

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 11 日現在

機関番号：13903

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K05574

研究課題名(和文)非熱系拡張動的ファシリテーション理論による高密度分子系の非平衡相転移の統一的解明

研究課題名(英文)Extended dynamic facilitation theory and non-equilibrium phase transition in athermal dense molecular systems

研究代表者

磯部 雅晴 (Isobe, Masaharu)

名古屋工業大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：80359760

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)：高密度分子・ガラス系の「相転移」や遅い緩和に関する「神秘的な物性」の解明は、大きな難問となっている。研究が精力的に行われているが、未だ決定的な理論や概念が存在せず、世界中の研究者を魅了し続けている。本プロジェクトでは、研究代表者の開発したオリジナルな高密度剛体球系の高速度アルゴリズムや新しい解析の方法論を用い、「フリージング」「フラジリティ」「ファシリテーション」という概念を軸に、理論・実験・計算機シミュレーションによる国際共同研究体制で、非熱ガラス系へ拡張された動的ファシリテーション機構と時空アンサンブル解析による非平衡相転移の解明を目標とし、研究を遂行した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、人間組織を活性化し協働促進させる「ファシリテーション」が注目を集めているが、分子ガラス系でも「ファシリテーション」が起こるとする独創的な理論が提唱され、大きな論争となっている。本プロジェクトでは、新しい方法論を基礎に、構造ガラス系をめぐる「遅い緩和」の微視的機構を分子シミュレーションとコロイド実験の双方から国際協力体制で遂行し、新しい物理的機構を探索した。従来の「急冷ガラス」とは異なり、「急圧非熱系」研究の発展に学術的意義があり、剛体球系の「Alder転移」のように、単純さゆえ基本概念が、広範な分野へのパラダイムシフトをもたらす潜在力をもつという観点で、社会への成果の還元が期待できる。

研究成果の概要(英文)：It is highly debated which of the competing concepts on the mystery of slow relaxation mechanism approaching glass transition is the most appropriate in highly packed systems. No definitive theory or concept has yet been established, which has attracted researchers all over the world. In our project, we have developed the original methodologies for highly dense hard particle systems. Based on key concepts of "freezing," "fragility," and "facilitation," we primarily investigate athermal glassy systems in binary hard disks mixture using a novel numerical approaches. We mainly focus on the validity of the extended dynamic facilitation theory by both extensive simulation and colloidal experiments in a couple of international collaborations.

研究分野：計算統計物理学

キーワード：高密度剛体球系 分子動力学法 非平衡相転移 動的協働促進機構 時空アンサンブル

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、高密度分子・粉体系の「ガラス・ジャミング転移」それらの類似性に着目した「遅い緩和」を記述する統一的(普遍的)枠組みに関する研究が精力的に行われている。これまでに多角的な観点から問題解決の努力がなされてきているが、いまだ多くの新しい観点からの研究が絶え間なく創生され、世界中の研究者を魅了し続けている。本プロジェクトでは、代表者の開発した高密度剛体球系の解析に必要な高速アルゴリズムならびに新しい解析手法といった方法論を用い、「フリージング(freezing)」「フラジリティ(fragility)」「ファシリテーション(facilitation)」という概念を軸に、理論・実験・計算機シミュレーションによる国際共同研究を遂行する。特に、過冷却(圧縮)液体の動的機構とガラス転移のメカニズムは、熱力学起源の理論と動的ファシリテーション理論(Dynamic Facilitation:DF)との間に論争がある。そのため、熱的起源によらない(密度が唯一の制御変数となる)高密度な非熱系に着目し、分子・粉体・ガラス系へ一般化された動的ファシリテーション機構や時空アンサンブル解析により非平衡相転移の解明することを目標とし、研究を遂行した。

2. 研究の目的

本プロジェクトでは、非熱系(Athermal Systems)の分子・粉体・ガラス系に着目し、これまで研究代表者が国際共同研究において(主として、科研費の研究成果として)開発した新しい方法論を基礎に、熱的起源によらない(密度が唯一の制御変数となる)高密度系での「遅い緩和」と「非平衡相転移」に関して、拡張 DF 理論ならびに時空アンサンブル解析から、理論・実験・シミュレーションの国際共同研究体制で遂行し、全容解明に向け研究を遂行することを目的とした。

