

平成30年 5月22日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (特設分野研究)

研究期間：2014～2017

課題番号：26310205

研究課題名(和文) ガラスとソフトセラミックスの数理科学

研究課題名(英文) Mathematics of amorphous structures and soft ceramics

研究代表者

西浦 廉政 (Nishiura, Yasumasa)

東北大学・材料科学高等研究所・特任教授

研究者番号：00131277

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,100,000円

研究成果の概要(和文)：パーシステントダイアグラム(PD)がアモルファス構造を理解する上で、有効な数学的記述子であることを明らかにした。PD図は液体状態とは異なり、特徴的な島構造を有し、逆問題解法により、その階層構造も明らかにできた。またデータ解析のためのHomCloudというソフトウェアを完成させた。ナノ微粒子のミクロ相分離モデルを連立Cahn-Hilliard方程式により確立した。これによりナノ微粒子の全体形状、内部でのミクロ相分離を数理的にデザインすることが可能となった。ソフトセラミックスの基礎モデル構築の基盤として、分子動力学法による数値計算と理論解析を用いて、粉体の剪断流と一様圧縮を調べた。

研究成果の概要(英文)：Computational homology, in particular, persistent diagram (PD) was proven to be a nice mathematical descriptor for amorphous structures. It shows an island structure which contrasts with random or liquid case. The software HomCloud was developed to analyze the experimental data. A coupled Cahn-Hilliard equations was proposed to model the micro-phase separation of nanoparticles of diblock copolymers and experimentally verified to have a predictable power. A sophisticated MD simulations contributed to the fundamental aspect of dynamics of soft ceramics regarding to shear flows and uniform compression.

研究分野：応用数学

キーワード：計算ホモロジー マルチスケール 自己組織化 アモルファス ソフトセラミックス ナノ微粒子 ミクロ相分離

1. 研究開始当初の背景

- ガラスとソフトセラミクスをめぐって -

結晶でもなく、完全にランダムでもない非晶質(アモルファス)とよばれるガラス状態をどう特徴付けるかは半世紀以上にわたる実験的、理論的考察にもかかわらず最終的な答えはまだ得られていない。それは「流れる固体」ともいふべきルースな構造を記述する適切な数理の言語がなかったからである。近年では金属ガラスという新たなガラス状態も発見され、その堅牢性、耐摩耗性などの高機能性により、代表者が所属する WPI-AIMR では多彩な応用が行われており、何らかの指導原理が渴望されている。我々は実験データに対し**計算ホモロジー** というこれまでとは全く異なる情報抽出のためのトポロジー的手法を用い新たな数学的立場からこの難問に挑戦する。一方**ソフトセラミクス**はナノ微粒子を極めて高濃度に溶媒に混ぜた超濃厚流体である。それらは直感に反し、粘性が発散せず流動性、透明性を保つという極めて不思議な現象を示す。その応用開発は分担者である AIMR の阿尻らにより伝導性フィルムから医療まで極めて広汎になされ、既に一部は製品化されている。しかしその実体は明らかでない。我々はその基礎方程式の確立を実験家と共に目指すものである。

2. 研究の目的

アモルファス材料、ソフトセラミクス等のヘテロ不均一材料は、多彩な機能を創出するが、現場での設計指針は膨大な試行錯誤の蓄積と経験であり、新たな視点からの数理的言語と方法論が求められている。本研究においては実験家と探索・協働しながら次の2つの課題に焦点を絞り、材料科学における新たな数理デザイン原理を打ち立てることを目標とする。

1. トポロジー的アプローチによるガラス状態の特徴付けとその応用
2. ソフトセラミクス(超濃厚流体)の基

礎方程式構築に向けての基盤確立。

一見異なる2つの課題に共通するのは個別のマイクロ挙動がたとえ明確になったとしても、ヘテロな複合材料系のマクロな性質にどう反映されるのかについては、ほとんどわかっていないことである。分担者の平田・松江らによる金属ガラスへの計算ホモロジーを用いた先駆的工作(A. Hirata et al., Science 341, 2013)もあるが、それはまだ手法の可能性を開いた段階である。ガラス転移と同様にソフトセラミクスにおいても微粒子の溶媒に対する比率が一定の値を越えると、粘性の発散・非発散というある種の相転移が起こると想定されるが、抵抗と思われるものが潤滑油的に振る舞う機構は明確でない。動的に流れている状態への計算ホモロジーの適用が新たな知見を与える可能性もある。実際、自然な疑問として次が挙げられる。

