

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 9 日現在

機関番号：13903

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400389

研究課題名(和文) 高密剛体球系の時空アンサンブル解析による非平衡相転移と動的協働促進機構の解明

研究課題名(英文) Dynamic facilitation theory and non-equilibrium phase transition in dense hard sphere 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)・助教

研究者番号：80359760

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)：高密系における「ガラス・ジャミング転移」の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、理論・実験・計算機シミュレーションを軸に、多角的な観点から問題解決の努力がなされたが、決定的な概念や理論は存在せず、未だ多く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研究代表者の開発した高密剛体球系の高速アルゴリズム解析の新しい方法論を基礎に、剛体系の融解現象並びに、近年著しく注目を集めているガラス転移の動的協働促進(ダイナミック・ファシリテーション)機構の拡張と時空アンサンブル解析による非平衡相転移の解明を行った。

研究成果の概要(英文)：It is highly debated which of the competing approaches to the crystallization and glass transition is the most appropriate to describe the phase transition and relaxation of glass former. In this project, we numerically investigate nucleation from a liquid into the crystal by efficient event-based algorithms (i.e. event-chain Monte Carlo, and event-driven molecular dynamics) with up to one million hard sphere systems. We also investigate systematically the applicability of dynamic facilitation theory for glass-forming binary hard disk systems with event-based hybrid algorithms where supercompression is controlled by pressure rather than temperature.

研究分野：計算統計物理学

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

1 . 研究開始当初の背景

高密分子系における「ガラス転移」、粉体系における「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。ガラス・粉体系は、非平衡統計力学において線形応答理論を越えた局所非平衡系の統計力学を推進するプロトタイプ系として、理論的發展が大きく期待されている。これまで、理論・実験・計算機シミュレーションを軸に、互いに相補的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、決定的な概念や理論は存在せず、未だ多く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。

本研究プロジェクトでは、研究代表者が近年、国際共同研究で開発した、(1) B.J.Alder 教授(LLNL)との剛体球系の高次秩序変数に関する解析法、(2) W.Krauth 教授(ENS-Paris)との剛体球系のハイブリッド高速計算、(3) D.Chandler 教授(U.C.Berkeley)との TPS 法、という 3 つの強力な新しい方法論を用い、これまでの研究代表者のオリジナルな研究成果を基礎に、(I) 日米欧の国際共同研究体制にて、(II) 3 つの新しい方法論を用いた世界最大規模の計算により、(III) 圧力（排除堆積効果）に着目した新しい理論の確立と大規模計算機シミュレーションの双方から高密度剛体球ガラス系の時空アンサンブル解析を通して、動的協働促進(Dynamic Facilitation : DF) 機構と非平衡相転移、さらには高密剛体球系の動的挙動の統一的理解をめざした。

2 . 研究の目的

本研究では、これまでの研究代表者の開発した剛体球系解析に必要な不可欠な新しい方法論と研究成果を基礎に、「高密系」のキーワードを軸に、次元、多成分、散逸、遅い緩和、応答、衝撃波、非平衡相転移、ガラス・ジャミング転移と研究を展開し、高密系特有の遅い緩和を解析する強力な方法論を確立させ、高密剛体球系を統一的な観点から新しい基礎的概念を確立させることを目的とした。本研究プロジェクトは、4 つの研究ステージから構成されている。

- (1) 高密粉体気体系の後期発展過程におけるクラスター衝突と衝撃波：剛体球系で粒子間衝突に散逸が伴うと粉体気体モデルとなる。高密度系において、自発的に凝集した高密クラスター同士の衝突に伴う衝撃波（圧縮場で円弧状で伝播）が研究代表者の大規模計算により発見された。この現象は従来の理論では説明がつかず、巨視的物理量への影響も含め、発生機構を大規模剛体球分子動力学法(Molecular Dynamics: MD)により解明し、従来の理論の修正を行う。