本プロジェクトは、3つの研究ステージで構成されている。(I)「フリージング」:3次元結晶構造間の安定性(自由エネルギー計算)と融解の動的起源の探求。(II)「フラジリティ」:非熱ガラス系の分子をソフト化した際の系の柔らかさとの関係、動的不均一性とひも状の協働促進運動の変化(実験とシミュレーションの比較)と理論検証。(III)「ファシリテーション」:高密度ガラス・ジャミング転移の励起構造の時空間解析による非平衡相転移の解明。具体的な研究内容と目的は以下にまとめる。

- (I) 「フリージング(freezing)」:(日仏国際共同研究)
これまでの ENS(Paris)との共同研究を進展させ、(a) Event-Chain Monte Carlo 法の高速度の鍵である Event-Chain 長のパラメーター最適化と緩和機構の解明。(b)未解決問題である結晶構造(「面心立方格子(fcc)」と「六方最密格子(hcp)」)間の融点付近の動的挙動と最密結晶の安定性問題の探求。Event-Chain MC による高速自由エネルギー計算により、全容解明をめざす。
- (II) 「フラジリティ(fragility)」:(日中(香港)国際共同研究)
斥力分子(剛体円板)系の過圧縮液体では拡張 DF 理論が検証された(Isobe et al., Phys. Rev. Lett. (2016))が論文公表の直後、香港(中国)のグループより、コロイド実験との比較検証に関する共同研究を依頼された。ガラス転移は現在、熱力学起源の理論と DF 機構起源との間に大きな論争があるが、Isobe et al.(2016)のシミュレーション結果は直接実験と比較ができるため、世界中の実験家の関心を集めつつある。剛体球からソフト化した際のガラスのフラジリティの関係性、高密度系の協調運動(CRR)とひも状の時空協調運動(DF 予測)に着目し、論争解決のため実験結果と系統的な比較を行う。
- (III) 「ファシリテーション(facilitation)」:(日米英国際共同研究)
高密度非熱系ガラスとジャミング現象の時空間励起構造の解明を目的とし、Isobe et al. (2016)で未解決であった時空アンサンブル解析(s-ensemble)による非平衡相転移の解明を行う。剛体球系へ適した軌道探索アルゴリズム(Transition Path Sampling(TPS)法)の開発を行い、系統的な時空アンサンブル解析を行う。

3. 研究の方法

「研究の目的」の3つのステージ(I)-(III)の研究を遂行するためには、「高速計算機環境の構築」ならびに高密度系の分子シミュレーションにおける「新しい解析手法(アルゴリズム)の導入とさらなるブレークスルー」が不可欠となる。これらの研究遂行のため、研究代表者は以下の(a)-(c)の3つの新しい方法論を開発している。

- (a) 「Event-Based ハイブリッドアルゴリズム」:「Statistical Mechanics: Algorithms and Computations」(Oxford)の著書でも著名な W. Krauth 教授(ENS-Paris)らは、従来の MC 法とは全く異なる Event-Chain MC という高速な方法論を開発した(Bernard&Krauth&Wilson, PRE, 2009)。このアルゴリズムは、粒子衝突まで直線運動させ、次々に起こる衝突の連鎖を1つのイベントとして扱い棄却がないため、高密度系で非常に高速な計算が可能となる。高密度系では粒子が頻繁に衝突を繰り返す、計算時間が増大するのに加え、ガラス系では準安定状態から定常(平衡)系への緩和も著しく遅くなる。2012年、ParisのKrauth教授の研究室に滞在したのをき

っかけに共同研究を遂行した。平衡状態緩和の大幅な短縮のため、時間発展を直接計算する研究代表者の開発した高速な Event-Driven MD (Isobe, IJMPC, 1999) との相補的な特徴を利用しお互いの長所を生かしたハイブリッドアルゴリズムを完成させた(Isobe, Mol.Sim., 2016)。(Event-Based Hybrid 高速アルゴリズム)