A. 対称性を失ったガラスの最小構成要素は何なのか? そしてそれらがどう配置されているときガラスとしての機能が発揮されるのか?

B. 2種以上のナノ微粒子と溶媒はどのような相互作用の下で、超濃厚でも流動性を保ちうるのか? 既存の流体方程式による記述可能性とその限界はどこにあるのか?

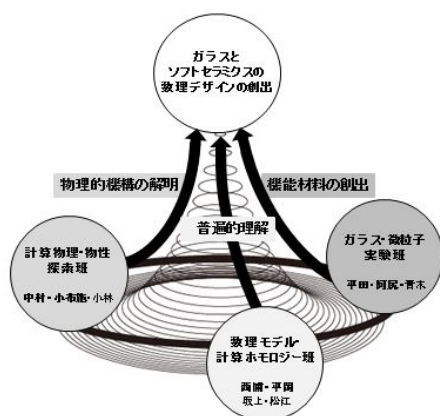
種々のガラスはちょうど良い「ええかげんさ」をもった物質相である。しかしその中途半端さが理論的には極めて困難な挑戦的課題とさせている。ソフトセラミクスは溶媒にいっぱいものを詰め込んでも、そのサイズと形がうまくデザインされていれば、流動性などを犠牲にせず多機能な材料を生み出す宝庫となっている。材料科学はマイクロな差異がマクロな機能に多大な影響を与える事例が豊かな研究分野である。従っていったん階層的連関機構がわかれば、微妙な操作で多彩な材料を創成できることとなる。

本研究は上記2つの課題を軸として、数学・数理科学の最近の発展も十分に取り込みな

から、実験側からの全面的協力を得つつ、ヘテロ複合材料の数理科学の建設を目指すことにある。

3. 研究の方法

ガラスとソフトセラミクスに共通する階層的連関構造の理論的基盤を実験グループと緊密な連携を取りつつ構築していく。3つの班：数理モデル・計算ホモロジー班、計算物理・物性探索班、ガラス・ナノ微粒子実験班を作り、研究を推進する。それらの研究成果を統合し、新たな数理デザイン材料科学を目指す。同時に現場主義を貫き、これまで埋もれていた新たな数理的課題の探索にも従事する。



分担者(太字)・連携研究者の組織図

研究協力者としては K. Mischaikow (Rutgers Univ., 計算ホモロジー)、水藤寛 (岡山大、多相流体) 横井研介 (Cardiff Univ., DEM 法) 及び PD 計算の補助のため、数名の院生 (東北大、九州大) を予定している。

研究手法としては次を用いる。

1. 中距離構造 (FSDP) を反映する長距離相互作用項も含む原子間ポテンシャルの選択を行い、これを元に分子動力学 (MD) 計算を実施し、FSDP を再現する。
2. パーシステントホモロジーによる生成元計算と階層構造の解明。
3. 粒子法など、不均一多相流体に有効な手法、あるいは粉体等において開発された様々な MD 計算手法を用いて、ソフトセラミクスの基本的ダイナミクスを明らかにする。
4. アモルファス材料の X 線あるいは電子ビ

ームによる解析等からの実験データと理論解析の整合性を検討する。

4. 研究成果

1. ガラス状態とは何かについてパーシステントダイアグラム (PD) がその構造を理解する上で、有効な数学的記述子であることを明らかにした。すなわちガラス状態の PD 図は液体状態とは異なり、特徴的な島構造を有する。問題はそのような島構造はどこからもたらされたものであるかという逆問題である。これを自動的に実施するために分担者平岡グループにより HomCloud というソフトウェアが完成し、大幅な自動探索が可能となった。これによりガラス構造を特徴付けるリングの階層構造が明らかになり、様々な高分子アモルファス材料の設計指針に重要な役割を果たすこととなった。一方分担者平岡らにより、代表的材料であるエポキシ樹脂の不均一構造に関して、電子ビーム測定によりナノ結晶構造が同定された。これは別の手段例えば X 線測定及び全原子分子シミュレーションの結果とも整合的なものであり、ミクロレベルの視点から不均一性の起源が明らかにされた結果として重要である。

2. コポリマーナノ微粒子のミクロ相分離モデルを連立 Cahn-Hilliard 方程式により確立した。これによりナノ微粒子の全体形状、内部でのミクロ相分離パターンを数理的にデザインすることが可能となり、実際、実験で得られた結果と良く整合する。さらにコポリマーナノ微粒子のアニーリングの理論的モデル構築と対応する実験との対比を議論し、その機構の数理的骨子を明らかにした。実際、アニーリングの方法によらず、ラメラからオニオン型の遷移を記述することができた。これにより、さらに複雑な形態の制御とデザインに資することができる基盤ができた。

