

# 非平衡系における Hyperuniformity の理論的研究

松山洋道

名古屋大学大学院理学研究科、非平衡物理学研究室 (R 研)

指導教官: 宮崎州正教授

2022 年 2 月 7 日

## 概要

熱平衡系では、物理量の揺らぎは長距離の相関を持たない。しかし、臨界点近傍では、粒子の運動が協同的となり、相関長が増大するために、長距離の揺らぎが発散する。近年の研究で、このような密度揺らぎの増大とは対照的に、相関長は増大するものの長距離の密度揺らぎが抑制される現象が報告された。この現象は、Hyperuniformity と呼ばれている。

Hyperuniformity は、鳥の目の視細胞分布から初期宇宙の密度揺らぎまで、様々な非平衡系で報告されており、新しいタイプの長距離揺らぎとして注目を浴びている。しかし、非平衡系における Hyperuniformity の本質的な理解は十分には得られていない。そこで、本研究では、3つの非平衡系を選び、それらの系に対して、分子動力学法を用いた数値計算を行った。

1つ目は、自発的な運動性を持つ粒子で構成された Active Matter 系の研究を行った。本研究では、Active Matter の理論模型の一つである Generalized AOUP(GAOUP) 模型を用い、研究を行った。我々は、広いパラメータ領域を探索することで、GAOUP 系の相図を完成させた。その結果、密度揺らぎの増大で特徴付けられる凝集相と、それとは対照的な密度揺らぎの減衰を示す Hyperuniformity 相が広い領域に渡って存在することを示した。さらに、Hyperuniformity を特徴付ける量である Hyperuniformity 指数が非自明な値を持つことを示した。また、密度場だけでなく、速度場にも長距離相関が生じることを示した。

2つ目は、Jamming 系における Hyperuniformity について解析を行った。粒子を系に詰めていくとき、低密度では流動的であるが、密度を上げていくと、系はある密度で弾性的に振舞う Jamming 相へと転移する。この Jamming 転移点近傍では、Hyperuniformity が生じることが知られている。これまで、Jamming 転移点での Hyperuniformity は空間次元に依存しないとされていたが、我々は数値実験や過去のデータの再解析から、空間次元依存性を明らかにした。また、この依存性は、Jamming 転移の上部臨界次元が2であると仮定すれば、自然に導かれるものであることを示した。Jamming 転移点は、系に力学的アニールを施すことで増大することが知られている。我々は、この Jamming 転移点の増加に伴って、Hyperuniformity 指数が増大することを示した。

3つ目は、高密度かつ有限温度版である、ガラス系に着目した。ガラス系においても、熱揺らぎの背後に Hyperuniformity が存在することが報告されている。我々は、Hyperuniformity の特性長を定量化し、低温領域でこの特性長が急激に増大することを確認した。さらに、緩和ダイナミクスとエネルギー地形の解析も行うことで、エネルギー地形の定性的な変化に伴って、この特性長が増大していることを示した。この結果は、ランダムに見えるガラスの粒子配置に一種の秩序が存在し、それが温度の低下と共に成長していくことを示している。

以上の3つの異なる系の結果は、Hyperuniformity が系のダイナミクスに強く依存して、振る舞いに変化することを示している。

# 目次

<b>第 1 章: 背景</b> . . . . .	1
1.1 一様な非平衡系と Hyperuniformity . . . . .	1
1.2 本論文の目的と結果の概略 . . . . .	2
1.3 本論文の構成 . . . . .	3
<b>第 2 章: Hyperuniformity</b> . . . . .	5
2.1 背景 . . . . .	5
2.2 静的構造因子と動径分布関数 . . . . .	6
2.3 粒子数揺らぎ . . . . .	9
2.4 Hyperuniformity の基本的性質 . . . . .	11
2.5 Hyperuniformity を示す系の例 . . . . .	12
2.6 平衡系における Hyperuniformity . . . . .	16
2.7 非平衡流体における Hyperuniformity . . . . .	17
2.7.1 密度場のみを持つ流体方程式における Hyperuniformity . . . . .	17
2.7.2 密度場と速度場を持つ流体方程式における Hyperuniformity . . . . .	18
<b>第 I 部 Active Matter 系での Hyperuniformity</b> . . . . .	<b>21</b>
<b>第 3 章: Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle 系における Hyperuniformity</b> . . . . .	<b>22</b>
3.1 背景 . . . . .	22
3.2 Active Matter . . . . .	24
3.2.1 Active Matter とは何か . . . . .	24
3.2.2 Active Matter の理論模型 . . . . .	25
3.2.3 生物系における Hyperuniformity . . . . .	40
3.3 AOUP 模型における揺動散逸定理の破れ . . . . .	42
3.4 Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle 模型 . . . . .	44
3.5 数値シミュレーション設定 . . . . .	46

3.6	GAOUP 系における密度揺らぎ	47
3.6.1	$\tau_p \geq \tau_m$ regime	47
3.6.2	$\tau_p \leq \tau_m$ Regime	48
3.7	GAOUP 模型における Hyperuniformity 指数	50
3.8	GAOUP 模型における相図	54
3.9	$\tau_m > \tau_p$ における系の性質	57
3.9.1	速度分布の非ガウス性	57
3.9.2	速度の空間相関	58
3.10	まとめ	60
<b>第 II 部 アモルファス系における Hyperuniformity</b>		<b>63</b>
<b>第 4 章: 2次元系における Jamming 転移点近傍での Hyperuniformity</b>		<b>64</b>
4.1	背景	64
4.2	ガラス転移と Jamming 転移	65
4.2.1	ガラス転移	66
4.2.2	Jamming 転移	80
4.2.3	Jamming 転移とガラス転移の関係	84
4.2.4	ガラス転移と Jamming 転移における Hyperuniformity	86
4.3	モデルと手法	88
4.4	多成分系の構造因子	89
4.4.1	定義 I	89
4.4.2	定義 II	90
4.4.3	定義 III	91
4.5	2次元における Jamming 転移点直上の Hyperuniformity とその指数	92
4.6	指数 $\alpha$ の次元依存性に関する議論	94
4.7	まとめ	95
<b>第 5 章: 力学的トレーニングによる系の構造変化と Hyperuniformity</b>		<b>96</b>
5.1	背景	96
5.2	膨張圧縮トレーニング	97
5.2.1	数値シミュレーション設定	97
5.2.2	力学的アニールとラトラー数の関係	99
5.2.3	力学的アニールと Hyperuniformity	102
5.3	周期剪断と Jamming 転移点以下における Hyperuniformity	107
5.3.1	Jamming 転移点近傍の系に対する周期剪断と相図	108

---

5.3.2	数値シミュレーション設定 . . . . .	110
5.3.3	周期剪断系における Hyperuniformity の指数の変化 . . . . .	110
5.4	まとめ . . . . .	112
<b>第 6 章: 過冷却液体の Inherent Structure の Hyperuniform に対する熱的アニールの影響</b> . . . . .		114
6.1	背景 . . . . .	114
6.2	数値シミュレーションの設定 . . . . .	115
6.3	2次元系における Mermin-Wagner 揺らぎと系の緩和時間 . . . . .	116
6.4	過冷却液体の Inherent Structure における Hyperuniformity . . . . .	122
6.5	まとめ . . . . .	127
<b>第 7 章: 結論</b> . . . . .		129
7.1	Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle 模型における Hyperuniformity . . . . .	129
7.2	アモルファス系における Hyperuniformity . . . . .	130
7.2.1	2次元 Jamming 転移点直上での Hyperuniformity の性質 . . . . .	130
7.2.2	力学的アニールによる Jamming 転移点直上での Hyperuniformity の性質の変化 . . . . .	130
7.2.3	熱的アニールによる過冷却液体の Inherent Structure での Hyperuniformity の性質の変化 . . . . .	131
<b>謝辞</b> . . . . .		133

# 第 1 章

## 背景

### 1.1 一様な非平衡系と Hyperuniformity

熱平衡にある液体や気体において、粒子配置は外場がかかっていなければ、一様に粒子が分布している。系が臨界点近傍になれば、局所的には粒子密度は揺らぐものの、その密度揺らぎは短距離の相関しか持たず、長距離の相関は生じない。さて、系を非平衡系にする最も単純な方法は、系に対して外場を加えることである。例えば、系の境界に異なる温度の熱浴をつなぐことで系に温度勾配を作る場合を考えよう。この場合には、粒子は低温側へと集まることになり、系は非一様になる。また、興味深いことに揺らぐ流体力学の解析から温度勾配がかかった系では、長距離の密度揺らぎが増大することが知られている [1]。

上記の議論では、系の境界条件の効果によって系を非平衡系にすると、系は非一様な非平衡系になってしまう。では、系が一様な非平衡系というのはいくらあるのだろうか？このような系は、系に対して外場をかけるのではなく、1 粒子のダイナミクスが平衡系の場合とは異なるダイナミクスを考えることで実現できる。ここで、具体的に 1 粒子のダイナミクスを考えてみる。まず、平衡系におけるブラウン運動する粒子は、Overdamped Langevin 方程式を用いて、

$$\dot{\mathbf{x}}_i = \mu \mathbf{F}_i(\mathbf{x}) + \sqrt{2D} \boldsymbol{\eta}_i \quad (1.1)$$

と記述することができる。ここで、 $\mathbf{F}$  は粒子間相互作用であり、 $\boldsymbol{\eta}$  は粒子に働くランダム力である。ここで、 $\mu$  は移動度であり、 $D$  は拡散係数である。この場合には、 $D = \mu k_B T$  の揺動散逸定理を満たすことから系は平衡系となる。しかし、揺動散逸定理が破れると、系は非平衡系となることから揺動散逸定理の破れたダイナミクスを考えれば、一様な非平衡系が実現する。

このような揺動散逸定理の破れた粒子のダイナミクスとして、Active Matter と呼ばれる自発的な運動性を持つ粒子のダイナミクスを考える。Active Matter の運動方程式は

$$\dot{\mathbf{x}}_i = \mu \mathbf{F}_i(\mathbf{x}) + \mathbf{f}_i^{\text{Act}} \quad (1.2)$$

と記述することができる [2, 3]。ここで、 $\mathbf{f}_i^{\text{Act}}$  は Active Matter が自発的にランダムな方向へと

進むための自己駆動力を示している。式 (1.1) のランダム力が自己駆動力に置き換わっていることがわかる。Active Matter では、粒子が相互作用の寄与よりも強い自己駆動力を持つと特徴的な運動を示すことが知られている。例えば、 $f_i^{\text{Act}}$  が特定の形であれば、Active Matter 系では Giant Number Fluctuation と呼ばれる長距離の密度揺らぎの増大が生じることが知られている [4–10]。これは、ある種、粒子のダイナミクスが強い揺動の効果によって駆動されていると考えることができるモデルである。

一方で、Active Matter とは対照的に自発的な運動性を一切持たない粒子を考えることもできる。この場合には、運動方程式は

$$\dot{x}_i = \mu F_i(\mathbf{x}) \quad (1.3)$$

となる。これは、式 (1.1) の  $T \rightarrow 0$  の極限とも考えることができ、粒子は一切揺動の効果を受けない。 $F_i(\mathbf{x})$  が短距離の斥力相互作用の場合には、この運動方程式は、粉体のような、粒子が十分に大きく熱揺らぎの効果を受けない非熱的な粒子の運動を記述することが知られている。このような場合には、粒子がちょうど接触するような密度で、Jamming 転移と呼ばれる非平衡相転移を示すことが知られている [11, 12]。また、 $F_i(\mathbf{x})$  が例えば、粒子が重なったら、重なった粒子をランダムに移動させるというような擬似的なダイナミクスも考えることができる。このような場合には、終状態において粒子の重なりが存在しない状態から粒子の重なりが必ず生じる状態への転移である、吸収状態転移が生じることが知られている [13, 14]。非常に興味深いことに、Jamming 転移と吸収状態転移は全く異なる非平衡相転移現象ではあるが、両者の臨界点近傍では Hyperuniformity [15, 16] と呼ばれる長距離の密度揺らぎの減衰が生じる [13, 14, 17–24]。これは、Active Matter で見られる Giant Number Fluctuation とは対照的である。

Jamming 転移 [17–20] と吸収状態転移 [13, 14, 23, 24] の臨界点近傍で生じる Hyperuniformity は長距離の密度揺らぎの減衰である。平衡の気液相転移のように密度揺らぎが増大するのは対照的に、減衰するのは非平衡相転移特有で興味深い。Hyperuniformity は何も臨界現象でしか見られない現象ではない。実際、Hyperuniformity は、相転移とは関係のない、鳥の目の視細胞の分布 [25] や初期宇宙の密度揺らぎ [26] など、生物から宇宙に至るまで幅広い分野でその存在が報告されている。Hyperuniformity は、系の密度揺らぎに長距離相関が生じるものの、見た目には粒子は全くのランダムであるため、乱れた系に存在する隠れた秩序として注目を浴びている。

## 1.2 本論文の目的と結果の概略

本論文の目的は、非平衡系における Hyperuniformity の性質を理解することである。本論文では、非平衡系の中でも、Active Matter 系と Jamming 転移、そして、過冷却液体の Inherent Structure における Hyperuniformity について議論する。

Active Matter の単純なモデルでは、多くのモデルで Giant Number Fluctuation と呼ばれる密度

揺らぎの長距離での増大は報告されているものの、密度揺らぎの減衰である Hyperuniformity はほとんど報告されていない。一方で、非平衡流体では、揺動散逸定理の破れに起因して、Hyperuniformity が生じることが示唆されている。我々は、先行研究で用いられている Active Matter 模型における揺動散逸定理の破れについて詳細に解析を行い、既存の Active Matter 模型を拡張することで、揺動散逸定理の破れ方を制御できる模型を構築した。本研究では、既存の Active Matter 模型では表現することのできなかった非平衡領域において Hyperuniformity が生じることを示し、その領域における系の性質について詳細に解析を行った。

近年の研究で、Jamming 転移点は系の初期配置をどのように生成するかによって変化することが報告された。例えば、系を熱揺らぎに晒す熱的アニールや、系を変形する力学的アニールを用いることで、Jamming 転移点を系統的に変化させることができる。このような変化に対して、Jamming 転移点からの距離によって支配される Jamming 転移点近傍の物理量の臨界的な振る舞いは変化しない。しかし、Jamming 転移近傍の Hyperuniformity は、無限遠まで続く理想的な Hyperuniformity ではなく、有限の長さスケールまでしか存在せず、Jamming 転移の臨界性とは関係しないことが知られている。つまり、この Hyperuniformity の性質は、Jamming 転移点の上昇に伴って変化する可能性がある。本研究では、Jamming 転移近傍と Jamming 転移点以下の系に対して力学的変形を加えることで、系の密度揺らぎの性質がどのように変化するかを調べた。その結果、Hyperuniformity の性質が力学的アニールによって強くなることを示した。

近年の研究で過冷却液体の Inherent Structure では、Jamming 転移近傍の Hyperuniformity に類似した密度揺らぎのべき的減衰が生じることが報告された。Inherent Structure は、温度  $T$  で平衡化された液体を  $T \rightarrow 0$  へクエンチすることで得られる構造であり、系が存在するポテンシャルエネルギーランドスケープの底に対応する。本研究では、この Inherent Structure における Hyperuniformity に着目し、この Hyperuniformity の平衡化温度依存性を調べた。その結果、系がエネルギーランドスケープを降り始めるのに従って、Inherent Structure における密度揺らぎの種々の性質が変化することを示した。

### 1.3 本論文の構成

上記に示したように、本論文は、Active Matter に対する Hyperuniformity の研究と Jamming 系及び過冷却液体に対する Hyperuniformity の研究の2つのパートに分かれている。本論文は以下の構成になっている。まずはじめに、第2章で、本論文で中心的に扱う現象である Hyperuniformity について議論する。次に前半の第I部では、我々が考案した新規の Active Matter 模型である GAoup 系における Hyperuniformity について議論する。第3章において、最初に Active Matter の理論模型についてレビューを行ったのち、我々が考案した GAoup 模型を導入し、GAoup 模型の数値シミュレーションから Hyperuniformity が生じることを示す。



また、この章では GAoup 模型で生じた Hyperuniformity の性質について議論する。後半の第 II 部では、Jamming 転移点近傍における Hyperuniformity と過冷却液体の Inherent structure で生じる Hyperuniformity の性質について議論する。第 4 章の最初に、ガラス転移と Jamming 転移に関するレビューを行う。その後、2次元の Jamming 転移点近傍の Hyperuniformity のべき振る舞いについて議論を行う。続く、第 5 章では、Jamming 転移点近傍近傍の粒子配置に対して外力を加えた際に、系の粒子配置がどのように変化するかを調べる。具体的には、系に膨張圧縮サイクルと周期剪断を加えた際に、系で見られる Hyperuniformity の性質がどのように変化するかを調べる。第 6 章では、系を低温で平衡化させて行った際に、その平衡化温度に依存して、系の Inherent Structure における Hyperuniformity の性質がどのように変化するかを調べる。最後に、第 7 章で、本研究において得られた結果をまとめ、今後の展望を述べる。

## 第 2 章

# Hyperuniformity

### 2.1 背景

我々の身の回りには、様々な乱れた構造が存在する。例えば、液体中の分子の配置や、粉体の配置、さらには、星の並びなどである。一方で、結晶配置のように粒子配置に秩序が存在する構造も存在する。このような、粒子配置が持つ性質を理解することによって、系の光学的性質等の様々な性質を理解することができる [27]。系の光学的性質は系の密度揺らぎに依存し、乱れた粒子配置と秩序を持つ粒子配置では、系の密度揺らぎが大きく異なる。この点について、結晶構造と乱れた構造である単純斥力を持つ平衡液体について考えてみよう。結晶配置では、秩序を持っているため、系のどの部分領域を切り取っても密度はほとんど変化しない。系の様々な場所に同じ大きさの部分系をとって、部分系の密度の違いを調べれば、部分系の表面に存在する粒子を取り入れるかどうか程度の違いでしかないだろう。なので、結晶構造では、ある大きさの部分系の密度揺らぎは部分系の表面のみに依存する。これは、 $d$  次元上に半径  $R$  の球形に部分系を取れば、部分系での粒子数の揺らぎが  $\Delta N^2 \sim R^{d-1}$  となることが予想される。一方で、系が乱れた構造であれば、局所的な密度そのものが場所ごとに異なるのだから、部分系を大きくとったとしても、表面の密度揺らぎではなくバルクでの密度揺らぎが重要になるだろう。なので、液体では粒子数の揺らぎは  $\Delta N^2 \sim R^d$  であることが予想される。よって、結晶のように粒子配置に秩序が存在すれば、部分系における密度揺らぎが抑えられることがわかる。

ここで一つの疑問が浮かぶ、密度揺らぎが抑えられた構造は粒子配置に秩序が存在しない場合には、存在し得ないのだろうか？ もちろん、 $\Delta N^2 \sim R^{d-1}$  となるような粒子配置は、結晶でしか存在しないかもしれない。では、液体よりも密度揺らぎが抑えられた  $\Delta N^2 \sim R^{d-\beta}$  ( $\beta > 0$ ) となるような乱れた構造ならば、存在するのだろうか？ 実は、近年の研究によってこのような構造が存在することが知られている。この構造は *Hyperuniformity* と呼ばれ、乱れた粒子配置に隠された秩序として現在注目を浴びている [15, 16, 26]。Hyperuniformity とは、系の長距離

の密度揺らぎが抑圧される現象である。驚くべきことにこのような構造は、初期宇宙の密度揺らぎ [28] で報告されて以来、鳥の目の視細胞分布 [25] や、生物集団 [29]、粉体系 [17] などで報告されてきた。このように、Hyperuniformity は我々の身の回りにありふれて存在しているにもかかわらず、いまだにその起源や物理的性質は十分に明らかにはなっていない。

本章では、本論文の中心的テーマである Hyperuniformity について現在得られている基本的な理解について説明する。この章の構成は、以下の通りである。まずはじめに 2.2 節では、系の密度揺らぎを調べる基本的な物理量である静的構造因子と動径分布関数について説明する。続く、2.3 節では、Hyperuniformity を特徴づける量である粒子数揺らぎについて説明する。2.4 節では、Hyperuniformity の基本的な性質を解説し、2.5 節においてこれまでに Hyperuniformity は報告されてきた系を説明する。2.6 節では、熱平衡系ではどのような条件であれば Hyperuniformity が生じうるかを考え、長距離斥力を持つ系では Hyperuniformity が生じうることをみる。最後に、2.7 節で、揺動散逸定理が破れた揺らぐ流体方程式の解析を行うことで、非平衡流体系では Hyperuniformity が生じうることを示す。

## 2.2 静的構造因子と動径分布関数

Hyperuniformity について議論をする前に、系の密度揺らぎについて議論する [15, 16, 30]。ここで系の中に  $N$  粒子含まれる  $d$  次元系を考える。また、簡単のために系は等方的かつ一様であるとする。 $i$  番目の粒子の位置を  $\mathbf{x}_i$  と書き、 $N$  粒子による粒子配置を  $\mathbf{X}_N = \{\mathbf{x}_1, \dots, \mathbf{x}_N\}$  と書く。ある粒子配置  $\mathbf{X}_N$  が与えられた時に、その配置中の空間点  $\mathbf{r}$  における粒子数密度の空間分布  $\rho(\mathbf{r})$  は

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{x}_i) \quad (2.1)$$

と書くことができる。これは、特定の配置  $\mathbf{X}_N$  に対する密度の空間分布であるので、1 粒子密度  $\rho_1(\mathbf{r})$  は、アンサンブル平均をとることで、

$$\rho_1(\mathbf{r}) = \langle \rho(\mathbf{r}) \rangle = \left\langle \sum_i \delta(\mathbf{r} - \mathbf{x}_i) \right\rangle \quad (2.2)$$

とかける。系が一様な場合には、 $\rho_1(\mathbf{r})$  は系の平均数密度  $\rho$  と一致する。

ここで、2つの粒子が特定の位置にいる確率である 2 粒子密度  $\rho_2(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$  を考える。 $\rho_2(\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2)$  は、

$$\rho_2(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \left\langle \sum_i \sum_{j \neq i} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{x}_i) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{x}_j) \right\rangle \quad (2.3)$$

と書くことができ、空間的に離れた点  $\mathbf{r}$  と  $\mathbf{r}'$  における密度がどれだけ相関を持つかを図る量である。

系が一様であるため、系が並進対称を持つことから  $\rho_2(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$  は

$$\rho_2(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \rho^2 g(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (2.4)$$

と書くことができる。ここで、 $g(\mathbf{r})$  は2体分布関数である。さらに、系が等方的なので、 $g(\mathbf{r} - \mathbf{r}')$  は粒子間距離  $r = |\mathbf{r} - \mathbf{r}'|$  にのみ依存する。 $g(r)$  は、動径分布関数と呼ばれる。

次に、 $g(r)$  の長距離での性質を考える。もし、系が長距離秩序を持たなければ、十分に離れた空間点  $\mathbf{r}$  と  $\mathbf{r}'$  は、互いに独立なはずなので、 $r \rightarrow \infty$  の極限で、 $\rho_2(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \rho(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r}') = \rho^2$  となる。つまり、 $r \rightarrow \infty$  の極限で、 $g(r) \rightarrow 1$  となる。そのため、 $g(r)$  がどれだけ1から離れているかが、相関の強さの一つの指標となる。そこで、全相関関数  $h(r)$  を

$$h(r) = g(r) - 1 \quad (2.5)$$

と定義する。この関数は、 $r \rightarrow \infty$  の極限で空間点が無相関の時に  $h(r) \rightarrow 0$  となるため、有限値を持つ時に相関が存在する。

ここまでは、実空間における密度相関を考えてきた。密度場の相関を Fourier 空間上で考える。密度の Fourier 変換は、

$$\rho_q = \int d\mathbf{r} \rho(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{r}} = \sum_j e^{-i\mathbf{q}\cdot\mathbf{x}_j} \quad (2.6)$$

である。静的構造因子  $S(\mathbf{q})$  は、 $\rho_q$  の相関関数であり、

$$S(\mathbf{q}) = \frac{1}{N} \langle \rho_q \rho_{-q} \rangle \quad (2.7)$$

と書くことができる。 $g(r)$  の場合と同様に、系が一様かつ等方的な場合には、 $S(\mathbf{q})$  は  $q = |\mathbf{q}|$  にのみ依存する。静的構造因子は、中性子散乱や X 線散乱実験から直接得ることのできる情報であるため、実験結果と比較する上でも重要な情報である。

次に、 $g(r)$  と  $S(q)$  の関係を調べよう。 $S(q)$  に対する単純な計算から<sup>\*1</sup>  $S(q)$  と  $g(r)$  の間の関係は

$$S(q) = 1 + \rho \int d\mathbf{r} g(r) e^{-q\cdot\mathbf{r}}. \quad (2.9)$$

\*1

$$\begin{aligned} S(q) &= \frac{1}{N} \left\langle \sum_i \sum_j e^{-q\cdot\mathbf{r}_i} e^{q\cdot\mathbf{r}_j} \right\rangle = 1 + \frac{1}{N} \left\langle \sum_i \sum_{j \neq i} e^{-q\cdot\mathbf{r}_i} e^{q\cdot\mathbf{r}_j} \right\rangle \\ &= 1 + \frac{1}{N} \left\langle \sum_i \sum_{j \neq i} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \delta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}_j) e^{-q\cdot(\mathbf{r} - \mathbf{r}')} \right\rangle \\ &= 1 + \frac{1}{N} \int \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \rho_2(\mathbf{r} - \mathbf{r}') e^{-q\cdot(\mathbf{r} - \mathbf{r}')} \\ &= 1 + \rho \int \int d\mathbf{r} g(r) e^{-q\cdot\mathbf{r}}. \end{aligned} \quad (2.8)$$

と書くことができる。また、ここから、全相関関数の Fourier 変換  $\tilde{h}(\mathbf{q})$  と  $S(\mathbf{q})$  は  $S(\mathbf{q}) = 1 + (2\pi)^d \rho \delta(\mathbf{q}) + \rho \tilde{h}(\mathbf{q})$  の関係を持つ。ここで、2項目の  $\delta(\mathbf{q})$  は、散乱実験における前方散乱、つまり物体によって散乱されずに通過してしまうものであり、実験では捉えることができない。また、この項は  $\mathbf{q} = 0$  の時にしか、寄与を与えず、我々は有限の  $\mathbf{q}$  に関して興味があるので、この項を無視する。このことは、密度揺らぎ  $\delta\rho(\mathbf{r}) = \rho(\mathbf{r}) - \rho$  の Fourier 変換  $\delta\rho_{\mathbf{q}} = \rho_{\mathbf{q}} - \rho\delta(\mathbf{q})$  と密度の Fourier 変換  $\rho_{\mathbf{q}}$  を同一視することに対応している。前方散乱を除けば、 $S(\mathbf{q})$  は、 $\delta\rho_{\mathbf{q}}$  の相関関数と同じであるため、以降では  $S(\mathbf{q})$  は、密度揺らぎの相関関数であると考え。以上から、 $S(\mathbf{q})$  と  $\tilde{h}(\mathbf{q})$  の関係は、 $\mathbf{q} \neq 0$  を考えれば

$$S(\mathbf{q}) = 1 + \rho \tilde{h}(\mathbf{q}) \quad (2.10)$$

と書くことができる。

$S(\mathbf{q})$  は、長距離における粒子数揺らぎと関係している。粒子数揺らぎ  $\langle \delta N^2 \rangle = \langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2$  と  $S(\mathbf{q})$  の関係は、

$$\frac{\langle \delta N^2 \rangle}{\langle N \rangle} = \frac{1}{\langle N \rangle} \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \delta\rho(\mathbf{r}) \delta\rho(\mathbf{r}') = \lim_{q \rightarrow 0} \frac{1}{\langle N \rangle} \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \delta\rho(\mathbf{r}) \delta\rho(\mathbf{r}') e^{q \cdot (\mathbf{r} - \mathbf{r}')} = \lim_{q \rightarrow 0} S(\mathbf{q}). \quad (2.11)$$

と書くことができる。つまり、系全体の粒子数揺らぎは、 $q \rightarrow 0$  極限における  $S(\mathbf{q})$  と結びついている。さらに、熱平衡系においては、 $\langle \delta N^2 \rangle$  は、等温圧縮率  $\chi_T$  と

$$\frac{\langle \delta N^2 \rangle}{\langle N \rangle} = \rho k_B T \chi_T. \quad (2.12)$$

という関係を持つことから、熱平衡系では静的構造因子  $S(\mathbf{q})$  と等温圧縮率  $\chi_T$  の間に

$$\lim_{q \rightarrow 0} S(\mathbf{q}) = \rho k_B T \chi_T. \quad (2.13)$$

という関係が成り立つことがわかる。これは、揺動散逸定理の一種である。熱平衡系では、 $\chi_T = 0$  もしくは  $T = 0$  でなければ、 $S(q \rightarrow 0)$  は、有限の値を持つ。

最後に、平衡液体における  $g(r)$  と  $S(q)$  を考える。平衡液体における粒子配置及び  $g(r)$  と  $S(q)$  を示したのが図 2.1 である。図 2.1 の左の図は、平衡剛体球液体における粒子配置を示しており、その粒子配置は明らかに乱れている。そのため、 $g(r)$ (図 2.1 中央) は、粒子直径程度でピークを持つものの急速に 1 に緩和しており、相関がなくなっている。 $g(r)$  における 1 つめのピークは、第 1 近接粒子を表している。一方、静的構造因子  $S(q)$ (図 2.1 右図) においては、 $q = 2\pi$  におけるピークが近接粒子に対応する。 $S(q)$  は、 $q$  が小さい領域において有限の値に収束している。これは、系が有限の温度および圧縮率を持っていることを意味している。

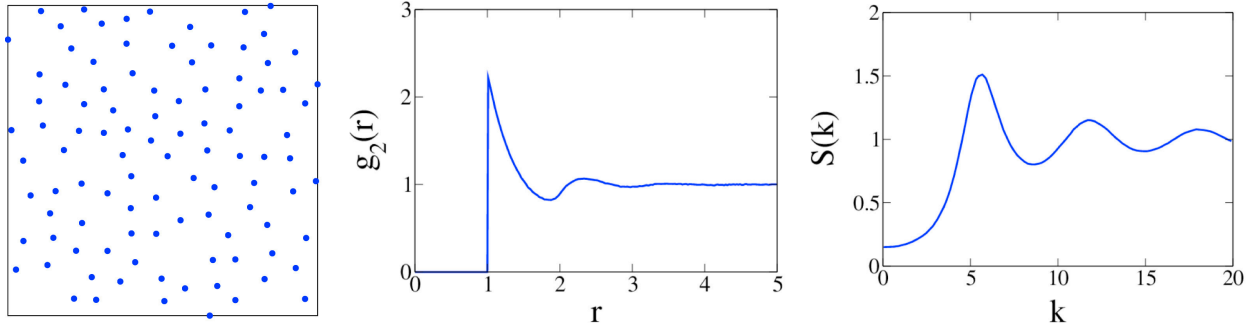


Fig.2.1 (左) 充填率  $\phi = 0.4$  の平衡剛体球液体における粒子配置。(中央) $\phi = 0.4$  の平衡剛体球液体における  $g(r)$ 。第一近接粒子の位置である  $r = 1$  でピークを持つことがわかる。(右) $\phi = 0.4$  の平衡剛体球液体における  $S(q)$ 。 $S(q)$  の第一ピークは  $g(r)$  の場合と同様に第一近接粒子に対応する。 $S(q)$  は平衡液体においては  $q \rightarrow 0$  で有限の値に収束している。これは、有限の等温圧縮率を持つことに対応している。これらのデータは [15] より引用した。

## 2.3 粒子数揺らぎ

この節では、Hyperuniformity を調べるのに重要な物理量である粒子数揺らぎを導入する [15, 16]。粒子数揺らぎ  $\langle \delta N_{\Omega}^2 \rangle$  は、Hyperuniformity とは何かを理解するのに重要な物理量である。

前節と同様に、一様かつ等方的な、系の中に  $N$  粒子含まれる  $d$  次元系を考える。この系の中に、ある観測領域  $\Omega$  をとる。ここでは、 $\Omega$  は  $d$  次元球であるとする。まず初めに、この  $\Omega$  の中にある粒子数  $N_{\Omega}$  を考える。そのために  $\Omega$  のなかに粒子がいるかを示す次の指示関数

$$\omega(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) = \begin{cases} 1 & \mathbf{r} \in \Omega \\ 0 & \mathbf{r} \notin \Omega. \end{cases} \quad (2.14)$$

を定義する。 $\mathbf{r}_0$  は、 $d$  次元球  $\Omega$  の中心であり、 $\mathbf{R}$  は  $\Omega$  の半径である。この指示関数  $\omega(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0; \mathbf{R})$  と、数密度  $\rho(\mathbf{r})$  を用いて、 $\Omega$  の中にある粒子数  $N_{\Omega}$  は、

$$N_{\Omega} = N(\mathbf{r}_0; \mathbf{R}) = \int \rho(\mathbf{r}) \omega(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) d\mathbf{r} = \sum_i \omega_i(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) \quad (2.15)$$

と書くことができる。ここで、 $N_{\Omega}$  は、 $\Omega$  の中心と半径  $\mathbf{R}$  に依存しているので、その依存性を陽に  $N(\mathbf{r}_0; \mathbf{R})$  とかいた。以降でも、 $\Omega$  が  $d$  次元球であることから、 $\Omega$  依存性と  $\mathbf{r}_0, \mathbf{R}$  依存性を同一視して、どちらの表記も用いる。この粒子数  $N(\mathbf{r}_0; \mathbf{R})$  は、ある特定の粒子配置  $\mathbf{X}_N$  に対して計算されているものなので、この量に対してアンサンブル平均を考えると、

$$\langle N(\mathbf{R}) \rangle = \int \sum_i \omega(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) P^N(\mathbf{r}^N) d^N \mathbf{r} = \rho \int \omega(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) d\mathbf{r}_1 \quad (2.16)$$

となる。 $P^N(\mathbf{r}^N)$  は、 $N$  体分布関数である。この計算において、今は一様な系を考えているので、 $\rho = \int P(\mathbf{r}^N) d^{N-1}\mathbf{r}$  であることを使った。最後の積分は、 $\Omega$  の体積を示しており、 $\Omega$  の体積を  $v_1(\mathbf{R})$  と書けば、 $\Omega$  のなかの平均粒子数は、

$$\langle N(\mathbf{R}) \rangle = \rho v_1(\mathbf{R}) \quad (2.17)$$

と書くことができる。これは、結局体積  $v_1(\mathbf{R})$  にいる平均粒子数を計算している。

今は、 $\Omega$  の中の平均粒子数を考えたが、次は  $\Omega$  の中の粒子数の揺らぎ  $\sigma_N(\mathbf{R})$

$$\sigma_N(\mathbf{R}) = \langle N^2(\mathbf{R}) \rangle - \langle N(\mathbf{R}) \rangle^2 \quad (2.18)$$

を考えてみよう。そのためにまずは、2次モーメント  $\langle N^2(\mathbf{R}) \rangle$  を計算する。

$$\begin{aligned} \langle N^2(\mathbf{R}) \rangle &= \int \sum_i \sum_j \omega(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) \omega(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) P^N(\mathbf{r}^N) d\mathbf{r}^N \\ &= \int \sum_i \omega(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) P^N(\mathbf{r}^N) d\mathbf{r}^N + \int \sum_i \sum_{j \neq i} \omega(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) \omega(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) P^N(\mathbf{r}^N) d\mathbf{r}^N \\ &= \langle N(\mathbf{R}) \rangle + \int \int \omega(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) \omega(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) \rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \end{aligned} \quad (2.19)$$

ここで、 $\rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2)$  は、Eq. (2.4) と同じものである。この  $\langle N^2(\mathbf{R}) \rangle$  から、 $\langle N(\mathbf{R}) \rangle^2$  を引くことで、 $\sigma_N(\mathbf{R})$  を計算することができ、

$$\sigma_N(\mathbf{R}) = \langle N^2(\mathbf{R}) \rangle - \langle N(\mathbf{R}) \rangle^2 = \langle N(\mathbf{R}) \rangle + \int \int (\rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) - \rho^2) \omega(\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) \omega(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0; \mathbf{R}) d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2 \quad (2.20)$$

ここで、 $\rho_2(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) - \rho^2 = \rho^2(g(\mathbf{r}_{12}) - 1) = \rho^2 h(\mathbf{r}_{12})$  であり、尚且つ、

$$\alpha(\mathbf{r}; \mathbf{R}) = \frac{1}{v_1(\mathbf{R})} \int \omega(\mathbf{r}_0; \mathbf{R}) \omega(\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_0 + \mathbf{r}; \mathbf{R}) d\mathbf{r}_0 \quad (2.21)$$

と書くことによって、最終的に  $\sigma_N(\mathbf{R})$  は、

$$\sigma_N(\mathbf{R}) = \langle N(\mathbf{R}) \rangle \left( 1 + \rho \int d\mathbf{r} h(\mathbf{r}) \alpha(\mathbf{r}; \mathbf{R}) \right) \quad (2.22)$$

と書くことができる。Parseval's theorem と式 (2.10) の関係を用いることで、

$$\sigma_N(\mathbf{R}) = \langle N(\mathbf{R}) \rangle \left( \frac{1}{(2\pi)^d} \int d\mathbf{q} S(\mathbf{q}) \tilde{\alpha}(\mathbf{q}; \mathbf{R}) \right) \quad (2.23)$$

ここで、 $\tilde{\alpha}(\mathbf{q}; \mathbf{R})$  は、

$$\tilde{\alpha}(\mathbf{q}; \mathbf{R}) = \frac{\tilde{w}^2(\mathbf{q}; \mathbf{R})}{v_1(\mathbf{R})} \quad (2.24)$$

という関数であり、form factor と呼ばれている。式 (2.23) は、 $\sigma_N(R)$  と  $S(q)$  の関係を示している。ここで、重要な点は、 $\sigma_N(R)$  を計算するためには、 $S(q)$  に form factor をかけて積分する必要がある点である。その結果、 $S(q)$  の中間的な長さスケールにべき的な減衰が生じたとしても、同じ長さスケールの範囲において  $\sigma_N(R)$  の振る舞いにも特徴的な振る舞いが見えるわけではない [19]。これは、 $S(q)$  の高波数領域における揺らぎが低波数領域でのべき的な減衰に覆い被ってしまうからである。

ここで、今は  $\Omega$  が  $d$  次元球を考えていたので、 $\sigma_N(R)$  は、 $d$  次元球のサイズ  $R$  にのみ依存している。そこで、 $\Omega$  のサイズを大きく、つまり  $R$  を大きくしていくと、数密度揺らぎ  $\sigma_N(R)$  がどのように変化するかを考える。最も単純な場合は、理想気体の場合である。この場合には粒子分布が Poisson 分布であり、 $\Omega$  の内部にいる粒子の分散  $\langle \delta N_\Omega \rangle$  は、 $\langle \delta N_\Omega \rangle = \langle N_\Omega \rangle$  となるので、 $\sigma_N(R) \propto \langle N(R) \rangle \propto R^d$  という依存性を持つ。また、式 (2.22) からわかるように、 $h(r)$  が長距離で 0 であれば、Poisson 分布でなくとも、長距離で  $\sigma_N(R) \propto R^d$  という依存性を持つことになる。図 2.1 で見たように、平衡液体においては、 $h(r)$  は急速に 0 になるので、平衡液体においても長距離では、 $\sigma_N(R) \propto R^d$  という依存性になる。このように系が乱れていれば、構造の中に長距離の相関がないと思われるので、 $\sigma_N(R) \propto R^d$  となることが期待される。

では、粒子配置が秩序だっている格子のような場合においては、数密度揺らぎ  $\sigma_N(R)$  はどのように振る舞うのだろうか? 格子の場合は、明かに、長距離では粒子の揺らぎは  $\Omega$  の表面からの寄与である。そのため、 $\sigma_N(R) \propto R^{d-1}$  となる。これは、平衡液体に比べて、格子の数密度揺らぎ  $\sigma_N(R)$  は、弱い  $R$  依存性を持つことを示している。

平衡液体のような乱れた構造では、 $R$  が大きい場合には  $\sigma_N(R) \propto R^d$  であるが、格子系のような秩序だった構造では、 $\sigma_N(R) \propto R^{d-1}$  である。では、素朴な疑問として、乱れた構造であっても  $\sigma_N(R) \propto R^{d-\beta}$  ( $\beta > 0$ ) となるような、構造は存在するのだろうか? 実は、このような構造は存在する。このような性質を *Hyperuniformity* と呼ぶ\*2。

## 2.4 Hyperuniformity の基本的性質

*Hyperuniformity* は長距離での密度揺らぎの抑制である。*Hyperuniformity* は、静的構造因子  $S(q)$  が  $q \rightarrow 0$  極限において、0 に収束することである [15, 16]。また、*Hyperuniformity* では、 $S(q)$  はべき的な減衰を示し、そのべき的な減衰

$$\lim_{k \rightarrow 0} S(q) \propto q^\alpha \quad (\alpha > 0) \quad (2.25)$$

\*2 *Hyperuniformity* が報告された同時期に宇宙分野でも同様の性質が報告され、その際には、*super-homogeneous* と呼ばれていた [28]。



の指数  $\alpha$  によって Hyperuniformity は特徴付けられる<sup>\*3</sup>。本論文では、 $\alpha$  を Hyperuniformity 指数と呼ぶ。これは、 $\alpha$  の大きさによって、どれだけ急速に 0 に向かって減衰するかを示している。また、結晶のように  $q \neq 0$  においても  $S(q) = 0$  となる構造は stealthy hyperuniform と呼ばれる。