- (b) 「一般化配向秩序変数と動的多体相関関数法」: 分子シミュレーションの創始者 B. J. Alder 教授との国際共同研究で開発された方法論(Isobe&Alder, JCP, 2012)では、高密度系のシアストレスや結晶核など物理量の時空相関関数が従来より約 2 桁高速に計算でき(計算不可能とされた)「8 点相関(4 体 2 時間相関)」計算も可能となった。また近年、D. Frenkel 教授(Univ. of Cambridge)らのグループが開発した新しい最近接粒子判定法(SANN 法)を 2 次元並びに高次近接まで拡張した。この拡張により、ガラス系のように多分散系においても、曖昧さなしに高次まで近接粒子の判定が可能となる。新しい方法論は、高密度ガラス・粉体系の非平衡相転移の定量化・精密化に大変有効であり、高密度液体の時空構造解析のみならず、非平衡相転移現象の定量化にも大変有効である。
- (c) 「Transition Path Sampling (TPS)法と時空アンサンブル解析」: 高密度粒子系におけるガラス・ジャミング転移の解明は、重要な研究課題となっているが、DF 理論は極めて独創的である。この理論では、粒子の空間配置や密度場から構築された従来の理論とは一線を画し、時間を含めた「時空間」での粒子の軌道に着目し、時空間で定義される物理量を基礎に、新しい統計力学理論(時空アンサンブル: s-ensemble)を構築した。稀に起こる大きな粒子変位(レアイベント)の探索に TPS 法(MC 法を粒子の軌道へ拡張: D. Chandler グループ(U.C.Berkeley)が開発)を用い、時空間上で生じる非平衡相転移(1 次転移)を見出した。TPS 法はマルチカノニカル法と似た構造を持つ拡張アンサンブルであるが、軌道を Sampling する点が決定的に違う。研究代表者は、Chandler 研究室(U.C.Berkeley)に長期滞在時に Event-Driven MD と TPS 法をハイブリッドした方法論を開発した。この方法論を用い、時空アンサンブル解析により、非平衡相転移の研究を遂行する。

4. 研究成果

本プロジェクトでは、分子シミュレーションで得られた大規模な粒子の軌道データの解析を行うため、研究遂行に必要な高速計算機クラスター環境の整備を行った。研究期間中に、大容量ファイルサーバの価格・性能、また研究内容を精査した結果、バルク型並列計算に対応できる大容量のファイルサーバも含めた計算機環境を整えることができ、広範囲なパラメーター空間でのデータの精密化を系統的に遂行できた。国際共同研究では、研究打ち合わせや情報の交換をより円滑に行う必要がある。昨今ではインターネットを介したテレビ会議を利用したコミュニケーションが有効であるため、大型ディスプレイ環境を整えた。構築された研究環境により、研究は現在も活発に進行中である。研究プロジェクト期間において行った研究活動を以下にまとめる。

