt-induced glass transition. These remarkable findings have substantially advanced our understanding of the origin of physical properties in both glass and liquid.

研究分野：液体とガラスの物理学

キーワード：ガラス 液体 力学特性 粘度 分子動力学シミュレーション 機械学習 ガラス転移現象 応力

1. 研究開始当初の背景

近年、優れた力学的特性をもつ金属ガラスが次世代の構造材料として期待されている一方、延性をもたない脆性破壊が最大の足枷となり、実用的な段階には至っていない。高性能なガラスの開発のためには、ガラス形成に本質的な過冷却液体の制御やガラスの破壊挙動を微視的(ミクロ)な観点で明らかにする必要がある。しかしながら、ガラス構造の複雑な不規則性のために、ガラスの破壊メカニズムは未だ解明できていない。

結晶の場合、規則的な構造内部の格子欠陥が破壊に関与する変形素子として十分に理解されている。一方、ガラスはそのような変形素子を明確に見出すことが難しく、その破壊の基本的な過程、つまり、破壊の素過程を特定することには成功していない。これまでに、変形素子の担い手として、物質内部の空隙に相当する自由体積モデルや粒子群が互いに滑るモデルなどが提案されている。これらは現象論的モデルであり、破壊現象を定性的に説明できるが、破壊の背後にある物理的過程は曖昧なままであり、さらに、材料設計など実用的な要請には対応不可能である。ガラスの構造が、いつ、どこで壊れるのか? その素過程について十分に究明されておらず、この事実がガラスの破壊現象の本質的な理解に至らない要因となっている。

2. 研究の目的

本研究の目的は、古典および第一原理分子動力学シミュレーションと機械学習手法を用いて、ガラス破壊に関与する局所構造変化とその特性を明らかにすることである。特に、局所的な幾何学的構造や電子状態変化と破壊の起点の相互関係を調べ、破壊の発生条件を物理的考察に基づいて定量化する。また、ガラスの力学的特性に密接に関与する過冷却液体の物性と局所構造変化の関係性を明らかにする。機械学習で用いられる異常検知手法を用いて、不規則構造内部から局所構造の発生源を曖昧なく検出する。

3. 研究の方法

ガラス破壊や液体のダイナミクスにおける活性化過程を明らかにすることを目的とした本研究は、三つの異なるアプローチから構成される。

一つ目のガラスの力学変形の問題では、剪断変形下にある ZrCu 系金属ガラスの古典および第一原理分子力学動力学シミュレーションを行い、その弾性特性と局所構造緩和、電子物性との関係性について検討する。また、機械学習手法を用いて、局所構造変化の特定や高精度ポテンシャルの作成を試みる。二つ目の過冷却液体の問題では、古典分子シミュレーションを用いて、過冷却液体(Fe, ZrCu, PdSi)の物性である粘度と局所構造(特に、局所圧力や Mises 応力)の相関について検討する。また、機械学習法の一つである異常検知手法を用いて、液体ダイナミクスに潜む熱活性化過程の特定を試みる。三つ目のコロイドガラスの問題では、塩添加により誘起されるコロイドガラス転移に着目し、レオロジー実験データを用いて、粘度のスケールリング則の成立について検討する。また、その背後にある粒子の運動を明らかにするために、ブラウン運動力学計算を実施する。

4. 研究成果

(1) 力学変形下の金属ガラスの力学特性と局所構造緩和に関する研究

第一原理計算により剪断変形下にある ZrCu 金属ガラスのシミュレーションを実施し、力学特性と局所構造緩和の相関を調べた。古典分子動力学シミュレーションと同様に、第一原理計算においても応力緩和(shear softening)が発生することを示した。また、この応力緩和と電荷移動の間の関係性を見出した。本成果は、Physical Review Letter 誌に掲載された。

第一原理計算は計算時間の観点から、小さい系(200 原子程度)のみしか取り扱えない欠点があるために、機械学習を用いて、大規模計算を想定した高精度古典的ポテンシャルの作成を行なった。訓練データが Zr50Cu50 の第一原理計算結果を用いているために、エネルギーが高い構造のみのサンプリングのため再現性が困難であることがわかった。同時に異なる成分比の再現性も試みたが、うまく再現には至らなかった。

さらに、EAM ポテンシャルを用いた Zr50Cu50 の古典分子動力学シミュレーションを用いて、弾性変形による応力緩和の特性を明らかにした。弾性領域で起きる応力緩和は、可逆的でありヒステリシスを伴うことがわかった。このヒステリシス間の活性化エネルギーを、NBE 法を用いて見積もることができた。

(2) 液体金属の局所構造と粘度の関係性に関する研究

液体の粘度は、グリーン・久保公式により応力揺らぎの時間相関関数と結びついている。液体に対する理論的理解を深めるために、液体金属(Fe, Zr, Cu50Zr50, Pd80Si20)の分子動力学シミュレーションを行い、巨視的な粘度の温度依存性を求めた。巨視的な応力揺らぎの時間相関関数を原子あたりの時間相関関数に分解することにより、局所構造と応力緩和の相関を直接議論することが可能となった。本研究では、局所圧力と応力緩和時間に強い正の相関が存在するこ