また、Hyperuniformity は、前節で議論したように、数密度揺らぎ

$$\sigma_N(R) \propto R^{d-\beta} \quad (\beta > 0). \quad (2.27)$$

の振る舞いで特徴づけられる。こちらも、長距離で密度揺らぎが強く減衰することを示している。静的構造因子  $S(q)$  と数密度揺らぎ  $\sigma_N(R)$  の間には、

$$\sigma(R) \propto \begin{cases} R^{d-1} & \alpha > 1 \quad (\text{Class I}) \\ R^{d-1} \ln R & \alpha = 1 \quad (\text{Class II}) \\ R^{d-\alpha} & 0 < \alpha < 1 \quad (\text{Class III}) \end{cases} \quad (2.28)$$

という関係が存在することが知られている [15]。これらは Hyperuniformity クラスと呼ばれており、これらの3つのクラスに属する様々な系が報告されている。

先ほど示したように格子系は  $\sigma(R) \propto R^{d-1}$  であるので、明かに Hyperuniform な系である。また、定義から  $\beta = 1$  なので、Class I の Hyperuniformity であることがわかる。しかし、一般に乱れた Hyperuniform 系は、その構造が Hyperuniform かどうか目で見ただけではわからない。図 2.2 に示したのは、通常の乱れた構造と Hyperuniform な構造である。両者の乱れ方は非常に類似しており、両者の構造から目では違いを見つけ出すことは難しい。一方で、静的構造因子を見ると、両者の振る舞いは明らかに異なっている。左の粒子配置では  $\lim_{q \rightarrow 0} S(q) \rightarrow \text{const}$  であるのに対して、右の図は  $\lim_{q \rightarrow 0} S(q) \rightarrow 0$  という振る舞いを示す。つまり、右の粒子配置は Hyperuniform を示す構造である。このような乱れた系における密度揺らぎの抑制は、秩序だった構造における振る舞いと類似している。また、 $S(q)$  が  $q \rightarrow 0$  において、 $q$  依存性を示すのは、系に長距離相関が存在していることを示しており、このような点から、Hyperuniformity は乱れた構造の中に隠れた秩序と呼ばれることがある。

## 2.5 Hyperuniformity を示す系の例

Hyperuniformity が最初に認知されるようになってから 20 年ほどたち、物理や生物など様々な系で Hyperuniformity が存在することが明らかになった。図 2.3 に Hyperuniformity を示す系の一例を示した。Random organization 模型は、吸収状態転移と呼ばれる相転移を起こすモデ

<sup>\*3</sup>  $\lim_{q \rightarrow 0} S(q) \rightarrow 0$  であるとする、式 (2.10) から、 $\tilde{h}(q)$  は、

$$\lim_{q \rightarrow 0} \tilde{h}(q) \rightarrow -\frac{1}{\rho}, \quad \text{or} \quad \int h(\mathbf{r}) d\mathbf{r} = -\frac{1}{\rho} \quad (2.26)$$

という式を満たすことがわかる。Hyperuniformity であれば、 $h(\mathbf{r})$  が負の相関を必ず持つことを意味している。

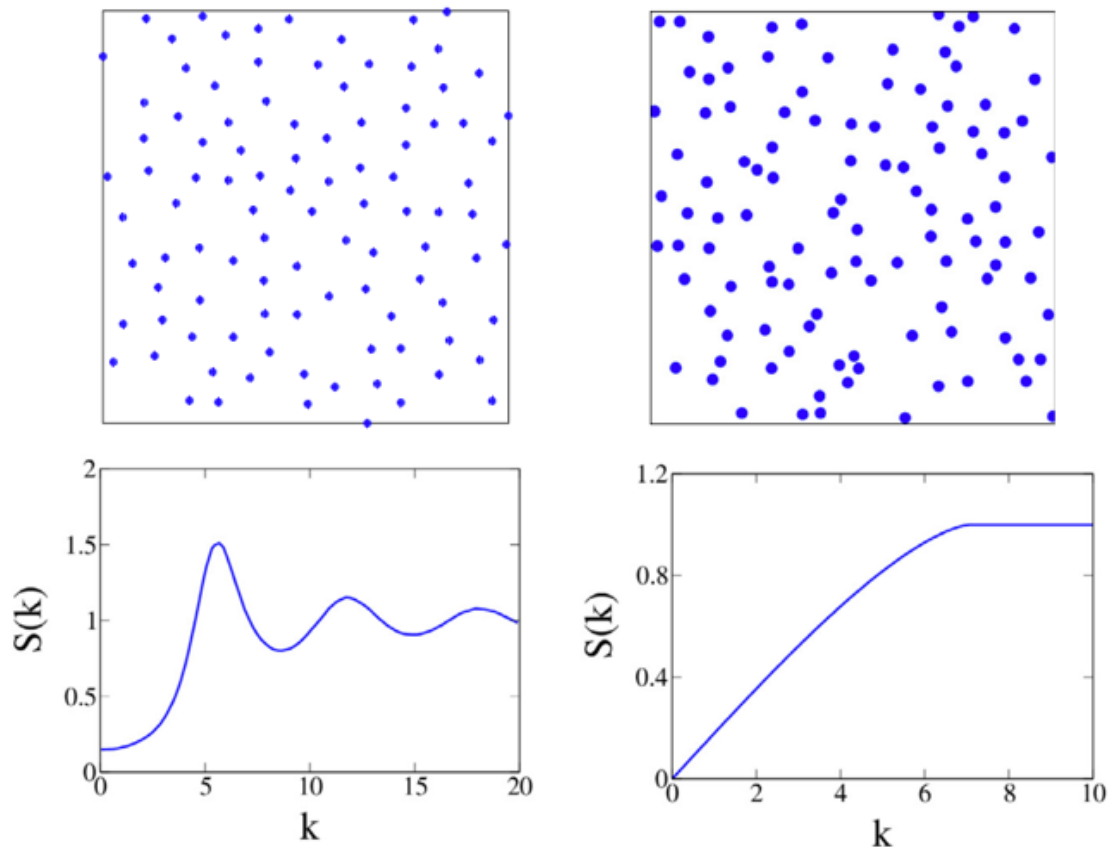


Fig.2.2 (左上) 乱れた粒子配置と (右上)Hyperuniformity が生じている粒子配置。これらの構造に対応する静的構造因子  $S(q)$  をそれぞれの構造の下に示した。通常の乱れた粒子配置では、 $S(q)$  は低波数で有限の値に収束しているのに対して、Hyperuniformity を示す右下の  $S(q)$  では、 $S(q)$  は0に向かって減衰している。これらのデータは [15] より引用した。

ルとして知られる。吸収状態転移とは、例えば、密度が低い周期剪断系で見られる相転移現象である [32–34]。系に対して弱い剪断をかけると、粒子は少ししか移動しない。最初の数回の剪断の間には、粒子間に衝突が生じるが、系に剪断を加えていくうちに、粒子は1周期の間に衝突が起きない位置を見つける。つまり、粒子位置はこれ以上何回周期剪断を加えても変化しない吸収状態となる。一方、剪断応力が大きい場合には、粒子はどれだけ剪断をかけても吸収状態にたどり着くことができない。このような状態をアクティブ相と呼び、剪断の強さによってアクティブ相から吸収状態へと転移する相転移を吸収状態転移と呼ぶ。Random organization 模型は、上記の現象を非常に単純化したモデルである。粒子は他の粒子と重なると、ランダムな方向へ変位し、粒子の変位幅  $\Delta r$  が小さいか、密度が低い場合には、最終的に全ての粒子が重なっていない吸収状態が得られるが、密度が高い場合には、系の中のいくつかの粒子は必ず変位するアクティブ相が得られる。この吸収状態転移の相転移点近傍では、Hyperuniformity が生じることが知られている [13, 14, 35–37]。図 2.3(a) は、Hyperuniformity

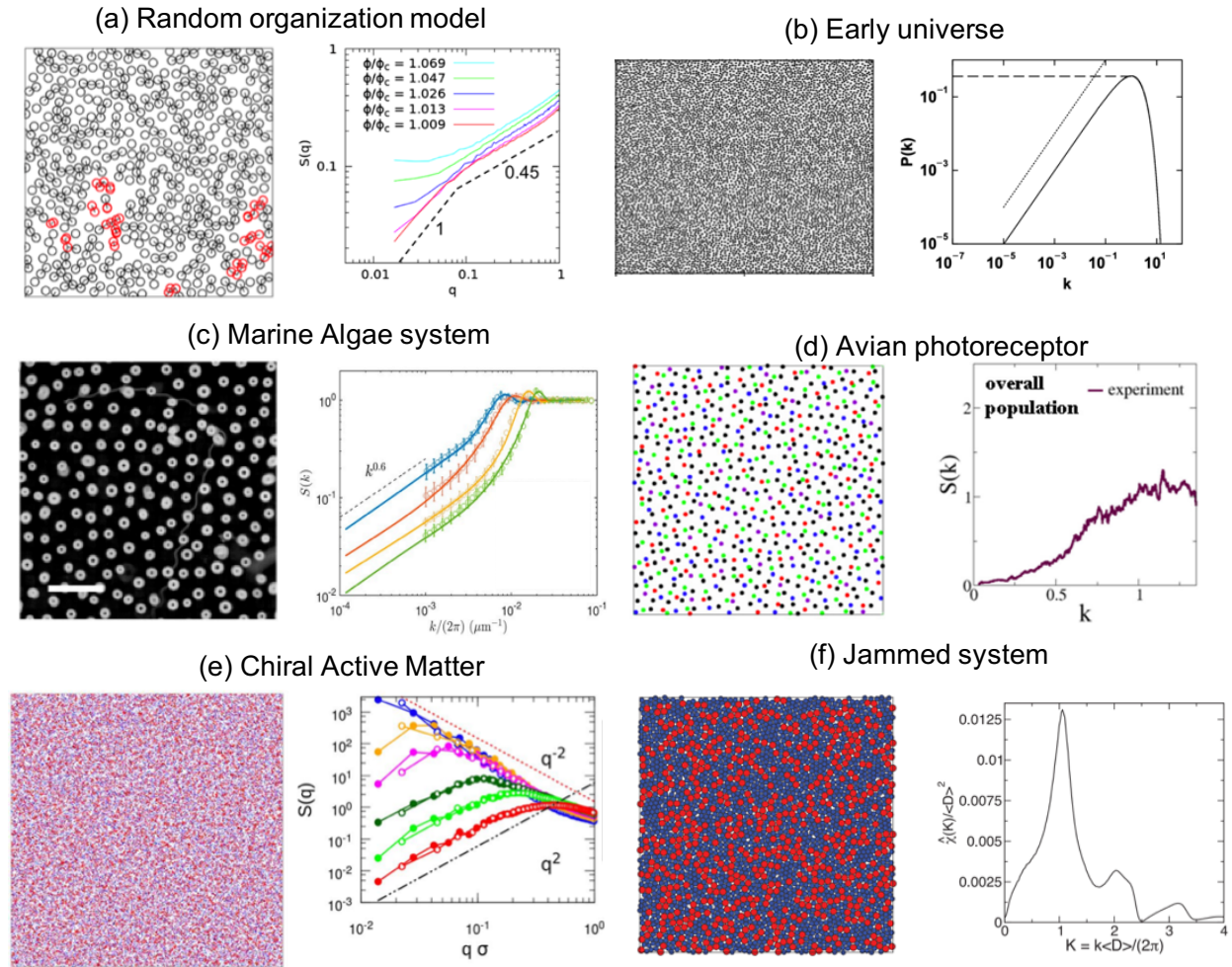


Fig.2.3 (a) Random Organization 模型における粒子配置と構造因子  $S(q)$  [14]。  $S(q)$  は中間的な波数領域では  $S(q) \sim q^{0.45}$  のべき的な減衰が見られるが、より低波数領域では  $S(q) \sim q$  の振る舞いが観測される。(b) 初期宇宙における密度揺らぎを再現するモデルから得られた粒子配置と構造因子  $P(q)$  [26]。低波数領域で構造因子  $P(q) \sim q$  と振舞う。(c) Marine Algae 系における粒子配置と構造因子  $S(q)$  [29]。低波数領域で  $S(q) \sim q^{0.6}$  と振舞う。(d) 鳥の目の視細胞の分布とその構造因子  $S(q)$  [25]。  $S(q)$  が低波数で 0 に向かって減少する振る舞いが見られる。(e) Chiral Active Matter の粒子配置とその構造因子  $S(q)$  [31]。低波数領域で  $S(q) \sim q^2$  という振る舞いをしてることが確認できる。(f) Jamming 系における粒子配置と構造因子  $\chi(q)$  [22]。粒子配置における赤と青はそれぞれ大小粒子を表す。  $\chi(q)$  が低波数で 0 に向かって減少する振る舞いが見られる。(a)~(f) の画像はそれぞれ、 [14, 22, 25, 26, 29, 31] より引用した。

が生じている際の粒子配置と Random Organization 模型における Hyperuniformity を示している。Random Organization 模型では、中間的なスケールでは、 $S(q) \propto q^{0.45}$  と振る舞い、より長距離では  $S(q) \propto q^1$  と振舞うことが報告されている [14, 35]。べき指数  $\alpha = 0.45$  は臨界指数と関連することが知られているが、 $\alpha = 1$  は何に起因する指数かは明らかになっていない。

宇宙背景放射で得られた温度揺らぎは非常に小さいことが知られている [38, 39]。これを再現するためのモデルでは、長距離の宇宙の構造 (初期宇宙) での質量分布の揺らぎのスペクトルとして  $S(q) \sim qe^{-qs}$  といった形を仮定することが多い [39]。事実、このように仮定することで、実験結果と合うモデルが構築できることが知られている。この場合には、低波数  $q$  で、 $S(q) \sim q$  となる。図 2.3(b) は、逆にこのような初期宇宙の密度揺らぎを再現するための理論模型によって得られた粒子配置とその静的構造因子を示している。この理論模型ではスペクトルとして、低波数で  $S(q) \sim q$  という形を再現していることがわかる。

図 2.3(c) と図 2.3(d) は、生物系における Hyperuniformity の例である。図 2.3(c) は、marine algae の一種である *E. voratum* の配置と  $S(q)$  を示している。*E. voratum* は、回転運動をすることが知られており、その集団運動が Hyperuniformity を生じることが明らかになった [29]。この実験系では、 $S(q) \propto q^{0.6}$  という指数が観測されており、粒子の自発的な運動だけでなく、粒子間に存在する流体相互作用が重要であるとされている [29]。図 2.3(d) は、鳥の目の視細胞の分布を示したものである。各粒子の色は、それぞれの色を受け取る視細胞を示し、黒色は輝度を受け取る視細胞を表している。隣に示した静的構造因子  $S(k)$  は、視細胞全体の構造から計算された  $S(k)$  である。この場合にも、Hyperuniformity が生じていることがわかる。一方で、各色を受け取る細胞の分布だけをとっても Hyperuniformity となることが知られている。これは、*multi-Hyperuniformity* と呼ばれており、鳥の目の視細胞以外には人工的な系をのぞき見つかっていない。図 2.3(e) は数値シミュレーションで得られた自己駆動する粒子である Active Matter 系における例であり、Marine Algae のように自発的な回転運動をする粒子である Chiral Active Matter における粒子配置と  $S(q)$  を示している。この系においても回転半径が小さい場合には、Hyperuniformity が生じていることが知られているが、その振る舞いは  $S(q) \propto q^2$  となっており [31]、Marine Algae で見られた  $S(q) \propto q^{0.6}$  とは異なる。上記以外にも、細胞運動のモデル [40, 41] や化学走化性をもつ集団のモデル [42] などでも Hyperuniformity が生じることが知られており、生物系の様々な場面で観測されている。生物系における Hyperuniformity については、3.2.3 節で議論する。

図 2.3(f) で示したのが、Jamming 系での粒子配置と構造因子  $\chi(q)$  である。詳しくは、4.2.4 節で議論するが、Jamming transition は、ゴムボールのような粒子を箱に詰めていくと、ある密度で箱の中の粒子が接触するようになり、系が弾性的に振舞うようになる現象である。Jamming 転移点近傍では、Hyperuniformity が生じることが知られている [17–20, 22, 43–46]。図 2.3(f) の構造は、Jamming 転移点における粒子配置を表しており、系が 2 成分系であるため、粒子の色は粒子の大小を示している。粒子が 2 成分の場合には、粒子の大きさの違いを考

慮した構造因子である  $\chi(q)$  を使うことによって Hyperuniformity を捉えることができることが知られている [18]。Jamming 転移点では、Hyperuniformity 指数は  $\alpha = 1$  とされている。この点に関しては、後の章で詳しく議論する。

以上からわかるように、Hyperuniformity はこれまで宇宙から生物といった幅広い分野で生じることが知られている。また、ここで示した例はほとんどが非平衡系である。

## 2.6 平衡系における Hyperuniformity

Hyperuniformity は、様々な分野で確認されているものの多くの系では、その発生起源は十分に明らかになっていない。しかし、いくつかの系では、理論的に Hyperuniformity が生じることができる。そこで、この節では、平衡系において乱れた Hyperuniformity が生じうる条件を考える。

Ornstein-Zernike 関係式 [30]

$$h(r) = c(r) + \rho \int c(|r - r'|)h(r')dr'. \quad (2.29)$$

から議論を始める。ここで、 $c(r)$  は直接相関関数である。2項目は畳み込み積分の形になっているので、Fourier 変換を行うことで、 $\tilde{h}(q)$  について解くことができ、 $\tilde{h}(q) = \frac{\tilde{c}(q)}{1 - \rho\tilde{c}(q)}$  という関係式を得る。ここで、式 (2.10) を用いることで、 $\tilde{c}(q)$  と  $S(q)$  の間の関係式

$$S(q) = \frac{1}{1 - \rho\tilde{c}(q)} \quad (2.30)$$

を得ることができる。この関係式から、 $S(q)$  の形には  $c(q)$  の形が重要であることがわかる。例えば、 $S(q) \sim q^\alpha$  という形を得るためには、式 (2.30) から、 $c(q)$  は  $c(q) \sim q^{-\alpha}$  という形でなければいけないことがわかる。これは直接相関関数がべき的、つまり長距離まで影響を及ぼことを示している。さて、ここで乱雑位相近似  $c(q) \approx -\beta\tilde{v}(q)$  が成立するとする。ここで、 $\tilde{v}(q)$  は相互作用ポテンシャル  $v(r)$  の Fourier 変換である。この議論から  $v(r)$  が長距離力であれば、系が Hyperuniformity であることが予想される。

実際に長距離相互作用を持つ系について考えてみよう。ここでは、例として単成分プラズマ系を考える [30, 47, 48]。これは、系内部の粒子が全て同じ電荷をもち、Coulomb 相互作用  $v(r) = Z^2e^2/|r|$  で相互作用して運動している系である。つまり、全ての粒子はべき的な長距離斥力で相互作用している系である。このモデルは非常に単純化されたモデルではあるが、イオン液体の理解に重要な役割を果たしたモデルである [30]。Coulomb 相互作用の Fourier 変換は  $v(q) = 4\pi Z^2e^2/q^2$  とかけ、 $q \rightarrow 0$  で発散的な振る舞いをする。これが、長距離の相関をうむ起源である。

では、実際に  $S(q)$  を乱雑位相近似を用いて、計算してみる。 $S(q) = \frac{1}{1+\beta\rho v(q)}$  なので、

$$S(q) = \frac{q^2}{q^2 + 4\pi\beta\rho Z^2 e^2} \approx \frac{q^2}{q_D^2} \quad (q \rightarrow 0) \quad (2.31)$$

と書くことができる。ここで、 $q_D = \sqrt{4\pi\beta\rho Z^2 e^2}$  は、Debye 波長である。 $q/q_D \ll 1$  の時には、 $S(q) \propto q^2$  という振る舞いをするのがわかる。これは、 $\alpha = 2$  の Hyperuniformity であることを示している。

このように平衡系では、長距離の相互作用が存在するば、Hyperuniformity が生じることがわかる。一方で、2.5 節で挙げた例のように、非平衡系であれば、長距離の相互作用が存在しなくとも、Hyperuniform は存在しうる。そこで、次は非平衡流体における密度揺らぎについて考えてみる。

## 2.7 非平衡流体における Hyperuniformity

非平衡系では、様々な系で Hyperuniformity が見られていることを 2.5 節で見た。Hyperuniformity が見られたほとんどの系では、十分な理論的な説明は得られていない。そこで、この節では、理論的に説明が可能で単純な非平衡系の揺らぐ流体方程式 [49] を考えることで、非平衡流体において Hyperuniformity が生じうることを示す。この結果から非平衡流体系においては、Hyperuniformity が生じうる可能性が存在することがわかる。

### 2.7.1 密度場のみを持つ流体方程式における Hyperuniformity

まずはじめに、最も単純な Hyperuniformity を示す揺らぐ流体方程式を考える [31, 36]。この場合の流体方程式は、

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot J \\ J = -D\nabla\rho - A\nabla\eta \end{cases} \quad (2.32)$$

である。ここで、 $\eta$  は  $\langle \eta(r, t)\eta(r', t') \rangle = \delta(t-t')\delta(r-r')$  を満たすランダムノイズであり、 $A$  はノイズ強度である。今は、非平衡系を考えているので、揺動散逸定理は成立しない。この形の方程式は、最初に Hexner *et al.* の Random Organization 模型に関する研究において提案された [36]。

式 (2.32) を Fourier 変換し、 $\delta\tilde{\rho}$  について解くことで、

$$\delta\tilde{\rho} = -\frac{q^2 A \tilde{\eta}}{i\omega + Dq^2}. \quad (2.33)$$

という式を得る。次に、 $\delta\tilde{\rho}$  の相関関数  $S(q, \omega)$  を計算する。

$$S(q, \omega) = \frac{1}{2\pi N} \langle |\delta\tilde{\rho}|^2 \rangle = \frac{A^2}{2\pi} \frac{q^4}{\omega^2 + D^2 q^4} \quad (2.34)$$

この式を  $\omega$  について積分することで、 $S(q)$  を計算することができる。これは、複素積分

$$\int dx \frac{1}{x^2 + a^2} = \frac{\pi}{a} \quad (2.35)$$

を用いれば、計算することができ、最終的に  $S(q)$  は

$$S(q) = \frac{A^2 q^4}{2Dq^2} \propto q^2. \quad (2.36)$$

という形になる。これは、 $\alpha = 2$  の Hyperuniformity となっている。このような流体記述を用いて、Random Organization 模型 [36] や Chiral Active Matter [31] における流体相での Hyperuniformity が議論されている。この2つのモデルは共に吸収状態転移を示す模型であるが、ここで議論した流体相は、転移点から遠い Active 相である。

上記の議論では、系に存在するノイズは保存ノイズであった。しかし、この系に非保存ノイズが存在する場合には、揺動散逸定理が破れても、Hyperuniformity が生じないことを示す [31]。非保存ノイズが存在する場合には、流体方程式は

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot J + \sqrt{2D_{\text{th}}} \nabla \cdot f \\ J = -D\nabla \rho - A\nabla \eta \end{cases} \quad (2.37)$$

となる。 $f$  は、 $\langle f(r, t) f(r', t') \rangle = \delta(t - t') \delta(r - r')$  を満たすノイズであり、 $\eta$  と  $f$  の間に相関がないと仮定する。この系における  $S(q)$  は

$$S(q) = \frac{A^2 q^4 + 2D_{\text{th}} q^2}{2Dq^2} = \frac{D_{\text{th}}}{D} + \frac{A^2 q^2}{2D} \quad (2.38)$$

となる。2項目は先ほどの保存ノイズからくる寄与であるが、1項目は非保存ノイズからくる寄与であり、揺動散逸定理が成立する  $D_{\text{th}} \neq D$  の場合に限らず、この項は有限の値の定数値となる。そのため、 $D_{\text{th}}$  が小さい場合には、中間的な波数領域で  $q^2$  となることが期待されるが、最終的には  $\lim_{q \rightarrow 0} S(q) \rightarrow D_{\text{th}}/D$  となる。 $\lim_{q \rightarrow 0} S(q) \rightarrow 0$  となるのは、 $D_{\text{th}} = 0$  の場合のみである。

## 2.7.2 密度場と速度場を持つ流体方程式における Hyperuniformity

先ほどの議論では、密度場  $\rho$  のみが遅い変数であった。次に、密度場  $\rho$  と速度場  $v$  が遅い変数の場合について議論する。この場合にも、揺動散逸定理の破れ方によっては、Hyperuniformity が生じることが知られている [50]。

以下のような流体方程式を考える。

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho}{\partial t} = -\nabla \cdot (\rho v) \\ \frac{\partial \rho v}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho v v) = -\tilde{\gamma} \rho v - \nabla p + \nabla \cdot \sigma + \nabla \cdot f \end{cases} \quad (2.39)$$

ここで、 $\sigma$  は、

$$\sigma = \eta \left[ \nabla \mathbf{v} + (\nabla \mathbf{v})^T - \frac{2}{d} (\nabla \cdot \mathbf{v}) \mathbf{I} \right] + \xi (\nabla \cdot \mathbf{v}) \mathbf{I}. \quad (2.40)$$

の形を持つ。この式では、 $\rho$  は質量密度である。また、ノイズ項  $\mathbf{f}$  は

$$\begin{aligned} \langle f_{ij}(\mathbf{r}, t) f_{kl}(\mathbf{r}', t') \rangle &= 2k_B T \delta(t - t') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \left[ \eta \left( \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{jk} \delta_{il} - \frac{2}{d} \delta_{ij} \delta_{kl} \right) + \xi \delta_{ij} \delta_{kl} \right] \\ &= 2\rho_0 k_B T \nu \delta(t - t') \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'). \end{aligned} \quad (2.41)$$

という相関を持つ。 $\nu$  は kinetic viscosity である。この方程式は、慣性を持つ Random Organization 模型に関する研究において最初に提案された [50]。この方程式において最も重要な項は  $-\tilde{\gamma}\rho\nu$  である。この項は、エネルギー散逸を引き起こす項であり、系に対して過剰な散逸を与え揺動散逸定理を破る。

ここで、 $c_s$  を音速として、圧力は  $p = c_s^2 \rho$  という形であると仮定する。さらに、前節と同様に式 (2.39) を線形化し、Fourier 変換すると、

$$\begin{cases} \omega \delta \tilde{\rho} = q \rho_0 \tilde{v} \\ -i\omega \rho_0 \tilde{v} = -\tilde{\gamma} \rho_0 \tilde{v} - i c_s^2 q \delta \tilde{\rho} - \rho_0 \nu q^2 \tilde{v} + i q \tilde{f} \end{cases} \quad (2.42)$$

この式を  $\delta \tilde{\rho}$  について解くことによって、

$$\delta \tilde{\rho} = \frac{q^2 \tilde{f}}{-\omega^2 - i\omega(\tilde{\gamma} + \nu q^2) + c_s^2 q^2}. \quad (2.43)$$

を得る。さらに、前節と同様に  $S(q, \omega)$  を計算すると、

$$S(q, \omega) = \frac{q^4}{\omega^2(\tilde{\gamma} + \nu q^2)^2 + (\omega^2 - c_s^2 q^2)^2} \frac{\nu k_B T}{m\pi} \quad (2.44)$$

となる。

$\delta \tilde{\rho}$  を求めたので  $S(q, \omega)$  を計算することができ、

$$S(q, \omega) = \frac{q^4}{\omega^2(\tilde{\gamma} + \nu q^2)^2 + (\omega^2 - c_s^2 q^2)^2} \frac{\nu k_B T}{m\pi} \quad (2.45)$$

を得る。 $S(q)$  を求めるには、 $\omega$  について積分を行えばよく、次の複素積分の公式

$$\int dx \frac{1}{(x^2 - a^2)^2 + b^2 x^2} = \frac{\pi}{a^2 b} \quad (2.46)$$

を用いることで、 $S(q)$  を計算することができる。 $S(q, \omega)$  を  $\omega$  について積分することで、 $S(q)$  は

$$S(q) = \int d\omega S(q, \omega) = \frac{q^4 \pi}{c_s^2 q^2 (\tilde{\gamma} + \nu q^2)} \frac{\nu k_B T}{m\pi} = \frac{\nu k_B T q^2}{m c_s^2 (\tilde{\gamma} + \nu q^2)} \propto q^2 \quad (q \rightarrow 0) \quad (2.47)$$



となる。この式の形は、(2.36)とは異なるものの  $\alpha = 2$  の Hyperuniformity を示す。平衡系である  $\tilde{\gamma} = 0$  の場合には、 $S(q)$  は有限の値になることから揺動散逸定理の破れが Hyperuniformity を引き起こす原因であることがわかる。

線形化した方程式を実空間表現に書き直すと

$$\frac{\partial^2 \delta \rho}{\partial t^2} = -(\tilde{\gamma} + \nu q^2) \frac{\partial \delta \rho}{\partial t} - c_s^2 q^2 \delta \rho + q^2 f \quad (2.48)$$

となる。この式を見ると、散逸項が  $-(\tilde{\gamma} + \nu q^2) \frac{\partial \delta \rho}{\partial t}$  となっている。 $\tilde{\gamma} = 0$  の場合は平衡系であり、散逸項を記述する項は  $q$  依存性を持つ。しかし、非平衡系である現在の場合には、 $-\tilde{\gamma} \frac{\partial \delta \rho}{\partial t}$  の項が付け加わっており、どんな波数の場合にも同じ大きさの散逸がかかっていることがわかる。特に、 $q \rightarrow 0$  の場合にも、この散逸項は残ってくる点が平衡系での散逸項との大きな違いであり、非平衡系における強い散逸の効果が系を Hyperuniform にしている。

この節では、2つの非平衡流体について見てきた。2つの流体方程式は特定の形ではあるものの、非平衡流体系であれば、Hyperuniformity が生じる可能性があることを示している。

もちろん、非平衡流体の議論をどれだけ拡張しても、全ての非平衡 Hyperuniformity を説明できるわけではない。なぜならば、多くの Hyperuniformity が生じる系では、系は時間変化しないからである。例えば、Jamming 系では、最終的に得られる力の釣り合いが満たされた構造は時間的に構造変化しない。また、多くの系では、ミクロなモデルは存在するもののマクロな方程式がどのように記述されるかは明らかではなく、非平衡流体系であっても上記の議論がどの程度成立するかは明らかではない。加えて、 $\alpha$  は様々な値が存在することが報告されているものの、上記の流体方程式からの議論では、非線形効果を取り入れなければ  $S(q) \propto q^2$  しか示すことができない。よって、上記の議論は非常に限られた系にしか使えず、Hyperuniform の理論的な理解は今のところ十分ではない。

## 第 I 部

# Active Matter 系での Hyperuniformity

## 第 3 章

# Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle 系にお ける Hyperuniformity

### 3.1 背景

Active Matter は、自発的に運動を行う構成要素によって成り立つ多体系であり、メートルスケールの鳥や魚からナノメートルスケールのモータータンパク質まで、幅広い長さスケールに存在する [2, 3]。このように、Active Matter の構成要素は大きく異なるものの、協同運動には類似した性質が見られることが知られている。このような Active Matter が示す協同的な運動を統計力学として理解するのが、Active Matter の統計力学の目的である。非平衡統計力学の視点から Active Matter について考えると、各個体が持つその自発的な運動性によって、1 粒子レベルで揺動散逸定理が破れている個体で構成された多体系ということもできる。この Active Matter の非平衡性は系の境界から外場を加え、系全体を非平衡にする設定とは異なっており、境界条件による非平衡系では、見られなかった様々な非平衡現象が生じうる [2, 3, 51, 52]。そのため、Active Matter は、生物の協同運動を理解するという生物に対する興味だけでなく、非平衡統計力学の基本的な興味に基づいた様々な研究も活発に行われている。

Active Matter の多くの模型において、Giant Number Fluctuation と呼ばれる系の密度揺らぎの増大や相分離現象が観測される [4–10]。これは、自己駆動力の効果によって、粒子が周りの粒子と協同的に運動しようとした結果、集団として集まり、系が非一様になった結果であると考えることができる。一方で、Giant Number Fluctuation とは対照的な現象である、系の密度揺らぎの減衰である Hyperuniformity は、Active Matter 系ではいくつかの例をのぞいてほとんど観測されていない。一方で、2.7 節で議論したように、系が揺動散逸定理を破るならば、系に Hyperuniformity は生じうる可能性がある。つまり、Active Matter のような非平衡粒子系

において、揺動散逸定理の破れ方によって Hyperuniformity は生じうるはずである。実際、共同研究者の You は先行研究の Active Matter モデルを一般化した Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle(GAOUP) 模型を提案し、その模型の静的構造因子で Hyperuniformity が生じる示唆的な結果を得た [53]。一方で、その Hyperuniformity のべき指数や、系のパラメータに対する依存性等は明らかになっていない。

本研究では、はじめに、Scalar Active Matter の理論モデルである Active Ornstein-Uhlenbeck Particle(AOUP) 模型の揺動散逸定理の破れ方を詳細に調べることで、これまでの Active Matter 模型での揺動散逸定理の破れについて考える。その上で、You が提案した揺動散逸定理の破れ方をより詳細に制御できる模型である Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle(GAOUP) 模型を説明する [53]。GAOUP 模型は、ノイズが有限の記憶時間  $\tau_p$  を持つ模型であった AOUP 模型に対して、さらに、応答関数に対しても有限の記憶時間  $\tau_m$  を与えた模型である。本研究では、この GAOUP 模型の数値シミュレーションを行い、広いパラメータ領域における GAOUP の動的相図を作成した。GAOUP 模型では、 $\tau_m < \tau_p$  の領域では、これまで報告されてきた Scalar Active Matter 模型と同様の性質を示し、 $\tau_m \rightarrow 0$  の極限では、GAOUP 模型は AOUP 模型と一致する。一方で、 $\tau_m > \tau_p$  の領域は、これまでの Scalar Active Matter 模型では扱うことができない非平衡領域であり、我々は、この領域において Hyperuniformity が生じることを確認した。つまり、これまでの Scalar Active Matter 模型において Hyperuniformity が観測されていなかった理由は、Hyperuniformity が生じる非平衡流体状態をこれまでの Scalar Active Matter 模型では表現できないことが原因であった。また、GAOUP 模型における静的構造因子の振る舞いは  $S(k) \propto k^{1.5}$  であった。この指数は、これまで様々な系で報告されてきた Hyperuniformity 指数とは異なる新規の値である。

本章は次のような構成になっている。まずはじめに、3.2 節において、これまでに知られている Active Matter の性質や理論模型について説明を行う。3.3 節において Scalar Active Matter 系である AOUP 模型の揺動散逸定理の破れについて議論する。続く、3.4 節において今回我々が考案した AOUP 模型を拡張した模型である GAOUP 模型について説明する。3.5 節において、今回我々が行った数値計算の設定を説明する。3.6 節では、GAOUP 模型の様々なパラメータ領域において系の密度揺らぎがどのような振る舞いをするかを議論し、GAOUP 系において Hyperuniformity が生じうることを示す。3.7 節では、GAOUP 系で生じた Hyperuniformity 指数  $\alpha \approx 1.5$  という値が系の密度やポテンシャル、システムサイズといった条件に対してどの程度ロバストなのかを調べる。次に、3.8 節において、GAOUP 模型が持つ 2 つの記憶時間  $\tau_p$  と  $\tau_m$  を変化させて得られた系の相図を示す。また、GAOUP 模型における Hyperuniformity がどのような条件の元で生じるようになるかを議論する。3.9 節では、Hyperuniformity が生じるパラメータ領域において、系の密度揺らぎ以外の性質がどのように変化しているかを議論する。最後に、3.10 節で今回 GAOUP 模型の数値シミュレーションによって得られた結果についてまとめる。

## 3.2 Active Matter

この節では、Active Matter について、これまでに知られている性質やその理論模型について説明を行う。3.2.1 節では、Active Matter とは何かについて説明を行い、どのような系を Active Matter と呼ぶかについて考える。続く、3.2.2 節では、Active Matter の理論模型について説明を行う。Active Matter は、その形状や自己駆動性の入り方によって様々な模型が提案されており、その違いによって見られる現象が異なることが知られている。この節では、現在用いられている Active Matter の全ての性質を説明するような一般的な模型から始まり、現在用いられている種々の模型とその系で見られている現象について説明を行う。最後に、3.2.3 節では、Active Matter 系でこれまでに報告されてきた Hyperuniformity について説明を行う。本節で説明するそれぞれの Active Matter 模型についてのより詳細な内容については、[2, 3, 7, 51, 52, 54, 55] が詳しい。

### 3.2.1 Active Matter とは何か

Active Matter は、一つの個体が自身に蓄えた自由エネルギーや、環境の自由エネルギーを用いて並進移動や力学的な仕事を行うことができる系のことである。Active Matter は、幅広いスケールに存在している。それを示したのが、図 3.1 である。一番小さいナノメートルスケール

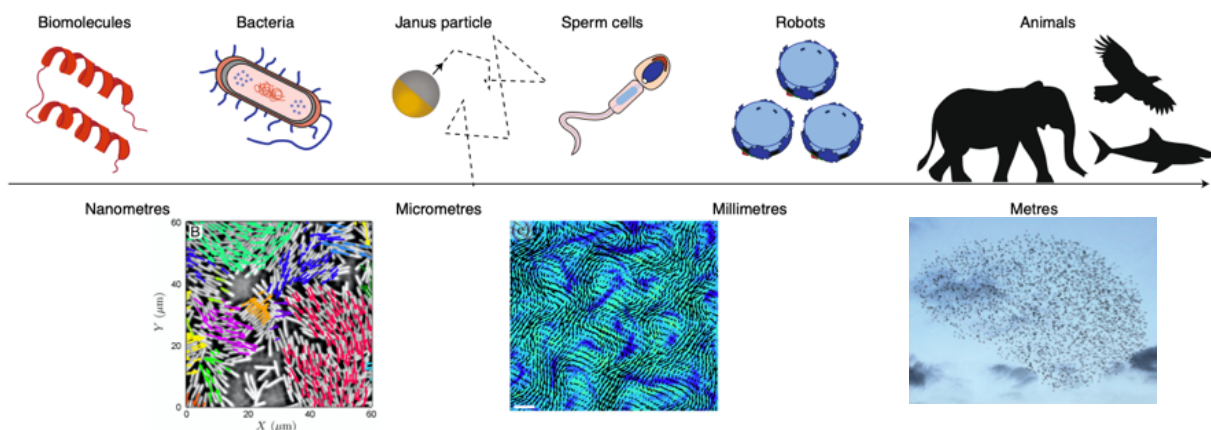


Fig.3.1 ナノメートルスケールからメートルスケールにわたる Active Matter の例。Active Matter は、広い長さスケールに渡って存在することがわかる。一方で、その集団運動は類似した運動を示すことが知られている。下の図では、大腸菌の集団運動 [56]、sperm cells の速度場 [57]、鳥の群れ [58] を示しており、そのどれもが方向の揃った集団運動をしている。上の画像はそれぞれ [56–59] より引用した。

においては、例えば、Kinesin のようなモータータンパク質が存在する。また、マイクロメー

トルスケールにおいては、*E. coli* のようなバクテリアや、Janus 粒子系のような人工粒子系が存在する。このような系は、Active Matter の実験によく用いられている。また、さらに大きいスケールになると、虫や魚、動物、鳥などの我々が日常的に目にする生物が Active Matter に含まれている。このようなスケールでは、ロボットなどの非生物だが自発的な運動性を持つ存在も Active Matter として含み、単純なルールに従うロボットの集団的な運動も研究されている。このように、Active Matter は、必ずしも鳥の群れやバクテリアコロニーなどの生物集団のことを指すわけではなく、Janus 粒子系のような人工粒子系やロボットなども含んでいる。

図 3.1 で示したように Active Matter は幅広いスケールに存在しており、また、その形状は、それぞれに大きく異なっている。一方で、その集団運動には、スケールや形状の違いによらず非常に似通った現象が観測されている。例えば、図 3.1 の左下の図は、マイクロメートルスケールにおける大腸菌の集団的な運動を示している [56]。色のついた矢印が各バクテリアの変位を示しており、集団的に同じ方向へと移動している振る舞いが見られる。また、下の中央の図は sperm cells の速度場を示しており、方向のそろった集団的な運動が生じていることがわかる [57]。最後に、右下の図は鳥の群れが方向をそろって集団的に移動している際の写真である [58]。このように、ここで示した全ての集団はそれぞれ個体のスケールが異なるものの、方向のそろった集団的な運動を示すことが知られている [2, 60]。

では、このような Active Matter が示す多様な協同現象を捉える理論は、どのように構築できるのだろうか? Active Matter を理論的に捉えるには、まずこのような協同現象を引き起こすのに重要な性質が何かを考える必要がある。鳥や魚の群れでは、衝突しないように周りを見て自分自身の進行方向を調整する性質が重要に思われるし、細胞においては、細胞成長や分裂などが重要に思えるし、大腸菌などでは、鞭毛の運動の仕方や、その形状などが重要に思える。このように、各スケールで類似した協同運動が見える一方で、各生物やスケールごとに形状や運動の仕方や性質が異なる。そこで、最も単純なモデル化の方法はどのように自発的に動くかの詳細は議論せず、自発的に動く個体の集団を考えることである。このような系は自己駆動粒子系と呼ばれる。

自己駆動粒子系の理論モデルを構成する際には、1 粒子のダイナミクスをモデル化するエージェントモデルと、集団的な性質として、系が持ちうる秩序変数と系が持つ対称性から許される項を全て入れた流体方程式を用いる場合の 2 つがある。我々の研究では、1 粒子のダイナミクスをモデル化したので、この節では、主にエージェントモデルについての説明を行う。流体方程式に関する記述については、[2, 5, 7, 55] 等のレビューが詳しい。

### 3.2.2 Active Matter の理論モデル

ここでは、自己駆動粒子系の理論モデル、特に、エージェントモデルについて説明を行う。自己駆動粒子系の理論モデルは、どのような粒子がどのように自己駆動するかによって様々なモ