3. ガラスや粉体などアモルファス状の粒子系は、ソフトセラミクスのモデルシステムとしても重要であり、その流動特性や力学応答を解明する事は、より大きなスケールの粗視化モデルにも役立ち、実用的な理解にも繋がる。とくに分担者齊藤らにより分子動力学法による数値計算と理論解析を用いて、主に粉体の剪断流と一様圧縮を調べた。まず、剪断流ではシェアバンドに相当する粒子の異方的な速度分布を調べ、スペクトルの四重極分布を理論的に説明し、さらに不連続シェアシッキングの現象論的な説明を与えた。また、一様圧縮に対する応力鎖の時間変化を定量化し、摩擦力が力の遷移率に与える影響を調べ、グルノーブル (フランス) のグループと共同で実験的な検証も行った。以上の知見は流体効果を取り込んだソフトセラミクスの基礎モデル構築に向けて重要な基盤となる。

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 14 件)

Edgar Avalos, Takashi Teramoto, Hideaki Komiyama, Hiroshi Yabu and Yasumasa Nishiura, Transformation of block copolymer nanoparticles from ellipsoids with striped lamellae into onion-like spheres and dynamical control via coupled Cahn-Hilliard equations, ACS Omega, 査読有, 3(1)巻, 2018年, pp.1304-1314
10.1021/acsomega.7b01557

Akihiko Hirata, Tetsu Ichitsubo, Pengfei Guan, Takeshi Fujita, Mingwei Chen, Distortion of local atomic structures in amorphous Ge-Sb-Te phase change materials, Physical Review Letters, 査読有, 2018年,

平岡裕章, 西浦廉政, ランダムの中に見る秩序—パーシステントホモロジーとその応用, 日本物理学会誌, 査読有, 72 巻 9号, 2017年, pp.632-640

Fan Zhu, Akihiko Hirata, Pan Liu, Shuangxi Song, Yuan Tian, Jiuhui Han, Takeshi Fujita, and Mingwei Chen, Correlation between Local Structure Order and Spatial Heterogeneity in a Metallic Glass, Physical Review Letters, 査読有, 119 巻, 2017年, pp.215501-6
10.1103/PhysRevLett.119.215501

Kuniyasu Saitoh and Hideyuki Mizuno, Anisotropic decay of the energy spectrum in two-dimensional dense granular flows, Physical Review E, 査読有, 96 巻, 2017年, pp. 12903(1-12)
10.1103/PhysRevE.96.012903

Kuniyasu Saitoh, Vanessa Magnanimo, and Stefan Luding, The effect of microscopic friction and size distributions on conditional probability distributions in soft particle packings, Computational Particle Mechanics, 査読有, 4 巻, 2017年, pp. 409-417
10.1007/s40571-016-0138-z

Edgar Avalos, Takeshi Higuchi, Takashi Teramoto, Hiroshi Yabu and Yasumasa Nishiura, Frustrated phases under three-dimensional confinement simulated by a set of coupled Cahn-Hilliard equations, Soft Matter, 査読有, 27 巻, 2016年, pp.5-5914
10.1039/C6SM00429F

Yasuaki Hiraoka, Takenobu Nakamura, Akihiko Hirata, Emerson G. Escobar, Kaname Matsue, and Yasumasa Nishiura, Hierarchical structures of amorphous solids characterized by persistent homology, 査読有, 113 巻, 2016年, pp.7035-7040
10.1073/pnas.1520877113

Hideyuki Mizuno, Kuniyasu Saitoh, and Leonardo E. Silbert, Elastic moduli and vibrational modes in jammed particulate packings, Phys. Rev. E, 査読有, 93 巻, 2016年, pp. 062905(1-21)
PhysRevE.93.062905

T. Nakamura, Y. Hiraoka, A. Hirata, E.G. Escobar, Y. Nishiura, Persistent homology and many-body atomic structure for medium-range order in the glass, Nanotechnology, 査読有, 26(30)巻, 2015年, 304001(1-13), 2015
(in press)
10.1088/0957-4484/26/30/304001

西浦廉政, パターンダイナミックスの新しい流れ, The Society of Polymer Science, Japan, 査読有, 64 巻, 2015年, pp.641-644

Litwinowicz, A.-A., Takami, S., Hojo, D., Aoki, N., Adschiri, T., Hydrothermal Synthesis of Cerium Oxide Nanoassemblies through Coordination Programming with Amino Acids, Chemistry Letters, 査読有, 43 巻, 2014年, pp. 1343-1345
10.1246/cl.140262

Singh, V., Takami, S., Aoki, N., Hojo, D., Arita, T., Adschiri, T., Hydrothermal Synthesis of Luminescent GdVO₄:Eu Nanoparticles with Dispersibility in Organic Solvents, Journal of Nanoparticle Research, 査読有, 16 巻, 2014年, pp.1-11
10.1007/s11051-014-2378-2