- (2) 2 次元剛体球系の融解現象—転位分布、擬 2 次元、多分散、応答 - : 研究代表者も含む日米仏国際共同研究(Engel & Anderson & Glotzer & Isobe & Bernard & Krauth, PRE, 2013)において、50 年来の難問である「2 次元剛体球系の融解現象」の全容を解明した。この研究の発展として、2 次元融解で重要な転位(dislocation)分布とコアエネルギーを見積もる。また (1)擬 2 次元系、(2)多分散系、(3)密度変化への応答、の 3 つの観点から融解における転位の役割を解明する。

- (3) 3 次元剛体球系の共存相と融解現象：3 次元 Alder 転移は、直接剛体球 MD では共存相が見出されてなく、融点近傍での動的挙動もよくわかっていない。研究代表者の開発した新しい方法論を用い、3 次元大規模剛体球系の転移点近傍の共存相と粗大化や融解現象の詳細を調べ、その動的性質と起源を探る。

- (4) 2 成分剛体球ガラス系における時空アンサンブル解析—動的協働促進機構と非平衡相転移 - : U.C.Berkeley の David Chandler 教授らにより、従来のガラス理論とは異なる新しい観点から動的協働促進(Dynamical Facilitation(DF))機構と時空アンサンブル(s-ensemble)理論が 10 数年前より提案され、世界的な注目を集めている(Chandler & Garrahan, Annu.Rev.Phys.Chem. 2010)。本理論は、Kinetic Constraint Model(KCM)という格子系やソフトコア分子系で理論の有効性が既実証されている(Hedges et al., Science, 2009; Keys et al., PRX, 2011 など)。一方、過圧縮ガラス系に対応する剛体球系では圧力（排除体積効果）を基礎にした DF 理論の再構築が必要となる。高密ガラス・ジャミング転移の時空間励起構造の解明を目的とし、2 成分剛体球ガラス系における拡張された動的協働促進理論と時空アンサンブルによる非平衡相転移の研究を行う。また、軌道探索アルゴリズムである Transition Path Sampling(TPS)法を剛体球系へ適用し Chandler グループと共同で系統的な時空アンサンブル解析を行う。

3 . 研究の方法

計算統計物理における Alder 転移の発見以来、剛体球 MD は平衡・非平衡現象を計算する重要な研究の方法論を提供している。また、剛体球のような最も単純なモデル系は「Alder 転移」に代表されるように広範な物性物理学の基本概念であり、単純さゆえパラダイムシフトをもたらす潜在力があり、社会への成果の還元も期待される。

シミュレーション解析は厳密であるが、非

平衡系特有の巨視的パターン形成や輸送現象の解析は、空間パターンが成長するほどの大規模かつ長時間の計算が必要なため未開拓であった。研究代表者は10年以上にわたり、粉体系と剛体球系の動力学を中心課題とし、非平衡系に適用可能な高速 Event-Driven MD 法 (Isobe, 1999), Event-Chain Monte Carlo (MC) 法と合わせた Hybrid 超高速アルゴリズム (Isobe, 2016) を開発した。また、計算統計物理学の観点から世界最大規模のシミュレーションを実行し「粉体気体の乱流化」「新しい粉体応答理論の検証」「2次元ロングタイムテール問題」「高密度液体の遅い緩和とモラセステール」「2次元融解問題」などの研究により、非平衡統計物理学の理解促進に貢献した。このように剛体球 MD は新しい理論や難問に対し大規模計算を行うことにより検証(解決)能力があることが既実証されている。

「2. 研究の目的」における4つのステージ(1)-(4)の研究を遂行するためには、高速計算機環境の構築に加えて、高密分子系における新しい解析手法のブレークスルーが不可欠となる。これらの高密系の研究遂行のため、研究代表者は、近年3つの新しい方法論を開発した。