デルが存在している。そこで、本章では、初めにさまざまなモデルの間関係の見通しをよくするために、自己駆動粒子系の研究において、現在用いられているモデルを一般的な形で書き下す。2次元系の研究が最もよく行われているので2次元系について考える。2次元系での自己駆動粒子系の運動方程式の一般形は

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{r}}_i &= \boldsymbol{\mu}(\mathbf{r}) \left[ f_0(\mathbf{r}, t) \mathbf{e}_i + \sum_j \mathbf{f}^{(\text{int})}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i, \phi_i, \phi_j) \right] + \boldsymbol{\xi}(t) \\ \dot{\phi}_i &= \mu_\phi(\mathbf{r}) \left[ \sum_j g(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i, \phi_i, \phi_j) + M(\mathbf{r}_i, \phi_i) \right] + \xi_\phi(t) \end{aligned} \quad (3.1)$$

である。相互作用等の具体的な形は、より詳細にモデルを調べる時に説明するので、ここではこの模型の各項が持つ意味を考える。1行目の式は、並進に関する運動方程式であり、多くのモデルでは過減衰型の式が用いられる。右辺第1項目は、自己駆動力を表す項であり、自己駆動力の強さは  $f_0(\mathbf{r}, t)$  で与えられ、その方向は  $\mathbf{e}_i = (\cos \phi_i, \sin \phi_i)$  である。2項目の  $\mathbf{f}^{(\text{int})}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i, \phi_i, \phi_j)$  は粒子間の相互作用を記述し、 $\boldsymbol{\xi}$  は並進のランダムノイズである。2行目の式は、自己駆動力の方向が従う運動方程式である。1項目は角度方向の相互作用や周りの粒子と方向を揃えようとする性質などが入る。2項目の  $M(\mathbf{r}_i, \phi_i)$  は、粒子が持つトルクである。 $\boldsymbol{\xi}, \xi_\phi$  はそれぞれ並進及び回転方向のノイズである。Active Matter は平衡から遠い非平衡系のため、移動度  $\boldsymbol{\mu}, \mu_\phi$  とノイズは揺動散逸定理を満たさない。移動度  $\boldsymbol{\mu}$  は、モデルの運動性を記述する上で重要であり、粒子の形状等に依存して行列になる [52, 61]。また、自己駆動力の強さ  $f_0(\mathbf{r}, t)$  や移動度  $\boldsymbol{\mu}(\mathbf{r})$ 、トルクの強さ  $M(\mathbf{r}_i, \phi_i)$  などは、粒子が化学走化性を持つ場合には、位置依存性を持つことが知られている [62]。これは、バクテリアの周りの化学物質の分布の仕方や生物の周りの餌の分布の仕方によって運動の仕方が変化することに対応する。

自己駆動力の方向  $\mathbf{e}_i$  が、2式目の Langevin 方程式から決まることからわかるように、自己駆動力は Non-Markov なランダム変数となっている。エージェント模型においては、Active Matter 系の非平衡性を調べることは、Non-Markov ノイズ系を持つ非平衡系の性質を調べることに対応する。この Non-Markov ノイズがどのように揺動散逸定理を破り非平衡性を系に与えるかは、後の節で議論する。

実際の研究では、式 (3.1) の全ての項を持つようなモデルは用いられない。多くの場合、この中の多くの項を消去して得られるモデルが研究に用いられ、そのようなモデルにそれぞれ名前がついている。続く節では、式 (3.1) から得られる個別のモデルについて議論する。

### Active Rods 系

Active Rods 系は、図 3.2 で示すような、非等方的な形状を持ち、ある特定の方向へと進む自己駆動力  $f_0 \mathbf{e}_i$  を持つモデルである。このような系は、現実系ではバクテリア [64]、アクチンフィラメント [65, 66]、加振粉体 [67]、ロッド状の Janus 粒子 [68] などが対応することが知ら

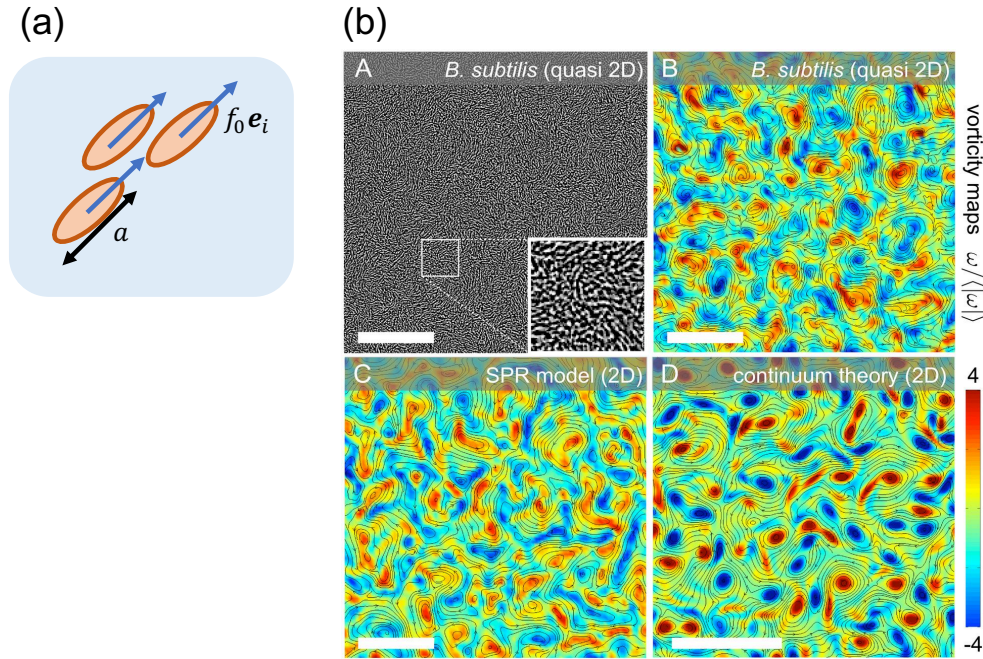


Fig.3.2 (a)Active Rods 粒子の模式図。Active Rods はある特定の方向への自己駆動力をもち、その形状は楕円形や棒状である。(b)*B. subtilis* の実験のスナップショット (A) 及びその渦度場 (B)、棒状粒子を用いた数値シミュレーションによって得られた渦度場 (C) と Active Rods 系の流体模型の数値計算によって得られた渦度場 (D) [63]。数値シミュレーションと実験で類似した渦度場が得られており、このような現象は Active Turbulance と呼ばれている。(b) の図は [63] より引用した。

れている。

Active Rods 系の運動方程式は、(3.1) において  $M = 0, \mu_0(\mathbf{r})(\mathbf{x}, t) = \mu, \mu_\phi(\mathbf{r}) = \mu_\phi$  とした系であり、

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{r}}_i &= \mu \left[ f_0 \mathbf{e}_i + \sum_j f^{(\text{int})}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i, \phi_i, \phi_j) \right] + \xi(t) \\ \dot{\phi}_i &= \mu_\phi \left[ \sum_j g(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i, \phi_i, \phi_j) \right] + \xi_\phi(t) \end{aligned} \quad (3.2)$$

というモデルであることが多い [52, 69]。ここで、 $\mu$  は、粒子の楕円的な形状から行列になる。Active Rods 系では、自己駆動力以外の相互作用や拡散運動といった粒子の運動性は、 $\phi_i \rightarrow \phi_i + \pi$  という変換に対して、不変である。これは、粒子形状からは頭と尻尾の区別がつかないことからわかる。一方で、自己駆動力の方向  $\mathbf{e}_i[\phi_i]$  に関しては、 $\phi_i \rightarrow \phi_i + \pi$  という変換に対して、 $\mathbf{e}_i[\phi_i] = -\mathbf{e}_i[\phi_i]$  となり、符号を変えることに注意が必要である。このように Active Rods 系は、粒子の形状による Nematic 秩序と粒子の自己駆動性による Polar 秩序が重要である。Active Rods 系は、一般的なモデル (3.1) の項を多く残しているため、あとで示すような



Active Nematic 系や Scalar Active Matter 系の性質を Active Rods 系の一種の極限として持つ。また、Active Nematic 系や Scalar Active Matter 系に比べて広いパラメータ領域を持つことから、その他の Active Matter モデルでは見られない多彩な相構造や非平衡現象が存在することが知られている [70]。

図 3.2 (b) の A,B は、*B. subtilis* に対する実験のスナップショット及び、実験から計算された渦度場である [63]。このような渦度場は、乱流で見られるものと類似していることから **Active Turbulence** と呼ばれている [55, 57, 63, 71–75]。このよう渦度場は、Active Rods 系の数値シミュレーション (図 3.2 (b)C) や Active Rods 系に対する流体記述 (図 3.2 (b)D) の結果でも見られている。Active Turbulence は、Active Rods 系だけでなく、Active Nematic 系でも見られることが知られている [55, 74, 75]。Active Turbulence は、実験的には、*B. subtilis* [63, 71, 72] や、swarming sperm [57]、human bronchial epithelial cell [73] で観測されている。

上述したような粒子模型と現象論的に導出された流体記述をつなぐために、ミクロな粒子模型から Active Rods 系に対する流体記述を導出する試みがなされている [76–78]。

### Active Nematic 系

Active Nematic 系は、図 3.3 で示すような、非等方的な形状を持ち、頭と尻尾のどちらの方向にも自己駆動性を持つ粒子である。頭と尻尾の区別がない Active Rods 系ということもできる。Active Nematic 系は、長軸方向への揺らぎが強い一種の液晶粒子であるため、液晶と同様に Nematic 秩序が存在し、2次元系では、通常の液晶と同様に Nematic 相では準長距離秩序が生じることが知られている。現実の生物に頭と尻尾の区別がないのは、不思議なように思われる。しかし、microtubule-kinesin 系のようなモータータンパク質系 [79] や human bronchial epithelial cell [73]、neural progenitor cell cultures [80] などを用いることで、Active Nematic を実現することができる。

Active Nematic 系では、粒子全体の性質が  $\phi_i \rightarrow \phi_i + \pi$  に対して、不変でなければいけないが、Active Rods 系での議論からもわかるように、単純な自己駆動力  $f_0 \mathbf{e}_i$  の形では、不変にはならない。そこで、 $f_0(\mathbf{r}, t) = f_0 h(t)$  とし、 $h(t) = \{1, -1\}$  という binary 変数を導入し、確率的に  $h(t)$  の符号が変化するようにする。このようにすることで、粒子が頭と尻尾の両方の方向に偏ることなく進むという設定を実現できる [81]。Active Nematic 系は、頭と尻尾の区別をなくすために Active Rods 系に比べて運動方程式が複雑になってしまう一方で、Active Nematic 系を記述するのに用いられている流体方程式は、液晶流体に自己駆動性に起因する項を加えた比較的単純なものであるため、多くの研究では流体記述を用いて研究が行われている [2, 54, 75, 82]。

Active Nematic 系は、通常の液晶と同様に系の中のトポロジカル欠陥が重要な役割を果たすことが知られている。図 3.3 (b) は、液晶における最低トポロジカル数のトポロジカル欠陥を示したものである。液晶では、頭と尻尾の区別がないため  $\pm 1/2$  が、最低トポロジカル数と

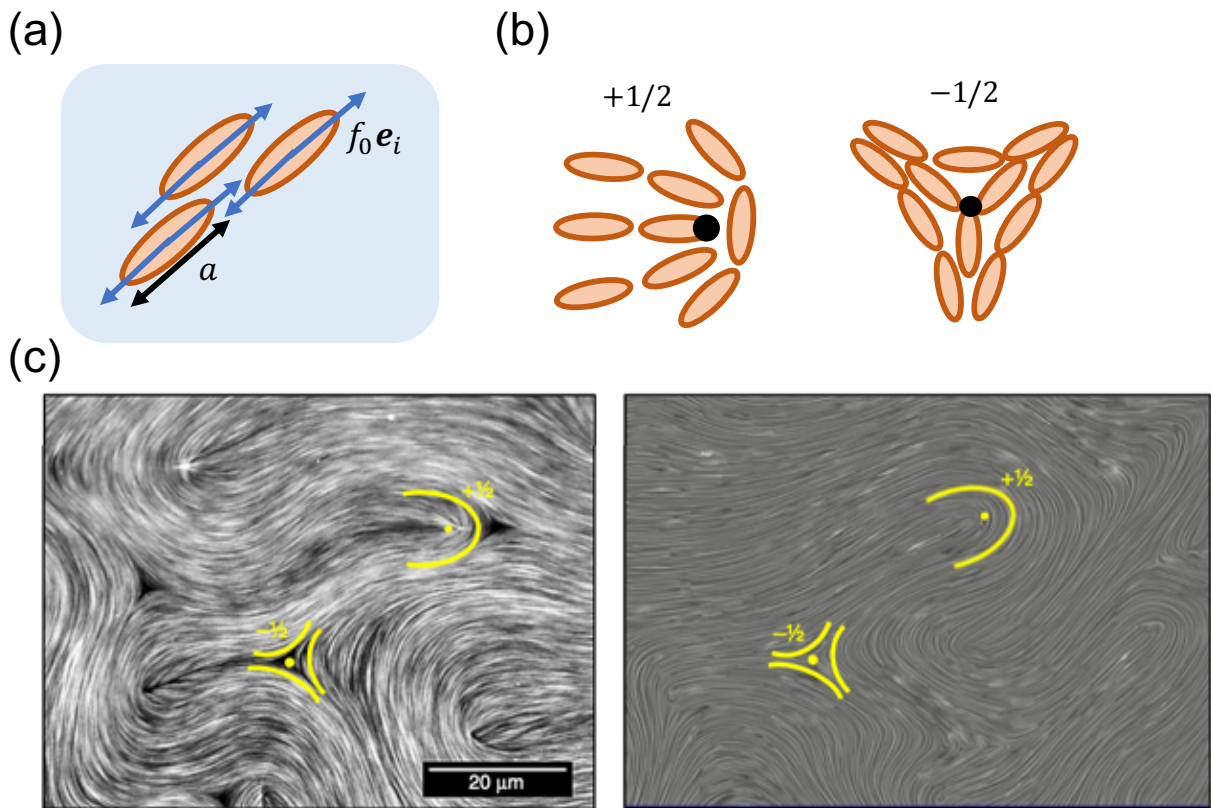


Fig.3.3 (a)Active Nematic 粒子の模式図。Active Rods とは異なり、自己駆動力が長軸のどちらの方向に対しても働くため、頭と尻尾の区別が存在しない。(b)Active Nematic 系で観測される  $\pm 1/2$  のトポロジカル欠陥の模式図。 $+1/2$  の欠陥は自己駆動力を持つ粒子のように振る舞い、一方で、 $-1/2$  の欠陥は自己駆動性のない粒子のように振舞うことが知られている。(c)microtubule-kinesin 系の実験と数値シミュレーションによって得られた結果 [54]。どちらの場合にも、 $\pm 1/2$  のトポロジカル欠陥が存在していることがわかる。(c) の図は [54] より引用した。

なる。トポロジカル数  $\pm 1/2$  は、黒点で表した点の周りで粒子の方向が  $\pm \pi$  だけ回転していることを示している。トポロジカル数が  $\pm 1/2$  の欠陥が衝突すると対消滅することが知られている。図 3.3 (c) の左が microtubule-kinesin 系における実験の結果を示し、右が Active Nematic 流体の数値計算を示している [51, 54, 75, 79]。両者も非常に類似した振る舞いをしており、実験、数値計算ともに  $\pm 1/2$  のトポロジカル欠陥が存在することが見て取れる。通常の液晶におけるトポロジカル欠陥とは異なり、Active Matter 系における  $+1/2$  のトポロジカル欠陥は自己駆動性を持った粒子として振舞う [51, 54, 82]。これは、(b) に示しているように  $+1/2$  のトポロジカル欠陥は、箒星型の尾の粒子の自己駆動性によって、それと垂直方向を向いている粒子が押されることから、箒星と同様の方向へ自己駆動力によって進行する。一方で、 $-1/2$  の欠陥は、3 回対称であることから自己駆動性を持たず、通常の自己駆動性を持たない粒子として

振舞う。

microtubule-kinesin 系以外にも、様々な生物系においてトポロジカル欠陥が存在することが確認されている [80, 83–87]。Epithelial cells では、+1/2 の欠陥において、自己駆動性によって局所的に圧力が高くなり、アポトーシスが誘発されるため、+1/2 の欠陥の位置とアポトーシスが生じる位置が強く相関していることが明らかになった [83]。また、ヒドラの分化においては、トポロジカル欠陥の位置と、卵細胞の分化によって最終的にどの位置が足や頭に分化するかといった性質が関係していることが報告されている [85]。このように近年では、生物においてトポロジカル欠陥が重要な役割を果たしていることが明らかになってきており、トポロジカル欠陥の役割の理解が期待されている。

### Polar Active matter 系

Polar Active Matter は、排除体積の効果がない、運動するスピンのようなモデルである。粒子は、排除体積を持たないものの、近傍の粒子と自己駆動力の方向を揃える相互作用を持っているため、図 3.4(a) に示すように、近傍の粒子と方向のそろった運動をする。このような Polar Active Matter の運動方程式は、(3.1) における並進の相互作用項や回転トルク項を落とすことで、記述できる。Polar Active Matter の運動方程式は

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{r}}_i &= \mu f_0 \mathbf{e}_i \\ \dot{\phi}_i &= \mu_\phi \sum_j g(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i, \phi_i, \phi_j) + \xi_\phi(t) \end{aligned} \quad (3.3)$$

である。このモデルは、Active Matter モデルの中で最も有名なモデルである Vicsek モデルの連続版に対応している [88]。Polar Active Matter の研究においては Vicsek モデルが主に用いられている\*1。

Polar Active Matter の流体記述には、Toner-Tu モデルと呼ばれるモデルが用いられる [5, 89]。Toner-Tu 方程式は、密度場と Polarity field で記述される流体方程式であり、Galilei 対称性を満たさない流体方程式に対して、対称性から許される項を全て加えた方程式である。流体方

\*1 Active Rods、Active Nematic model も排除体積を持たず方向を揃える効果のみで記述されたモデルが用いられることがある。それらのモデルは、

$$\begin{aligned} \dot{\mathbf{r}}_i &= h v_0 \mathbf{e}_i \\ \dot{\phi}_i &= \frac{\mu_\phi}{n_i} \sum_j \sin(k(\theta_j - \theta_i)) + \xi_\phi(t) \end{aligned} \quad (3.4)$$

と記述される。 $h$  は、Active Nematic の説明の際に導入した、進行方向を反転させるノイズである。 $h = 1$  の場合には、進行方向は反転せず、頭と尻尾の区別があるモデルとなる。 $\sum_j$  は  $i$  番目の粒子の近傍についての和であり、 $n_i$  は  $i$  番目の粒子の近接粒子数である。通常、粒子の近傍は半径  $R$  の範囲に入っている粒子として定義する。 $\sin(k(\theta_j - \theta_i))$  は、周りの粒子と方向を揃える効果を示しており、 $k = 1$  は強磁性的であり、 $k = 2$  では nematic 的である。

(3.4) を用いると、排除体積のない、Active Polar, Active Nematic, Active Rods を全て記述することができる。Active Polar ( $k = 1, h = 1$ ), Active nematic ( $k = 2, h \neq 1$ ), Active Rods ( $k = 2, h = 1$ ) である。

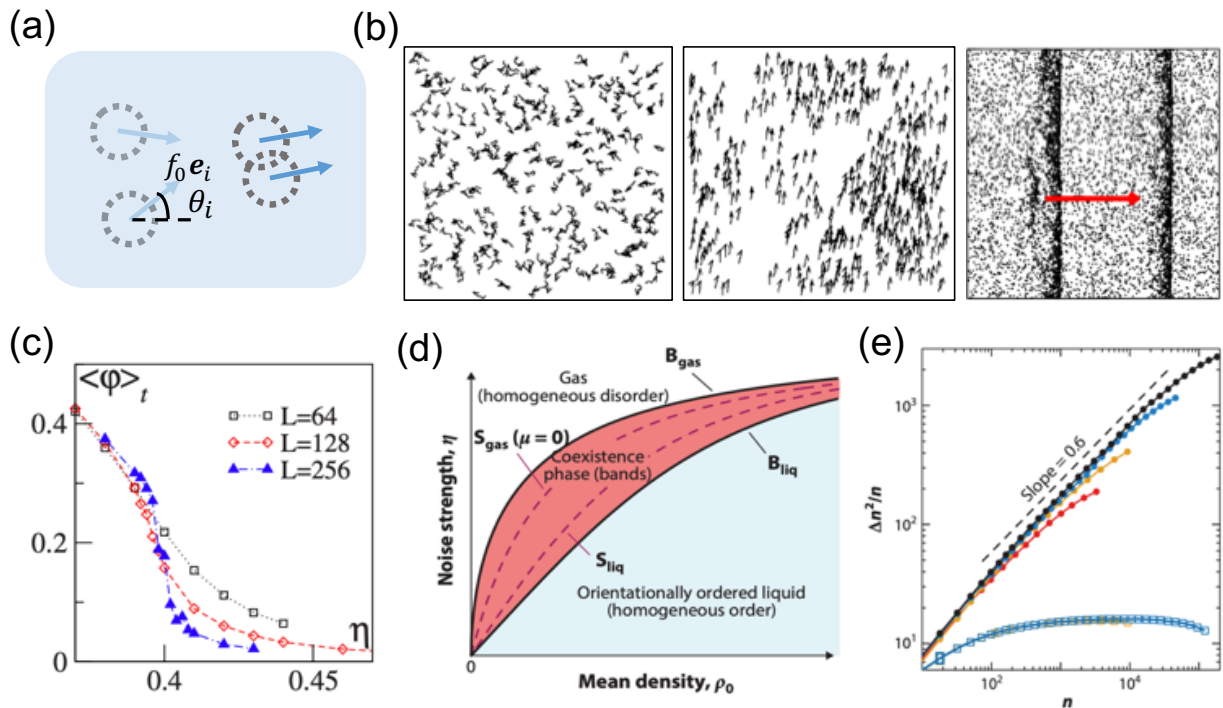


Fig.3.4 (a)Polar Active Matter 粒子の模式図。Polar Active Matter は排除体積効果を持たず、近接粒子と進行方向を揃える力を持つのが特徴である。(b)Vicsek 模型における無秩序相(左)、秩序相(中央)、Vicsek Band。Vicsek 模型では、秩序相と無秩序相の相共存として、Vicsek Band と呼ばれる状態が生じることが知られている。Vicsek Band は進行方向に対して、垂直に秩序が生じる。左と中央の図は [88] より引用し、右の図は [6] より引用した。(c)Polar Order Parameter  $\langle \phi \rangle_t$  のノイズ強度  $\eta$  依存性 [6]。システムサイズを上げていくと、相転移点で不連続に変化する振る舞いに変化していく。これは、相転移に対して有限サイズ効果が強く効いていることを意味しており、現在では Vicsek 模型の相転移は 1 次転移であることが知られている。この図は [6] より引用した。(d)Vicsek 模型における相図 [7]。密度が高くノイズが小さい領域で秩序相が生じ、ノイズが高い場合には無秩序相が生じる。両者の共存相として Vicsek Band と呼ばれる状態が生じる。(e)Vicsek 模型における Giant Number Fluctuation(GNF) [7]。白抜きの線は無秩序相であり、数密度揺らぎ  $\Delta n^2/n$  は増大しないが、色丸で描かれた秩序相では、 $\Delta n^2/n \propto n^{0.6}$  となっており、これは理論的な予想と一致している。(d),(e) の図は [7] より引用した。

程式に対する具体的な理論解析の結果は、本論文では議論しないが、後述する Vicsek 模型で見られる多くの性質を再現することが知られている。また、Vicsek 模型から Boltzmann 方程式や Fokker-Planck 方程式を経由して Polar active matter 系を記述する流体方程式を導出しようと様々な試みがなされており、Toner-Tu 模型では出てこない項が現れるものの、その形は Toner-Tu 模型に類似していることが知られている [90–95]。

Polar Active Matter は、方向を揃える効果を持つことから、方向を揃える効果と方向をバラ

バラにしようとするノイズの強さの比である  $\eta$  と系の数密度  $\rho$  を変化させることで、ランダムな運動をする無秩序相 (図 3.4(b)(左)) から方向の揃った集団運動が実現する秩序相へと転移することが知られている (図 3.4(b)(中央))。平衡系の 2 次元 XY 模型では、Mermin-Wagner 定理から長距離秩序を持つことができず、準長距離秩序が生じることが知られている [96]。一方、Vicsek 模型は、非平衡系であることから Mermin-Wagner 定理が成立せず、長距離秩序の存在する秩序相が生じる。これは、Vicsek 模型における顕著な特徴である。

図 3.4 (c) は、 $\eta$  を変化させた際の Polar 秩序変数の変化を示したもので、系のサイズが小さい場合には 2 次転移的な連続転移に見えていたものが、系のサイズが大きくなるにつれて不連続な転移になることが見て取れる。実際、Vicsek 模型における相転移は一次転移であることが知られており、気液転移のように、秩序相と無秩序相の間には共存相が存在することが知られている。図 3.4 (d) は、Vicsek 模型の相図を示したものである。ノイズ強度が強い場合には、無秩序相が生じる。一方で、ノイズが弱く密度が高い場合には、粒子の進行方向が揃った秩序相が生じる。この秩序相では、粒子の進行方向は揃っているものの、粒子の分布は一様である。両者の間である共存相では、Vicsek Band と呼ばれる状態が生じることが知られている [6]。図 3.4 (b) の右図は Vicsek Band を示したものである。Vicsek Band は粒子の進行方向に対して垂直方向に生じることが知られている。

Vicsek 模型には、もう一つ特徴的な現象として、Giant Number Fluctuation(GNF) と呼ばれる現象が存在する [5–7]。平衡系では、系の中の部分系における粒子数の揺らぎ  $\Delta n^2 = \langle N^2 \rangle - \langle N \rangle^2 \sim \langle N \rangle$  となる。しかし、Vicsek 模型における粒子数揺らぎは Toner-Tu 方程式に対する解析から  $\Delta n^2 \sim \langle N \rangle^{1.6}$  となることが知られている [5]。図 3.4 (e) は、Vicsek 模型における GNF を示している。無秩序相 (白抜き四角) では、系の揺らぎはべき的な傾向を持たない。しかし、秩序相 (色丸) では、明確な GNF が生じており、 $\Delta n^2 \sim \langle N \rangle^{1.6}$  という理論予測の指数と一致していることがわかる [6]。

この GNF は、Polar Active Matter 特有のものではなく、他の Active Matter 模型でも見られることが知られている。また、その指数は Active Nematic や Active Rods でも  $\Delta n^2 \sim \langle N \rangle^{1.6}$  となることが数値計算から知られている [8–10]。Active Nematic の理論解析から、線形解析の範囲でも GNF が生じることが示されているものの、線形解析の結果では  $\Delta n^2 \sim \langle N \rangle^2$  となっており、指数は数値計算の結果とは一致していない [4]。

### Chiral Active Matter 系

Chiral Active Matter は、これまでの自己駆動粒子系とは異なり、運動の chiral 対称性が破れた自己駆動粒子系の総称である。そのため、Active Rods や Polar Active Matter と同じ性質をもち、その上で自己駆動力の chiral 対称性が破れたような系も存在する。粒子の Chiral 対称性を破ることで、自己駆動力による強い非平衡性と chiral 対称性の破れによって、通常の Active Matter モデルでは生じなかった非平衡現象が生じることが知られている。chiral 対称性の破り

方には、大きく分けて2種類あり、粒子が内部自由度として、スピンを持ち回転している場合 (図 3.5(a)(左)) と自己駆動力が chiral 対称性を破っている場合 (図 3.5(a)(右)) である。つまり、自転する粒子と公転する粒子の2種類である。前者は、粒子そのものの回転であるため、粒子の運動軌道は必ずしも chiral 対称性を破らない。一方で、後者は運動の軌道が chiral 対称性を破っており、自己駆動力は Lorentz 力に類似した力である。しかし、回転と並進の自由度をカップルさせる必要があるため、自転する粒子の数値シミュレーションや実験においては単純な球形ではなく、形状が十字形や四角などの粒子が用いられる [97, 98]。

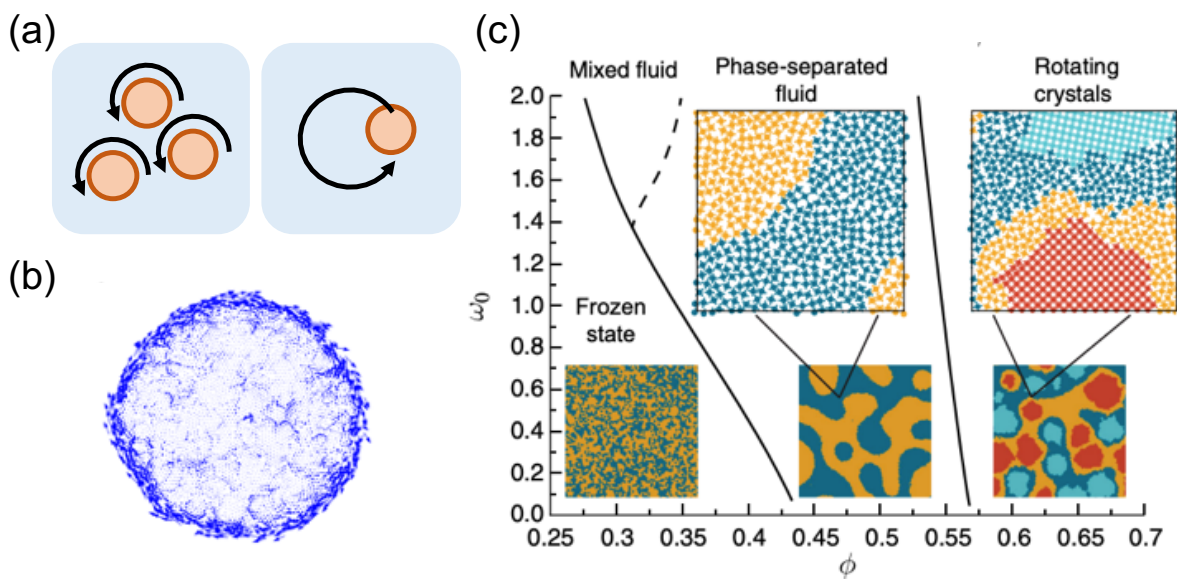


Fig.3.5 (a)Chiral Active Matter 粒子の模式図。粒子が自己駆動力によって自転する場合 (左) と進行方向が円を描く場合 (右)。どちらの粒子も運動の chiral 対称性が破れている。(b) 人工粒子の実験で得られた Chiral Active Matter の変位場 [97]。明らかに系の表面に沿ってエッジ流が生じていることがわかる。(c) 右回りと左回りに自転する粒子で構成された2成分系における数値シミュレーション [98]。粒子間相互作用が働かない場合には、粒子は同じ位置で回転し続けるため、低密度では粒子間接触が存在せず、同じ位置から運動しない吸収状態が生じる。一方で、密度を上げていくと、回転方向の違いによって系が相分離を起こす。さらに密度をあげると、相分離した相の中に回転方向のそろった結晶構造が生じることが報告されている。(b)、(c) はそれぞれ [97, 98] より引用した。

運動の軌道が chiral 対称性を破っているような Active Matter モデルは、次のような運動方程式で記述される。

$$\begin{aligned}
 \dot{\mathbf{r}}_i &= \mu \left[ f_0(\mathbf{r}, t) \mathbf{e}_i + \sum_j \mathbf{f}^{(\text{int})}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i, \phi_i, \phi_j) \right] + \boldsymbol{\xi}(t) \\
 \dot{\phi}_i &= \mu_\phi M + \xi_\phi(t)
 \end{aligned} \tag{3.5}$$

粒子の自己駆動方向に一定のトルク  $M$  が存在することで、進行方向が曲がり、Chiral 対称性を破った運動が実現する。この自己駆動力は Lorentz 力に類似した力となっている。このような粒子がまっすぐ進むことができないという性質は、生物としてはありふれている。例えば、*E. coli* は、鞭毛の回転運動によって壁付近を進む際には、運動が右回りになってしまうことが知られており [99–101]、sperm cells も直線的な運動ではなく、回転軌道を描きながら運動することが知られている [102–104]。また、人間が目隠しをして歩く実験では、人間が歩行する軌道も回転軌道を描くことが知られている [105]。生物系以外にも、実験的には Janus 粒子を L 字型にすることで、運動の回転軌道を実現できる [106]。

一方で、粒子が自転している場合の粒子の運動方程式は、

$$\begin{aligned}
 \dot{\mathbf{r}}_i &= \mu \sum_j \mathbf{f}^{(\text{int})}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i) \\
 \dot{\phi}_i &= \mu_\phi M(\mathbf{r}_i, \phi_i) + \mu_\phi \sum_j g(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i, \phi_i, \phi_j) + \xi_\phi(t)
 \end{aligned} \tag{3.6}$$

と記述される。ここでの  $\phi_i$  は、自己駆動力の強さではなく、粒子自身の回転角であり、並進運動と回転運動をカップルさせるための粒子間相互作用が必要である。ここで示したモデルには、並進の自己駆動力がないため、粒子間相互作用が働かない場合には、粒子は同じ位置に止まり回転し続けることになる。そのため、この系では、系の密度に依存して、吸収状態転移を起こすことが知られている [98]。

図 3.5(b) は、自転する粒子を用いた実験であり、円形の系の縁を添うように edge flow が生じていることがわかる [97]。このようなエッジ流は、実験だけでなく数値計算でも確認されている [107]。chiral 対称性の破れた流体である Chiral Active Fluid は、近年の理論的な解析によって量子 Hall 効果に類似した現象が生じることが知られている [108, 109]。Chiral Active Fluid における Hall 伝導度に対応した量は odd viscosity と呼ばれている。量子 Hall 効果はもちろん通常は量子効果によって生じるものであるが、この量子ホール効果に類似した Odd viscosity は純粋な古典系で生じ、その起源はミクロな chiral 対称性の破れと自己駆動力による強い非平衡性である。量子 Hall 効果は、系のトポロジカルな性質と密接に関連しており、Chiral Active Fluid においても系のトポロジカルな性質との関連が議論されている [51, 108]。

Chiral Active Matter は、自発的な回転運動を持つため、回転運動の方向だけが異なる 2 成分系を考えることができる [98]。図 3.5(c) は、十字形の右と左回りに自転する粒子の 2 成分系における相図である。低密度では、粒子は自発的な並進運動をしないために、粒子間衝突が生じない位置に全ての粒子がたどり着くと、系は吸収状態に入る。さらに密度を上げていくと、粒子間衝突が必ず生じ、系はアクティブ相となる。そのため、密度の変化によって吸収状態転移が生じる。興味深いことに、アクティブ相では、系は右回転する粒子でできた相と左回りする粒子でできた相へと相分離する。このような粒子の回転方向の違いによる相分離は、自転する粒子だけでなく公転する粒子系でも確認されている [31]。さらに系の密度を上げていくと、相

分離した層の中に粒子が結晶秩序を持った Rotating crystal と呼ばれる相が生じる。Rotating crystal は、相分離した各相のなかで粒子が結晶化した状態であり、結晶自体が回転する運動が見られる。

### Scalar Active Matter 系

Scalar Active Matter は、Active Matter モデルの中で最も単純な Active Matter 模型である。Scalar Active Matter は基本的に進行方向を揃えるような効果は持たない。図 3.6(a) は、Scalar Active Matter を模式的に示した絵であり、各粒子が自分自身の持つ自己駆動力にしたがってランダムに運動するモデルである。どのような自己駆動力を持つかによって様々なモデルが提案されているが、ここでは最もよく用いられているモデルである、Active Brownian Particle(ABP) と Active Ornstein-Uhlenbeck Particle(AOUP) について議論する。

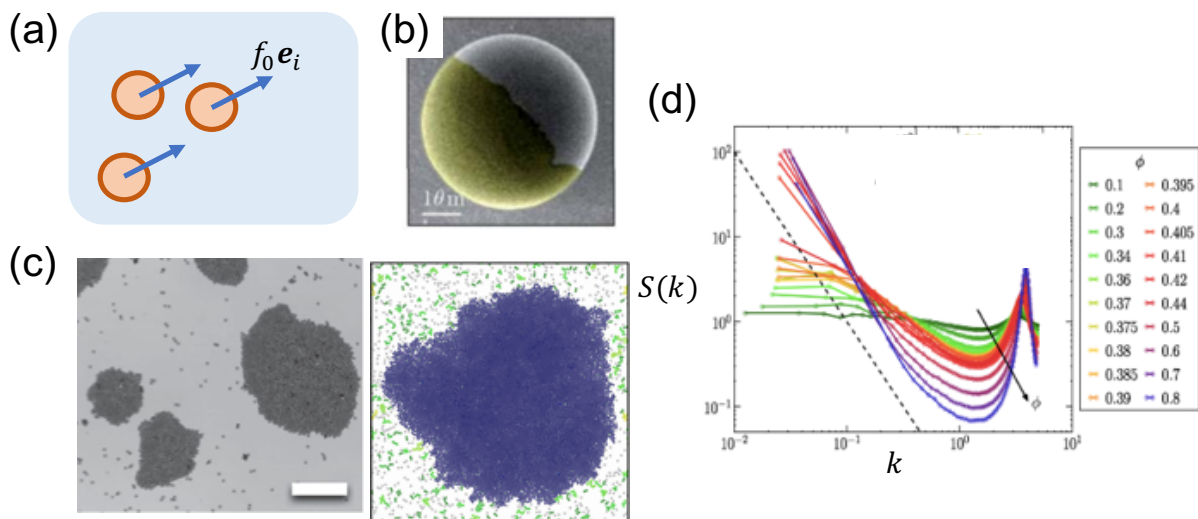


Fig.3.6 (a)Scalar Active Matter 粒子の模式図。粒子の形状は球形であり、特定の方向へと進みたがる自己駆動力を持つ。(b)Scalar Active Matter の運動を再現するために作られた人工粒子である Janus 粒子 [110]。粒子は 2つの面が異なる物質でコーティングされている。2つの表面が異なる化学反応の触媒となることから、局所的に化学ポテンシャル勾配が生じ、それによって自己駆動性が生じる。(c)Janus 粒子を用いた実験 [111] と ABP の数値シミュレーション [112] による MIPS。両者は非常に類似した振る舞いをしていることがわかる。(d)ABP における静的構造因子  $S(k)$  の振る舞い [112]。密度  $\phi = 0.4$  より大きい場合には MIPS が生じ、長距離の相関が発達する。(b)(c, 左図) はそれぞれ [110, 111] より引用した。また、(c, 右図)、(d) は [112] より引用した。



Active Brownian Particle (ABP) の運動方程式は次のように書くことができる [112, 113]。

$$\begin{aligned}\dot{\mathbf{r}}_i &= \mu \left[ f_0(\mathbf{r}, t) \mathbf{e}_i + \sum_j \mathbf{f}^{(\text{int})}(\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i) \right] + \boldsymbol{\xi}(t) \\ \dot{\phi}_i &= \xi_\phi(t)\end{aligned}\tag{3.7}$$

この運動方程式は、明らかにこれまでの Active Matter 模型の流れをくみ、自己駆動力を最も単純な形で表した模型である。自己駆動力は、回転ブラウン運動によって方向を変える。自己駆動力の持続時間は  $\tau_p = 1/D_r$  であるため、自己駆動力は  $\tau_p$  の間同じ方向を向いている。これは、自己駆動力が有限の記憶時間を持つ Non-Markov ノイズであることを示している。実際、簡単に示すことができるように、ABP 模型の自己駆動力の相関は、

$$\langle \mathbf{f}_{\alpha i}^{\text{act}}(t) \mathbf{f}_{\beta j}^{\text{act}}(t') \rangle = \frac{v_0^2}{2} e^{-\frac{|t-t'|}{\tau_p}} \delta_{ij} \delta_{\alpha\beta}\tag{3.8}$$

と書くことができる。ここで、 $i, j$  は粒子番号に関する添字であり、 $\alpha, \beta$  は空間自由度に関する添字である。ABP は、指数型の相関を持つ Non-Markov モデルということもできる。ABP の自己駆動力は、2 時刻相関だけでなく、より多時刻の相関も持つ。

次に、Active Ornstein-Uhlenbeck particle (AOUP) を説明する [114]。AOUP 模型は ABP 模型を単純化したモデルである。AOUP は、ABP の自己駆動力の相関が指数型であることに着目して、指数型の相関を示す最も単純な確率過程である、Ornstein-Uhlenbeck 過程で自己駆動力を記述したモデルである。そのため、AOUP の自己駆動力が従う運動方程式は、

$$\tau_p \dot{\mathbf{f}}_{\alpha i}^{\text{act}} = -\mathbf{f}_{\alpha i}^{\text{act}} + \boldsymbol{\eta}_{\alpha i}\tag{3.9}$$

と書くことができる。ここで、 $\boldsymbol{\eta}_{\alpha i}$  は白色ガウスノイズである。 $\tau_p$  はノイズの記憶時間であり、ABP と同様に  $\tau_p$  の間ノイズは同じ方向に力が働く。 $\mathbf{f}_{\alpha i}^{\text{act}}$  は式 (3.8) と同じ相関を持つ。AOUP は、バクテリア浴中のコロイド 1 粒子の運動をよく記述することが知られている [115, 116]。