- (1) 研究の目的(I)に関連し、日本結晶成長学会からの依頼論文「剛体球系の結晶化」を執筆した。また、著書「コロイド結晶の形成とその応用」(シーエムシー出版)を分担執筆した(担当: 第 3 章 3.剛体球粒子分散系の構造形成シミュレーション)した。ENS(Paris, 仏国)の Krauth 氏らと(I)のテーマの一つである高速化の鍵となるイベント鎖のパラメーターと緩和機構の関係を調べた。このため、2017 年 7 月(パリ)と同年 11 月(東京)でそれぞれ研究の打ち合わせを行った。
- (2) (II)(III)に関して、香港理工大学・ハルビン工業大学(深セン)などとの国際共同研究を発展させた。2017 年 9 月と 2019 年 7 月に同大学を訪問(招待セミナー)し、高密度の過圧縮液体におけるシミュレーション結果とコロイド系実験の結果との比較検証を精密化させた。香港のコロイド実験により、新しく発見された String-Repetition 現象とシミュレーション結果を直接比較し、DF 理論を支持する結果ならびに「遅い緩和の起源」についての新しい微視的物理機構の研究を推進した。実験、シミュレーションで得られた軌道データによる解析の確認作業を慎重に行い、現在成果をまとめている。
- (3) (II)(III)の研究遂行上、避けられない DF 理論の大きな「パラドックス」として、Hopping 運動連鎖の起源がある。連鎖には最初に大きな変位が必要となるため、Hopping 粒子の前方に粒子の大きさ程度の空隙が必要となるが、高密度系では存在しない。そこで、最初のトリガーとなる粒子に着目し、第 2、第 3 近傍まで含めた領域に存在する小さな隙間(準空隙)により自由体積が積算され、それが粒子サイズ程度の領域に到達した領域に含まれる複数の近接粒子の協調促進(ファシリテーション)により、最初の Hopping が駆動されるという仮説を立てた。実際に実験、シミュレーションにおいてこの事象を多数発見した。この領域は、従来から存在が知られる粒子がアクティブになる領域、いわゆる「ソフトスポット」と類似しており、粒子運動と分子の配置構造の関係性を理解する重要な手がかりとなりうると考えられる。高密度分子系の構造緩和の新しい物理的

- 機構としてさらに精密な検証を進めている。
- (4) (3)の解析には、粒子の最近接粒子のみならず、第 2、第 3 粒子を正確に定義する必要がある。ところが、2 成分ガラス系において従来法(Cut-off 法、Voronoi 法)を適用すると、最近接粒子の判定でさえも種々の困難が生じることがわかった。方法論(b)で記載した SANN 法をベースに 2 次元 2 成分ガラス系に方法論を拡張し解析をしたところ、高次近接粒子まで曖昧さなく決定できることが判明した。また、SANN 法をベースとした自由体積計算法の開発の研究も進んでいる。これらの成果は、いくつかの国際・国内会議で公表した。
 - (5) 本プロジェクトと関連して、粉体気体の後期発展過程におけるクラスター同士の衝突現象を方法論(a)の高速アルゴリズムを用い解析した。1600 万粒子系超の大規模シミュレーションにおいて、従来の理論では説明がつかないエネルギー緩和の新しいステージの存在を示した。また、微視的原因としてクラスター内部の衝撃波発生に伴う衝突率の増大が原因であることを突き止め、伝搬機構の解明を試みた。高密クラスター衝突と衝撃波の発生機構の大規模剛体球分子動力学法による解析結果は、国際会議プロシーディングスで公表した。現在、方法論(b)を適用し、衝撃波の発生条件とクラスター内部の秩序化(結晶化)と非平衡相転移の関係を明らかにするため研究を進めている。これまでの研究代表者による大規模シミュレーションで得られた粉体気体系の乱流化現象の成果などをまとめ、日本物理学会誌特集「広がり巻き込む乱流現象」の解説記事「粉体乱流—マイクロとマクロの架け橋へ」を共同執筆した(2018 年 7 月号掲載)。
 - (6) 研究成果のアウトリーチとして、50 年来の難問として知られる「2 次元融解問題」に関する日米仏国際共同研究の成果(Engel & Anderson & Glotzer & Isobe & Bernard & Krauth, Phys. Rev. E, (2013))が世界から大きく注目され、2020 年 6 月現在、クラリベイドアナリティクス社の InCites Benchmarking の論文引用指標 Percentile が 0.4%程度(いわゆる Top1%論文)と高い数値となり、2018 年に Physical Review E 誌よりマイルストーン論文として選出された。このことから名工大からプレスリリースが刊行され、中日新聞社の朝刊に記事が掲載された。

研究プロジェクト期間の研究業績(まとめ)は、図書(分担執筆) 1、論文(解説論文含)3、招待・依頼講演 4、国際会議 4、国内会議 3、研究成果のアウトリーチ 2 件であった。