- (1) 「一般化配向秩序変数と動的多体相関関数法」: Alder 教授との国際共同研究で開発された方法論 (Isobe & Alder, JCP, 2012) により、高密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。新しい方法論は、高密度液体の時空構造解析のみならず、高密ガラス・粉体系の非平衡相転移現象の定量化並びに精密化にも大変有効であり、本研究の推進に大きく貢献することが期待できる。
- (2) 「Event-Chain MC & Event-Driven MD 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、従来のモンテカルロ(Monte Carlo: MC)法とは全く異なる Event-Chain MC (イベント鎖モンテカルロ法)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。高密系では粒子が頻りに衝突を繰り返し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年に1カ月ほど Krauth 教授の研究室に滞在した機会に共同研究が始まった。ここで、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 Event-Driven MD 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が完成した (Isobe, Mol.Sim., 2016)。

- (3) 「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。DF 理論は極めて独創的であり、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 Transition Path Sampling (TPS)法 (MC 法を粒子の軌道へ拡張: Chandler グループが開発)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 (Hedges et al., Science, 2009)。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。本研究では、非平衡相転移を Event-Driven MD と TPS 法をハイブリッドした方法論を開発した。

4. 研究成果

研究計画の初年度に、研究遂行に必要な高速計算機環境の整備を行った。構築された計算機により研究を遂行し、以下の成果を得た。

- (1) カリフォルニア大学バークレー校(米国)の Keys 氏, Chandler 氏, ノッティンガム大学(英国)の Garrahan 氏との国際共同研究により、高密2成分剛体球ガラス系における拡張(一般化)された動的協働促進理論の研究を行った。成果として、過冷却液体に対する従来の理論を過圧縮液体に拡張、大小2種類の(2次元剛体)粒子系のサイズ・成分比を変えた高精度の相図の作成並びに部分結晶化を回避するモデルの発見、世界最速ハイブリッド法により拡張動的協働促進理論の予測に基づいた大規模かつ系統シミュレーションによる検証、が得られた。本研究成果は【日米英国際共同論文】として、Physical Review Letters 誌に掲載された。(Isobe et al., Phys.Rev.Lett.2016)
- (2) ENS(Paris, 仏国)の Krauth 氏らにより開発された「Event-Chain MC」を使い、3次元剛体球系の転移点近傍(いわゆる Alder 転移)において、100万粒子系の系統的大規模シミュレーションを行い、共存相の確認並びに結晶化に初めて成功した。また、非平衡状態からの結晶化過程

に着目し, Event-Driven MD と従来の MC 法との速度の比較を行った結果, 高密系の緩和への Event-Chain MC 法の圧倒的な優位性を明快に示した【日仏国際共同論文】. (Isobe&Krauth, J.Chem.Phys.2015)

- (3) これまでに解析が困難であった, 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 1600 万粒子系超の大規模シミュレーションにより解析した. ここで, 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. このステージの物理的起源として, 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, 伝搬機構の物理的機構を解明した. (Isobe, EPJ Web of Conf. 2017, in press)
- (4) Molecular Simulation の "Nonequilibrium Systems" 特集号の【招待論文】として, 統計物理学における剛体球系シミュレーションの方法論について歴史的な発展並びに最新のアルゴリズムを Review した. また, Event-Chain MC 法と Event-Driven MD の長所を合わせた高速ハイブリッド計算のアルゴリズムの詳細とその応用例として 2 次元と 3 次元系の融解現象, 2 次元 2 成分ガラス系の例を紹介し, その有用性を示した. (Isobe, Mol.Sim. 2016)
- (5) 2 次元相転移現象の残された課題として, 共存相や相転移点付近での転位 (Dislocation) の生成・ペア乖離の時空分布を系統的に調べることがある. これらは方法論の違い (最近接粒子の判定方法や inherent 構造 (粒子の熱揺らぎの効果を除いた位置) の考察) で結果が大きく変わることが判明した. この成果も含め, 剛体球シミュレーションの方法論と最新の成果をまとめた (Isobe, Book Chapter, World Scientific, 2017) 【招待論文】

【本プロジェクト期間の研究業績まとめ】

著書 (Book Chapter) 1, 論文 3 (掲載可 1), 解説記事 2, 招待・依頼講演 6, 国際会議 8, 国内会議 4

【研究成果のアウトリーチ】

- (1) 名工大プレスリリース (2016.10.3) 「分子の世界の「ファシリテーション」をとらえた! —世界最速アルゴリズムでガラス物質の神秘に迫る—」
- (2) EurekAlert! (2016.12.7) 「Applicability of dynamic facilitation theory to binary hard disk systems」
- (3) 中部経済新聞「研究現場発」(2016.12.20) においても研究紹介が公表された.