このような単純な自己駆動粒子系は球形 Janus 粒子のダイナミクスを再現することが知られている。図 3.6 (b) には、実験で作成された Janus 粒子を示している。この Janus 粒子は、粒子の両側面をそれぞれ別の触媒でコーティングした粒子であり、粒子の両側面がそれぞれ異なる化学反応の触媒となることで、粒子の周りに局所的な化学ポテンシャル勾配をうみ、それが自己駆動性の起源となる。局所的な化学反応を利用する以外にも、様々な方法で、自己駆動性を生み出す系が提案されており、Scalar Active Matter の単体及び、集団的運動の実験に用いられている [110, 111]。

Scalar Active Matter で生じる現象の中で最も有名な現象が Motility Induced Phase Separation (MIPS) である [111–114, 117, 118]。MIPS は、粒子間に斥力相互作用しか存在しない場合にも、平衡系における気液相分離に類似した相分離が生じる現象である [112–114, 119, 120]。MIPS は Janus 粒子を用いた実験 [111, 117] や *Myxococcus xanthus* を用いた実験 [121] でも観

測されている。図 3.6 (c) は実験 (左) と数値シミュレーション (右) で実際に観測された MIPS である。両者の結果は非常に類似していることがわかる。

MIPS が生じる原因は、直感的には次のように説明されている。自己駆動粒子は、 $\tau_p$  の間同じ方向へと進もうとするため、2つの粒子が衝突してもすぐには離れず、一定時間衝突した状態を保つ。そのため、 $\tau_p$  が長く、比較的密度が高い場合には、衝突している粒子の後ろにさらに新しい粒子が衝突することが可能である。このような衝突が複数回起きると、最初に衝突していた粒子は外に逃げ出すことができなくなり、クラスターへと成長する。クラスターが形成され表面が広がると、さらに粒子がクラスターに向かって衝突する確率が広がるため、クラスター成長が促され、結果として、相分離が生じることになる。このクラスター成長はクラスターの外の密度が低下し、ある時間間隔の間にクラスターへと衝突してくる確率とクラスターから逃げ出す確率が一致するまで続く。

MIPS は、通常的气液相転移と類似した性質を持つことが知られている。実際、臨界点近傍では、図 3.6(d) に示すように、平衡的气液相分離と同様の Ornstein-Zernike 型の密度揺らぎの増大が報告されている [112]。相転移の臨界性は、AOUP モデル [122] や Active lattice モデル [120, 123] では、イジング普遍性クラスであると報告されているが、ABP 模型では、イジング普遍性クラスとは異なるという結果が報告されており [124]、Scalar Active Matter の相分離がイジング普遍性クラスに属するかは完全に決着していない。相分離した後のクラスター表面の性質も通常相分離と同様に Porod 則に従うことが報告されている [125]。

しかし、MIPS の全ての性質が平衡相分離と一致しているわけではない。MIPS の直感的な議論からもわかるように、クラスター表面にいる粒子が、一定時間自己駆動力によってクラスター中心の方向へと向かおうとする効果によって生じている。そのため、表面では、常にクラスターを圧縮しようとする力が働いており、クラスターの表面張力が負になることが予想される。実際、数値シミュレーションによって MIPS では、クラスターの表面張力が負になることが観測されている [126–128]。一方、平衡系では、表面張力が負というのはいり得ない。なぜなら、表面張力が負ならばクラスターを小さくする方が自由エネルギー的に得であり、そもそもクラスター形成がおき得ないからである。また、より大規模な数値計算や連続場モデルの解析では、MIPS の液相の中に気相の泡が生じた状態が安定状態として生じることが報告されている [129–131]。通常相分離ではこのような相は安定ではないが、負の表面張力を持つならば、このような泡を潰すことがエネルギー的に得ではないため、安定状態として生じて不思議ではない。このように、比較的小規模の数値計算においては、一見すると平衡相分離と類似した結果が多く報告されていたが、大規模な数値計算では通常的气液相分離とは異なる振る舞いも確認されている。

## 細胞集団模型としての Scalar Active Matter

Scalar Active Matter 模型は、球形粒子の運動を記述するだけでなく、表皮細胞集団を記述することもできる。このような細胞集団を記述するために考案された模型が Self Propelled Voronoi (SPV) 模型である [132]。細胞集団における各細胞の形状は、ボロノイ分割によって得られたパターンに非常に類似していることが知られている [133]。そこで、SPV 模型では、各粒子をボロノイセルの中心と考え、各ボロノイセルの面積  $A(\mathbf{r}_i)$  と cell 表面の長さ  $P(\mathbf{r}_i)$  を特定の値に保とうとするポテンシャルエネルギー

$$E = \sum_i \left[ K_A (A(\mathbf{r}_i) - A_0)^2 + K_P (P(\mathbf{r}_i) - P_0)^2 \right] \quad (3.10)$$

を考える。ここで、 $K_A, K_P$  は、面積と表面の長さを保とうとする力の強さである。この時、粒子はこのポテンシャルエネルギーで相互作用する運動方程式 (3.7) に従う。ボロノイセルを用いて計算するため、系は隙間なく敷き詰められており、系の充填率は常に  $\varphi = 1$  である。この系における重要なパラメータは、自己駆動力の強さ  $v_0$  とボロノイセルの形状の性質を表現する無次元パラメータ  $p_0 = P_0 / \sqrt{A_0}$  である。この  $v_0$  と  $p_0$  の相図を示したのが、図 3.7(a) である。 $p_0$  が小さい時には、ボロノイセルの面積を表面に比べて大きくしようとするため、セルは細長くなることができず、形状はより正多角形の形に近い形状を取らざるを得なくなるため、粒子が移動できない Solid 相が生じる。一方で、 $p_0$  が大きい時には、粒子は比較的容易に形状を変えることができるため流動相が生じている。青線は Solid-Fluid 転移が起こるパラメータを示している。 $v_0 = 0$  の時には、粒子は自発的に運動しない。この場合の SPV 模型は Vertex 模型と呼ばれており、 $p \approx 3.81$  で相転移が生じることが知られている [136]。このような Solid-Fluid 転移は実際の細胞でも生じることが知られている [137, 138]。図 3.7(a) の右図は、粒子配置と粒子の軌道を示しており、粒子配置の変化を目でみて明確に捉えることは難しいが、粒子軌道は明らかにトラップされており、粒子が詰まってしまい運動できなくなっていることがわかる。

SPV 模型の動的な性質は、過冷却液体の動的な性質と類似していることが知られている。SPV 模型の流動状態を示したものが図 3.7(b) の右図であるが、これは、過冷却液体で見られる動的不均一性に振る舞いが似ている。動的不均一性以外にも、平均二乗変位  $\langle \Delta \mathbf{r}^2(t) \rangle$  や中間散乱関数  $F_s(k, t)$  も通常の過冷却液体に類似した緩和を示すことが知られている。図 3.7(b) の左図は Madin-Darby Canine Kidney (MDCK) cells の実験で得られた変位場 [134] であり、数値計算によって得られた結果 [132] と非常に類似している。粒子の速度の空間相関を計算した結果が図 3.7(c) である。ここでは SPV 模型だけでなく高密度の ABP 模型や粒子に分裂する性質を与えたモデルなどの数値計算の結果と MDCK の実験で得られた結果を示しており、それらの結果がよく一致していることがわかる [135]。

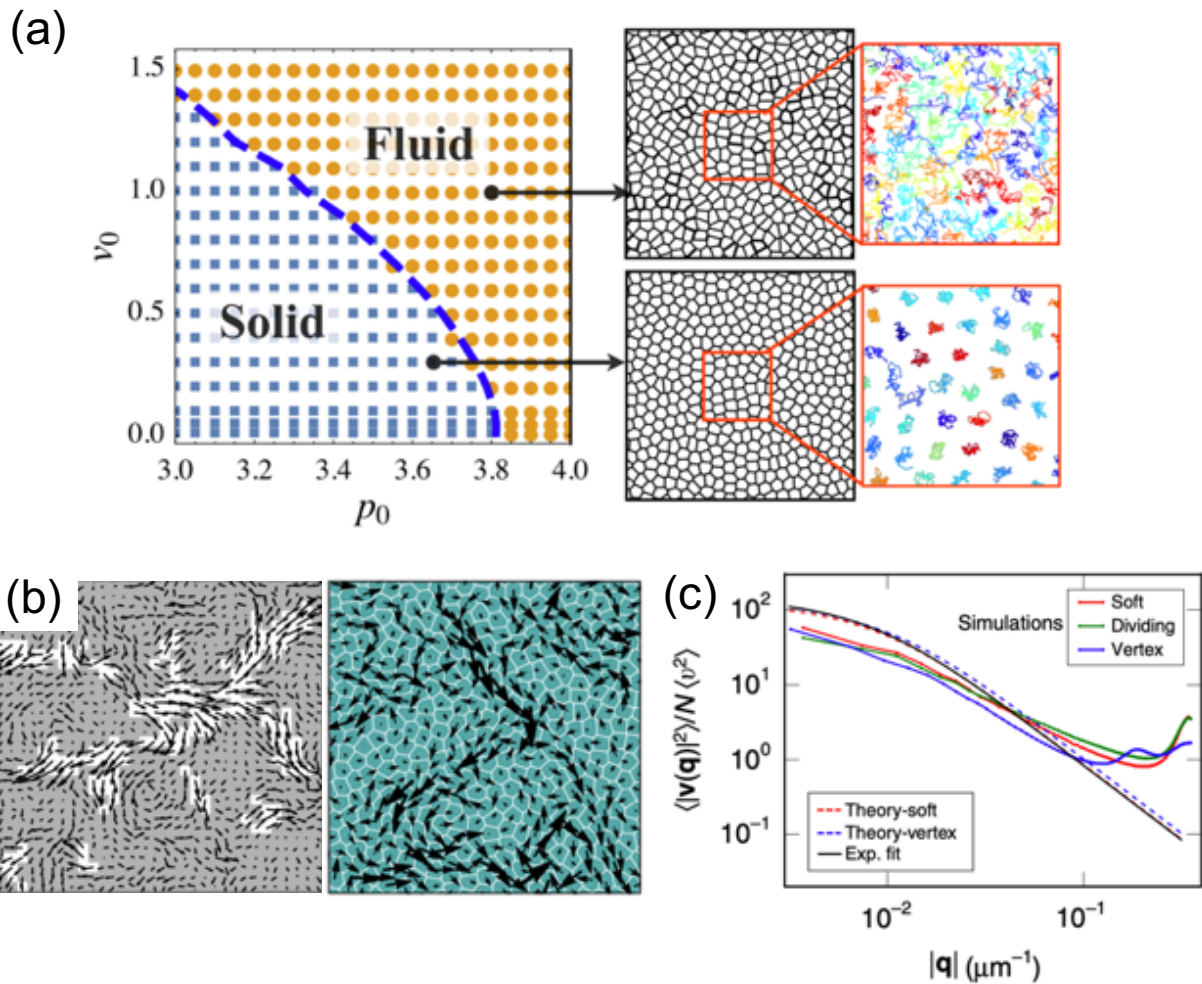


Fig.3.7 (a)Self Propelled Voronoi 模型における相図 [132]。自己駆動力の強さ  $v_0$  とボロノイセルの形状の性質を表現する無次元パラメータ  $p_0$  をコントロールすることによって Solid 相と Fluid 相が生じる。右図は系のセルの配置とボロノイ中心の軌道を示したものである。Solid 相では、粒子は移動できず同じ位置に止まり、Fluid 相では大きく移動していることがわかる。(b)Madin-Darby Canine Kidney(MDCK) cells の実験で得られた変位場 [134](左)であり、数値計算によって得られた結果 [132](右)である。両者の結果は類似しており、数値計算が実験を再現していることがわかる。また、この粒子の移動の仕方は過冷却液体における動的不均一性に類似している。(c)MDCK の実験で得られた速度の空間相関と ABP 模型や SPV 模型の結果の比較 [135]。どのモデルでも、速度の空間相関は実験をよく再現していることがわかる。(a),(b 右図) は [132] より引用した。(b 左図),(d) はそれぞれ [134, 135] より引用した。

### 3.2.3 生物系における Hyperuniformity

これまでの節では、様々な Active Matter 模型における数値計算や理論研究の結果と実験の結果について紹介してきた。この節では、Active Matter を含む様々な生物系や生物モデルにおいて報告されてきた Hyperuniformity について説明する。Hyperuniformity は、Active Matter 模型では、ABP 模型における高密度かつ自己駆動力が弱い領域 [113]、Active Vertex 模型の転移点 [40, 139]、公転運動する Chiral Active Matter [31] で報告されてきた。また、生物集団や生体内システムを記述する模型としては、化学走化性をもつ生物集団の流体模型 [42] や、免疫システムの理論模型 [140] で報告されてきた。実験的にも、回転運動する Marine Algae の実験 [29] や鳥の目の視細胞分布 [25] において観測されている。このように、自己駆動性や性質の違う様々な生物系において、Hyperuniformity は報告されており、生物系においても重要な役割を果たしている可能性がある。

ここでは、特に4つの系における Hyperuniformity について議論する。ショウジョウバエ等の複眼は、結晶秩序を持っていることが知られている [141]。一方で、鳥の目の視細胞の分布は乱雑であることが知られていた。鳥の目には、紫、青、緑、赤そして輝度をとるための5種類の視細胞が存在し、そのどれもが乱雑な分布をしている。しかし、近年の研究で、鳥の目の視細胞分布は Hyperuniform であることが明らかになった [25]。図 3.8(a) は、鳥の目の視細胞分布における  $S(k)$  を示したものである。非常に興味深いのは、それぞれの色をとるための視細胞の分布も全て Hyperuniform になっており、そのすべての視細胞を合わせて計算した分布も Hyperuniform になっているのである。この秩序は *multi-hyperuniformity* として知られている。現在、実験で観測されている multi-hyperuniformity は鳥の目の視細胞分布だけである。鳥の目における Hyperuniform な視細胞分布は、複眼における結晶秩序と同様に進化の過程で光を受け取るのに最適な形へと進化した結果である可能性を示唆している。

図 3.8(b) は、公転する Chiral Active Particle における  $S(k)$  を示している [31]。パラメータ  $R$  は、自己駆動力から計算される公転半径である。公転半径が小さく密度が低い場合には、粒子は他の粒子と衝突しない位置を見つけ同じ位置で回転し続けことになる。一方、回転半径を大きくしていくと、粒子はほとんどまっすぐ進むような自己駆動力を持つことになり、通常の ABP のダイナミクスに近づくことになり、MIPS などの通常の ABP で見られている現象を示すようになる。そのため、回転半径が大きい場合には通常の MIPS で見られているような  $S(k) \propto k^{-2}$  という発散傾向が見られる。この系は回転半径  $R$  が小さい時には、吸収状態にあり、 $R$  が大きくなると流動状態になることから吸収状態転移を起こす系であることが知られている。興味深いことに、回転半径が小さい場合には、流動相であっても揺らぎが抑えられ Hyperuniformity となることが知られている。類似した現象は同じく吸収状態転移を示す Random Organization 模型でも見られている [36]。この流動相における  $S(k) \propto k^2$

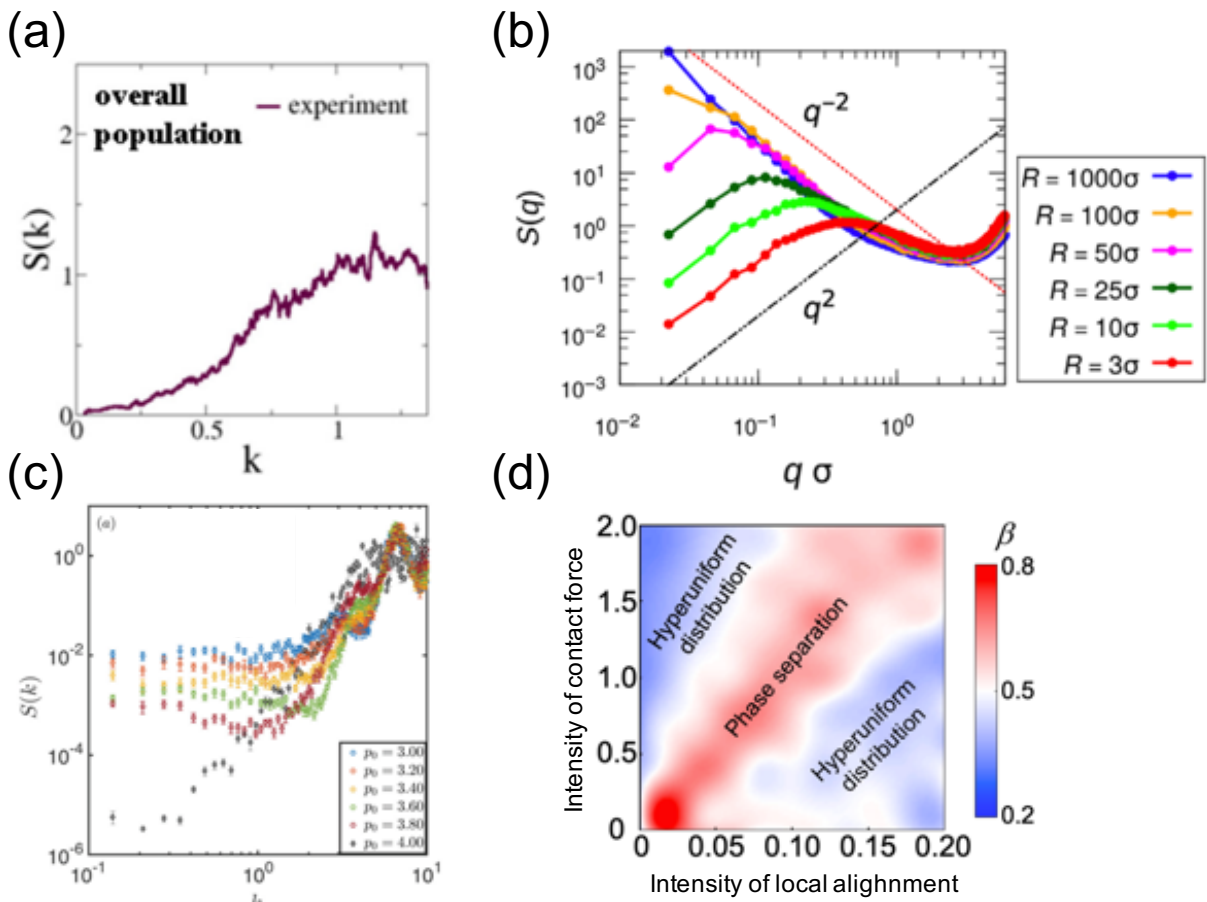


Fig.3.8 (a) 実験で得られた鳥の目の視細胞分布の  $S(k)$  [25]。 (b) 公転運動をする Chiral Active Matter 系における  $S(k)$  [31]。公転半径  $R$  が小さくなるにしたがって Hyperuniformity が生じる。 (c) Cell Vertex 模型における  $S(k)$  [40]。Fluid 相に入ると Hyperuniformity が生じる。 (d) SPV 模型に進行方向を揃える効果と近傍セルの方向へ移動をしないようにする効果を入れた Active Matter 模型における相図 [41]。Hyperuniformity と Giant Number Fluctuation を示す。(a)~(d) はそれぞれ [25, 31, 40, 41] より引用した。

の Hyperuniformity は、2.7 節で説明した非平衡流体で起きる Hyperuniformity と対応していることが知られている [31]。公転ではなく自転する Chiral Active Matter においても同様の Hyperuniformity が生じることが知られている [50]。

図 3.8(c) は、3.2.2 小節で説明した SPV 模型の  $v_0 = 0$  バージョンである Active vertex 模型の  $S(k)$  であり、流動相で Hyperuniformity が生じることが知られている [40, 139]。  $p_0 = 4$  の際に、強い Hyperuniformity が生じていることがわかる。Active Vertex 模型は  $p_c \approx 3.81$  で Solid-Fluid 相転移が起きることが知られている [136]。数密度揺らぎ  $\langle \delta^2 N \rangle$  は、転移点  $p_c$  以下では、有限の長さスケールまでしか Hyperuniformity は存在しない、その Hyperuniformity

が存在できる長さスケールは、転移点  $p_c$  に向かって発散していることが確認されている。そして、Fluid 相では系は常に Hyperuniformity が生じていることが報告されている。この系の Solid-Fluid 転移は Jamming 転移と似ており、転移点近傍で Hyperuniformity が見られる点も非常に類似している。しかし、Jamming 転移点直上の Hyperuniformity は、転移点直上であっても無限遠まで Hyperuniformity が続くわけではない [19, 20]。

図 3.8(d) は、SPV 模型に Polar Active Matter のような進行方向を揃える効果とコンタクトしているセルの方向に進むのを避ける接触力を追加したモデルの数値計算によって得られた相図である [41]。相図の軸は接触力の強さと方向を揃える力の強さで表しており、ここでは  $\langle \delta^2 N \rangle \sim R^\beta$  の指数  $\beta$  を用いて色付けをしている。 $\beta = 0.5$  が通常の平衡系における揺らぎの性質である。興味深いことに、接触力の強さと方向を揃える力の強さがちょうどバランスしている時には、GNF が起きるが、接触力もしくは、方向を揃える力が強い場合には、揺らぎが抑えられて Hyperuniformity を示すことがわかる。そのために、この相図は非常に対称的になっている。この模型では秩序相の深い領域で GNF を示す Vicsek 模型とは異なり、この模型では方向を揃える力が非常に強い場合にも Hyperuniformity が生じる。

以上の例で示したように、生物モデルや Active Matter ではいくつかの模型で Hyperuniformity が確認されており、興味深いことにその多くが非平衡流体状態で Hyperuniformity を示す。これは、2.7 節で説明した非平衡流体模型のように、揺動散逸定理の破れによって Hyperuniformity が生じている可能性を示唆している。一方で、Scalar Active Matter においては、高密度の場合にしか報告されておらず、自己駆動力の弱い場合にしか観測されていない [113] ことから、この Hyperuniformity は非平衡性によって引き起こされているのか、Jamming 転移に類似した性質が引き起こしているのかは明かではない。低密度の Scalar Active Matter 系では様々な研究がなされているが、Hyperuniformity が生じることは報告されたことがなく、非平衡流体ならば Hyperuniformity が生じうるだろうという予想とはやや異なる。

### 3.3 AOUP 模型における揺動散逸定理の破れ

この節では、AOUP 模型における揺動散逸定理の破れについて議論する。AOUP 模型の運動方程式は、

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{r}}_i = \mu \mathbf{F}_i + \mathbf{f}_i^{\text{act}} \\ \tau_p \dot{\mathbf{f}}_i^{\text{act}} = -\mathbf{f}_i^{\text{act}} + \sqrt{2D} \boldsymbol{\xi}_i. \end{cases} \quad (3.11)$$

である。ここで、 $\mathbf{r}_i$  は  $i$  番目の粒子の位置であり、 $\mu$  は移動度、 $\mathbf{F}_i$  は粒子間相互作用である。 $\mathbf{f}_i^{\text{act}}$  は自己駆動力であり、2 つ目の式から Ornstein-Uhlenbeck 過程にしたがっていることがわかる。 $\boldsymbol{\xi}_i(t')$  は白色ガウスノイズであり、 $D$  は自己駆動力におけるノイズの強度である。なので、 $\mathbf{f}_i^{\text{act}}$  は有限の記憶時間  $\tau_p$  を持つ Non-Markov ノイズと考えることもできる。実際、自己

駆動力の相関は、

$$\langle f_i^{\text{act}}(t) f_j^{\text{act}}(t') \rangle = \frac{2D}{\tau_p} e^{-\frac{|t-t'|}{\tau_p}} \quad (3.12)$$

という形であり、有限の相関時間を持つノイズであることがわかる。

平衡系であれば Non-Markov ノイズの場合には、次の揺動散逸定理に従うことが知られている [142, 143]。

$$\mathcal{M}(t-t') = \frac{1}{k_B T} \mathcal{K}(t-t') \quad (3.13)$$

ここで、 $\mathcal{M}(t-t')$  は応答関数であり、 $\mathcal{K}(t-t')$  はノイズの相関関数である\*2。両者をメモリーカーネルと呼ぶこともある。例えば、平衡の Underdamped Langevin 方程式

$$\begin{cases} \dot{x} = v \\ m\dot{v} = -\zeta v + F + \sqrt{2\zeta k_B T} \xi \end{cases} \quad (3.14)$$

を考える。 $m$  は、粒子の質量、 $\zeta$  は抵抗係数、 $T$  は系の温度である。ここで  $\xi$  は、粒子にかかるランダム力を示し、白色ガウスノイズであるとする。この Underdamped Langevin 方程式を  $v$  について積分し、形式的に  $v$  について解いた形にすると、

$$\begin{cases} \dot{x} = \frac{1}{m} \int_{-\infty}^t e^{-\frac{t-s}{\tau}} F(s) + \eta(t) \\ \langle \eta(t) \eta(s) \rangle = \frac{k_B T}{m} e^{-\frac{|t-s|}{\tau}} \end{cases} \quad (3.15)$$

という式を得る。ここで  $\tau = m/\zeta$  は、速度の緩和時間である。このような式の形を一般化 Langevin 方程式と呼ぶ [142]。この平衡の一般化 Langevin 方程式では、確かに応答関数とノイズの相関関数は両者が指数形の相関を持っており、確かに式 (3.13) を満たしていることがわかる。また、Underdamped Langevin 方程式におけるノイズの相関が式 (3.12) と同じ指数形であることがわかる。

さて、AOUP はその自己駆動力によって揺動散逸定理式 (3.13) を破っているはずである。AOUP において、どのように揺動散逸定理が破れているか考えるために、AOUP を一般化 Langevin 方程式の形に書き直す。AOUP を形式的に一般化 Langevin 方程式の形で書いたのが次の式である。

$$\begin{cases} \dot{r}_i = \mu \int \delta(t-t') F_i(t') dt' + f_i^{\text{act}}(t) \\ \langle f_i^{\text{act}}(t) f_j^{\text{act}}(t') \rangle = \frac{2D}{\tau_p} e^{-\frac{|t-t'|}{\tau_p}} \end{cases} \quad (3.16)$$

この式の形は、平衡の一般化 Langevin 方程式に似ている。特に、ノイズの相関関数は  $\mathcal{K}(t-t') \propto \exp(-|t-t'|/\tau_p)$  となっており、これは両者で一致している。一方で、AOUP 模型の場合には、応答関数が  $\mathcal{M}(t-t') \propto \delta(t-t')$  となっており、相関時間を持たない。 $\tau_p \neq 0$  の場合には、ノイズの相関関数は有限の記憶時間を持つので、応答関数とノイズの相関関数の違いが揺動散逸定理

\*2 Non-Markov ノイズにおける揺動散逸定理は、十分条件である。



の破れを引き起こし、AOUP 模型は非平衡模型となる。揺動散逸定理が成立するのは、ノイズの相関も記憶時間を持たない  $\tau_p \rightarrow 0$  の場合のみである。以上から、AOUP 模型は揺動散逸定理における、揺動のメモリーカーネルが有限の記憶時間をもつ一方で、散逸のメモリーカーネルが記憶時間を持たないモデルである。

### 3.4 Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle 模型

この節では、Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle(GAOUP) 模型について説明する [53]。GAOUP 模型は AOUP 模型を拡張し、揺動散逸定理の破れをコントロールできるようにしたモデルである。前節で見たように、AOUP 模型では応答関数はデルタ関数であり、ノイズの相関関数が指数型であるため、揺動散逸定理が破れていた。しかし、揺動散逸定理が破れるためには、応答関数がデルタ関数である必要はなく、応答関数が記憶時間を持つ場合にも、両者の記憶時間が一致しなければ良い。

Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle(GAOUP) 模型は、AOUP 模型の応答関数に有限の記憶時間  $\tau_m$  を与えたモデルである。GAOUP 模型の運動方程式は、

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{r}}_i = \int_{-\infty}^t \frac{\mu}{\tau_m} e^{-\frac{t-s}{\tau_m}} \mathbf{F}_i(s) ds + \mathbf{f}_i^{\text{act}}(t) \\ \langle \mathbf{f}_i^{\text{act}}(t) \mathbf{f}_j^{\text{act}}(t') \rangle = \frac{2D}{\tau_p} e^{-\frac{|t-t'|}{\tau_p}} \end{cases} \quad (3.17)$$

となる。GAOUP 模型において、自己駆動力は AOUP 模型と同じ記憶時間  $\tau_p$  を持つ指数型の相関を持つノイズである。一方で、GAOUP 模型では応答関数も有限の記憶時間  $\tau_m$  を持つ指数型のメモリーカーネルとなっている。ここで、 $\tau_p$  は自己駆動力が同じ方向をむき続ける時間を示しており、 $\tau_m$  は粒子が周りの粒子から受けた相互作用を記憶する時間を示している。

GAOUP 模型は、AOUP 模型に記憶時間  $\tau_m$  を追加したモデルであり、GAOUP が表現できるパラメータ領域は、AOUP に比べて広がっている。図 3.9(a) は、GAOUP 模型におけるパラメータ空間を示している。このパラメータ空間には、先行研究でよく知られた線が2つ存在する。1つ目が  $\tau_p = \tau_m$  の場合である。この場合には、揺動散逸定理が成立し、(3.17) は平衡の Underdamped Langevin 方程式になる。2つ目が  $\tau_m \rightarrow 0$  の場合であり、この場合には GAOUP 模型の応答関数はデルタ関数になるため、GAOUP 模型は AOUP 模型となる。一方で、この2つ以外の領域は全く未知の非平衡領域である。また、GAOUP 模型では、 $\tau_p = \tau_m$  から出発し、パラメータを変化させていくことで、Active Matter 模型に連続的に変化することが可能である。この意味で、GAOUP 模型は平衡の Underdamped Langevin 方程式と Active Matter 模型を連続的につなぐ模型である。また、GAOUP 模型では、 $\tau_p$  と  $\tau_m$  のバランスによって揺動散逸定理の破れ度合いを調整することができるモデルとなっている。本研究では、GAOUP 模型は、2つの指数型のメモリーカーネルを持つ模型として定義した。しかし、2つのメモリーカーネルの不一致が揺動散逸定理の破れの起源であるため、メモリーカーネルを指数型ではな

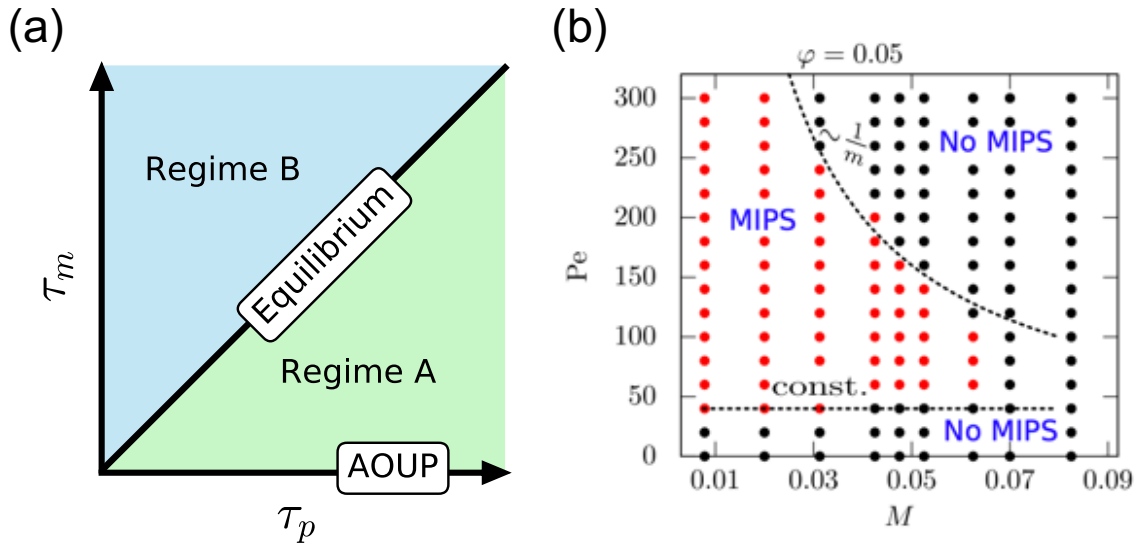


Fig.3.9 (a)GAOUP 模型におけるパラメータ空間。 $\tau_m = \tau_p$  では、GAOUP 模型は平衡の Underdamped Langevin 方程式となり、 $\tau_m \rightarrow 0$  の極限では GAOUP 模型は Active Matter である AOUP 模型と一致する。それ以外の領域は先行研究で提案されたモデルでは表現できない非平衡領域である。(b) 慣性項を持つ ABP 模型での相図 [144]。慣性項を持つ ABP 模型では、慣性項の大きさ  $M$  が強くなると自己駆動力の強さ  $Pe$  が大きい領域で MIPS が消える振る舞いが報告されている。(b) は [144] より引用した。

く、べき関数といった異なる関数系の場合にも拡張することもできる。

次に、先行研究で提案されている模型と GAOUP 模型の関連性について議論する。まず初めに、速度とノイズ相関に記憶時間の異なる有限のメモリーが存在するモデルが提案されている [145–147]。ここでは、Berthier *et al.* で提案されたモデル [145]

$$\dot{x} + \int \gamma(t-s)\dot{x}(s)ds = F + f^{\text{act}} \quad (3.18)$$

について考える。 $f^{\text{act}}$  は AOUP 模型と同じ自己駆動力である。先行研究では並進の熱ノイズを持つが、ここで我々は並進の熱ノイズは無視している。また、記述を簡単にするために、畳み込み積分を  $\int \gamma(t-s)\dot{x}(s)ds = \gamma * \dot{x}$  と書くようにし、 $\Gamma = \delta(t-s) + \gamma(t-s)$  と定義する。すると上記の運動方程式は、

$$\Gamma * \dot{x} = F + f^{\text{act}} \quad (3.19)$$

と書くことができる。もし、 $\Gamma^{-1}(t-s) * \Gamma(s-t') = \delta(t-s)$  を満たすような  $\Gamma^{-1}$  が存在するならば、この運動方程式は

$$\dot{x} = \Gamma^{-1} * F + \Gamma^{-1} * f^{\text{act}} \quad (3.20)$$

と書き換えることができる。ここで、自己駆動力の項は Non-Markov のノイズにさらにメモリーカーネルがついた形になっている。この形は GAOUP 模型とは異なる。また、 $\gamma$  が指数型

であっても、 $\Gamma$  はデルタ関数を含むので、その逆関数は単純な指数型にはならないことが予想され、彼らのメモリーカーネルは GAoup とメモリーカーネルと一致しない。

また、他の関連するモデルとして、慣性項を持つ Scalar Active Matter モデルがある。これまでの先行研究の多くは、並進の運動方程式は Overdamped 型で慣性項の効果を無視したモデルが用いられてきた。GAoup 模型は、 $\tau_p = \tau_m$  で平衡の Underdamped Langevin 方程式になることからわかるように、有限の  $\tau_m$  を持つことは一種の慣性の寄与を粒子に与えることに対応する。このように GAoup 模型はある種 Aoup 模型に慣性の効果を与えた拡張になっている。しかし、非平衡系において慣性項の与え方は一意ではない。一方で、近年の研究で、次のような慣性項付きの Active Matter

$$m\dot{\mathbf{v}}_i = -\zeta\mathbf{v}_i + \mathbf{F}_i + \mathbf{f}_i^{\text{act}} \quad (3.21)$$

が注目されている [144, 148–150]。先行研究で報告されたこの模型の相図が図 3.9(b) である。このモデルは、ABP モデルや Aoup モデルに単純に慣性項をつけたモデルであるものの、慣性の効果が大きく、自己駆動力が大きい場合には MIPS が消える振る舞いが生じることが知られている [144]。また、平衡相分離では、粒子がどのようなダイナミクスに従っているかに関係なく、クラスター成長の指数などは決まるが、MIPS では、通常の ABP と慣性項を取り込んだ ABP では、MIPS の成長の指数が異なることが報告されている [144]。この模型も、形式的に  $\mathbf{v}_i$  について解くことで、上記で説明した模型と同じ形のモデルが得られる。つまり、Non-Markov の自己駆動力にさらにメモリーカーネルがついた形となる。このように GAoup 模型と同様に複数のメモリーカーネルを持つモデルは提案されているものの、GAoup のように直接的に揺動散逸定理の破れ度合いを制御できるモデルは提案されていなかった。では、GAoup 模型では、先行研究では見られなかった特有の非平衡現象は生じうるのだろうか？

### 3.5 数値シミュレーション設定

GAoup 模型においては、どのような非平衡現象が生じるのかを調べるために、我々は数値シミュレーションを行った。本節では、本研究で用いた数値シミュレーション設定について議論する。

我々は、2次元単成分系を用いた。明言しない場合には、粒子数が  $N = 10000$  で、数密度  $\rho = N/L^2 = 0.5$  の系を用いている。数値計算においては、長さのスケールを粒子直径  $\sigma$  にとり、時間のスケールを自己駆動力によって  $1\sigma$  進む程度の時間スケールである  $\tau = \sigma^2/D$  にとった。粒子間相互作用には、Weeks-Chandler-Andersen (WCA) ポテンシャルを主に用いた [151]。

$$U_{\text{WCA}}(r_{ij}) = 4\epsilon \left[ \left( \frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 + \frac{1}{4} \right] \theta(2^{1/6}\sigma - r_{ij}) \quad (3.22)$$

ここで、 $r_{ij}$  は粒子  $i$  と  $j$  の間の距離であり、 $\theta(r)$  は Heviside の階段関数である。WCA ポテンシャルは、Lennard-Jones ポテンシャルの斥力部分のみを切り取ったようなポテンシャルであり、粒子間には強い斥力が働くため剛体球的なポテンシャルとして Active Matter の数値シミュレーションでよく用いられている。

この系の無次元化パラメータは、無次元化されたノイズの記憶時間  $\tilde{\tau}_p = \frac{\tau_p}{\tau}$  と、無次元された応答関数の記憶時間  $\tilde{\tau}_m = \frac{\tau_m}{\tau}$ 、そして、ポテンシャルエネルギーと自己駆動力のノイズ強度の比である  $\tilde{\varepsilon} = \frac{\mu\varepsilon}{D}$  がある。我々は、WCA ポテンシャルを剛体球的にするために、主に  $\tilde{\varepsilon} = 40$  に固定して数値計算を行った。以降では、無次元化パラメータのみを用いるため、あらわに無次元化を示すチルダは書かない。本研究では、各物理量の計算に際しては、1000 個のサンプルを用いてアンサンブル平均を行っている。

積分形式で書かれた GAoup 模型 (式 (3.17)) は、次のような形で書き換えることができる。

$$\begin{cases} \dot{\mathbf{r}}_i = \mathbf{f}_i + \mathbf{f}_i^{\text{act}} \\ \dot{\mathbf{f}}_i = -\tau_m \mathbf{f}_i + \frac{1}{m} \mathbf{F}_i \\ \dot{\mathbf{f}}_i^{\text{act}} = -\tau_p \mathbf{f}_i^{\text{act}} + \sqrt{2D} \boldsymbol{\xi} \end{cases} \quad (3.23)$$

ここで、 $\boldsymbol{\xi}$  は白色ガウスノイズである。本件研究では、この式をオイラー法を用いて差分化し、数値シミュレーションを行った。数値計算に用いた時間刻みは  $dt = 10^{-5}$  と設定し、周期的境界条件で計算を行った。

## 3.6 GAoup 系における密度揺らぎ

本節では、GAoup モデルの各パラメータ領域における非平衡液体の性質を明らかにするために、 $\tau_m$  と  $\tau_p$  を変化させて、GAoup モデルにおける密度揺らぎの解析を行う。密度揺らぎの解析を行うために各パラメータ領域における静的構造因子  $S(k)$  を調べる。

### 3.6.1 $\tau_p \geq \tau_m$ regime

まずはじめに、平衡系  $\tau_m = \tau_p$  から  $\tau_m$  を小さくしていくことで、AOUP の線に近づいていった場合に系の状態がどのように変化するかを調べる。 $\tau_p \geq \tau_m$  における系の粒子配置を示したのが、図 3.10 である。ここでは、 $\tau_p = 1000$  に固定して  $\tau_m$  を小さくしていくことで、系のパラメータを AOUP の線に近づけている。図 3.10 の左図は、 $\tau_m = \tau_p$  であるため系は熱平衡系であり、粒子配置は乱れている。一方で、 $\tau_p \neq \tau_m$  の場合には、系は非平衡状態となり、 $\tau_m$  を小さくしていくに従って、系の粒子配置が非一様になっていくことがわかる。特に右図では、AOUP 模型で見られるように Motility Induced Phase Separation (MIPS) が生じている [122]。

これらの構造に対して静的構造因子  $S(k)$  を計算したのが 図 3.11(a) である。長距離相関が

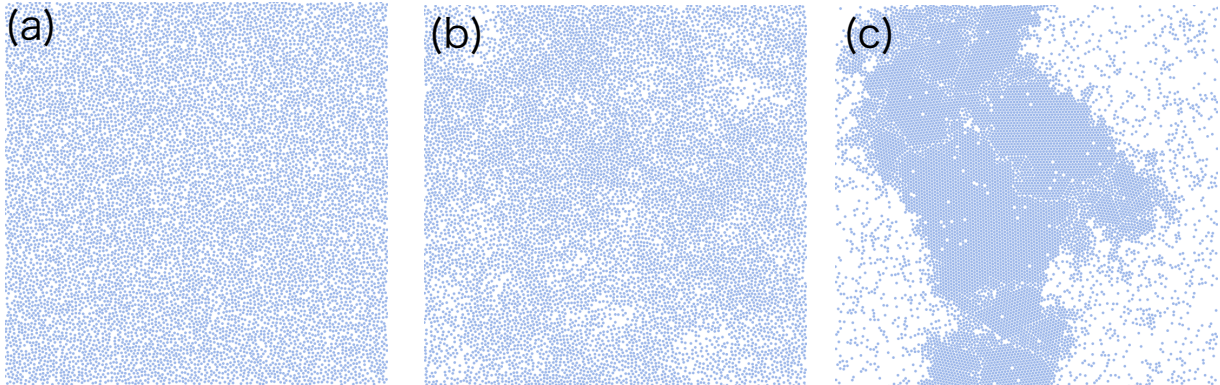


Fig.3.10  $\tau_p \geq \tau_m$  において、 $\tau_p = 1000$  に固定し、 $\tau_m = 1000$ (a),  $100$ (b),  $10$ (c) と変化した際の粒子配置。 $\tau_m$  を小さくし、AOUP の線に近づけるに従って系は非一様になり、 $\tau_m = 10$  では、MIPS が生じる。