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 磯部 雅晴、齊藤 国靖	4. 巻 73
2. 論文標題 粉体乱流 マクロとミクロをつなぐ架け橋へ	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 469 ~ 474
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11316/butsuri.73.7_469	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 Isobe Masaharu	4. 巻 140
2. 論文標題 Clustering impact regime with shocks in freely evolving granular gas	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 EPJ Web of Conferences	6. 最初と最後の頁 04006 ~ 04006
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1051/epjconf/201714004006	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 磯部 雅晴	4. 巻 44
2. 論文標題 剛体球系の結晶化	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 日本結晶成長学会誌	6. 最初と最後の頁 n/a ~
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.19009/jjacg.44-3-05	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11件（うち招待講演 4件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 Cho-Tung Yip, Masaharu Isobe, Simiao Ren, Kin-Ping Wong, Chun-Sing Lee, Yafei Yang, Si-Cong Zhu, Yuen-Hong Tsang, Yilong Han, and Chi-Hang Lam
2. 発表標題 Particle hopping repetition and kinetic arrest in colloidal glass
3. 学会等名 Unifying Concepts in Glass Physics 7 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 磯部雅晴
2. 発表標題 計算統計物理学の歴史的発展と応用 - 剛体球系の分子シミュレーションを中心に -
3. 学会等名 分子シミュレーション夏の学校 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Masaharu Isobe
2. 発表標題 Hard Sphere Simulation in Statistical Physics --- Novel Algorithms Elucidate the Mystery of Phase Transition
3. 学会等名 Seminar at Dept. of Applied Physics, The Hong Kong Polytechnic University, China (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masaharu Isobe
2. 発表標題 Clustering Impact Regime with Shocks in Freely Evolving Granular Gas
3. 学会等名 Powders and Grains 2017 (Montpellier, France) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Masaharu Isobe
2. 発表標題 Hard-Sphere Melting and Crystallization with Modern Hybrid Algorithms
3. 学会等名 The XXIXth IUPAP Conference on Computational Physics (CCP2017) (Paris, France) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 磯部雅晴
2. 発表標題 剛体球系の分子シミュレーションとその応用 結晶化、粗大化、ガラス
3. 学会等名 物性研究所パソコン共同利用・CCMS合同研究会「計算物質科学の新展開」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 磯部雅晴
2. 発表標題 剛体球系の分子シミュレーションとその応用 結晶化、粗大化、ガラス
3. 学会等名 非線形科学とその周辺セミナー(京都大学情報学研究科先端科学専攻)(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Masaharu Isobe
2. 発表標題 Detection of nearest neighbor in binary hard disk mixture systems
3. 学会等名 XXXI IUPAP Conference on Computational Physics (CCP2019) (Hong Kong) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 児山弘昌、磯部雅晴
2. 発表標題 2成分剛体円板系における最近接粒子の判定法とその特徴
3. 学会等名 第9回ソフトマター研究会(名古屋大学)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 児山弘昌、磯部雅晴
2. 発表標題 2成分剛体円板系における最近接粒子の判定法とその特徴
3. 学会等名 第33回分子シミュレーション討論会（名古屋市公会堂）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 児山弘昌、磯部雅晴
2. 発表標題 2成分剛体円板系における最近接粒子の判定法とその特徴
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会（名古屋大学）
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 磯部雅晴（分担執筆）（監修：中村浩、山中淳平）	4. 発行年 2020年
2. 出版社 シーエムシー出版	5. 総ページ数 251（12pages分担当）
3. 書名 コロイド結晶の形成とその応用	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>【アウトリーチ】</p> <p>名古屋工業大学プレスリリース(2018.10.31)「磯部准教授らの日米仏国際共同論文が、Physical Review E誌25周年マイルストーン論文に選出」 https://www.nitech.ac.jp/news/press/2018/7085.html</p> <p>中日新聞 2018年11月13日朝刊掲載。「米科学誌最優秀論文「マイルストーン」選出」名工大准教授ら日米仏共同研究</p>

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
--	---------------------------	-----------------------	----