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 6 件)

1. M. Isobe, "Clustering Impact Regime with Shocks in Freely Evolving Granular Gas", EPJ Web of Conferences, (2017). in press. 【査読有】
2. M. Isobe, A.S. Keys, D. Chandler, and J.P. Garrahan, "Applicability of Dynamic Facilitation Theory to Binary Hard Disk Systems", Physical Review Letters, 117, 14701(1-6) (2016). 【査読有】 DOI: 10.1103/PhysRevLett.117.145701
3. M. Isobe, "Hard sphere simulation in statistical physics --- methodologies and applications", Molecular Simulation, 42, 1317-1329 (2016). 【査読有】【招待論文】 DOI: 10.1080/08927022.2016.1139106
4. 磯部雅晴, 「大規模公開オンライン講座 (MOOC)「Statistical Mechanics: Algorithms and Computations (統計力学 - アルゴリズムと数値計算 -)」, 分子シミュレーション研究会会誌「アンサンプル」, 18, pp.43-46 (2015). 【査読無】
5. 磯部雅晴, 国際会議報告「Berni Alder's 90th Birthday Symposium」, 分子シミュレーション研究会会誌「アンサンプル」, 17, pp.234-236 (2015). 【査読無】
6. M. Isobe and W. Krauth, "Hard-Sphere Melting and Crystallization with Event-Chain Monte Carlo", The Journal of Chemical Physics, 143, 084509 (1-6) (2015). 【査読有】DOI: 10.1063/1.4929529

〔学会発表〕(計 18 件)

1. 磯部雅晴, 「剛体球系の分子シミュレーションとその応用—粉体, ガラス, 2 次元融解 - 」, 企業研究会「CAMM フォーラム」(アイビーホール, 東京)(2014.5.9) 【招待講演】
2. 磯部雅晴, 「剛体球系の分子シミュレーションとその応用—粉体, ガラス, 2 次元融解 - 」, 土曜談話会(福岡工業大学, 福岡)(2014.8.2) 【招待講演】
3. M. Isobe and W. Krauth, "Nucleation of Hard Spheres in local Monte Carlo, Event-Chain Monte Carlo, and Molecular Dynamics", Conference on Computational Physics 2014 (Boston, MA, USA) (2014.8.11-14)
4. 磯部雅晴, A.S. Keys, and D. Chandler, 「2 成分剛体球過圧縮液体における動的協働促進機構」日本物理学会 2014 年秋季大会 (中部大学, 愛知県春日井市) (2014.9.7-10)
5. M. Isobe, A.S. Keys, and D. Chandler,