存在しない場合には、 $S(k)$  は  $k \rightarrow 0$  で一定値に収束する。平衡系では、密度揺らぎに長距離相関が存在しないため、 $S(k)$  は  $k \rightarrow 0$  で一定値に収束する [30]。非平衡度  $\tau_p/\tau_m$  を 1 から上げていくと、非平衡度が上がっていくのに伴って、 $k \rightarrow 0$  の領域で、 $S(k)$  が発散していく様子が見られる。これは、長距離の密度揺らぎが発達している様子を表しており、図 3.10 において、系の粒子配置が非一様になっていくことに対応している。特に  $\tau_m = 10$  では、系の内部の相分離が明確に生じており、 $S(k) \propto k^{-3}$  という発散が見られる。これは平衡相分離でよく知られている Porod 則  $S(k) \propto k^{-d-1}$  と同様の発散の仕方である [152–154]。ここで  $d$  は空間次元である。実際、Active Brownian Particle 系の先行研究において、MIPS であっても平衡相分離と同様に Porod 則を示すことが報告されている [125, 129]。

$\tau_p \geq \tau_m$  において、 $\tau_m = 0.1$  に固定し、 $\tau_p$  を変化した結果が図 3.11(b) である。この場合も、平衡系である  $\tau_p = 0.1$  から  $\tau_p$  を大きくしていくに従って、相関が発達していく様子が見られる。 $\tau_p = 1000$  では、Porod 則が見られた。このような振る舞いは、図 3.11(a) の場合と同様であり、平衡から離れるに従って系は MIPS を示すことがわかる。つまり、 $\tau_p \geq \tau_m$  の振る舞いは、基本的には AOUP 模型と変わらないことがわかる。

### 3.6.2 $\tau_p \leq \tau_m$ Regime

次に、 $\tau_p < \tau_m$  の領域について考える。図 3.12 は、 $\tau_m = 0.1$  に固定し、 $\tau_p = 0.1, 0.05, 0.01$  と変化した際の粒子配置を表している。 $\tau_p > \tau_m$  の場合とは異なり、平衡系 (a) から非平衡度  $\tau_p/\tau_m$  を増加させていっても、目に見える構造変化は生じていない。

目に見える構造には特徴的な振る舞いは生じていないものの、 $S(k)$  の振る舞いは非常に興味深い。図 3.13(a) に、図 3.12 の各パラメータに対応する  $S(k)$  の振る舞いを示した。 $\tau_p/\tau_m = 1$

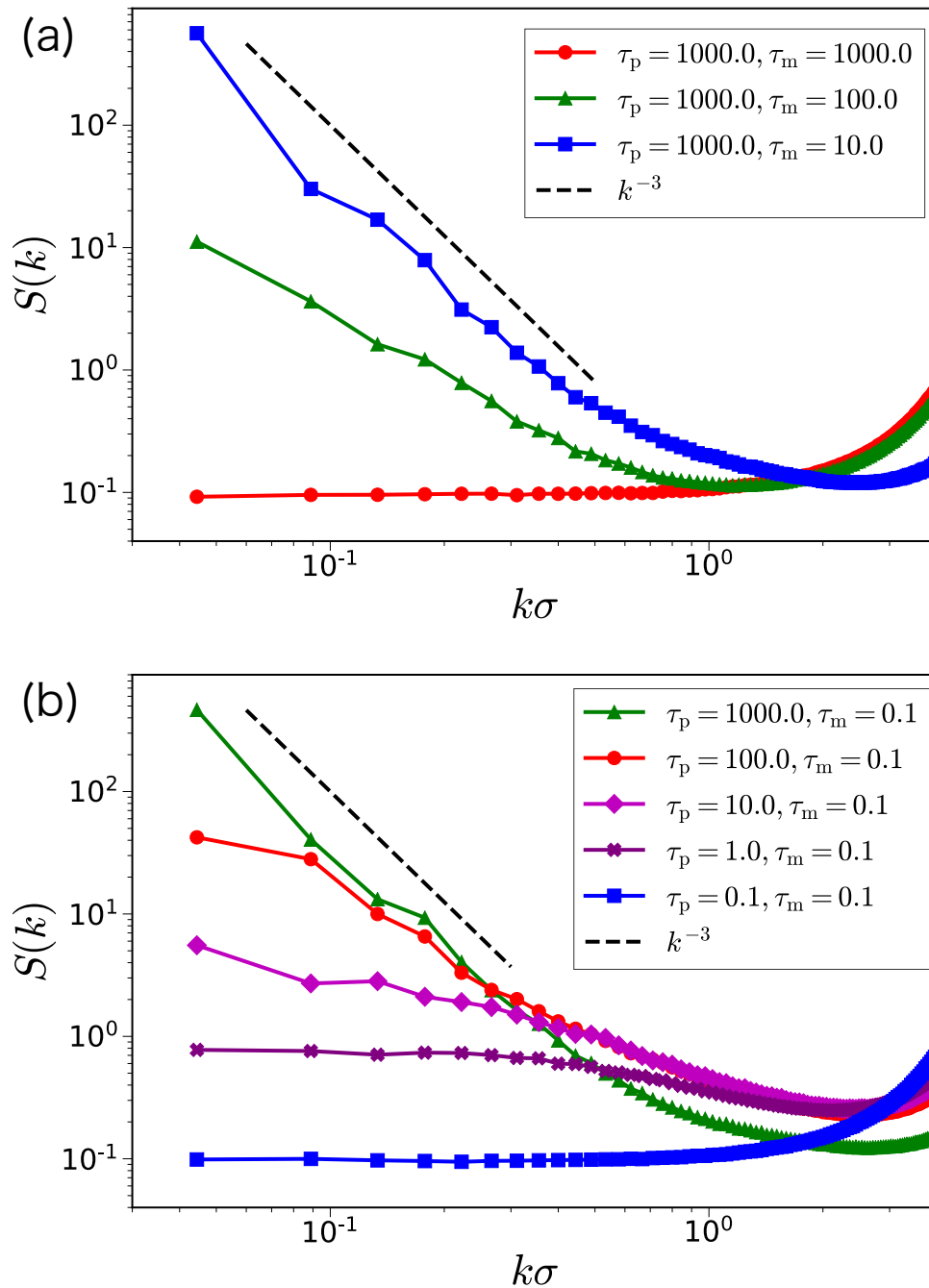


Fig.3.11 (a) $\tau_p = 1000$  に固定し、 $\tau_m = 10, 100, 1000$  と変化させた際の静的構造因子  $S(k)$ 。ここでのパラメータは、図 3.10 のスナップショットに対応している。平衡系の場合では、揺動散逸定理が成立し、 $S(k)$  の  $k \rightarrow 0$  極限は一定値に収束する。一方で、 $\tau_p/\tau_m$  が大きくなるにしたがって、 $S(k)$  は熱力学極限で発散していく様子が見られる。特に、 $\tau_m = 10$  では、平衡相分離で知られている Porod 則  $S(k) \propto k^3$  が見られている。(b) $\tau_m = 0.1$  に固定し、 $\tau_p = 0.1 \sim 1000$  と変化させた際の静的構造因子  $S(k)$ 。こちらの場合にも平衡系からパラメータをずらしていくに従って、長距離相関が発達する様子がわかる。

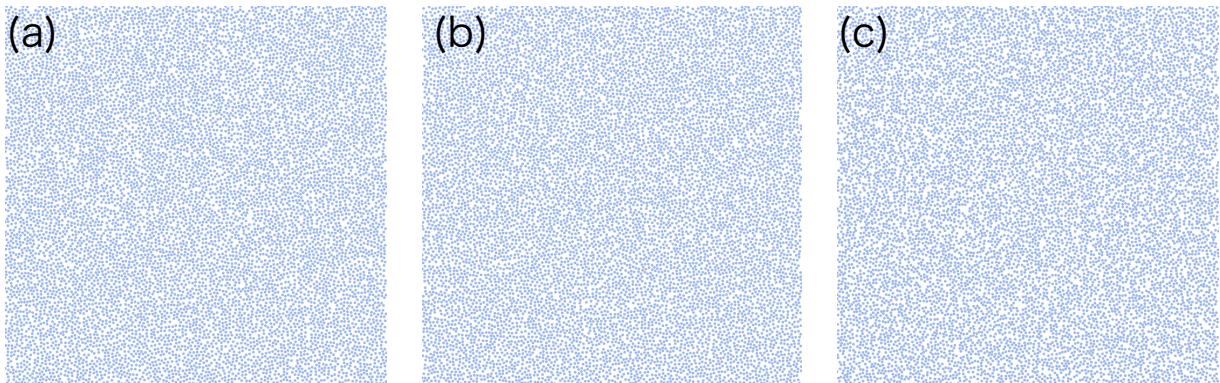


Fig.3.12  $\tau_p \leq \tau_m$  において、 $\tau_m = 0.1$  に固定し、 $\tau_p = 0.1$ (a),  $0.05$ (b),  $0.01$ (c) と変化させた際の粒子配置。 $\tau_p$  の変化によって、系は平衡系から非平衡系へと変化するものの目に見える構造変化は生じない。

の場合には、平衡系であり長距離相関は存在しない。興味深いことに、 $\tau_p = 0.05$  の場合には、 $S(k)$  に長距離相関は存在しないものの、 $S(k)$  の収束値は、平衡での収束値に比べて小さくなる。さらに、非平衡度を増加させた  $\tau_p = 0.01$  の場合には、 $S(k)$  の  $k \rightarrow 0$  近傍での振る舞いが明らかに変化し、 $S(k) \rightarrow 0$  という減衰を示している。この振る舞いは長距離での密度揺らぎの減衰を示しており、Hyperuniformity と呼ばれる現象である [15, 16, 26]。

$\tau_p < \tau_m$  において、 $\tau_p = 0.0001$  に固定し、 $\tau_m$  を変化させた場合の静的構造因子  $S(k)$  を示したのが図 3.13(b) である。この場合にも、平衡近傍の  $\tau_p/\tau_m \approx O(1)$  程度の場合には、 $S(k)$  は低波数領域で収束する振る舞いが見られる。一方で、 $\tau_p/\tau_m \approx O(10)$  程度の平衡から遠い場合には、 $S(k)$  は収束せず  $\lim_{k \rightarrow 0} S(k) \rightarrow 0$  の Hyperuniformity の振る舞いが見られる。 $\tau_p < \tau_m$  における Hyperuniformity による長距離の密度揺らぎの減衰は、 $\tau_p > \tau_m$  における密度揺らぎの増大と対照的である。 $\tau_p < \tau_m$  の領域は、応答関数の記憶時間がノイズの記憶時間に比べて長い領域であり、 $\tau_p > \tau_m$  では、応答関数の記憶時間がノイズの記憶時間に比べて短い領域である。このように、1 粒子レベルの揺動散逸定理がどのように破れるかによって、系全体の密度揺らぎの性質が大きく変化することがわかる。

### 3.7 GAOUP 模型における Hyperuniformity 指数

Hyperuniformity は、 $S(k)$  の  $k \rightarrow 0$  でのべき的振る舞い  $S(k) \propto k^\alpha$  を示し、そのべき指数  $\alpha$  によって系の Hyperuniformity は特徴付けられる [15]。GAOUP における Hyperuniformity の指数  $\alpha$  を調べたのが、図 3.14(a) である。ここでは、パラメータを  $\tau_p = 0.001$ ,  $\tau_m = 0.025$  に固定した時の  $\rho = 0.4 \sim 0.6$  での  $S(k)$  の振る舞いを示している。どの密度の場合にも低波数領域で同じべきに収束していることがわかり、低波数領域での振る舞いは密度によらないことが

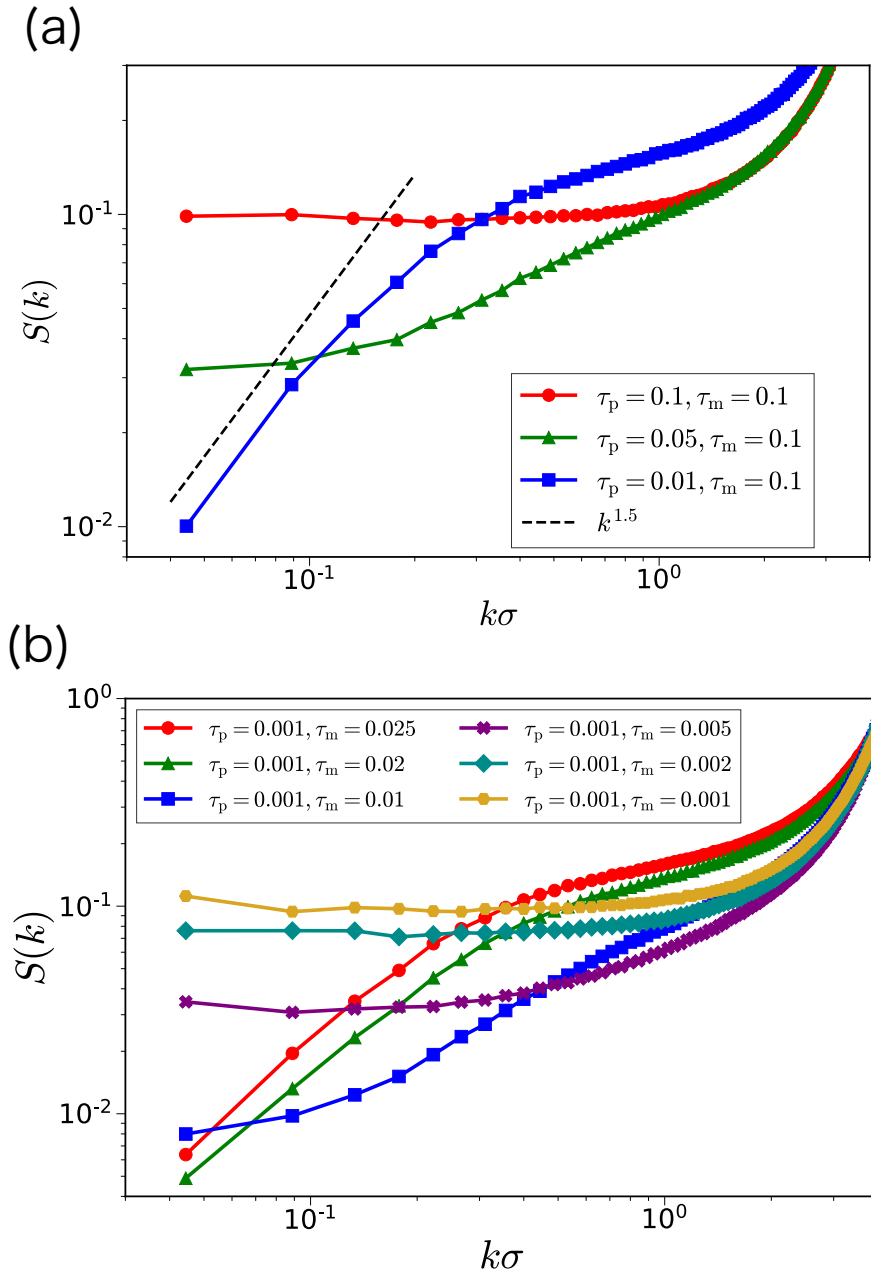


Fig.3.13 (a) $\tau_m = 0.1$  に固定し、 $\tau_p = 0.1, 0.05, 0.01$  と変化させた際の静的構造因子  $S(k)$ 。ここでのパラメータは、図 3.12 のスナップショットに対応している。 $\tau_p = 0.1$  の場合には、長距離相関が生じないものの、 $\tau_p = 0.01$  の時には、 $S(k)$  は一定値に収束せず、 $k \rightarrow 0$  に向かって減衰していく Hyperuniformity が見られる。(b) $\tau_p = 0.0001$  に固定し、 $\tau_m = 0.001 \sim 0.025$  と変化させた際の静的構造因子  $S(k)$ 。図 (a) の場合と同様に  $\tau_p/\tau_m \sim O(10)$  程度の領域で Hyperuniformity が生じ始めていることがわかる。



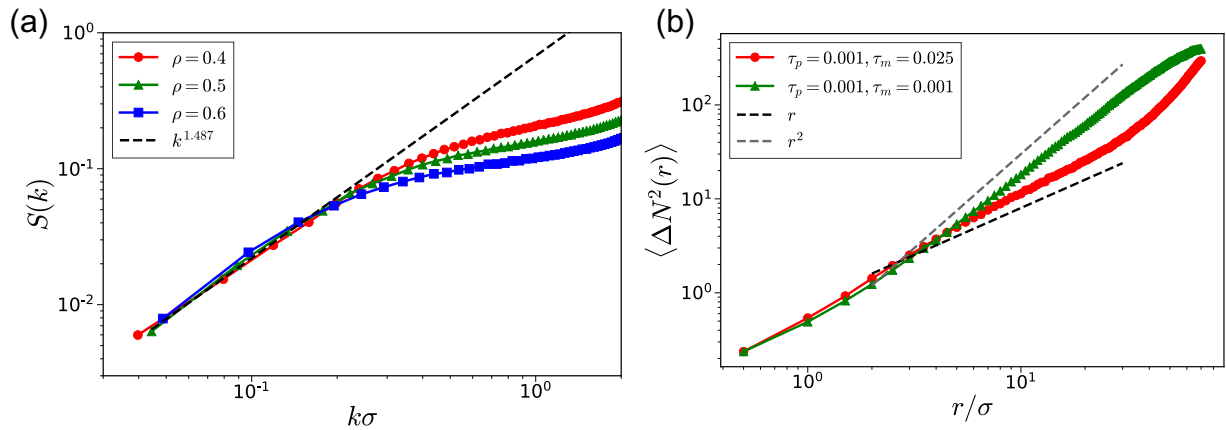


Fig.3.14 (a)  $\tau_p = 0.001, \tau_m = 0.025$  における  $\rho = 0.4 \sim 0.6$  での構造因子  $S(k)$ 。このパラメータにおいては、数密度を  $\rho = 0.4 \sim 0.6$  の間で変化させても、 $S(k)$  は低波数領域のべき的な振る舞いは変化していない。Hyperuniformity の指数を決定するために、 $\rho = 0.5$  での  $S(k)$  の低波数領域を  $Ak^\alpha$  という関数でフィッティングすることで指数  $\alpha$  を決定した。フィッティングによって得られた GAoup モデルの指数は  $\alpha \approx 1.5$  である。(b) 平衡系  $\tau_p = \tau_m = 0.001$  の場合と Hyperuniformity を示すパラメータ  $\tau_p = 0.001, \tau_m = 0.025$  の場合における粒子数揺らぎ  $\langle \Delta N^2(r) \rangle$ 。平衡系の場合には、 $\langle \Delta N^2(r) \rangle \propto r^2$  という振る舞いを示すが、Hyperuniformity の場合には、 $\langle \Delta N^2(r) \rangle \propto r$  となっている。これは、理論的に出てくる指数の予想と一致しており、確かに Class I の Hyperuniformity になっていることがわかる。

わかる。実際、我々は  $\rho = 0.3 \sim 0.9$  まで変化させた場合にも、低波数での振る舞いが一致することを確認している。 $\rho = 0.5$  の場合に、 $0.02 \lesssim k \lesssim 0.2$  の範囲を用いて、データを  $S(k)$  を  $Ak^\alpha$  という関数でフィッティングして得られた指数  $\alpha$  は  $\alpha \approx 1.49 \pm 0.06$  である。ここで示している誤差はフィッティングの際の標準誤差である。つまり、今回得られた GAoup 模型における Hyperuniformity の指数は  $\alpha \approx 1.5$  である。この指数の値は、先行研究では報告されていない値である。

GAoup 系における hyperuniformity の特徴的な点として、粒子は常に移動しており、系の粒子配置は時々刻々と変化しているにもかかわらず系の密度揺らぎが抑えられている点である。先行研究では主にダイナミクスを持たない静的な配置において Hyperuniformity が報告されていた。このような流動的な状態における Hyperuniformity は、吸収状態転移を起こす理論モデル [31, 36] でしか報告されておらず、これらのモデルでは 2.7 節で議論したような揺らぐ流体力学の議論によって、Hyperuniformity の指数  $\alpha$  を求めることができる。しかし、そのような揺らぐ流体力学の議論から導出できる指数は  $\alpha = 2$  であり、GAoup の指数  $\alpha = 1.5$  とは異なる。

Hyperuniformity は  $S(k)$  のべき的な振る舞いだけでなく、2.4 節で議論したように粒子数揺

らぎ  $\langle \Delta N^2(r) \rangle$  によっても特徴付けられる。 $\alpha > 1$  の場合には、Class I の Hyperuniformity なので、粒子数揺らぎは  $\langle \Delta N^2(r) \rangle \propto r$  と振舞うことが予想される。実際に、GAOUP 系における粒子数揺らぎの振る舞いを調べたのが、図 3.14(b) である。図 3.14(b) では、平衡系  $\tau_p = \tau_m = 0.001$  の場合と Hyperuniformity を示すパラメータ  $\tau_p = 0.001, \tau_m = 0.025$  の二つの場合に対して、粒子数揺らぎを示した。平衡系の場合には、 $\langle \Delta N^2(r) \rangle \propto r^2$  という振る舞いを示すが、Hyperuniformity の場合には、 $\langle \Delta N^2(r) \rangle \propto r$  となっており、理論的な予想と一致していることがわかる。長距離で粒子数揺らぎの振る舞いに変化しているのは、有限サイズ効果によるものであり、短距離では粒子間相互作用による排除体積の寄与が重要であり、平衡であっても非平衡であっても同じ振る舞いをする。

次に、 $\alpha = 1.5$  が、相互作用ポテンシャルやシステムサイズの変化に対して、変化するかを調べる。相互作用ポテンシャルを WCA ポテンシャルから Harmonic ポテンシャル  $U(r_{ij}) = \frac{\epsilon}{2}(1 - r_{ij})^2$  に変化させて  $S(k)$  の変化を調べたのが、図 3.15(a) である。ここで、パラ

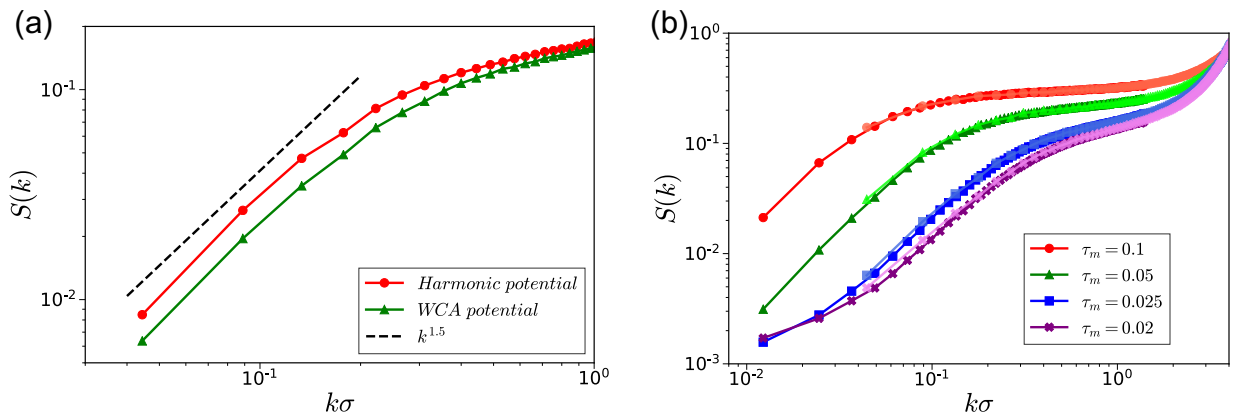


Fig.3.15 (a) $\tau_p = 0.001, \tau_m = 0.025$  にパラメータを固定し、相互作用ポテンシャルを WCA ポテンシャルから Harmonic ポテンシャルにした場合における  $S(k)$ 。(b) $\tau_p = 0.001$  に固定し、 $\tau_m = 0.02 \sim 0.1$  と変化させた場合における  $N = 10000$ (薄色) と  $N = 131072$ (濃色) における  $S(k)$  の変化。

メータを  $\tau_p = 0.001, \tau_m = 0.025$  に固定した。しかし、Harmonic ポテンシャルを剛体球的にするために  $\epsilon$  は変化させている。相互作用ポテンシャルを WCA ポテンシャルから Harmonic ポテンシャルに変化させても、Hyperuniformity が生じることがわかり、その指数も変化せず、 $\alpha \approx 1.5$  であることがわかる。

次に、系のシステムサイズを変化させることで  $S(k)$  の振る舞いがどのように変化するかを調べた。その結果を示したのが図 3.15(b) である。ここでは、 $\tau_p = 0.001$  に固定し、 $\tau_m = 0.02 \sim 0.1$  を変化させており、図 3.13(b) に比べ、 $\tau_m$  がより大きい領域を示している。薄色の線が  $N = 10000$  の結果であり、濃色の線が  $N = 131072$  の場合に得られた結果である。系

が大きくなっても、 $N = 10000$  の場合に見られていた範囲においては、基本的に  $S(k)$  の振る舞いに大きな変化はない。よって、 $\alpha \approx 1.5$  という指数は系のサイズの変化によって変化しない。しかし、 $\tau_m = 0.02, 0.025$  の場合には、 $N = 10000$  の場合には、 $S(k)$  のべき的な領域しか見えていなかったものの、より低波数領域では、収束する振る舞いが見られており、GAOUP の Hyperuniformity は中間的な長さスケールにおけるものである可能性を示している。また、さらに  $\tau_m$  を上げていくと、 $S(k)$  の中間領域に平らな領域が生じる。この平らな領域が終わる長さスケールは  $\tau_m$  の値に依存しており、 $\tau_m$  が大きくなると Hyperuniformity が生じ始める波数はより低波数側へシフトしていく。以上の結果から  $\tau_m$  を大きくしていくと、Hyperuniformity が生じ始める領域が低波数領域へシフトしていくものの、Hyperuniformity が生じた際に見られる指数は  $\alpha \approx 1.5$  であることから、 $\alpha \approx 1.5$  は  $\tau_p/\tau_m \approx O(10)$  以上の領域では常に観測されることが予想される。また、この結果は我々が得た  $N = 10000$  での指数  $\alpha \approx 1.5$  という値が揺らぐ流体の解析から得られる  $\alpha = 2$  に移っていく途中のべきを捕らえた結果ではないということを示している。

### 3.8 GAOUP 模型における相図

ここまでに、GAOUP における密度揺らぎは、 $\tau_p$  と  $\tau_m$  に依存して増大及び減衰という対照的な振る舞いをし、そのそれぞれで  $S(k)$  がべき的な振る舞いをすることを観測した。この節では、各パラメータ  $\tau_p, \tau_m$  に依存して、 $S(k)$  のべき的振る舞いがどのように変化するかを調べる。そこで、各パラメータ  $\tau_p, \tau_m$  における、系の長距離の揺らぎの性質を特徴付けるために、 $S(k)$  の低波数領域において  $S(k) \propto k^\alpha$  を仮定し、 $\alpha$  の記憶時間  $\tau_p, \tau_m$  依存性を調べた。ここでフィッティングは  $0.02 \lesssim k \lesssim 0.2$  の範囲で行った。その結果得られた相図が、図 3.16 である。黒線は、 $\tau_p = \tau_m$  である平衡系を示しており、平衡系では揺らぎは長距離の相関を持たないため  $\alpha = 0$  となっている。また、平衡近傍の領域においても  $\alpha \approx 0$  になっており、 $\tau_m \neq \tau_p$  の非平衡系であったとしても、平衡近傍では長距離相関は生じないことがわかる。

まずはじめに、 $\tau_p > \tau_m$  の領域の結果について考える。この領域では、相分離に起因した揺らぎの増大が存在していた。だが、この領域で、 $\alpha \approx 0$  の長距離相関の生じていない領域が生じている。これは相分離が生じる、もしくはその兆候によって非一様性が系に生じなければ長距離相関は生じないことに起因している。しかし、 $\tau_p \approx 10^2$  程度の大きさになると、MIPS によって相分離生じ、Porod 則の指数  $\alpha = -3$  が現れている。興味深いことに、この  $\alpha$  が増大し始めるパラメータは、 $\tau_m$  にほぼ依存せず、 $\tau_p$  のみで決まっている。もちろん、 $\tau_m \approx \tau_p$  の領域では、 $\tau_p \approx 10^2$  であっても、MIPS は生じない。

次に、 $\tau_p < \tau_m$  の領域をみる。この領域では、 $\tau_p/\tau_m \approx O(10^{-1})$  程度の領域から Hyperuniformity が生じている。この領域では、前節で見たように GAOUP の Hyperuniformity の指数である  $\alpha \approx 1.5$  という値が生じている。 $\tau_p/\tau_m < 10^{-1}$  の領域においても、Hyperuniformity が常

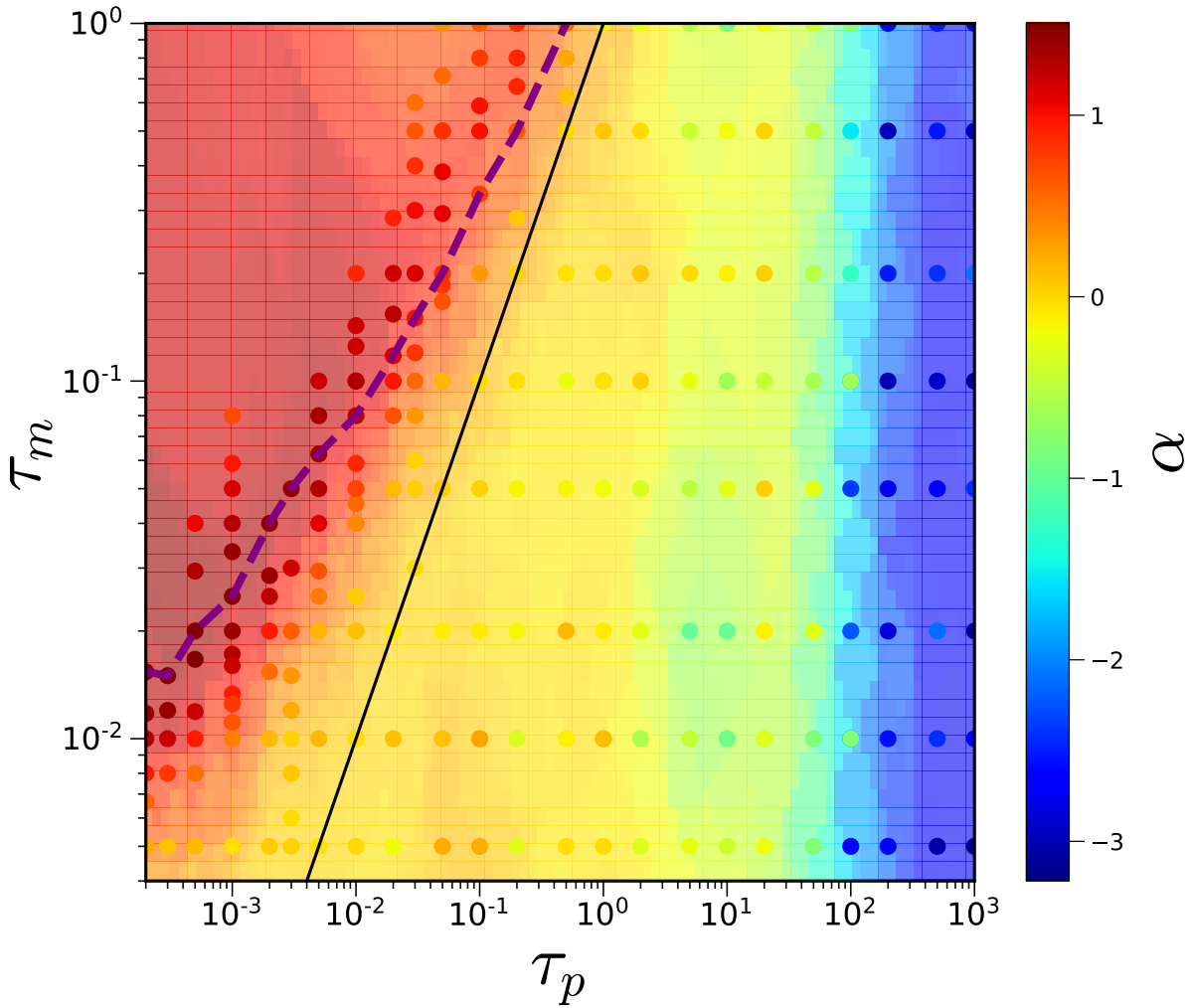


Fig.3.16  $\rho = 0.5$  における  $S(k)$  の低波数領域でのべき指数  $\alpha$  の  $\tau_m, \tau_p$  依存性。データ点は  $S(k)$  のフィッティングによって得られた  $\alpha$  の値を示し、背景の色は  $K$ -近傍法を用いて色付けを行っている。ここで近傍数を 5 と設定した。平衡系では、揺動散逸定理から  $\alpha = 0$  である。また、我々の相関では平衡近傍でも  $\alpha = 0$  となることがわかる。 $\tau_p < \tau_m$  では、ある領域から、Hyperuniformity が生じるため  $\alpha \approx 1.5$  という指数が生じる。一方で、 $\tau_p > \tau_m$  の領域では、 $\tau_p < \tau_m$  の領域に比べ  $\alpha = 0$  が広い領域で現れる。 $\tau_p = 10^2$  の程度の領域から揺らぎが発達し始めていることがわかる。この領域では、構造には MIPS のような明確な相分離は生じていない (図 3.11(b))。より大きな  $\tau_p$  で MIPS が生じ始め、Porod 則の指数  $\alpha \approx -3$  という指数が見られる。紫色の点線は、 $\tau_m/\tau_{col} \approx 1$  となるパラメータを示している。ちょうど Hyperuniformity が生じ始める領域に沿っていることがわかり、Hyperuniformity が生じるには  $\tau_m/\tau_{col} > O(1)$  であることが重要であることが示唆される。

に生じている。しかし、Hyperuniformity が生じ始める波数は、 $\tau_p/\tau_m$  が減少するに従って、低波数へとシフトしていく。

さて、Hyperuniformity が生じ始める領域が何によって決まっているかを考える。平衡系では、長距離の斥力相互作用が Hyperuniformity が生じるのに必要な条件であった。ここで、GAOUP 模型では、粒子が相互作用を記憶効果によって長時間覚えているので、相互作用した後に、離れた粒子にも相互作用の影響が残っており、それが有効的な長距離斥力相互作用となっていると考えることができ、この有効的な長距離相互作用が Hyperuniformity を生じさせていると素朴には予想することができる。そこで、GAOUP 系における粒子間衝突と記憶効果の関係を考える。そのために、平均衝突時間  $\tau_{col}$  を次のように定義する。

$$\tau_{col} = \frac{1}{\rho \sqrt{\langle \delta v^2 \rangle}} \quad (3.24)$$

これは粒子の平均熱速度  $v_{th} = \sqrt{\langle \delta v^2 \rangle}$  で粒子が進むときに、他の粒子と衝突せずに進むことが可能な時間スケールである。

ここで、粒子間衝突に関する時間スケール  $\tau_{col}$  と、粒子が衝突の影響を記憶できる時間スケールである  $\tau_m$  との比を考える。 $\tau_m/\tau_{col}$  は、粒子が一つ前の衝突の影響を記憶している間に次の衝突がおきるかを示している。ここで、 $\tau_m/\tau_{col} \approx 1.0$  となるパラメータを示したのが、図 3.16 の相図上に点線である。 $\tau_m/\tau_{col} \approx 1.0$  となる線と Hyperuniformity が生じ始める境界線は非常に似ていることがわかる。これは、Hyperuniformity が系に生じるには、粒子が次の粒子と衝突するまでの間、その前の衝突の記憶を覚えている必要があることを示唆している。また、この領域よりも平衡に近い領域では、 $\tau_m/\tau_{col} < 1.0$  となっており、次の衝突が生じる前に、記憶を失うことから、衝突の記憶効果の影響が少ないため、Hyperuniformity が生じていないと考えられる。また、Hyperuniformity が生じる領域では  $\tau_m/\tau_{col} \gtrsim 1.0$  となっている。

これまでは  $\rho = 0.5$  の相図を見てきたが、最後にその他の密度でも同様の結果が見られるかを確認する。 $\rho = 0.4, 0.6$  の結果を示したのが図 3.17 である。図 3.17(a) は  $\rho = 0.4$  の結果を示しており、図 3.17(b) は  $\rho = 0.6$  の場合の結果を示している。どちらの場合の相図も定性的には  $\rho = 0.5$  の場合の結果と変わらない。相分離が生じ始めるパラメータ領域は、 $\rho = 0.4, 0.6$  の場合においても  $\rho = 0.5$  でのパラメータ領域と変化しない。一方で、Hyperuniformity が生じ始めるパラメータ領域は  $\rho$  が大きくなるにつれて、平衡線に近づいてくる。この変化は、先ほどの議論から密度が増加するにつれて  $\tau_{col}$  が小さくなることに起因する。実際、Hyperuniformity の生じ始める位置は  $\rho$  に依存して変化しているものの、 $\tau_m/\tau_{col} \approx 1$  となる線は  $\rho = 0.4, 0.6$  のどちらの場合にも、Hyperuniformity が生じ始めるパラメータと一致していることがわかる。

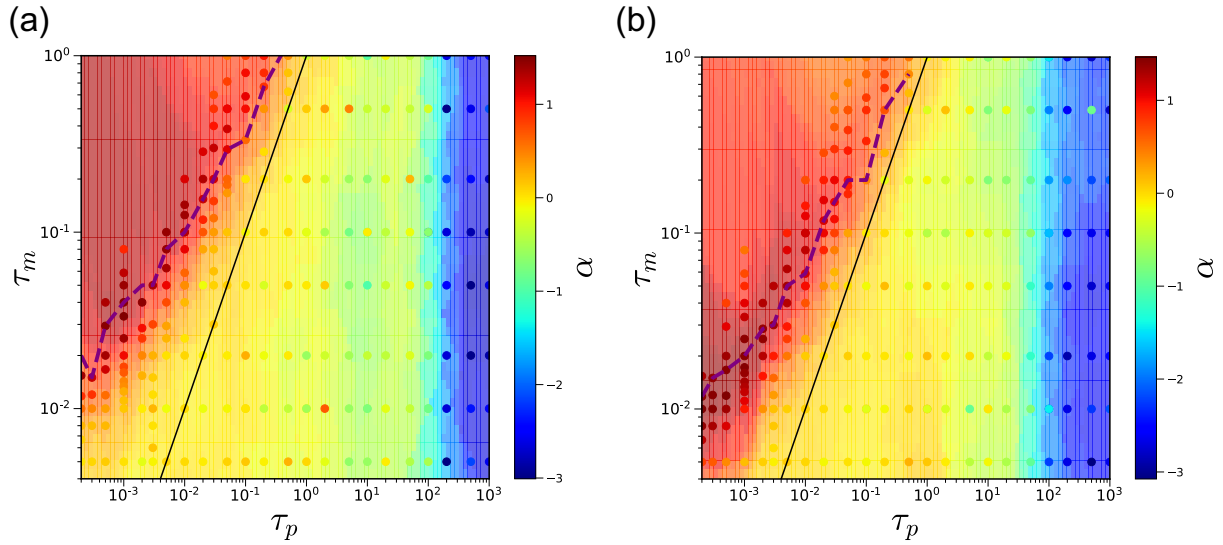


Fig.3.17  $\rho = 0.4$ (a) と  $\rho = 0.6$ (b) の場合の指数  $\alpha$  の  $\tau_m, \tau_p$  依存性。相図全体の振る舞いは  $\rho = 0.5$  の場合と同じである。MIPS が生じるパラメータ領域は  $\rho = 0.4, 0.6$  の場合にも  $\rho = 0.5$  の場合とほぼ変化していない。一方で、Hyperuniformity が生じ始める領域は、 $\rho$  に依存していることが見て取れ、 $\rho$  が上昇するにつれて、平衡の線に Hyperuniformity が生じる線が近づいてくることがわかる。また、この線の変化を  $\tau_m/\tau_{col} \approx 1$  の線は捕らえていることがわかる。このことから、Hyperuniformity が生じるパラメータ領域の  $\rho$  依存性は、 $\rho$  の増加に伴って  $\tau_{col}$  が小さくなることに起因する。

### 3.9 $\tau_m > \tau_p$ における系の性質

これまでの、GAOUP 模型における静的な粒子配置に関連する性質について解析を行ってきた。最後に、GAOUP に特徴的な Hyperuniformity が生じる領域である  $\tau_p < \tau_m$  の領域において密度揺らぎ以外の物理量の解析を行う。