A. Hirata, M.W. Chen, Angstrom-beam electron diffraction of amorphous materials, Journal of Non-Crystalline Solids, 査読有, 383 巻, 2014年, pp.52-58
10.1016/j.jnoncrysol.2013.03.010

[学会発表](計 21 件)

Yasumasa Nishiura, A Global Bifurcation Approach to the Dynamics of Traveling Pulses with Oscillatory Tails in Heterogeneous Media, Conference on Perspectives in Nonlinear Science, 2018年

西浦 廉政, 数理科学と材料科学のクロス

ロード, 平成 29 年度 繊維学会東北・北海道支部 講演会「計算と実験の融合による新規材料開発」, 2018 年

Yasumasa Nishiura, How defects impact on the dynamics of spatially localized patterns, The Third International Conference on the Dynamics of Differential Equations, 2018 年

Yasumasa Nishiura, Frustrated nanoparticles and their metamorphosis, CSE SEMINAR, 2018 年

西浦 廉政, ナノ微粒子ミクロ相分離における縞模様からタマネギ型への形態繊維モデリング, 日本数学会 秋季総合分科会, 2017 年

Yasumasa Nishiura, Interplay between Internal and External Interactions for Morphological Transitions arising in Block Copolymer Nanoparticles, Workshop on Dynamical Systems and Applied Mathematics, 2017 年

西浦 廉政, ナノ微粒子の形態形成, 札幌非線形現象研究会 2017, 2017 年

平田 秋彦, 非晶質物質の電子線局所構造解析, 第 7 回計算統計物理学研究会, 2017 年

齋藤 国靖, 摩擦のある紛体の微視的理論と不連続シェアシックニング, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年

齋藤 国靖, 粉粒体レオロジーの数値的および理論的研究, 2017 年度 第 1 回計算粉体力学研究会, 2017 年

Yasumasa Nishiura, Frustrated micro-phase separation, MIMS International Conference, 2017 年

Yasumasa Nishiura, How geometric constraints affect the 3D morphology of di-block copolymer, ANZIAM 2017, 2017 年

Kuniyasu Saitoh, A master equation for force distributions in dense granular materials, Symposium on Large Fluctuations and Collective Phenomena in Materials III - Materials Science & Technology (MS&T16), 2016 年

中村 壮伸, パーシステントホモロジーを用いたアモルファス構造の記述, 第 21 回高分子計算機科学研究会講座, 2016 年

西浦 廉政, What is an amorphous

structure?, International Workshop "New Frontiers in Nonlinear Sciences", 2016 年

平岡 裕章, パーシステントホモロジーを用いたアモルファス構造解析, 公益社団法人日本セラミック協会第 28 回秋季シンポジウム, 2015 年

NAKAMURA TAKENOBU, Persistent Homology and Many-Body Atomic Structure for Medium-Range Order in the Glass, 8th International Congress on Industrial and Applied Mathematics(ICIAM2015), 2015 年

Y. Nishiura, Mathematical challenge to complex phenomena, 2015 A3 joint Workshop on Fluid Dynamics and Material Science, 2015 年

Y. Nishiura, Mathematics and materials science, Tohoku-Cambridge Workshops on Global Safety and on Materials Science, 2014 年

Yasuaki Hiraoka, Topological Data Analysis on Amorphous Structure, FoCM '14 Conference, 2014 年

②Yasuaki Hiraoka, Hierarchical Geometric Characterizations of SiO₂ by Persistent Homology, RIMS International Conference "Mathematical Challenge to New Phase of Materials Science", 2014 年

[図書] (計 1 件)
Akihiko Hirata, 他, SpringerBriefs in the Mathematics of Materials, Vol. 2, Structural Analysis of Metallic Glasses with Computational Homology, 2016, 66

[産業財産権]

出願状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
出願年月日 :
国内外の別 :

取得状況 (計 0 件)

名称 :
発明者 :
権利者 :
種類 :
番号 :
取得年月日 :

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

http://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/nishiura_labo/index.html

<https://researchmap.jp/ynishiura/>

6．研究組織

(1) 研究代表者

西浦 廉政 (NISHIURA, Yasumasa)

東北大学・材料科学高等研究所・特任教授

研究者番号：00131277

(2) 研究分担者

平岡 裕章 (HIRAOKA, Yasuaki)

東北大学・材料科学高等研究所・教授

研究者番号：10432709

平田 秋彦 (HIRATA, Akihiko)

東北大学・材料科学高等研究所・准教授

研究者番号：90350488

齊藤 国靖 (SAITHO, Kuniyasu)

東北大学・数理科学連携研究センター・准教授

授

研究者番号：10775753

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()