- “Dynamic Facilitation in Binary Hard Disk Systems”, 2015 Mini Stat. Mech. Meeting (U.C.Berkeley, CA, USA) (2015.1.9-11)
6. M. Isobe, A.S. Keys, and D. Chandler, “Dynamic Facilitation in Binary Hard Disk Systems”, Physics of Structural and Dynamical Hierarchy in Soft Matter (Institute of Industrial Science, Univ. Tokyo, Tokyo) (2015.3.16-18)
 7. M. Isobe and W. Krauth, “Hard-Sphere Melting and Crystallization with Event-Chain Monte Carlo”, 70th Annual Meeting of the Physical Society of Japan (Waseda Univ., Tokyo) (2015.3.21-24)
 8. M. Isobe, A.S. Keys, and D. Chandler, “Dynamic Facilitation in Binary Hard Disk Systems”, 4 th International Workshop on Dynamics in Viscous Liquids (Montpellier, France) (2015.5.4-7)
 9. 磯部雅晴, A.S. Keys, and D. Chandler, “2成分剛体過圧縮液体に拡張された動的協働促進理論”, 物性研短期研究会「ガラス転移と周辺分野の科学 (東京大学物性研究所, 東京) (2015.7.30-8.1)
 10. 磯部雅晴, “統計物理学と分子シミュレーション”, (国立科学博物館, 上野本館, 東京) (2016.3.4-5) 【招待講演】
 11. M. Isobe, A.S. Keys, J.P. Garrahan, and D. Chandler, “Dynamic Facilitation in Binary Hard Disk Systems”, International Workshop on Jamming and Granular Matter, Satellite meeting of STATPHYS26 (Queen Mary University of London, UK) (2016.7.13-15)
 12. M. Isobe, A.S. Keys, J.P. Garrahan, and D. Chandler, “Dynamic Facilitation in Binary Hard Disk Systems”, STATPHYS26 (Lyon, France) (2016.7.18-22)
 13. 磯部雅晴, 「粉体気体系の後期発展過程におけるクラスターインパクトと衝撃波」日本流体学会年会 2016 (名古屋工業大学, 名古屋) (2016. 9.26-28)
 14. M. Isobe and W. Krauth, “Hard-Sphere Melting and Crystallization with Event-Chain Monte Carlo”, The 4 th International Conference on Molecular Simulation (Shanghai, China) (2016.10.23-26)
 15. 磯部雅晴, 「ガラス形成物質の神秘的な物性と分子の世界の「ファシリテーション」- 非熱系へ拡張された動的協働促進理論と剛体球系高速シミュレーション - 」, 第 3 回 産総研・東北大 MathAM-OIL セミナー(東北大学, 仙台) (2017. 1.31) 【招待講演】
 16. 磯部雅晴, 「ガラス形成物質の神秘的な物性と分子の世界の「ファシリテーション」- 非熱系へ拡張された動的協働促進理論と剛体球系高速シミュレーション - 」, 階層と全体 - 連携研究会「シミュ

- レーションによる『自然科学における階層と全体』(名古屋ルーセントタワー, 名古屋) (2017. 2.14-15) 【招待講演】
17. 磯部雅晴, 「粉体気体系の後期発展過程におけるクラスターインパクトと衝撃波」日本物理学会第 72 回年次大会 (大阪大学豊中キャンパス, 大阪) (2017. 3.17-20)
 18. 磯部雅晴, 「ガラス形成物質の神秘的な物性と分子の世界の「ファシリテーション」- 非熱系へ拡張された動的協働促進理論と剛体球系高速シミュレーション - 」, 「ソフトマターを中心とした材料科学の基礎と応用」シンポジウム(京都工芸繊維大学, 京都) (2017. 3.21-22) 【招待講演】

【図書】(計 1 件)

1. M. Isobe, (edited by E. Shwegler, B.M. Rubenstein and S.B. Libby), Advances in the Computational Sciences --- Proceedings of the Symposium in Honor of Dr Berni Alder’s 90th Birthday, (分担執筆, Chapter 6, pp.83-107), World Scientific, (2017) pp.204. 【招待論文】

【その他】

【研究成果のアウトリーチ】
名古屋工業大学プレスリリース
<http://www.nitech.ac.jp/news/press/2016/5050.html>

アメリカ科学振興協会(AAAS)オンライン国際研究広報「EurekAlert!」
https://www.eurekalert.org/pub_releases/2016-12/noit-aod120616.php

中部経済新聞「研究現場発」12月20日掲載.
「身近な難問を高速分子アルゴリズムで解明!」

【研究代表者ホームページ】
<http://stat.fm.nitech.ac.jp/~isobe>

6. 研究組織
(1)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)・助教
研究者番号: 80359760