#### 3.9.1 速度分布の非ガウス性

まずはじめに、GAOUP 模型における各粒子の速度分布の性質について調べる。GAOUP モデルは非平衡モデルであるから、その速度分布の形は自明ではなく、定常系であっても速度分布はガウス分布ではない可能性が存在する。そこで、速度分布の非ガウス性パラメータ

$$K = \frac{\langle v^4 \rangle}{\langle v^2 \rangle^2} - 3 \quad (3.25)$$

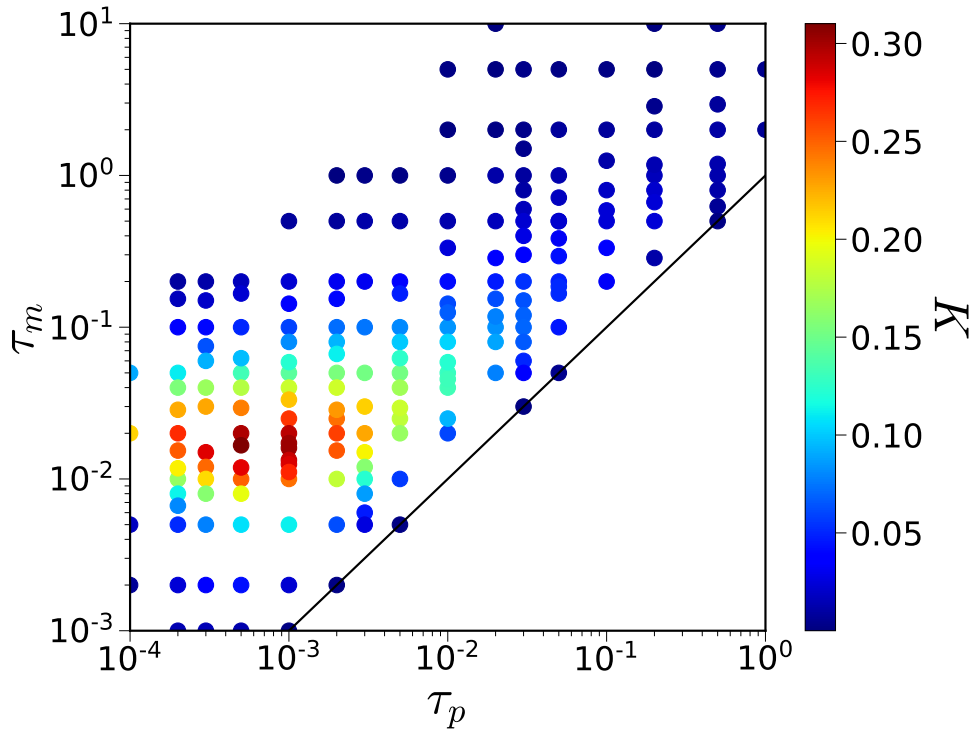


Fig.3.18 非ガウス性パラメータ  $K$  の  $\tau_p, \tau_m$  依存性。  $K$  のピークがパラメータ領域 ( $10^{-4} < \tau_p < 10^{-2}, 5 \times 10^{-3} < \tau_m < 10^{-1}$ ) の中間的な領域において生じる。速度分布の非ガウス性パラメータは  $\tau_m, \tau_p$  に対して、局所的なピークを持つことがわかる。これは、 $\tau_m > \tau_p$  の比較的広い領域で見られる Hyperuniformity とは対照的である。

が記憶時間  $\tau_p$  と  $\tau_m$  を変化させたときにどのように変化するかを調べる。非ガウス性パラメータ  $K$  は速度分布がガウス分布である時には、 $K = 0$  になる。GAOUP 系の各パラメータにおける非ガウス性パラメータ  $K$  をプロットしたのが図 3.18 である。非常に興味深いことに、非ガウス性パラメータ  $K$  はパラメータ領域の局所的な領域である  $10^{-4} < \tau_p < 10^{-2}, 5 \times 10^{-3} < \tau_m < 10^{-1}$  程度で値を持つことがわかる。特に、 $\tau_p \approx 10^{-3}, \tau_m \approx 2 \times 10^{-2}$  の点で非ガウス性パラメータはピークを持っている。非ガウス性パラメータ  $K$  はパラメータ領域において局所的なピークを持ち、この振る舞いは  $\tau_m > \tau_p$  の比較的広い領域で見られる Hyperuniformity とは対照的である。

### 3.9.2 速度の空間相関

近年の研究で ABP 系では、速度が空間相関を持つことが報告された [135, 155–157]。そこで、GAOUP 系における Hyperuniformity が見える領域においても速度の空間相関が見られる

か調べる。速度の空間相関は

$$Z_{\alpha\beta}(r) = \frac{\langle v_\alpha(r)v_\beta(0) \rangle}{\langle v^2 \rangle} = \frac{\sum_{i \neq j} v_{\alpha i} v_{\beta j} \delta(r - r_{ij})}{\langle v^2 \rangle} \quad (3.26)$$

と定義される。ここで、1粒子の速度の2次モーメントで規格化している。平衡系では各粒子の速度分布は独立な分布なので、速度の空間相関は存在しない。

はじめに、系のパラメータを  $\tau_p = 0.001, \tau_m = 0.02$  と固定して速度相関  $Z_{\alpha\beta}(r)$  を調べる。その結果を示したのが図 3.19(a) である。驚くべきことに、このパラメータ領域では、 $Z_{xx}(r)$  と

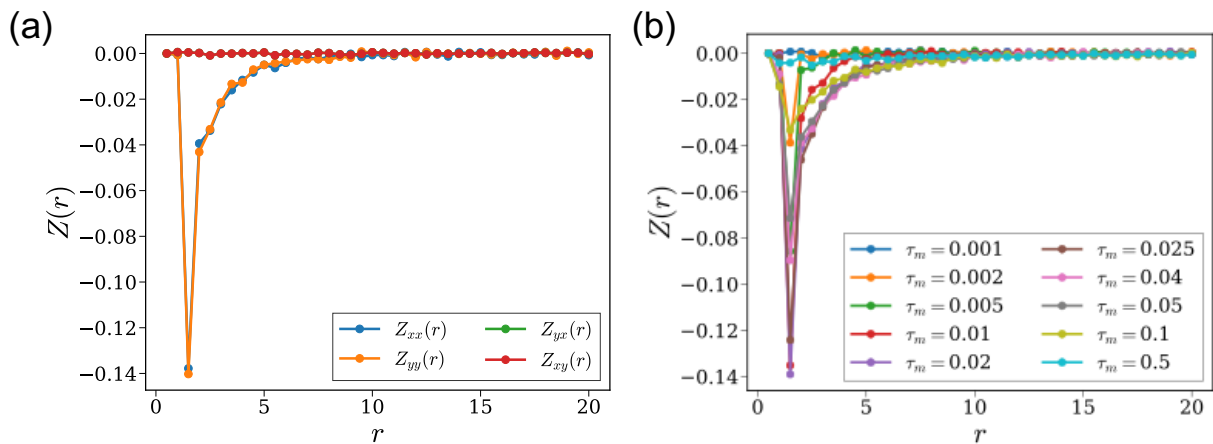


Fig.3.19 (a)  $\tau_p = 0.001, \tau_m = 0.02$  における速度の空間相関  $Z_{\alpha\beta}(r)$ 。  $Z_{xx}(r)$  と  $Z_{yy}(r)$  では有限の負の相関が生じるが、  $Z_{yx}(r)$  と  $Z_{xy}(r)$  には、相関は生じない。(b)  $\tau_p = 0.001$  に固定し  $\tau_m$  を平衡から大きくして行った時の、  $Z_{xx}(r)$  の非平衡度依存性。平衡系 ( $\tau_m = 0.001$ ) では速度は多粒子間で相関を持たないため、  $Z_{xx}(r)$  は常に 0 になる。  $\tau_m$  を平衡から大きくすると、  $Z_{xx}(r)$  のピーク強度が強くなるが、そのピークの高さは  $\tau_m \approx 0.02$  程度で最大となり、さらに  $\tau_m$  を大きくしていくとピークの高さは小さくなっていく。また、ピークが高い時には、相関距離も増大している。

$Z_{yy}(r)$  では有限の負の相関が生じている。これは、ABP 模型の先行研究で生じるとされていた正の速度相関とは真逆の相関である。また、  $Z_{xx}(r)$  と  $Z_{yy}(r)$  は同じ振る舞いをしている。これは、系が等方的であることを示している。一方で、  $Z_{xy}(r)$  と  $Z_{yx}(r)$  には、相関は生じていない。  $Z_{xx}(r)$  と  $Z_{yy}(r)$  の振る舞いは変化しないことがわかったので、これ以降は  $Z_{xx}(r)$  を  $Z(r)$  と記述し、  $Z(r)$  の  $\tau_m, \tau_p$  依存性を調べる。

次に、  $\tau_p = 0.001$  に固定し、  $\tau_m$  を変化させてこの  $Z(r)$  がどのように変化するかを調べた。その結果が図 3.19(b) である。平衡系では速度は多粒子間で相関を持たないため、平衡系である  $\tau_m = 0.001$  では  $Z(r)$  は 0 になる。一方で、わずかにでも系が非平衡系になると粒子直径の位置で相関を持ち始めることがわかる。これは相互作用が有限の記憶時間を持つことに



起因し、衝突による速度相関が生じていることを示唆している。 $\tau_m$  を上げていくと、この粒子直径程度の位置のピークの高さは徐々に大きくなっていく。そして、 $\tau_m \approx 0.02$  程度の位置でピークは最大値を迎え、それより  $\tau_m$  を大きくしていくと再びピークの高さは小さくなっていく。また、ピークが高い、強い負の相関を持つときには、粒子間の相関距離も増大している。このピークの高さの記憶時間  $\tau_m, \tau_p$  依存性を調べたのが、図 3.20(a) である。この図から、ちょうど中間的な領域 ( $10^{-4} < \tau_p < 10^{-2}, 5 \times 10^{-3} < \tau_m < 10^{-1}$ ) で  $Z(r)$  は相関を持っていることがわかる。これは、非ガウス性パラメータ  $K$  がピークを持つ位置と一致している。つまり、1 粒子の速度分布の非ガウス性パラメータと速度の空間相関は強く関係を持っていることが予想される。

さらに、興味深いのが図 3.20(b) である。この図は  $\tau_p = 0.001$  の際の、 $Z(r)$  の  $\tau_m$  依存性を log-log プロットにしたものである。ここで、 $Z(r)$  が負の相関を持つため、 $Z(r)$  の符号を正にしてプロットしている。ここで、平衡近傍の場合には、相関を持つデータが  $1\sigma$  程度の距離でしか得られていないので、ここでは  $Z(r)$  が比較的長い距離に渡って相関を持つ場合のみをプロットしている。図 3.20(b) を見ると  $Z(r)$  の相関はべきになっていることがわかる。また、このべきの振る舞いは相関が十分に発達仕切っていない  $\tau_m = 0.1$  の場合をのぞいて、ほぼ同じべき指数の線にのっているように見える。その振る舞いは、おおよそ  $Z_{xx} \sim -r^{-2}$  である。相関がべき的であるのは ABP 系で報告されていた exp 型の相関とは異なる形である。また、べき的相関の場合には、特徴的な長さスケールを持たないことから、この現象は GAoup 模型に特徴的な現象である。

本研究の結果は、近年、自己駆動粒子系において報告されてきた速度相関とは次の 2 点で大きく異なる。1 点目は、これまで報告されてきた速度相関は MIPS 領域もしくは、結晶領域等の高密度領域でなければ生じないとされていた [135, 155–157]。しかし、本研究の速度相関はこれまで報告されてきた速度相関に比べ非常に低密度領域で生じる。2 点目は、これまでの速度相関は指数的の正の相関として報告されてきた [156, 157]。しかし、GAoup 模型では、速度相関はべき的な減衰をもち、また負の相関である。

### 3.10 まとめ

本章では、AOUP 模型を拡張し、応答関数とノイズが有限の記憶時間  $\tau_m$  と  $\tau_p$  を持つモデルである、Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle (GAoup) 模型の研究を行った。このモデルは揺動散逸定理の破れを陽にコントロールすることによって、平衡系の Underdamped Langevin 方程式と Active Matter である AOUP 模型を連続的につなぐことができるモデルとなっている。

3.6 節では、GAoup 模型の多体系の数値シミュレーションを行った結果、 $\tau_p \gg \tau_m$  では、MIPS が生じ、平衡相分離の場合と同様に Porod 則が観測された。これは ABP 模型等の数値

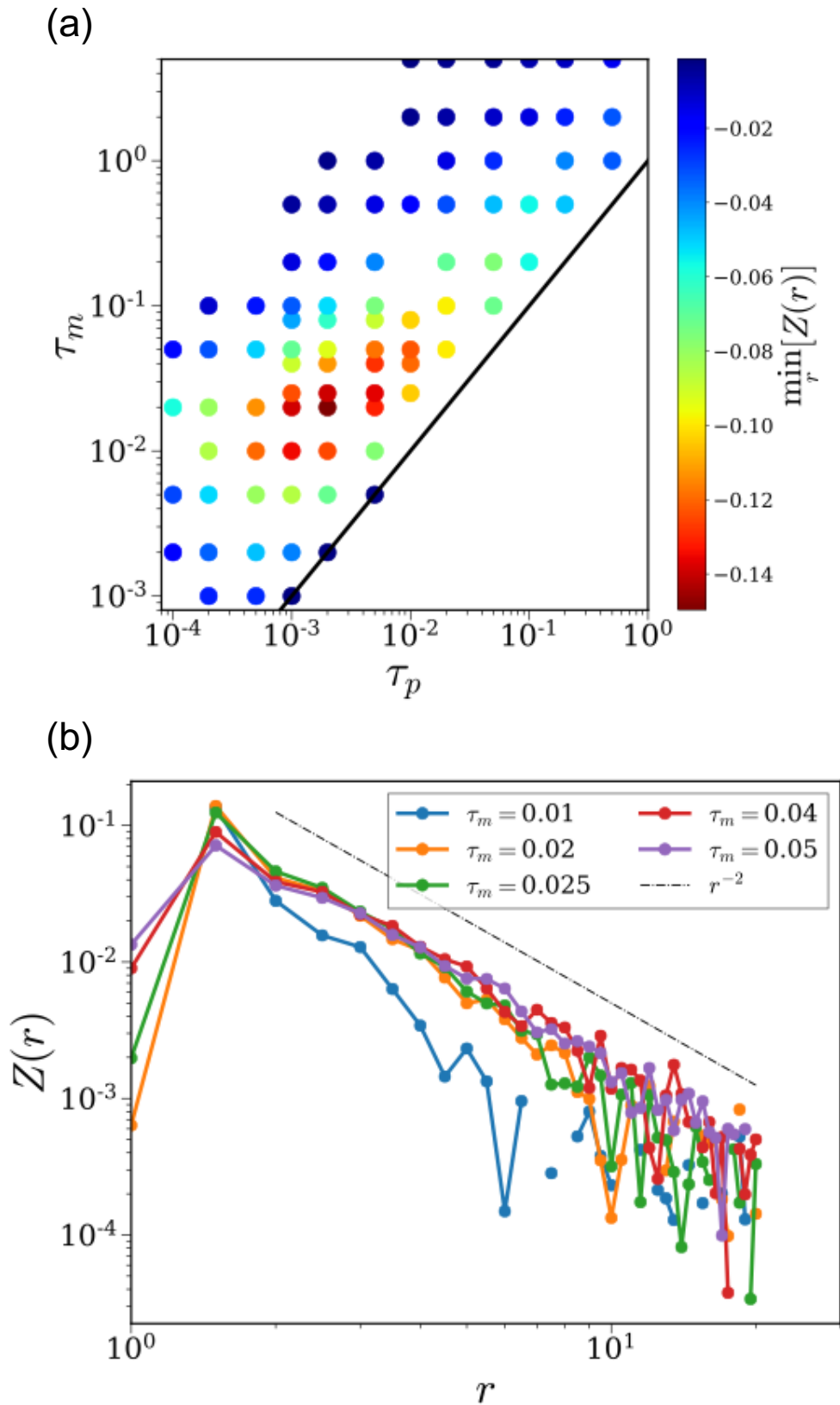


Fig.3.20 (a) $Z(r)$  のピーク高さの  $\tau_m, \tau_p$  依存性。非ガウス性パラメータ  $K$  が増加する位置と  $Z(r)$  のピーク高さが増加するパラメータ領域は一致している。(b)  $\tau_p = 0.001$  に固定し  $\tau_m$  を変化させた際の  $Z(r)$  の変化。ここで、log-log プロットにするために、 $-Z(r)$  をプロットしている。 $Z(r)$  はべき的な減衰をしている。また、その減衰は  $Z(r) \sim -r^{-2}$  に近い振る舞いをしている。

計算で得られている結果と整合しており、平衡系から適切に Active Matter モデルへとつなぐことができていることがわかる。

一方で、 $\tau_p < \tau_m$  の領域では、Hyperuniformity が生じることを発見した。Hyperuniformity は長距離での密度揺らぎの抑制であり、これまで自己駆動粒子系で報告されていた密度揺らぎの増大である Giant Number Fluctuation とは、対照的な現象である。GAOUP 模型における Hyperuniformity は流体状態で生じるのが特徴である。これまで流体状態における Hyperuniformity は吸収状態転移を起こすモデルでのみ報告されてきたが、GAOUP モデルでは、このような相転移は伴わず純粋な非平衡性のみで Hyperuniformity が生じる。加えて、GAOUP 模型における Hyperuniformity の指数は  $S(k) \propto k^{1.5}$  という、非整数の強い減衰を示し、このような指数は他のモデルでは報告されていない。このように、GAOUP 模型における Hyperuniformity は先行研究で報告されてきた結果とは異なる性質を持つ。また、 $\tau_p < \tau_m$  の領域では、速度分布は非ガウスになっており、速度の空間相関も存在している。Hyperuniformity は  $\tau_p < \tau_m$  における広い領域で生じるが、非ガウス性パラメータと速度の空間相関はパラメータ領域の局所的な領域でピークを持つ。

以上のように GAOUP 模型では、そのパラメータ空間上に相分離と Hyperuniformity という対照的な密度揺らぎを示す2つの相が存在する。このような相図は、Biased ensemble を用いた Asymmetric Simple Exclusion Process (ASEP) の研究で報告されていた [158]。また、生物系においても、運動方向を揃える効果を入れた Self Propelled Voronoi 模型 [41] や化学走化性を持つ生物集団を記述する場の模型である Stochastic Keller-Segel 模型 [42] で報告されている。これは生物模型が持つ非平衡性によって相分離及び、Hyperuniformity の両者が生じる可能性を示唆している。しかし、低密度領域での単純な Scalar Active Matter 系では、両者が生じる模型は報告されていなかった。我々の GAOUP 模型は、現在報告されているモデルの中で相分離と Hyperuniformity を記述する最も単純な模型の一つである。そのため、生物集団における Hyperuniformity を理解するための基礎的な模型となりうることが期待される。また、GAOUP 模型は、揺動散逸定理の破れを制御する模型であるため、揺動散逸定理の破れ方によって、どのように相分離や Hyperuniformity が生じるかを理解することができる。このような揺動散逸定理の破れと系の密度揺らぎの増大や減衰の関係の理解が進めば、広い非平衡系における Hyperuniformity の起源を理解できることが期待される。

## 第 II 部

# アモルファス系における Hyperuniformity

## 第 4 章

# 2次元系における Jamming 転移点近傍での Hyperuniformity

### 4.1 背景

系の中に非熱的な粒子を詰めていくと、系が低密度の時には、外力に対して流動的であるが、高密度になると、外力に対して弾性的に振舞う Jamming 相が生じる。この流動相から Jamming 相への相転移を Jamming 転移とよび、この転移点を Jamming 転移点  $\varphi_J$  と呼ぶ。この Jamming 転移点直上では、系の密度揺らぎに Hyperuniformity が生じることが知られている [17–22, 45]。Jamming 転移点近傍における Hyperuniformity は、 $q \rightarrow 0$  まで続く理想的な Hyperuniformity ではなく、ある中間的な長さスケールにおいてのみ存在する現象であることが知られている [19, 20, 45]。つまり、ある中間的な波数領域において構造因子  $S(q)$  はべき的な振る舞いを示すことが知られている。3次元系では、数値計算及び、実験によって、そのべき的振る舞いが  $S(q) \sim q$  であることが確かめられている [17, 18, 20–22, 45]。また、3次元以外の2次元系や、4次元や5次元の系においても Jamming 転移点近傍では Hyperuniformity が生じることが報告されている [19, 159]。これまで、3次元系以外の系においても Hyperuniformity のべき指数  $\alpha$  は  $\alpha = 1$  となると考えられてきたが、3次元系以外の系において、Hyperuniformity のべき指数の値は報告されていない。そこで本章では、2次元 Jamming 転移点近傍における Hyperuniformity のべき的振る舞いについて詳細に調べた。

本章の構成は以下の通りである。まずはじめに、4.2節において、ガラス転移と Jamming 転移に関するレビューを行う。この節で、ガラス転移と Jamming 転移の性質及び、Jamming 転移点近傍での Hyperuniformity について説明を行う。4.3節で、この章で用いる数値計算の設定について説明する。続いて、4.4節において、多成分系における構造因子について説明する。2次元系では、結晶化を阻害するために系を2成分系にしていることから、系の密度揺らぎを適切に解析するためには、多成分系へと拡張された構造因子を用いる必要がある。4.5節では、

本章の主結果である2次元系における Hyperuniformity 指数  $\alpha$  について議論する。我々は、2次元系では、3次元系の  $\alpha \approx 1$  と異なり、Hyperuniformity 指数が  $\alpha \approx 0.63$  となることを確認した。4.6節において、べき指数  $\alpha$  が空間次元依存性を持つ理由を考察する。最後に、4.7節で本章で得られた結果をまとめる。

## 4.2 ガラス転移と Jamming 転移

通常、物質は気体、液体、個体の3つに分類できる。気体と液体は、乱れた粒子構造をしており、外力に対して流動的に振舞うのに対して、固体は綺麗な整列した構造を持っており、外力に対して弾性的な振る舞いをする。しかし、世の中にはアモルファス物質という、外力に対して弾性的に振舞うのに対して、粒子配置が乱れた物質が存在する。このようなアモルファス物質は我々の身の回りにありふれている。図4.1にアモルファス物質の例を示した。図4.1の

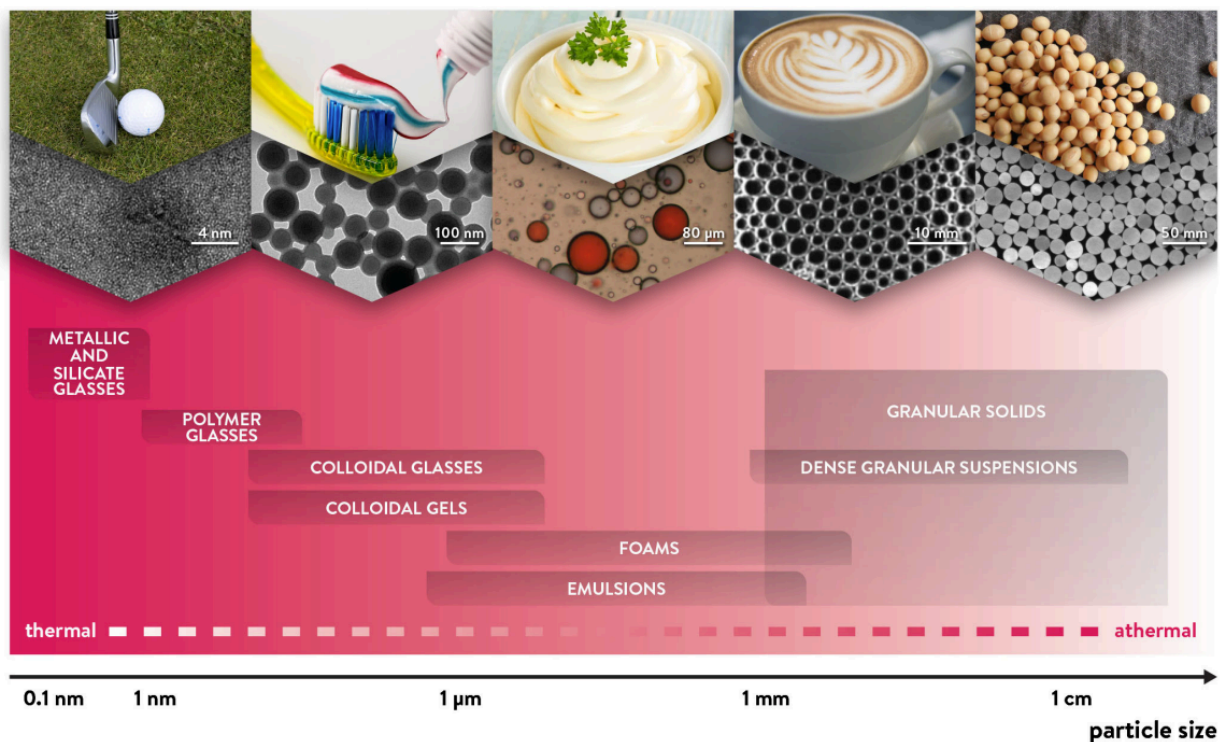


Fig.4.1 アモルファス固体の例。系を構成する粒子のサイズはナノメートルスケールからセンチメートルスケールに渡って存在する。粒子サイズがマイクロメートル程度よりも小さい場合には、熱揺らぎが重要な寄与を果たすが、それより大きなスケールでは、粒子は非熱的な粒子として振舞う。図は [160] より引用した。

下軸は、系を構成する粒子の典型的な大きさを示している。アモルファス物質は、その構成要素がナノメートルスケールの分子であるような金属ガラスから、ミリメートルスケールにおけ

る泡の集まりや、センチメートルスケールにおける大豆の集まりなど、幅広い長さスケールに渡って存在している。系を構成する粒子の大きさによって、粒子に対する熱揺らぎの影響が異なる。ナノメートルやマイクロメートル程度のスケールでは、熱揺らぎが粒子の運動に重要な役割を果たすのに対して、粒子の直径がマイクロメートルよりも大きくなると、粒子の熱揺らぎは無視できるほど小さくなる。このような熱揺らぎが無視できるほど大きな粒子を非熱的な粒子と呼び、そのような粒子によって構成されている系を非熱的な系と呼ぶ。

熱的な系では、系の温度を下げていくと、系の粘性が急激に増大するガラス転移が生じる [161–164]。系は、ガラス転移によって、流動的な状態から非流動的な状態になる。このガラス転移が本当の熱力学的な相転移であり、ガラス相が真に存在するかはいまだに決着がついておらず、物理学における重要な未解決問題として知られている。

一方で、非熱的な系では、粒子の密度が低い場合には、系は外力に対して流動的に振舞うが、系の密度を上げていくと、粒子がちょうど接触し始める密度である Jamming 転移密度で、系は剛性を獲得し、外力に対して弾性的に振舞う Jamming 相へと転移する [11, 12, 165]。この Jamming 転移は、ガラス転移とは異なり臨界現象を伴う相転移であることが知られている。しかし、系は温度を持たず、散逸の効果のみを受けるので、系は熱平衡系ではなく、Jamming 転移は非平衡相転移である。

このようにガラス転移と Jamming 転移は互いに流動相から非流動相への転移であり、両者の粒子配置は相転移前後でも乱れたままであるなど共通点が多い。実際、Jamming 転移はガラス転移の温度 0 の極限であると長い間考えられていた [165] が、近年の研究でこの 2 つの転移は明確に異なる転移であることが明かとなっている [166]。

この節では、ガラス転移と Jamming 転移について説明を行う。この節は、次のような構成になっている。まずはじめに、4.2.4 小節では、ガラス転移における動的な性質を説明したのち、ガラス転移を説明する最も有力な理論であるガラスの平均場理論を説明する。また、本研究では主に 2次元系を扱うことから、2次元ガラス特有の性質についても議論する。次に、4.2.1 小節では、Jamming 転移の臨界性について説明を行う。続く、4.2.3 小節では、Jamming 転移とガラス転移の関係について説明を行う。はじめに、Jamming 転移とガラス転移が異なる転移であることを説明し、ガラスの平均場理論から予測された、熱的アニールによる Jamming 転移点の上昇についても議論する。この節の最後に 4.2.4 小節では、Jamming 転移点近傍における Hyperuniformity と過冷却液体の Inherent Structure における Hyperuniformity について議論する。

### 4.2.1 ガラス転移

通常、液体を冷やしていくと、結晶化温度  $T_m$  で結晶化する。しかし、液体を急冷もしくは不純物を入れ、結晶化を阻害することで、 $T_m$  以下であっても系を液体状態にすることができ

る。このような液体を過冷却液体と呼ぶ。

まずはじめに、系の温度を低下させた際の液体のエントロピーを考える。系のエントロピー変化を示したのが図 4.2 (a) である。灰色点線で示したように、通常、系の温度を下げていく

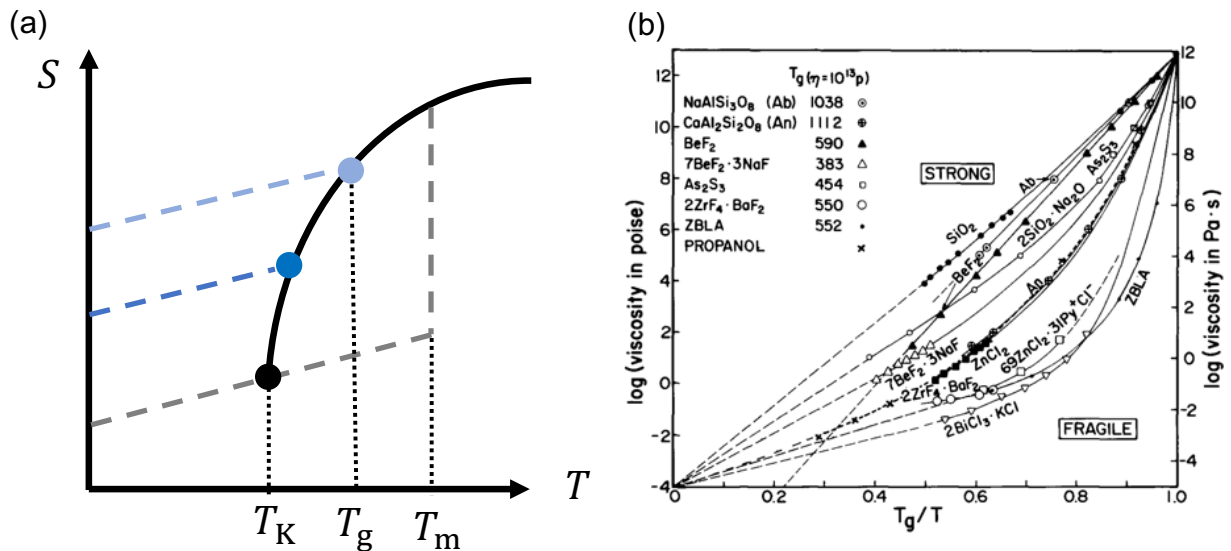


Fig.4.2 (a) 過冷却液体における系のエントロピー変化 (黒線) と固体のエントロピー変化 (灰色点線) の模式図。  $T_m$  は結晶化温度を示し、結晶化を阻害することで、系をより低温まで平衡化することができ、それによりエントロピーの低い系を得ることができる。しかし、緩和時間が増大し、系の平衡化を待つことができなくなると、系は平衡状態ではなくなる。実用上、粘性が  $10^{13}$  Poise となった温度を  $T_g$  とする。  $T_K$  は結晶のエントロピーと過冷却液体のエントロピーが一致する温度である。(b) 様々な物質に対する粘性の発散。  $T$  が 1 桁変わる間に、粘性  $\eta$  は 16 桁も増大している。この図は [167] より引用した。

と、系は  $T_m$  で結晶へと一次転移し、系のエントロピーは急激に減少する。これは、液体の粒子配置が乱雑であるため実現される配置が結晶に比べて非常に大きいためである。結晶化すると、系のエントロピーの減少の傾きは小さくなる。一方、結晶化し損なった過冷却液体においても、温度を下げていくに従ってエントロピーが減少していく。系の温度を徐々に減少させていくと、図 4.2 (b) に示したように、粘性  $\eta$  や緩和時間が急激に増大していく。そして、どこかで緩和時間が人間が待つことのできる限界を超えてしまい、もはや人間の忍耐力では平衡系へと緩和するのを待つことができなくなる。そこで、人間の観測できる限り長い時間として、粘性が  $10^{13}$  Poise となった温度をガラス転移点  $T_g$  と定義する。  $T_g$  の定義からもわかるように、人間がより忍耐強く待つことができれば、例えば、  $10^{14}$  Poise になるまで待つことができれば、  $T_g$  の値は変化することになる。この場合には、  $T_g$  は元々の温度から低温へとシフトし、系のエントロピーはより小さくなることが期待される。このような変化を示したのが、図 4.2 (a) における  $T_g$  よりも低温側の濃い青丸である。つまり、  $T_g$  は、人間がどれだけ



ゆっくり辛抱強く温度を下げれるかに依存しているのである。

もし、人類が非常に忍耐強くどこまでもゆっくりと温度を下げる事ができるとしよう。すると、ここまで得られた  $T_g$  を外挿することで、過冷却液体のエントロピーがどのように減少していくか予想することができる。すると、興味深いことに、過冷却液体と結晶のエントロピーのラインと交差する温度が存在することがわかる。もし、過冷却液体がこの温度以下でも存在できるならば、乱れた配置である液体のエントロピーが秩序だった構造である結晶よりも下がってしまうことになる。これは Kauzmann パラドックスと呼ばれ、この結晶のエントロピーと過冷却液体のエントロピーが一致する温度を Kauzmann 温度  $T_K$  もしくは、理想ガラス転移点と呼ぶ。実際には、過冷却液体は  $T_K$  で何かが起こり、結晶よりも小さいエントロピーになることはないと考えられている。

図 4.2 (b) には、過冷却液体の粘性  $\eta$  の温度依存性を示した。粘性と緩和時間には、およその比例関係にあるので、この図は温度が低くなるに従って、系の緩和時間が増大している図としても捉えることができる。驚異的なことに、温度が一桁変化する間に、 $\eta$  は 16 桁も増大している。なお、ここでの  $T_g$  は図 4.2(a) での  $T_g$  である。興味深いことに Fragile 液体においては、有限の温度で粘性  $\eta$  が発散しているように見える。この  $\eta$  の発散は、Vogel-Fulcher-Tamman 則 [161, 168]

$$\eta = \eta_0 \exp\left(\frac{DT_0}{T - T_0}\right) \quad (4.1)$$

うまくフィッティングできることが知られている。ここで出てくるフィッティングパラメータ  $T_0$  はおよそ図 4.2 (a) において、外挿で求めた  $T_K$  と近い値になることが知られている。これは、一見すると  $T_K$  で何らかの相転移が起きている可能性を示唆している。しかし、これだけを持って有限温度のガラス転移点が存在するということはできない。なぜならば、Bässler 則 [169]

$$\eta = \eta_0 \exp\left(K\left(\frac{T^*}{T}\right)^2\right) \quad (4.2)$$

のような有限温度では発散しないフィッティング曲線でも、この実験結果をうまくフィッティングすることができてしまうからである。

#### 過冷却液体における静的及び動的相関関数

さて、ここまでは、過冷却液体のマクロな性質が温度の減少に伴って、どのように変化するかを見てきた。次に、過冷却液体における系の構造や粒子のダイナミクスがどのように変化するかをみる。図 4.3 (a) は、数値シミュレーションによって得られた Lennard-Jones 液体における、静的構造因子  $S(q)$  の温度依存性を示している。静的構造因子  $S(q)$  には、 $T$  の減少に伴った、大きな変化は見られない [170, 173]。粒子間程度に生じる第一ピークが僅かに高くなる程度である。一方で、この温度変化の間に拡散係数  $D$  は 3 桁ほど小さくなっており、粒子のダ

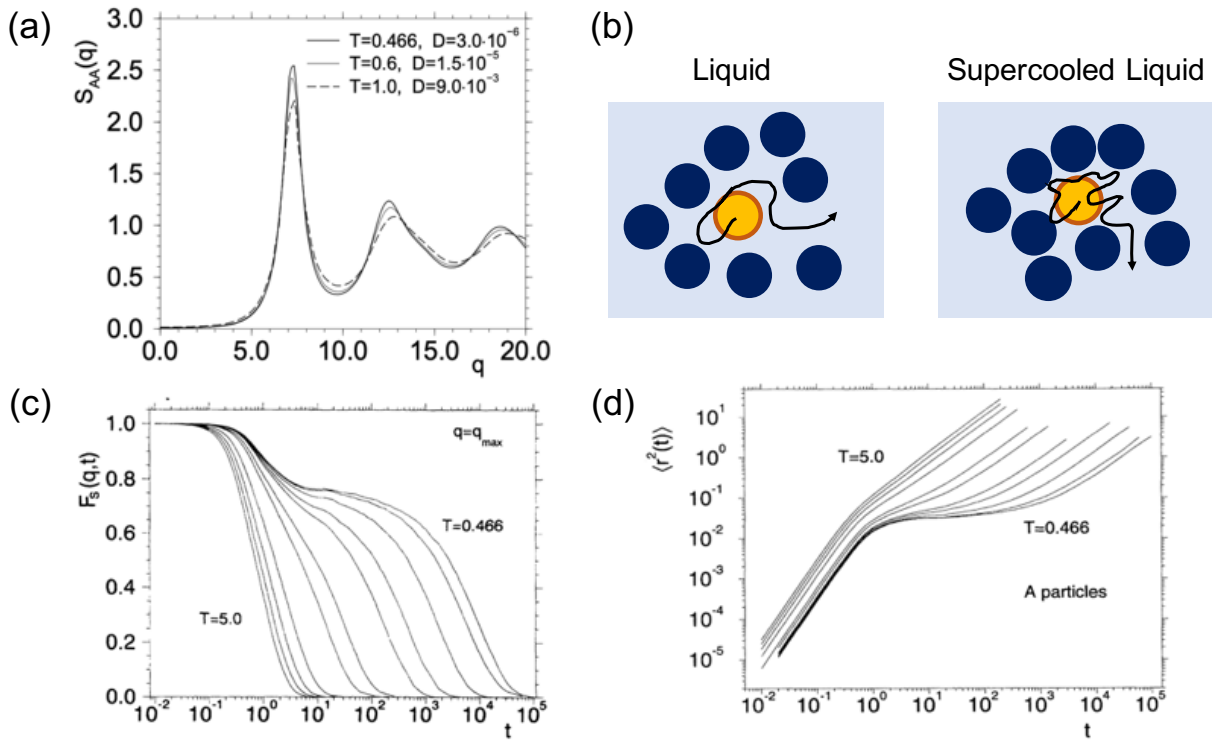


Fig.4.3 (a) 過冷却液体における静的構造因子  $S(q)$  [170]。  $S(q)$  は、  $T$  が減少しても、わずかにピークが高くなるだけである。(b) 高温液体と過冷却液体における粒子のダイナミクスの変化。高温の液体の場合には、粒子は粒子の間を通り抜け自由に移動することができるが、過冷却液体では、周りの粒子に囲まれて自由に移動することができなくなる。周りの粒子に囚われて同じ位置に長時間止まる振る舞いをケージ効果と呼ぶ。(c) 過冷却液体における中間散乱関数  $F_s(q,t)$  [171]。系の温度が下がっていくに従って、  $F_s(q,t)$  の中間的な時間スケールに特徴的なプラトー領域が生じる。これは粒子がケージに囚われている時間スケールであり、プラトー領域を超えた緩和は、粒子がケージから抜け出すケージジャンプを示している。(d) 過冷却液体における平均二乗変位  $\langle \Delta r^2(t) \rangle$  [172]。  $F_s(q,t)$  と同様に、系の温度が下がっていくと中間的な時間スケールでプラトーが生じる。(a),(c),(d) はそれぞれ [170–172] より引用した。

ダイナミクスは急激に遅くなっている。つまり、静的構造因子では、ダイナミクスの急激な変化に伴った、構造変化を捉えることはできない。

しかし、構造ではなく粒子のダイナミクスを見ると、事情は一変する。密度の時間相関関数である中間散乱関数の  $F(q,t)$

$$F(\mathbf{q}, t) = \frac{1}{N} \langle \delta\rho(\mathbf{q}, t) \delta\rho(-\mathbf{q}, 0) \rangle \tag{4.3}$$

の self part<sup>\*1</sup>を考える。ここで、 $\delta\rho(\mathbf{q}, t)$  は時刻  $t$  における密度場の Fourier 変換である。図 4.3 (c) に、Lennard-Jones 液体における  $F_s(k, t)$  を示した [170, 171]。高温側では、 $F_s(q, t)$  は急速に 0 へと緩和していく様子が見て取れる。温度を下げていくと、 $F_s(q, t)$  の振る舞いに変化する。低温側の  $F_s(q, t)$  は、最初は高温側と同様に緩和が生じる。この緩和を  $\beta$  緩和と呼ぶ。しかし、 $\beta$  緩和の後、 $F_s(q, t)$  はある一定値に長時間留まる振る舞いが見られ、その後、再び緩和する。このような  $F_s(q, t)$  の振る舞いは、二段階緩和と呼ばれ、 $F_s(q, t)$  が一定値になる領域のことをプラトー領域と呼ぶ。プラトー領域の長さは、温度を低温にするに従って、長くなっていることがわかる。これは、系の緩和時間が増大していることを示唆している。実際、構造緩和時間を  $F_s(q, t) = 1/e$  となる時間と定義すれば、温度が一桁変化する間に、緩和時間は 4 桁ほど増大していることがわかる。一方で、プラトーの高さは温度にほぼ依存していない。

二段階緩和の起源は、ミクロな粒子が周りの粒子に囚われてしまうことに起因する。高温と低温での粒子の運動を模式的に描いたのが図 4.3(b) である。高温では、粒子は周りの粒子の間をすり抜けることで、周りの粒子に捕らえられことなく移動できる。一方で、過冷却液体においては、粒子は周りの粒子に囲まれて抜け出そうにも抜け出せなくなる。粒子が抜け出すには、偶然 1 粒子分の空間が開くしかない。そのため、粒子は 1 粒子分の距離スケールを移動するのに非常に時間がかかることになる。この現象は、周りの粒子という檻に粒子が閉じ込められて抜け出せないという状況からケージ効果と呼ばれる。 $F_s(q, t)$  の高さはどれだけ粒子が元の位置から変位しているかに依存しており、プラトーの高さが温度によって変化しないことは、ケージのサイズが、温度に依存していないことを示している。プラトー以降の時間スケールにおける緩和は、粒子がケージを抜け出して移動する時間スケールであり、粒子はケージを抜け出し次のケージに移動することからケージジャンプと呼ばれ、ケージジャンプによる緩和を  $\alpha$  緩和と呼ぶ。また、粒子がケージから抜け出すので、構造の変化が生じる。そのため、この  $\alpha$  緩和を構造緩和と呼ぶこともある。