とを発見した。この挙動は、引っ張り環境にある原子よりも 圧縮環境にある原子は応力緩和が早いことを意味している。また、得られた関係式は、本研究対象の材料における種類には依存しない普遍性を示している。本研究成果は、JOM に掲載された。

また、液体金属の局所パラメタ(局所圧力, Mises ストレス, ストレステンソル, 配位数)の時系列データの解析を行なった。異常検知手法で、時系列データの異常性を定量化したが、熱揺らぎと構造緩和の分離が難しく、明確な構造変化と粘度の関係性を明らかにすることはできなかつた。同様の手法をガラス変形に応用したが、どこから破壊が発生するのかの起点を明確に見出すことは困難であることがわかった。これらは、構造不規則系の運動において、揺らぎが本質的な重要な役割を果たしていることを意味していると考えられる。

(3)コロイドガラスのガラス転移現象に関する研究

ガラス形成材料として荷電コロイド分散系(シリカ粒子とグリセロールの混合系)の流動粘度の実験データ解析を実施した。荷電コロイド分散系は、塩を添加することで液体的な挙動からガラス的な挙動を示す。この現象について塩濃度を制御パラメタとしたガラス転移現象と捉え、これまでに知られていた温度や体積分率を制御パラメタとした粘度スケーリング則が成り立つことを示した。さらに、金属ガラスのシミュレーションから得られていた新規な粘度スケーリングが、この系においても成り立つことがわかった。

本成果は、Journal of Physical Chemistry B に掲載された。また、中性子小角散乱像から抽出した Yukawa 型ポテンシャルのパラメタを用いて、ブラウニアンシミュレーションを実施し、粘度スケーリングを計算で明らかにしようとした。しかしながら、液体側のスケーリング則は成り立つが、計算では結晶化が起きてしまいガラス転移点を観測することができず、ミクロな情報を抽出することが難しいことがわかった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Yue Fan, Penghui Cao, Takuya Iwashita, and Jun Ding	4. 巻 9
2. 論文標題 Editorial: Modeling of structural and chemical disorders: From metallic glasses to high entropy alloys	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Frontiers in Materials	6. 最初と最後の頁 1006726
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3389/fmats.2022.1006726	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 Wu Bin, Iwashita Takuya, Chen Wei-Ren	4. 巻 126
2. 論文標題 Scaling of Shear Rheology of Concentrated Charged Colloidal Suspensions across Glass Transition	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 922-927
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpcc.1c06683	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 岩下拓哉	4. 巻 10
2. 論文標題 分子動力学シミュレーションによる水の誘電緩和スペクトルの起源探索	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 サイバーメディアHPCジャーナル	6. 最初と最後の頁 23-26
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.18910/83283	査読の有無 無
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 T. Iwashita, H. Koga, and S. Yamada	4. 巻 72
2. 論文標題 Strong Correlation Between Atomic-Level Pressures and Viscous Shear Relaxations in Liquids	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JOM	6. 最初と最後の頁 854-859
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s11837-019-03889-8	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 I. Lobzenko, Y. Shiihara, T. Iwashita, and T. Egami	4. 巻 124
2. 論文標題 Shear Softening in a Metallic Glass: First-Principles Local-Stress Analysis	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 85503
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.124.085503	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

〔学会発表〕 計13件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 T. Iwashita and W. Bin
2. 発表標題 Viscosity and elementary excitations in molecular liquids
3. 学会等名 American Physical Society (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 岩下拓哉
2. 発表標題 荷電コロイド分散系のレオロジーに対するスケーリング
3. 学会等名 第36回分子シミュレーション研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩下拓哉, Wu Bin, Wei-Ren Chen
2. 発表標題 荷電コロイド分散系の塩誘起ガラス転移のレオロジとスケーリング則
3. 学会等名 第10回ソフトマター研究会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岩下拓哉
2. 発表標題 不規則構造物質の局所構造緩和
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 加藤響，椎原良典，Ivan Lobzenko，松中大介，森英喜，岩下拓哉
2. 発表標題 機械学習ポテンシャル原子応力による金属ガラス内部変形素子の特定
3. 学会等名 第6回マルチスケール材料力学 シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩下拓哉，中西真大
2. 発表標題 水の誘電緩和スペクトルの微視的起源の探索
3. 学会等名 第33回分子シミュレーション研究会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 古賀遼生，岩下拓哉
2. 発表標題 液体の粘度と応力の局所的相関
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 古賀遼生, 岩下拓哉
2. 発表標題 液体の局所粘度の空間相関
3. 学会等名 日本物理学会九州支部会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田爽水, 岩下拓哉
2. 発表標題 液体金属における粘度の局所構造起源探索
3. 学会等名 日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山田爽水, 岩下拓哉
2. 発表標題 局所力学量で視る液体の動力学
3. 学会等名 日本物理学会九州支部会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山崎拓真, 岩下拓哉
2. 発表標題 荷電コロイドの粘度と熱的活性過程の関係
3. 学会等名 日本物理学会九州支部会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山崎拓真, 岩下拓哉
2. 発表標題 荷電コロイドの粘度と局所構造の相関
3. 学会等名 スパコンワークショップ2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 岩下拓哉
2. 発表標題 不規則物質の動的欠陥探索と運動論
3. 学会等名 レア・イベントの計算科学ワークショップ (招待講演)
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

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			
中国	北京師範大学			
米国	オークリッジ研究所	テネシー大学		