$F_s(q, t)$  と同様の振る舞いは、粒子の平均二乗変位  $\langle \Delta r^2(t) \rangle$

$$\langle \Delta r^2(t) \rangle = \left\langle \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_i(0)|^2 \right\rangle \quad (4.4)$$

でも観測される。同じ系で平均二乗変位を調べたのが図 4.3 (d) である。高温では平均二乗変位は、弾道領域における  $\langle \Delta r^2(t) \rangle \propto t^2$  という振る舞いから、拡散領域における  $\langle \Delta r^2(t) \rangle \propto t$  という振る舞いに、 $t \approx O(1)$  でクロスオーバーしている。一方で、低温領域では、粒子はケージに囚われてしまうために、粒子の拡散が進まない領域が生じる。

以上のように、過冷却液体においては、温度を下げていくと、系の静的な構造には大きな変化が生じないのに対して、ダイナミクスには 2 段階緩和という特徴的な緩和現象が生じる。

<sup>\*1</sup> 粒子の添字をつけて密度場の Fourier 変換を定義すると  $\delta\rho_i(\mathbf{q}, t) = e^{-\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i(t)}$  とかける。この時、 $F(q, t)$  の self part は、 $F_s(q, t) = \frac{1}{N} \langle \delta\rho_i(\mathbf{q}, t) \delta\rho_i(-\mathbf{q}, 0) \rangle$  と書くことができる。

### 動的不均一性

過冷却液体のダイナミクスは系が低温にいくに従って、急激に遅くなっていき、緩和時間がある温度で発散するような振る舞いが見られることをみた。しかし、ガラス転移が本当に相転移であるならば、相転移に近づくとつれて系の揺らぎが発達し、相関長が伸びていくはずである。気液相転移では、密度揺らぎの発散が  $S(k)$  を通して捉えることができるが、図 4.3(a) のように、過冷却液体においては、一切、相関長が伸びているような振る舞いは見られない。

では、ガラス転移では、相関長は存在しないのだろうか? 実は、これは粒子の配置を見ていただけだから相関長が見つからなかったのである。しかし、ガラス転移で特徴的なのは急激な粒子のダイナミクスの変化であり、実際、ダイナミクスの中に相関長が隠れていることが知られている [174–178]。そこで、粒子のダイナミクスを見てみよう。構造緩和時間程度の間粒子がどの程度動いたかを矢印の大きさを表したのが図 4.4(a) である。粒子が止まっている領域と動いている領域がまばらに存在するのではなく、動いている粒子がある固まって動いているように見える。そこで、このような状況を定量化するために、4点相関関数と呼ばれる量を導入する [177]。まずはじめに、自己オーバーラップ関数  $Q_i(t) = \theta(a - |\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_i(0)|)$  を用いて、オーバーラップ関数  $Q(t) = N^{-1} \sum_i Q_i(t)$  を導入する。ここで、 $\theta(t)$  はヘヴィサイドの階段関数である。これらの量を用いて、4点相関関数  $\chi_4(t)$  は、

$$\chi_4(t) = N \left[ \langle Q(t)^2 \rangle - \langle Q(t) \rangle^2 \right] \quad (4.5)$$

と書くことができる。実際に、Lennard-Jones 液体での数値シミュレーションで得られた4点相関関数  $\chi_4(t)$  が図 4.4 (b) である。 $\chi_4(t)$  はちょうど、構造緩和時間  $\tau_\alpha$  程度の時間でピークを持つことが知られており、確かに、低温にいくに従って、ピーク位置は長時間側へシフトしていく振る舞いが見られる。また、 $\chi_4$  のピークの高さは、おおよそ揺らぎが相関している体積に対応しており、ピークの高さの増大は、系を支配する動的な揺らぎが増大していることを示唆している。

この動的相関における相関長を計算するために、Fourier 変換されたオーバーラップ関数  $Q(\mathbf{q}, t) = \sum_i Q_i e^{-\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i(0)}$  を用いた、4点相関関数に対応する構造因子

$$S_4(\mathbf{q}, t) = \frac{1}{N} \langle Q(\mathbf{q}, t) Q(-\mathbf{q}, t) \rangle \quad (4.6)$$

がよく用いられる。 $S_4(\mathbf{q}, t)$  は、Lennard-Jones 液体では、Ornstein-Zernike 型の関数

$$S_4(\mathbf{q}, t) = \frac{\chi(t)}{1 + (q\xi)^2} \quad (4.7)$$

でフィッティングできることが知られている\*2。実際、Lennard-Jones 系の結果を Ornstein-Zernike 型の関数でフィッティングした結果が、図 4.4 (c) であり、確かによく一致していること

\*2 Ornstein-Zernike 型の関数に乗るかどうかはモデルに依存していることが知られている [181]。

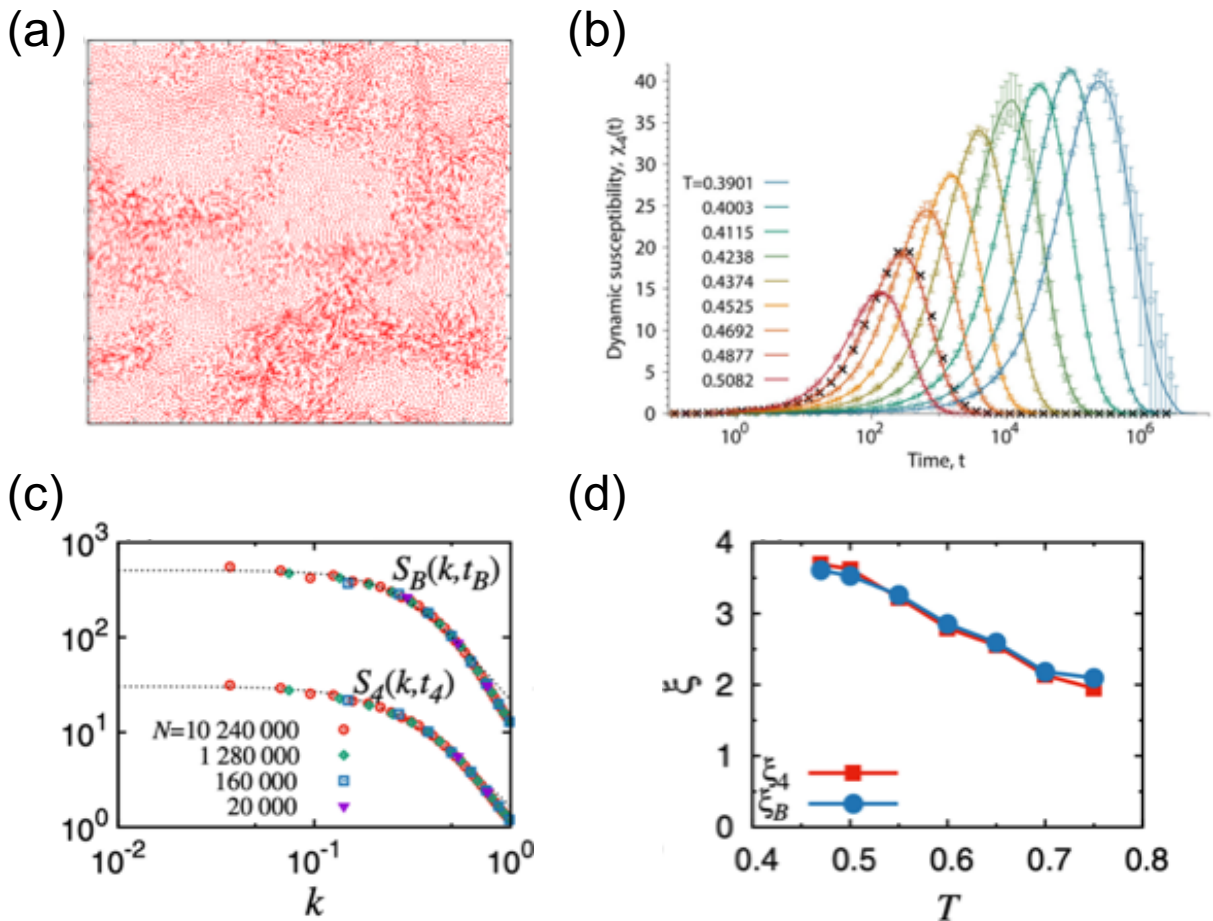


Fig.4.4 (a) 過冷却液体における動的不均一性。矢印は、緩和時間程度の中の1粒子変位を表し、その長さは変位の大きさを表す。粒子の変位が大きい領域と小さい領域が存在することがわかる [163]。この図は、[163]より引用した。(b) 動的相関長  $\chi_4(t)$  の温度依存性 [179]。  $\chi_4(t)$  のピークの高さは、揺らぎが相関している長さを表し、低温にいくに従ってピークが増大することから相関長が増大することがわかる。この図は、[179]より引用した。(c) 4点相関関数に対応する構造因子  $S_4(q, t)$  の温度依存性 [180]。  $S_4(q, t)$  は Ornstein-Zernike 型の関数でフィッティングできることがわかる。ここで  $S_B(q, t)$  はボンド破断によって定義される構造因子である。(d) (c) に対応する  $S_4(q, t)$  から得られた動的相関長の温度依存性。 [180]。低温にいくに従って動的相関長が伸びていることがわかる。ここで (b) の図と (c), (d) のシミュレーションでは、系の数密度が異なるため、緩和時間の温度依存性が異なることに注意。(c), (d) の図は、[180]より引用した。

がわかる。また、このフィッティングから得られた動的相関長を示したのが図 4.4 (d) である。動的相関長は、低温にいくに従い増大するもののその増大の仕方は緩やかであり、緩和時間がかなり大きくなっていても  $5\sigma$  程度の大きさであることがわかる。図 4.4(c)(d) に現れる  $S_B(q, t)$  や  $\xi_B$  は、詳しくは議論しないがボンド破断によって定義される相関関数とその相関長である。ボンド破断は、粒子が周りの粒子と協同的に動いているかを調べる量であり、協同的に移動しているかを見分ける。

動的相関から相関長が確認されたからといって、ガラス転移がダイナミクスのみ支配されていると結論づけることはできない。それは、静的構造の中に我々が見つかることのできていない構造特徴が存在する可能性があり、そのような特徴を捉えるのに適切な秩序変数を我々が知らないだけかもしれないからである。

### ガラス転移の平均場描像

この節では、ガラスの平均場描像の概要について説明する。ガラスの平均場描像の歴史は、分子運動論の直系の子孫であるモード結合理論から始まった [182–185]。その後、スピングラス模型の一つである p-spin 模型の平均場理論における相関関数のダイナミクスが、モード結合理論と等価であることが指摘され [186–189]、この p-spin 模型を用いて、ガラス転移の熱力学理論が構築された。p-spin 模型はスピン系であり、この p-spin 模型の熱力学理論を液体論と結びつけたレプリカ液体論が作られ、液体のガラス転移における熱力学的な側面を平均場のレベルで理論的に計算できるようになった [190]。この章では、p-spin 模型を元にしながらかガラスの平均場描像を説明する。より詳細な説明については [190–192] 等に解説がある。

p-spin 模型のハミルトニアン [191] は

$$H = - \sum_{ijk} J_{ijk} S_i S_j S_k \quad (4.8)$$

である。ここでは p-spin 模型の中でも、用いられることの多い  $p = 3$  のハミルトニアンを示している。一般の  $p$  の場合にも系の基本的な性質は変化しない [191]。  $J_{ijk}$  のそれぞれの値はランダムであり、それぞれの値はガウス分布に従う。また、理論的な計算の利便のために、  $\sum_i S_i^2 = N$  という拘束条件をかけて、  $S_i$  を離散スピンではなく連続変数とみなした理論が用いられる。また、スピンのダイナミクスは次の Langevin 方程式に従う。

$$\frac{\partial S_i}{\partial t} = -\gamma S_i - \frac{\partial H}{\partial S_i} + \eta_i = -\gamma S_i + \sum_{jk} J_{ijk} S_j S_k + \eta_i \quad (4.9)$$

なお、  $\gamma$  に依存する項は拘束条件から来る。平均場理論であるので、以下で説明する描像は全て  $d \rightarrow \infty$  の場合の解析によって得られた描像である。

さて、まずは平均場描像におけるガラス転移の熱力学的な側面について説明しよう。図 4.5(a) に示すようなたくさんの山と谷があるようなエネルギーランドスケープを考える。実際に系で

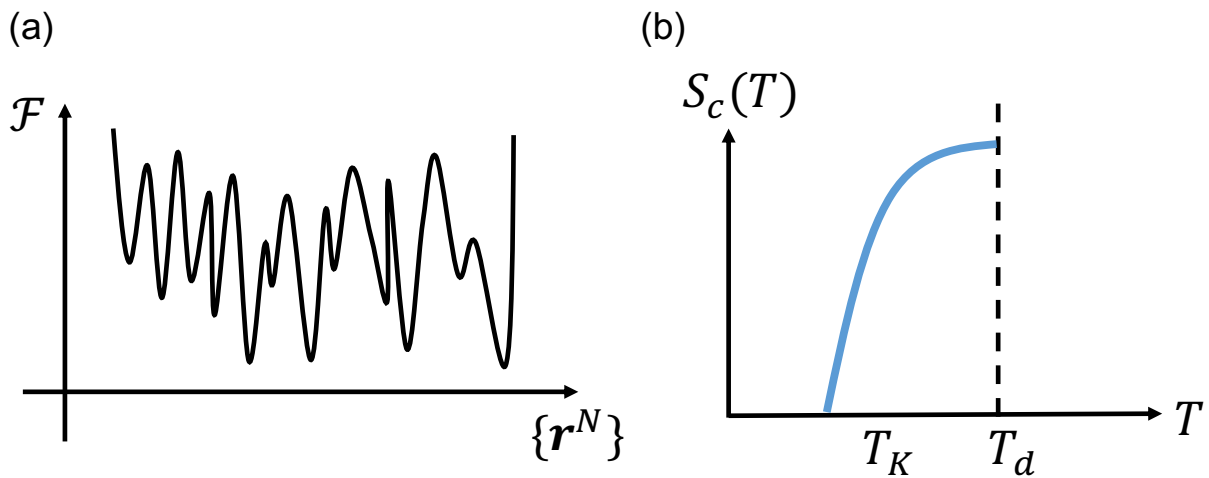


Fig.4.5 (a) 系のエネルギーランドスケープの模式図。エネルギーランドスケープは複雑な多谷構造をしている。(b) 構造エントロピー  $S_c(T)$  の温度依存性の模式図。 $T = T_d$  において初めて構造エントロピー  $S_c(T)$  が生じ、温度の減少に伴って単調に  $S_c(T)$  は減少していく。そして、 $T = T_K$  で  $S_c(T)$  は 0 になる。この  $T_K$  は Kauzmann 温度に対応している。

実現される様々な粒子配置は、このランドスケープ上の 1 点として記述され、液体状態ではこの山と谷の間を運動している。系の温度が高く熱揺らぎが十分にある場合には、系の状態は簡単にこの山を乗り越え隣の谷へと遷移していく。高温状態では、ここで見えているような多谷構造を乗り越えるのに十分な熱揺らぎが存在するので、谷の構造を感じず、一つの大きな谷の中を運動しているのと同じ状態になっている。さて、系の温度を下げていくと、温度  $T_d$  程度で、図 4.5(a) で見えている谷を系は感じるようになってくる。さらに、温度を下げていくと、ある温度  $T_K$  で、谷を乗り越えるのに十分な熱揺らぎが系に与えられなくなり、系は一つの谷の中にはまったまま抜け出せなくなってしまふ。このような谷にはまって抜け出せなくなっている状態をガラス状態とする。そして、自由に谷の間を移動していた状態から、谷から抜け出せなくなった状態への転移が平均場理論におけるガラス転移である。この時、各谷の状態は、元々の液体状態でも通るようなありふれた状態であるため、この谷の中にある状態の粒子配置はランダムなままである。ここで、無数の谷に落ち込んでしまうと隣の谷に移ることができないので、各谷は一種の熱力学的状態を表すことになる。そこで各谷の状態を添字  $\alpha$  を用いて区別する。系を構成する粒子数を  $N$  として、各状態  $\alpha$  における 1 粒子あたりの自由エネルギーを  $f_\alpha$  とかく。すると、この時、この状態  $\alpha$  では、分配関数が  $Z_\alpha = e^{-\beta N f_\alpha}$  とかける。系全体で

の分配関数はこのような状態  $\alpha$  について全て足し上げてものである\*<sup>3</sup>、

$$Z = \sum_{\alpha} e^{-\beta N f_{\alpha}} = \int df e^{\beta N f} \sum_{\alpha} \delta(f - f_{\alpha}) \quad (4.11)$$

と書くことができる。ここで  $\beta = 1/T$  は逆温度である。さて、ここでの総和では自由エネルギーが  $f$  となるような粒子配置を全て足しあげており、これは状態数を表すので、 $N(f) = \sum_{\alpha} \delta(f - f_{\alpha})$  とかき、構造エントロピー  $S_c(f)$  を次のように定義する。

$$S_c(f) = \frac{1}{N} \log N(f) \quad (4.12)$$

この構造エントロピーを用いることで、分配関数は

$$Z = \int df e^{\beta N (TS_c(f) - f)} \quad (4.13)$$

となる。ここでこの積分を鞍点法で評価することで、

$$Z \approx e^{N(S_c(f^*; T) - f^*)} \quad (4.14)$$

とかける。ここで、 $f^*$  は、 $TS_c(f) - f$  の最大値を与える  $f$  である。これは、

$$\left. \frac{\partial S_c}{\partial f} \right|_{f=f^*} = \frac{1}{T} \quad (4.15)$$

から計算できる。つまり、構造エントロピーを  $f$  の関数で書いたときの傾きが  $1/T$  である。ランドスケープには、最小値が存在するため、 $f$  の最小値  $f_K$  では、構造エントロピーは  $S_c(f_K) = 0$  である。一方で、高温の液体の場合には、ランドスケープの構造は単純で多谷構造が存在しないため、 $S_c(f)$  は存在しない。つまり、ランドスケープが初めて生じる自由エネルギー  $f_d$  が存在する。さて、 $S_c(f)$  は  $f_K, f_d$  の範囲では、 $T > 0$  であるから、 $f$  に対して単調な増加関数であるので、 $S_c(f)$  を逆に  $T$  の関数として、書くこともできる。ここで、構造エントロピー  $S_c$  を温度  $T$  の関数として、模式的に書いたものが図 4.5(b) である。 $S_c(f)$  が存在する  $f$  の最小値  $f_K$  と  $f$  の最大値  $f_d$  に対応して、 $T_K$  と  $T_d$  が存在する。温度  $T_d$  で構造エントロピー  $S_c(T)$  が生じる。つまり、この  $T_d$  は先ほど説明したランドスケープの谷を感じ始める温度  $T_d$  と同じものである。 $T_d$  から、さらに温度を下げていくと、徐々に  $S_c(T)$  は減少していき、最終的に  $T_K$  で  $S_c(T)$  は 0 になっている。これは、固体と液体のエントロピー差が 0 になってしまう振る舞いと非常によく似ている。この点こそが図 4.2(a) で説明した Kauzmann 温度  $T_K$  である。

\*<sup>3</sup>

$$Z = \int DS e^{-\beta H(S)} = \sum_{\alpha} \int_{S \in \alpha} DS e^{-\beta H(S)} = \sum_{\alpha} Z_{\alpha} \quad (4.10)$$

ここで、状態  $\alpha$  がそれぞれ独立な熱力学状態として振舞うということを使っている。



さて、この  $T_d$  と  $T_K$  で一体何が起きているのか考えよう。まずは、 $T_d$  について考えてみよう。この点は、エネルギーランドスケープの多谷構造をちょうど感じ始める点である。 $T_d$  で何が起きるかを見るために、スピンの時間相関関数  $C(t) = \frac{1}{N} \overline{\langle \sum_i S_i(t) S_i(0) \rangle}$  を考える。ここで  $\overline{\langle \dots \rangle}$  は、ランダムな相互作用行列  $J_{ijk}$  に対する平均である。例えば、ある物理量  $A$  についての平均は、 $\bar{A} = \int dJ A(J) P(J)$  である。スピン相関関数  $C(t)$  の発展方程式はいくつかの近似のもとで

$$\frac{\partial}{\partial t} C(t) = -TC(t) - \frac{3}{2T} \int ds C^2(t-s) \frac{\partial C(s)}{\partial s} \quad (4.16)$$

という方程式に従うことが知られている。この相関関数の時間発展方程式は、モード結合理論から導出される  $F(k, t)$  の発展方程式

$$\frac{\partial}{\partial t} F(k, t) = -\frac{Dk^2}{S(k)} F(k, t) - \int M(k, t-s) \frac{\partial F(k, s)}{\partial s} \quad (4.17)$$

と同じ構造をしている。ここで、記憶関数  $M(k, t)$  は

$$M(k, t) = \frac{\rho DS(k)}{2} \int dq V(q, k-q) F(q, t) F(k-q, t) \quad (4.18)$$

であり、粒子の多体効果を表す。モード結合理論では、ダイナミクスがちょうど凍結する転移の存在が予言される。つまり、高温では必ず  $C(t)$  は長時間で0に緩和するのに対して、ある温度  $T_d$  以下になると  $C(t)$  が長時間でも有限の値を持つようになる。その時、転移点近傍では、緩和時間

$$\tau \sim \frac{1}{|T - T_d|^\gamma} \quad (4.19)$$

という発散を示すことが知られている。ここで現れる転移点  $T_d$  が先ほどの構造エントロピー  $S_c(T)$  が生じ始める点である。モード結合理論が予測する転移は、通常の相転移と同じべき的な転移であり、実験で見られている VFT 則とは異なるため、理論的にガラス転移を説明していないように思うかもしれない。しかし、モード結合理論は平均場理論であり、相転移に重要な揺らぎの寄与が入っておらず、一度谷に嵌まり込んでしまうとでてこれない。そのため、現実系では、熱揺らぎによる活性化過程が存在するため、 $T_d$  では運動は凍結せず、べき的な転移は実際には見られないのである。だが、現実系でもべき的な振る舞いは確認されており、 $T_d$  では転移でなく、クロスオーバーが生じると考えられている。

さて、次は  $T_K$  で何が起きているか考えてみよう。 $T_K$  で起きているのは熱力学的な転移である。この転移は、通常の磁化などを秩序変数をとることで捉えられない。そこで秩序変数としてオーバーラップ関数  $Q$  を

$$Q = \frac{1}{N} \sum_i \overline{\langle S_i \rangle^2} = \frac{1}{N} \sum_i S_i^\alpha S_i^\beta \quad (4.20)$$

と定義する。ここで、 $S^\alpha$  と  $S^\beta$  は異なるスピン配置であり、 $Q$  は2つのスピン配置がどれだけ似ているかを示す量である。系が高温であれば、2つの配置は全くのランダムであり、 $Q = 0$  となる。しかし、 $T_K$  では、 $Q = 0$  の相から  $Q \neq 0$  の相への転移が起きるのである。これは、レプリカ対称性の破れと言われている。以上のように、 $T_d$  はダイナミクスの変化が生じる温度であり、 $T_K$  は系の静的な性質が変化する温度である。

この章では、ガラス転移の平均場描像として、p-spin 模型とレプリカ液体論によってなされた描像について説明した。しかし、ガラス転移を説明する理論にはこれ以外にも様々なものが存在する。そのような理論については [163, 193] に解説がある。

## 2次元化冷却液体におけるガラス転移と Mermin-Wagner 揺らぎ

前章では、ガラス転移の平均場理論について説明を行った。これは、無限次元における理論である。次に、無限次元とは対照的に低次元におけるガラス転移の特徴的な振る舞いについて説明する。

### ガラスの振動物性

まずはじめに、振動物性について考えてみる。結晶の振動物性を記述するのに Debye 模型が用いられる。Debye 模型の振動状態密度 (vibrational density of state, vDOS) は  $g_D(\omega) \propto \omega^{d-1}$  という空間次元依存性を持つことが知られている。ここで、 $d$  は空間次元を表す。ガラスの振動物性においては、結晶における振動状態密度との違いを調べることで、ガラスの特徴的な振動物性を調べることができる。ガラスにおける振動状態密度の結果が図 4.6 である。ここで、結晶との違いをより際立たせるために、振動状態密度を Debye 模型から得られる  $\omega^{d-1}$  で割っている。2次元および3次元ともに低波数領域では、ガラスの振動状態密度が Debye 模型の振動状態密度に漸近する振る舞いが見られる。3次元の結果に示されているように、低周波のモードはボゾンモードだけでなく、 $\omega^4$  というモードが存在することが知られている [194]。図に示した  $P_k$  はモード  $k$  への粒子の参加率を示しており、 $P_k$  が小さいほどそのモードに寄与している粒子が少ないことを示している。そのため、 $P_k$  が小さいモードは局在化した振動を示しており、図 4.6(a) における黄色のデータは低波数では  $\omega^4$  の局在モードが存在することを示している。一方で、より高周波では Debye 模型の振動状態密度に比べて、モードが過剰に存在するし、ある周波数  $\omega_{BP}$  でピークが存在することがわかる。このピークはボゾンピークと呼ばれている。この振動状態密度のボゾンピークに対応して、比熱でもピークが存在することが知られている [195]。

局在モードが存在するものの、全体としては低周波におけるガラスの振動状態密度の振る舞いは漸近している。つまり、低周波では結晶において知られている物理がガラスにも存在する可能性がある。実際に、2次元結晶に存在する Mermin-Wagner 揺らぎ [96] が、2次元のガラス系においても存在することが知られている [180, 196–198]。

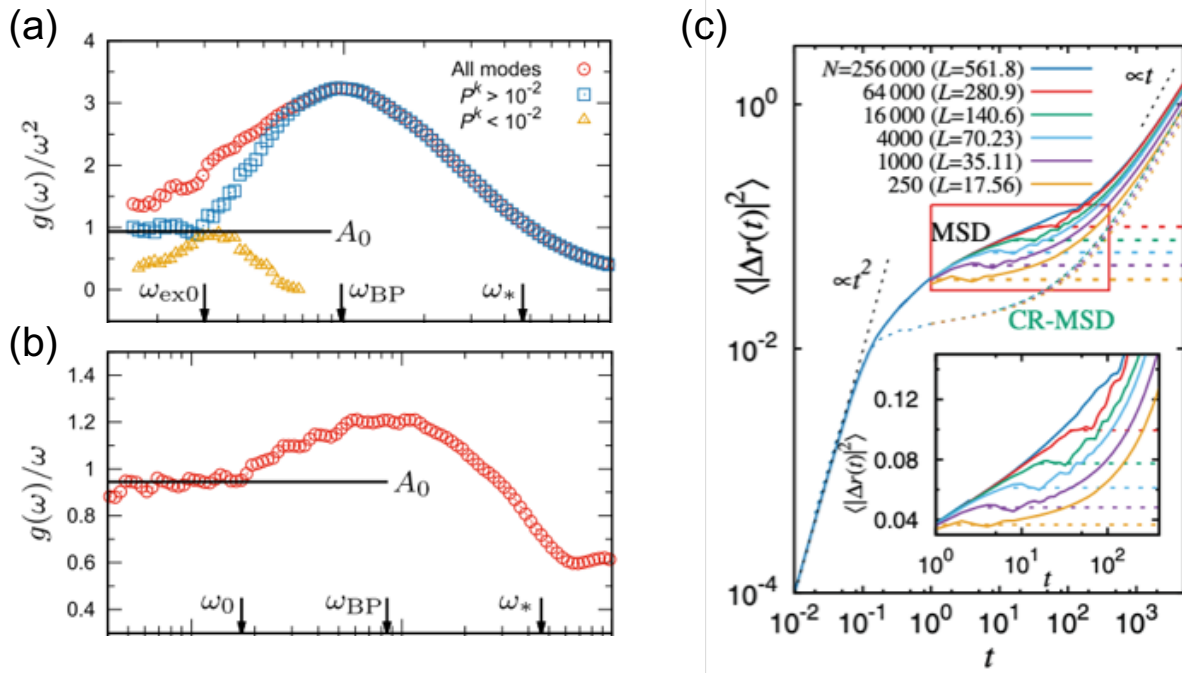


Fig.4.6 3次元 (a) 及び 2次元 (b) の振動状態密度 [194]。低周波では、両者は Debye 模型の振動状態  $g_D(\omega) \propto \omega^{d-1}$  に漸近している。 $P_k$  はモード  $k$  への粒子の参加率であり、 $P_k$  の小さい局在モードが Debye とは異なる  $\omega^4$  という振る舞いをしている。(c) 2次元過冷却液体における通常の前乗変位  $\langle \Delta r^2 \rangle$  (MSD) とケージ相対平均二乗変位  $\langle (\Delta r^{CR})^2 \rangle$  (CR-MSD) [180]。MSD は系の大きさ  $L$  が大きくなるに従って、プラトーの高さが上昇し、プラトーが見える領域が小さくなっている。一方で、CR-MSD はシステムサイズ  $L$  に依存せず、同じ振る舞いを捉えている。図 (a),(b) は [194] より引用し、(c) は、[180] より引用した。

熱振動による変位強度を考えてみる [180]。ガラスにおいて、熱振動の効果が顕著に現れるのは、粒子がケージにとらわれている時間スケールである。変位場は  $\mathbf{u}(\mathbf{R}, t) = \mathbf{r}(t) - \mathbf{R}$  と書くことができる。ここで、 $\mathbf{r}(t)$  は、時刻  $t$  における粒子の位置であり、 $\mathbf{R}$  は粒子の平衡位置である。変位場  $\mathbf{u}$  は、異なる波数  $\mathbf{k}$  のモードの重ね合わせとして、

$$\mathbf{u}(t) = \left(\frac{L}{2\pi}\right)^d \int d\mathbf{k} \mathbf{u}_k(t) e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}} \quad (4.21)$$

と書くことができる。等分配則により、各モードのエネルギーが  $\omega_k^2 |\mathbf{u}_k|^2 = k_B T / m$  とかけることを用いて、熱振動による変位強度は、

$$\langle |\mathbf{u}|^2 \rangle = \frac{dk_B T}{m} \int \frac{g(\omega)}{\omega^2} d\omega \quad (4.22)$$

とかける。ここで、先ほど見たように、低周波ではガラスの振動状態密度が Debye 模型の振動状態密度  $g_D(\omega)$  となることを仮定する。 $\omega$  についての積分領域は、有限のシステムにおい

ては、最小の周波数  $\omega_{\min} = 2\pi L/c$  が存在する。ここで、 $c$  は音速である。また、積分の上限は、図 4.6 にあるように、 $\omega_0$  とする。 $\omega_0$  には、システムサイズ依存性は存在しない。すると、 $d = 2$  では、

$$\langle |\mathbf{u}|^2 \rangle \propto \int_{\omega_{\min}}^{\omega_0} \frac{1}{\omega} d\omega = \log \frac{\omega_0}{\omega_{\min}} \propto \log L \quad (4.23)$$

となる。 $\langle |\mathbf{u}|^2 \rangle$  は MSD の高さに対応する。つまり、 $\langle |\mathbf{u}|^2 \rangle$  はシステムサイズを持ち、尚且つ  $L \rightarrow \infty$  の極限で発散する。

先ほども述べたように、 $\langle |\mathbf{u}|^2 \rangle$  は、ケージ振動が生じる時間スケールにおいて、顕著になる。2次元における MSD のシステムサイズ依存性を示したのが、図 4.6 (c) である。これを見ると、明らかにシステムサイズに依存して、MSD のプラトーの領域が高くなっていき、プラトーが見える時間スケールが狭くなっていくことがわかる。

Mermin-Wagner 揺らぎは、解析からもわかるように低周波における長波長の音波である。この揺らぎによって粒子が動くため、ガラス特有のプラトーが消えていくように見えるのである。しかし、これだけでは、巨大な 2次元系ではガラス転移特有の遅いダイナミクスが存在しないとは言い切れない。なぜならば、ガラスの構造緩和に本質的なのは、ケージ間のジャンプであり、Mermin-Wagner 揺らぎによる粒子の変位は必ずしも、構造を緩和させているわけではないからである。Mermin-Wagner 揺らぎでは、着目している粒子とケージの粒子は同じ揺らぎに晒されるため、協同的に運動する。そこで、ケージジャンプによる変位のみを抜き出すために、粒子の周りのケージ粒子との共同運動を抜いた量であるケージ相対変位  $\Delta \mathbf{r}_i^{\text{CR}}$  [180, 196–198]

$$\Delta \mathbf{r}_i^{\text{CR}} = \Delta \mathbf{r}_i - \frac{1}{N_{nm}} \sum_{j \in N_{nm}} \Delta \mathbf{r}_j. \quad (4.24)$$

を定義する。ここで、最初の項は  $i$  番目の粒子の変位であり、2項目は  $i$  番目のケージを構成する第一近接粒子全体の重心移動を示している。つまり、 $i$  番目の粒子の変位のうち、ケージと一緒に移動している部分を抜いているのである。この量を用いて次のケージ相対平均二乗変位を計算する。

$$\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle = \frac{1}{N} \sum_i \langle (\Delta \mathbf{r}_i^{\text{CR}}(t))^2 \rangle. \quad (4.25)$$

その結果が、図 4.6 (c) の  $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$  である。この結果をみると、システムサイズ依存性が完全に消えることがわかる。そして、 $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$  にはプラトーが存在しており、ガラス特有のダイナミクスは、Mermin-Wagner 揺らぎの裏に隠れていたことがわかる。

上記の結果から、2次元ガラスには結晶と同様に Mermin-Wagner 揺らぎが存在するが、適切な変数を選択し、Mermin-Wagner 揺らぎの効果を取り除くことで、3次元のガラスと同様のガラスの遅いダイナミクスが見えることがわかる。

## 4.2.2 Jamming 転移

4.2節の最初に説明したように、粒子の大きさが大きくなると、粒子に働く熱揺らぎが無視できるようになる。このように熱揺らぎが無視できる非熱的な系で生じるガラス転移に類似した相転移現象として、Jamming 転移と呼ばれる現象が知られている [11, 12, 165]。この節では、Jamming 転移について説明する。

箱の中に柔らかい粒子を詰めることを考えよう。図 4.7 は、箱の中の粒子を増やしていった様子を模式的に書いたものである。箱の中の粒子が少ない時、つまり、系が低密度の場合に

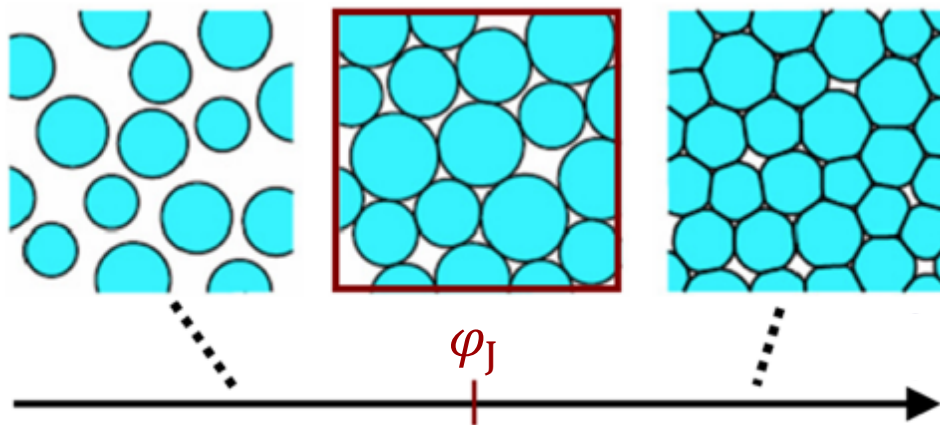


Fig.4.7 柔らかい粒子を系に詰めて行った際の模式図。系の充填率  $\phi$  が低い場合には、粒子間に接触は存在しない。そのため、系は外力に対して流動的に振舞う。しかし、粒子を詰めていくと、ちょうど全ての粒子が接触をもつ充填率  $\phi_J$  が存在する。この  $\phi_J$  において、平均粒子間接触数はちょうど isostatic 条件である  $Z_c = 2d$  となる。ここで  $d$  は空間次元である。 $\phi_J$  より高い密度では、系は外力に対して弾性的に振舞う。この流動的な相から弾性的な相への転移を Jamming 転移と呼ぶ。この図は [11] より引用した。

は、粒子の間に接触はなく、系は外力に対して流動的に振舞う。さらに系に粒子を詰めていくと、粒子はある充填率で急に接触を持つようになる。粒子をさらに詰めていくと、系は外力に対して弾性的に振舞う Jamming 相となる。この流動相から Jamming 相への転移を Jamming 転移と呼び、転移点を Jamming 転移点  $\phi_J$  と呼ぶ。

Jamming 転移点では、粒子がちょうど接触するようになることが重要である。そこで、粒子の平均接触数  $Z$  を考えると、先ほどの粒子を詰めていく時にも説明したように、低密度では粒子は接触をもたないが、Jamming 転移点で全ての粒子が接触を持つようになる。そのため、 $Z$  は Jamming 転移点で不連続な変化を示す。Jamming 転移点  $\phi_J$  よりも高い密度では、 $Z$  は充填率が上がるに従って、連続的に増大する。Jamming 転移点直上では、粒子間接触数が  $Z_c = 2d$  となることが知られている。ここで  $d$  は空間次元である。

Jamming 転移点直上で接触数が  $Z_c = 2d$  になるのは、次のように理解できる。系の中の粒子の数を  $N$  とすると、接触数を一種の自由度だと思えば、この自由度は、 $ZN/2$  ある。一方で、力の釣り合い条件から拘束条件は  $dN$  個である。よって、系が剛性を得るためには、拘束条件が自由度よりも多くなければいけないので、

$$Z \geq 2d \quad (4.26)$$

となる。一方で、Jamming 転移点直上では、全ての粒子がちょうど接触している。この時、粒子の重心が持つ自由度  $dN$  が、粒子の接触点の数  $2ZN/2$  で抑えられているので、

$$Z \leq 2d \quad (4.27)$$

となる。以上から、Jamming 転移点では、 $Z = 2d$  とならなければいけない。この  $Z = 2d$  は isostatic 条件と呼ばれる。

### $\varphi_J$ の分布

Jamming 転移点  $\varphi_J$  は、サンプルごとに揺らぐ。ここでは、サンプルごとにどのように揺らぐかを考える。O'Hern *et al.* は、Jamming 転移点の分布  $P(\varphi_J)$  は、粒子数  $N$  を増やしていくと、ある密度で鋭いピークになることを示した [199]。この振る舞いは、熱力学極限  $N \rightarrow \infty$  で、Jamming 転移点はある充填率に収束することを示唆している。このピーク位置での充填率は、十分大きな系の数値計算から、2次元ではおおよそ 84%、3次元ではおおよそ 64% となる。また、この  $P(\varphi_J)$  の形はポテンシャルの形には依存しない。この研究では、ランダムに粒子を配置した後で、クエンチした粒子配置を使って求められた Jamming 転移点であることを注意しておく。後の節でより詳細に述べるが、近年の研究で  $\varphi_J$  は常に一定値にいくのではなく、系の初期配置をどのように用意したかに依存して  $\varphi_J$  が系統的に変化することが明らかとなった [200–203]。

### Jamming 転移の臨界性

Jamming 転移とガラス転移の最も大きな違いは、Jamming 転移は明確な転移点  $\varphi_J$  を持ち、そこで、物理量が臨界的な振る舞いをするところである。この節では、Jamming 転移における臨界性について議論する。図 4.7 で議論したように、Jamming 転移点を境に粒子間に有限のコンタクトが生じる。そのため、Jamming 転移点  $\varphi_J$  以下では、接触数  $Z$  は 0 だが、 $\varphi_J$  より高密度では  $Z$  は有限になる。前述したように、Jamming 転移点直上では、接触数は isostatic 条件から  $Z_c = 2d$  となる。 $\varphi > \varphi_J$  における、余剰接触数は  $\Delta Z \propto (\varphi - \varphi_J)^{1/2}$  となることが知られている [199]。それを示したのが、図 4.8(a) である。興味深いことに、空間次元が 2次元と 3次元で同じ指数である。また、ここで接触数を計算する際には、粒子間の接触数が少ない、または 0 の粒子であるラトラー粒子は抜いている。ラトラー粒子は、粒子間接触が存在せず、系の

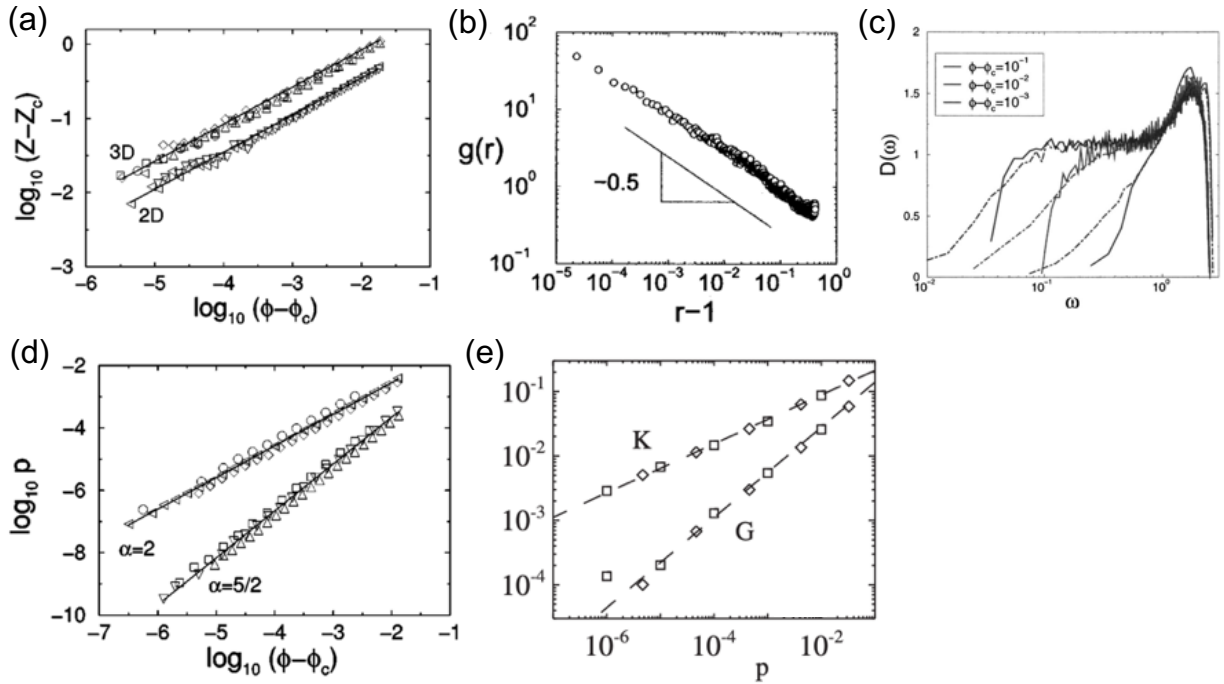


Fig.4.8 (a) 粒子間の余剰接触数  $\Delta Z = Z - Z_c = Z - 2d$  の Jamming 点からの距離  $\Delta\varphi = \varphi - \varphi_J$  依存性 [199]。粒子間の余剰接触数  $\Delta Z$  は 2次元と 3次元で  $\Delta Z = \Delta\varphi^{1/2}$  と振舞う。(b) 動径分布関数  $g(r)$  のピークからの緩和 [204]。 $g(r)$  はちょうど粒子と接触する  $r = 1$  でデルタ関数型のピークをもち、そこからべき的に緩和することが知られている。ここで、 $g(r) = (r - 1)^{-1/2}$  と振舞う。(c) Jamming 転移点近傍の振動状態密度  $D(\omega)$  [205]。Jamming 転移点に近づくにつれて低周波領域にプラトー領域が伸びていくことがわかる。このプラトー領域が終わる周波数  $\omega^*$  は  $\omega^* \propto \Delta\varphi$  となることが知られている [205]。(d) 圧力  $P$  の  $\Delta\varphi$  依存性 [199]。ここで、相互作用ポテンシャルは  $U(r_{ij}) \propto (1 - r_{ij}/\sigma_{ij})^\alpha$  とかける。この指数  $\alpha$  に依存して、圧力の  $\Delta\varphi$  依存性は変化し、 $P \propto \Delta\varphi^{\alpha-1}$  と振舞う。(e) 体積弾性率  $K$  とシア弾性率  $G$  の圧力  $P$  依存性 [206]。Herzian ポテンシャル系では、 $K \sim P^{1/3}$ 、 $G \sim P^{2/3}$  という依存性を持つ。圧力依存性から  $\Delta\varphi$  依存性に読み替えることができ、 $K$  は  $K \propto \Delta\varphi^{1/2}$  と振舞い、 $G$  は  $G \propto \Delta\varphi$  と振舞うことがわかる。 $K$  と  $G$  はその  $\Delta\varphi$  依存性がちょうど  $\Delta Z$  分だけずれている。(a),(d) は [199] より引用した。(b) は [204]、(c) は [205]、(e) は [206] から引用した。

構造を支えるのに寄与していない。そのため、以降の多くの臨界性を求める際に抜いて計算される。

Jamming 転移点では、粒子がちょうど接触するため動径分布関数  $g(r)$  は、粒子径程度の距離スケールで鋭いピークを持つ。そのピークからの減衰の仕方がべき的であり、 $g(r) \propto 1/\sqrt{1-r}$  の形を持つ (図 4.8(b)) [199]。この  $g(r)$  の振る舞いは、 $\Delta Z \propto (\varphi - \varphi_J)^{1/2}$  から理解することができる [11, 207]。Jamming 転移点直上を考えると、全ての粒子は他の粒子とちょうど触れてい

るだけであり、Jamming 転移点直上では、余剰コンタクトは存在しない。しかし、わずかに系を圧縮すると、系はすぐさま余剰な接触を持つことになる。このコンタクトは、Jamming 転移点直上でギリギリ触れていなかった粒子から生じることは明らかである。よって、Jamming 転移点直上における  $g(r)$  をちょうど1粒子の距離からわずかな距離  $\delta$  だけ積分した時にいる粒子数がおおよそ余剰コンタクトとなる。よって、余剰接触数は、

$$\Delta Z = \int_1^{1+\delta} g(r') dr' \quad (4.28)$$

となる。微小な距離  $\delta$  離れた粒子が実際に接触するためには、系を微小に圧縮する必要がある。そのため、微小な距離の変化  $\delta$  が生じるように、Jamming 転移点から系を  $\Delta\varphi = \varphi - \varphi_J$  だけ圧縮することができる。よって、 $\delta \sim \Delta\varphi$  である。このことから、 $g(r)$  は (4.28) の結果として、 $\Delta Z = (\varphi - \varphi_J)^{1/2} = \sqrt{\delta}$  の形にならないといけなため、 $g(r) \propto 1/\sqrt{1-r}$  となることがわかる。以上から、 $g(r)$  の形は、 $\Delta Z \propto \Delta\varphi^{1/2}$  から理解できることがわかる。

図 4.8 (c) は、Jamming 転移点近傍における振動状態密度  $D(\omega)$  を示している [199, 205, 207, 208]。Jamming 転移点近傍に近づくとつれて、 $D(\omega)$  の平らな領域が広がることが知られている。一方で、低波数では、Debye 則  $D(\omega) \propto \omega^{d-1}$  を満たすことが知られている。この Debye 則から  $\omega$  に依存しないプラトー領域へ遷移する周波数は  $\omega^*$  と呼ばれる。また、この  $\omega^*$  は  $\omega^* \propto \Delta\varphi^{1/2}$  となることが知られている。この  $\omega^*$  の依存性はちょうど  $\Delta Z$  の依存性と等しい。実際、 $\omega^* \propto \Delta Z$  であることが理論的に示されている [207]。

図 4.8 (d) は、圧力の臨界性を示している [199]。ここで  $\alpha$  とは、相互作用ポテンシャル  $U(r_{ij}) \propto (1-r_{ij}/\sigma_{ij})^\alpha$  の指数を示しており、 $\alpha = 2$  の場合には Harmonic ポテンシャル、 $\alpha = 2.5$  の場合には Herzian ポテンシャルである [11]。それぞれ、泡や粉体のモデルとなっていることが知られている。Jamming 転移点では、ちょうど粒子が触れ始め、 $\Delta\varphi$  によって、粒子間距離がコントロールされていることから、圧力は粒子間相互作用の形を反映し、 $P = \Delta\varphi^{\alpha-1}$  である。同様に、系のエネルギーも  $E \propto \Delta\varphi^\alpha$  となる。

図 4.8 (e) はそれぞれ体積弾性率  $K$  及び、シア弾性率  $G$  の  $\Delta\varphi$  依存性である [199, 206]。ここでは Herzian ポテンシャル系の結果を示しており、 $K \sim P^{1/3}$ 、 $G \sim P^{2/3}$  という依存性を持つ。圧力依存性から  $\Delta\varphi$  依存性に読み替えることができ、 $K$  は  $K \propto \Delta\varphi^{1/2}$  と振舞い、 $G$  は  $G \propto \Delta\varphi$  と振舞うことがわかる。この2つの依存性は  $K/G = \sqrt{\Delta\varphi}$  だけずれており、これはちょうど  $\Delta Z$  分の寄与だけずれていることを示唆している。また、ポテンシャル指数が  $\alpha$  の一般的な場合には、体積弾性率  $K \propto \Delta\varphi^{\alpha-2}$  であり、シア弾性率は  $G \propto \varphi^{\alpha-3/2}$  という  $\Delta\varphi$  依存性を持つ [199]。

これまでの多くの数値計算から、多くの物理量の臨界性が2次元と3次元で変化せず、Jamming 転移の上部臨界次元は2であると考えられている。しかし、シア粘性率では、2次元と3次元では臨界指数が異なることが示唆されており、正確な上部臨界次元が何かは決着していない [209]。ここまでに示したような Jamming 転移の臨界性は純粋な理論的な議論から説明



することができる [207]。

### 4.2.3 Jamming 転移とガラス転移の関係

Jamming 転移とガラス転移はどちらも、流動的な相から非流動的な相への転移という非常に類似した性質を持っている。事実、Jamming 転移は、温度が0の極限でのガラス転移であると考えられていた [165]。一方で、ガラス転移は緩和時間が発散するまでは、平衡状態であるものの、Jamming 転移は、非熱的な系で起こる転移であり、常に非平衡状態であるという顕著な違いが存在する。では、Jamming 転移とガラス転移は同じ現象の別の側面なのだろうか？

近年、ガラスの平均場理論から、Jamming 転移とガラス転移は異なる転移であることが示された [190, 192]。図 4.9(a) は、ガラスの平均場理論から得られた剛体球液体の相図である。グ

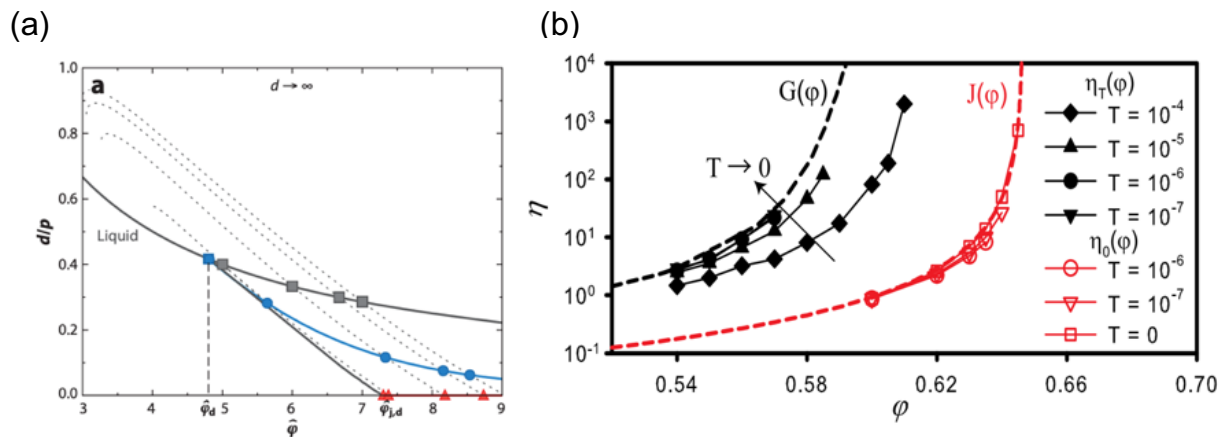


Fig.4.9 (a) レプリカ液体論より得られた  $d \rightarrow \infty$  での剛体球の相図 [192]。グレーの線はガラスの状態方程式を表し、 $\hat{\phi}_d$  が動的転移点である。剛体球系において  $1/p \rightarrow 0$  は Jamming 転移点に対応し、赤三角は Jamming 転移点を表す。系を  $\hat{\phi}_d$  よりも低温で平衡化したのち圧縮すると、より高い Jamming 転移点が得られることがわかる。ここからわかるように、ガラス転移と Jamming 転移は異なる転移である。(b) ガラス系と Jamming 系における粘性発散の振る舞いの違い [166]。  $\eta_T$  と  $\eta_0$  は異なる密度で発散しており、 $\eta_T$  はガラス転移点  $\phi_G$  で発散しており、 $\eta_0$  は Jamming 転移点で発散している。レオロジーの観点からも Jamming 転移とガラス転移は異なる転移であることを示している。(a)、(b) はそれぞれ [166, 192] より引用した。

レーの曲線は、 $d \rightarrow \infty$  における平衡液体の状態方程式を表している。 $\hat{\phi}_d$  が、動的転移点であり、 $\phi > \hat{\phi}_d$  がガラス状態に対応する。ガラス状態から圧縮し圧力を上げていくと、点線で示す状態を通る。圧縮していくと系は最終的に、 $1/p = 0$  となる点、つまり剛体球において圧力が発散する点である Jamming 転移点にたどり着く。つまり、Jamming 転移点は、ガラス相の非

常に深いところに存在し、ガラス転移と Jamming 転移は異なる転移であることがわかる。

Jamming 転移とガラス転移の違いは、数値計算によっても示された [166, 210]。Ikeda *et al.* は、有限温度でガラス転移を示し、 $T = 0$  で Jamming 転移を起こす Harmonic ポテンシャルで相互作用する系のレオロジーを調べた。この系には、温度  $T$  と抵抗係数  $\zeta$  で決まる時間スケール  $\tau_D = \zeta a^2 / (k_B T)$  と剪断流速  $\dot{\gamma}$  で決まる重要な無次元パラメータ  $\dot{\gamma}\tau_D$  が存在する。 $\dot{\gamma}\tau_D \ll 1$  の時には、粒子は剪断流よりも早くブラウン運動しており、 $\dot{\gamma}\tau_D \gg 1$  では、剪断流がブラウン運動に比べ速いことを示している。剪断流が遅く、剪断流に比べ熱揺らぎが速いような通常の液体の場合には、 $\dot{\gamma}\tau_D \ll 1$  であり、熱揺らぎのない Jamming 転移を起こすような非熱的な系では、 $\dot{\gamma}\tau_D \gg 1$  である。これは、 $\dot{\gamma}\tau_D$  パラメータの大小によって、熱的で液体的に振舞う系と非熱的な Jamming 系をつなぐことができることを意味している。実際、温度が十分に小さい系におけるストレス  $\sigma$  の振る舞いは、 $\dot{\gamma}\tau_D \ll 1$  と  $\dot{\gamma}\tau_D \gg 1$  の2つの領域で newton 流体 ( $\sigma = \eta\dot{\gamma}$ ) としての振る舞いが生じることが示された。ここから、 $\dot{\gamma}\tau_D \ll 1$  の際の粘性率を  $\eta_T$  とし、 $\dot{\gamma}\tau_D \gg 1$  の際の粘性率を  $\eta_0$  と定義することができる。

$\eta_T$  と  $\eta_0$  の充填率  $\phi$  依存性を示したのが図 4.9 (b) である。 $\eta_T$  と  $\eta_0$  は密度が増大するに伴って明らかに違う密度で発散する振る舞いが見られる。ここで  $\eta_T$  はガラス転移点  $\phi_G \approx 0.59$  に向かって発散しており、 $\eta_0$  は Jamming 転移点  $\phi_J \approx 0.64$  に向かって発散する振る舞いが見られている。つまり、系が熱的であればガラス転移点で、系が非熱的であれば Jamming 転移点で粘性は発散する。以上のレオロジーの研究からも Jamming 転移とガラス転移は異なる転移であることがわかる。

上記で議論したように図 4.9(a) の点線は、系をクエンチ、つまり、非平衡状態にした際に系が通る状態を示している。ここで Jamming 転移点は、系を動的転移点より高密度で平衡化させてからクエンチすると、通常の平衡液体をクエンチするのに比べてより大きくなることがわかる。つまり、Jamming 転移点は、ある特定の値になるわけではなく、クエンチする前の系がどのような平衡状態であったのかに依存して変わることを示している。

この平均場理論による理論的な予想は、有限次元の数値計算によって確認された [201]。図 4.10 (a) は、3次元単成分系を  $\phi_{eq}$  で平衡化させ、それに伴って  $\phi_J$  がどのように変化するかを示している。確かにある密度で Jamming 転移点  $\phi_J$  が上昇し始めることがわかる。この Jamming 転移点の上昇を始める密度は、モード結合理論が予測する動的転移点  $\phi_d$  と一致しており、平均場理論の結果と整合していることが確認されている。また、この結果は2次元における数値計算でも確かめられている [201]。さらに、系をより低温までアニールすることができる手法である SWAP Monte Carlo 法を用いた研究では、Jamming 転移点は  $\phi_J \approx 0.69$  程度まで上昇することが示されている [202]。

熱的アニールと同様の効果は、系に力学的変形を加える力学的アニールを用いても得られることが知られており [211]、力学的アニールを系に施すことでも Jamming 転移点が上昇することが示されている [203, 212]。図 4.10 (b) は、系を膨張圧縮変形することで、Jamming 転移点

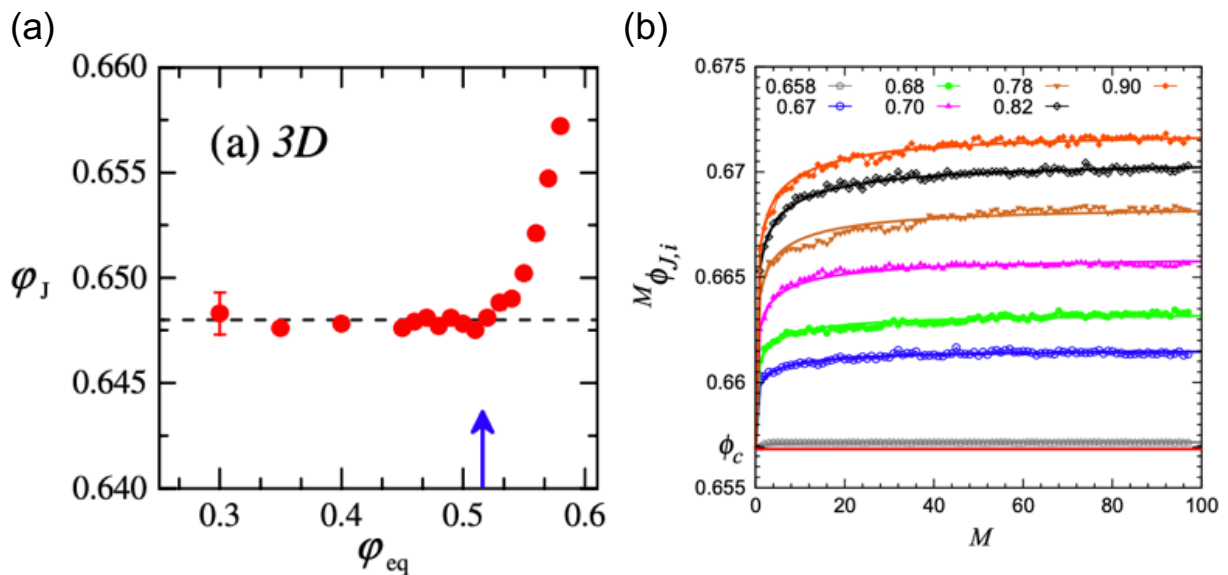


Fig.4.10 (a) 系に熱的アニールを施した際の Jamming 転移点の変化 [201]。剛体球的な系を  $\phi_{eq}$  で平衡化させ、その後圧縮することで Jamming 転移点  $\phi_J$  を得ている。この時、系を高密度で平衡化させると、Jamming 転移点が上昇する。この Jamming 転移点が上昇する点はモード結合理論が予想するエネルギーランドスケープの構造が変化する密度  $\phi_{MCT}$  と一致していることが知られている。(b) 系に対して、膨張圧縮サイクルを加えた際の Jamming 転移点の変化 [203]。横軸  $M$  は系に対して、何回膨張圧縮サイクルを繰り返すかを示しており、各線は最大圧縮密度  $\phi_{MAX}$  を変化させている。系の最大圧縮密度をあげると、Jamming 転移点が最大圧縮密度が小さい場合に比べて、より大きく上昇することがわかる。また、系に繰り返し膨張圧縮サイクルを加えることでも Jamming 転移点は上昇する。(a)、(b) はそれぞれ [201, 203] より引用した。

がどのように変化するかを示している。各線は系をどの密度まで圧縮するかを示しており、図の横軸は、圧縮膨張回数  $M$  を示している。赤い線は、圧縮を加えなかった場合の Jamming 転移点の値を示している。系を膨張圧縮し、アニールを加えると、明らかに圧縮を加えなかった場合に比べて上昇しており、その圧縮度合いによって Jamming 転移点の上昇も大きくなっていることがわかる。また、系を繰り返し膨張圧縮することによって、その最大圧縮密度  $\phi_{max}$  に依存した値に収束することがわかる。このように系の Jamming 転移点は熱的アニールや力学的アニールを系に施すことで系統的に変化させることができる。

#### 4.2.4 ガラス転移と Jamming 転移における Hyperuniformity

ここまでで、Jamming 転移近傍では物理量が通常の臨界現象と同様に、Jamming 転移点からの距離に依存して臨界的な振る舞いを示すことを見た。また、Jamming 転移点そのものは、ガ

ラスの平均場理論が予測した、アニール依存性を持つことがわかっている。しかし、Jamming 転移には、臨界性やガラスの平均場理論からでは説明することができない特徴的な現象が存在する。その一つが、Jamming 転移点直上における Hyperuniformity である [17–22, 45]。この節では、Jamming 転移点直上における Hyperuniformity の性質を議論する。また、近年報告された過冷却液体の Inherent Structure に存在する Hyperuniformity についても議論する。

Jamming 転移における Hyperuniformity は、*Donev et al.* によって、単成分 3 次元系の Jamming 転移点直上において発見された [17]。その後、2 成分系や 2 次元系などにおいても Hyperuniformity が存在することが確認された [18, 19]。図 4.11(a) は、3 次元単成分系における  $S(k)$  の充填率  $\phi$  依存性を示している。系が Jamming 転移点から遠い、高密度の  $\phi \approx 0.8$  で

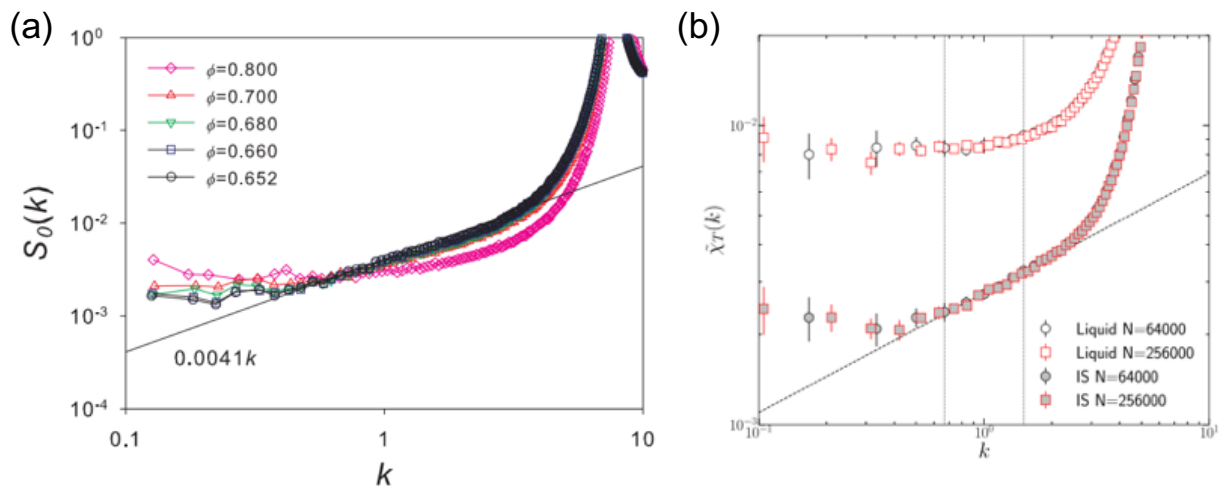


Fig.4.11 (a) Jamming 転移点直上における Hyperuniformity [20]。充填率が Jamming 転移点  $\phi_J \approx 0.64$  に近づいていくと、系の中間的な波数領域にべき的な振る舞い  $S(k) \sim k$  が生じる。このべき的な振る舞いは、 $k \rightarrow 0$  まで続くわけではなく、有限の波数で消えることが知られている。(b) 過冷却液体の Inherent Structure における Hyperuniformity [213]。液体の構造因子 (白抜き) はべき的な振る舞いを生じないのに対して、Inherent Structure における構造因子は中間領域でべき的な振る舞いが生じる。べきが生じる範囲は Jamming 転移点において Hyperuniformity が生じる領域とほぼ一致しているものの、その指数の値は  $\alpha \approx 0.4$  であり、Jamming 転移点で見られた  $\alpha = 1$  とは異なる。(a)、(b) はそれぞれ [20, 213] より引用した。

は、 $S(k)$  は通常の液体と類似した振る舞いをする。系の密度を下げていき、3 次元の Jamming 転移点  $\phi_J \approx 0.64$  近傍の密度を調べると、 $S(k)$  の中間的な波数領域にべき的な振る舞いが生じる。また、この 3 次元の Jamming 転移点近傍で見られる Hyperuniformity の指数は、 $\alpha = 1$  であり、この指数は、さまざまな文献で報告されている [17, 18, 20, 45]。図 4.11(a) からわかるように、Jamming 転移の Hyperuniformity は、真に長距離まで続くのではなく、中間的な長さ

スケールまでしか続いている [19, 20, 45]。この Hyperuniformity が生じ始める高波数領域の値は、2,3 粒子が結晶構造を組む際の長さスケールに対応しており、系に局所的には秩序だった構造が部分的に存在することを示している。一方で、Hyperuniformity が終わる距離スケールの起源は明らかになっていない。本論文では、この Hyperuniformity が終わる距離スケールを Hyperuniformity 波数  $k_{\text{HU}}$  と呼ぶことにする。 $k_{\text{HU}}$  は、2次元と3次元でほとんど変化しないことが報告されている [19, 20]。

ここまでは、Jamming 転移における Hyperuniformity について議論してきた。しかし、近年の研究で過冷却液体の Inherent Structure における密度揺らぎは Hyperuniformity を示すことが報告された。Inherent structure とは、系に対する熱揺らぎの影響をなくし、エネルギーランドスケープの底へと落とした状態であり、平衡化された粒子配置のポテンシャルエネルギーを最小化することで得られる。図 4.11(b) は、3次元の数密度  $\rho = 1.2$  の Kob-Andersen 液体における液体状態での構造因子  $\chi(k)$  と Inherent Structure での  $\chi(k)$  を示している [213]。液体状態の構造因子  $\chi(k)$  では、もちろん Hyperuniformity は存在していない。一方で、Inherent Structure での構造因子  $\chi(k)$  には、中間的な波数領域にべき的な振る舞いが存在していることが見て取れる。興味深いことに、このべき的な振る舞いが観測された波数領域は Jamming 転移点において構造因子にべき的な振る舞いが見える波数領域と一致している。べき的振る舞いが見られる波数領域は Jamming 転移の場合と一致している一方で、Inherent Structure における Hyperuniformity 指数は  $\alpha = 0.4$  となっており、Jamming 転移での指数の値  $\alpha = 1.0$  とは異なる。このように Inherent Structure において Hyperuniformity が生じることは明らかになったものの、この Inherent Structure における Hyperuniformity の性質は十分に明らかになっていない。

### 4.3 モデルと手法

本節では、この章で用いたモデルと手法について説明する。我々は、粒子数が  $N = 3000$  の摩擦のない直径が  $\sigma_L$  と  $\sigma_S$  の2種類の粒子が同数含まれる2次元2成分系を用いた。系が2成分系であるのは、結晶化を阻害するためである。粒子直径の比は、 $\sigma_L/\sigma_S = 1.4$  である。粒子間の相互作用には、Harmonic ポテンシャル

$$U(r_{ij}) = \frac{\varepsilon}{2} \left(1 - \frac{r_{ij}}{\sigma_{ij}}\right)^2 \quad (4.29)$$

を用いた。ここで  $r_{ij}$  は粒子  $i$  と  $j$  の間の距離であり、 $\sigma_{ij} = (\sigma_i + \sigma_j)/2$  である。 $r_{ij} < \sigma_{ij}$  のときには、粒子は接触しており、粒子間相互作用が働くが、それ以外の場合には、粒子間相互作用は働かない。数値計算においては、 $\sigma_S$ 、 $\varepsilon$  と  $\varepsilon/k_B$  をそれぞれ長さ、エネルギー、温度の単位として用いた。系の境界条件には周期的境界条件を用いた。

本研究では、先行研究と同様の方法で Jamming 配置を用意した [200, 212]。最初に、充

填率  $\varphi = 0.835$  で系に粒子をランダムに配置させる。その後、準静的に系を圧縮していき、 $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  まで系を圧縮したのち、系を再び膨張させ、系を膨張していく際に、1粒子あたりのエネルギー  $e$  が  $e = 10^{-16}$  となった点を Jamming 転移点  $\varphi_J$  とした [200, 212]。圧縮及び膨張の際には、密度を  $\Delta\varphi = 10^{-5}$  ずつ変化させた。圧縮及び膨張操作を準静的にするために、 $\Delta\varphi$  密度を変化させるごとに、FIRE 法を用いたエネルギー最小化を行った [214]\*4。本論文では、この手法によって生成された系を十分弱くアニールが施された系と呼ぶ。Jamming 転移点は、サンプルごとに揺らぎ、本研究での生成手法を用いて得られた Jamming 転移点の平均値は  $\varphi_J = 0.842$  である。

## 4.4 多成分系の構造因子

本章の研究目的は、2次元系における密度揺らぎを定量化し、Hyperuniformity について調べることである。通常 Hyperuniformity の性質を調べるためには、静的構造因子  $S(q)$  を用いる。しかし、 $S(q)$  は粒子を点粒子であると考えることから、粒径の異なる多成分系では Hyperuniformity が捉えられない。多成分系において Hyperuniformity を捉えるためには、粒子の大きさの違いを考慮した構造因子を用いる必要がある [18]。多成分系の構造因子には、どのように粒子の大きさの違いを考慮するかによって、3つの定義の仕方が存在する [18, 19, 46, 215]。ここでは、先行研究 [19] に従って定義 I,II,III とし、それぞれについて説明する。

### 4.4.1 定義 I

静的構造因子  $S(q)$  では、数密度揺らぎを計算していた。しかし、多成分系になると、1つの粒子が占める体積はそれぞれの大きさによって異なる。そこで、数密度揺らぎではなく、粒子

\*4 FIRE 法は、慣性の効果を用いることで最急勾配法に比べ、短時間でエネルギーを最小化する手法である。FIRE 法のような勾配を降るダイナミクスの際に慣性の効果を取り入れた手法は、通常、最近傍の局所最小値よりも低いミニマへ遷移する可能性がある。しかし、Jamming 転移のエネルギー最小化では、最近傍の局所最小状態を見つける必要があるため、このような過剰なエネルギー最小化を防ぐ必要がある。そこで、FIRE 法では、系が勾配を登り始めているかどうかを調べ、それを防ぐように最小化時のパラメータを変化させる機構が存在する。この機構によって、多くの場合、FIRE 法で得られる結果是最急勾配法の結果と一致する。しかし、エネルギーランドスケープが広い平坦な地形を持っている場合には、勾配を上り始めることがないため、系の状態がエネルギーランドスケープのどの位置で止まるかは、慣性の効果に依存する。そのため、エネルギーランドスケープが広い平坦な地形を持つ場合には、FIRE 法と最急勾配法の結果と一致しない。しかし、これは、通常 unjam 領域における緩和と関係し、Jamming 転移点よりも高い密度であれば、このような問題は引き起こさない。本研究では、FIRE 法の基本的なパラメータは先行研究 [214] に従った。FIRE 法では、慣性の効果を取り入れるために、計算途中で分子動力学法を行うことになるが、この際には、速度 Verlet 法を用いて差分化し、計算を行った。また、力の釣り合いは、 $\max_i f_i^2 < 10^{-22}$  となった時とした。本研究では、この閾値を  $4 \times 10^{-28}$  まで小さくしても  $S(q)$  の結果は変化しないことを確認している。

の大きさが考慮できる充填率揺らぎを考えることにする。そこで、系の局所的な充填率を

$$\varphi(\mathbf{r}) = \sum_i \Delta_i(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \quad (4.30)$$

のように定義する [21]。 $\Delta_i(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i)$  は、 $\mathbf{r}$  が粒子の中であれば 1、それ以外は 0 となる関数である。これは、粒子の中の座標であれば均一に重みをつける方法である。構造因子を計算するには局所充填率の Fourier 変換

$$\varphi_{\mathbf{q}} = \sum_i \Delta_{i\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i} \quad (4.31)$$

を用いる。ここで、2次元であれば、 $\Delta_{i\mathbf{q}}$  は次のように書くことができる [19]。

$$\Delta_{i\mathbf{q}} = v_i f\left(\frac{|\mathbf{q}| \sigma_i}{2}\right), \quad f(r) = \frac{2}{r^2} \int_0^r dr' r' J_0(r') \quad (4.32)$$

ここで、 $J_0(r')$  は第一種の Bessel 関数である。定義した  $\varphi_{\mathbf{q}}$  を用いることで、多成分系における構造因子は

$$\chi(\mathbf{q}) = \frac{1}{V} \langle \varphi_{\mathbf{q}} \varphi_{-\mathbf{q}} \rangle \quad (4.33)$$

と書くことができる。

#### 4.4.2 定義 II

定義 I では、ある空間点が粒子と重なっているかどうかで、充填率を計算していた。しかし、より単純には粒子は点粒子だと思い、その粒子の重心座標を含む際に粒子の体積だけ重みをかける方法がある。この場合の局所充填率は

$$\varphi(\mathbf{r}) = \sum_i v_i \delta_i(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i) \quad (4.34)$$

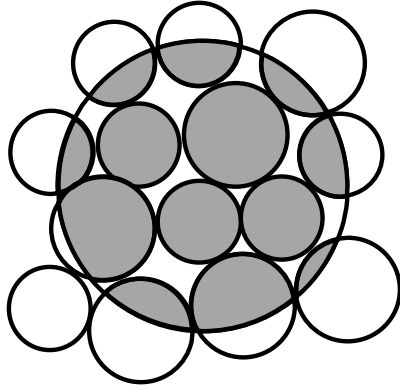
と定義される。この局所充填率の Fourier 変換は、

$$\varphi_{\mathbf{q}} = \sum_i v_i e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r}_i} \quad (4.35)$$

と書くことができ、式 (4.33) を用いて  $\chi(\mathbf{q})$  を定義する [46]。

粒子数揺らぎを計算する際に、ある領域  $\Omega$  を切り取りその中に入っている粒子数をカウントするが、 $\Omega$  の内部の充填率を計算する際に、局所充填率の定義によって結果が異なる。定義 I と II の違いについて視覚的に示したのが、図 4.12 である。定義 I の場合には、粒子と  $\Omega$  が重なっている領域が全て計算されるが、定義 II の場合には、粒子の重心が  $\Omega$  に含まれなければ  $\Omega$  の内部の充填率には寄与しない。特に、定義 II では、重心さえ含まれれば  $\Omega$  に含まれない領域も加算されるため、充填率が 1 を超える場合もありうる。このように  $\Omega$  の内部の充填率は、定義によって大きく異なることになる。

(a) 定義I



(b) 定義II

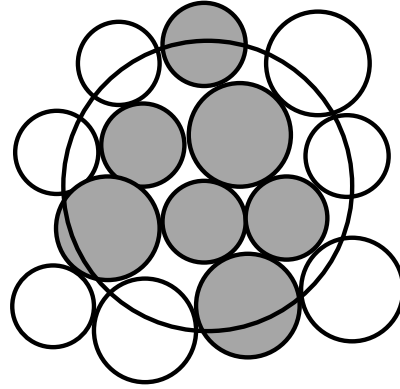


Fig.4.12 (a) 半径  $R$  の円の中に含まれる粒子の面積を定義 I を用いて計算した場合。半径  $R$  の円に入っている粒子の面積は全て足し上げられる。(b) 半径  $R$  の円の中に含まれる粒子の面積を定義 II を用いて計算した場合。定義 I とは異なり、重心が入っていれば半径  $R$  の中に入っていない部分も足し上げるため、充填率が 1 以上になることもありうる。

### 4.4.3 定義 III

3 つ目の定義は、定義 I,II とは異なり、局所的な充填率のような実空間表現は定義しない。定義 III は多成分系に対する圧縮率と各成分の  $S_{\mu\nu}(0)$  の関係を有限波数へと拡張したものである [18]。定義 III における構造因子  $\chi(\mathbf{q})$  は

$$(\chi(\mathbf{q}))^{-1} = \mathbf{x}^T \mathbf{S}^{-1}(\mathbf{q}) \mathbf{x} \quad (4.36)$$

と書くことができる。ここで  $\mathbf{x} = (x_1, x_2, \dots, x_n)$  であり、各  $x_i$  は成分  $i$  の粒子数比を表す。また、 $\mathbf{S}(\mathbf{q})$  は成分が  $S_{\nu\mu}(\mathbf{q}) = \langle \delta\rho_\nu(\mathbf{q}) \delta\rho_\mu^*(\mathbf{q}) \rangle / N$  となる各成分の間の静的構造因子行列である。多成分系における全静的構造因子は  $S(\mathbf{q}) = \sum_{\nu\mu=S,L} S_{\nu\mu}(\mathbf{q})$  である。2 成分系の場合には、 $\chi(\mathbf{q})$  を簡単に陽に書くことができ、

$$\chi(\mathbf{q}) = \frac{S_{SS}(\mathbf{q})S_{LL}(\mathbf{q}) - S_{LS}^2(\mathbf{q})}{x_S^2 S_{LL}(\mathbf{q}) + x_L^2 S_{SS}(\mathbf{q}) - 2x_S x_L S_{LS}(\mathbf{q})}, \quad (4.37)$$

となる [18]。

上記にあげた 3 つの  $\chi(\mathbf{q})$  の定義は、平衡系において低波数極限で等温圧縮率  $\chi_T$  と関係し、 $q \rightarrow 0$  で、 $\chi(q \rightarrow 0) = \rho k_B T \chi_T$  となる。もちろん、Jamming 系は非熱的な系であり、熱平衡系ではないため  $\lim_{q \rightarrow 0} \chi(q \rightarrow 0)$  は等温圧縮率  $\chi_T$  と直接的な関係は持たない。また、Jamming 転移点近傍の Hyperuniformity においては、 $\chi(\mathbf{q})$  の低波数領域の振る舞いは  $\chi(\mathbf{q})$  の定義に依存しない。一方で、高波数領域は定義に依存して振る舞いが大きく変化することが知られてい



る。そのため、高波数で Hyperuniformity のべき的な振る舞いが生じる波数の位置が変化し、Hyperuniformity が見える範囲が定義によって変化する [19]。

$\chi(q)$  のアンサンブル平均をとる際に、各粒子配置における系の大きさは等しい必要がある。しかし、先に述べたように  $\varphi_J$  はサンプルごとに揺らぐため、Jamming 転移点直上の系のサイズもサンプルごとに揺らぐ。我々は、アンサンブル平均のために、わずかに各系のサイズを調整し、系のサイズが等しくなるようにしているが、この操作の影響は無視できるほど小さいことを確認している。また、ここで示す結果については 300 サンプル用いてアンサンブル平均をとっている。

## 4.5 2次元における Jamming 転移点直上の Hyperuniformity とその指数

この節では、2次元における Jamming 転移点直上の Hyperuniformity について調べる。先行研究においても、3次元 [17, 18, 20, 45, 202] 及び、2次元においても Jamming 転移点直上で Hyperuniformity [19, 46] が生じることは報告されている。しかし、2次元系の Hyperuniformity の性質については十分に理解されているわけではない。特に、2次元系における Hyperuniformity の指数が3次元と等しいのか、異なるのかは理解されていない。そこで、本研究では、2次元系における Hyperuniformity のべき指数に着目する。

2次元における  $\varphi_J$  直上の構造因子  $\chi(q)$  を示したのが図 4.13 である。ここで、 $\chi(q)$  は定義 III を用いている。図 4.13 では、 $0.3 \lesssim q \lesssim 1.3$  の中間的な波数領域においてべき的な密度揺らぎの減衰が生じていることがわかる。この波数領域は3次元系でべき的な減衰が見られている領域と一致している [17, 18, 20, 45, 202]。このべき的な振る舞いは、 $q \rightarrow 0$  まで続くのではなく、ある波数  $q_{\text{HU}}$  までつづきそれ以降は揺らぎが増大し始めることがわかる。このような振る舞いは Jamming 転移点直上の Hyperuniformity は有限の長さスケールまでしか存在せず、ある特定の長さスケール  $q_{\text{HU}}^{-1}$  まで系に空間相関が生じていることを意味する。ここで、我々は  $\xi_{\text{HU}} = q_{\text{HU}}^{-1}$  のことを Hyperuniformity 長と呼ぶことにする。

$\chi(q)$  において、べき的な振る舞いが生じる領域  $0.3 \lesssim q \lesssim 1.3$  で  $\chi(q)$  を  $q^\alpha$  という関数でフィッティングし、指数  $\alpha$  を求めた。その結果、得られた指数  $\alpha$  は  $\alpha = 0.626 \pm 0.012$  であった。この指数は、明らかに3次元系で報告されている指数  $\alpha \approx 1$  よりも小さい。この結果は、Hyperuniformity の指数が空間次元に依存していることを示唆している。しかし、実はこの結果は完全に新規の結果ではない。2次元系を用いた先行研究 [19, 44, 46] においても、先行研究の著者らは指数の値は報告しなかったものの、先行研究のデータは確かに、我々の指数と同じ指数になっていることを確認している。

次に、この  $\alpha$  の値が  $\chi(q)$  の定義の仕方に依存しないことを確認する。3つの  $\chi(q)$  の定義を

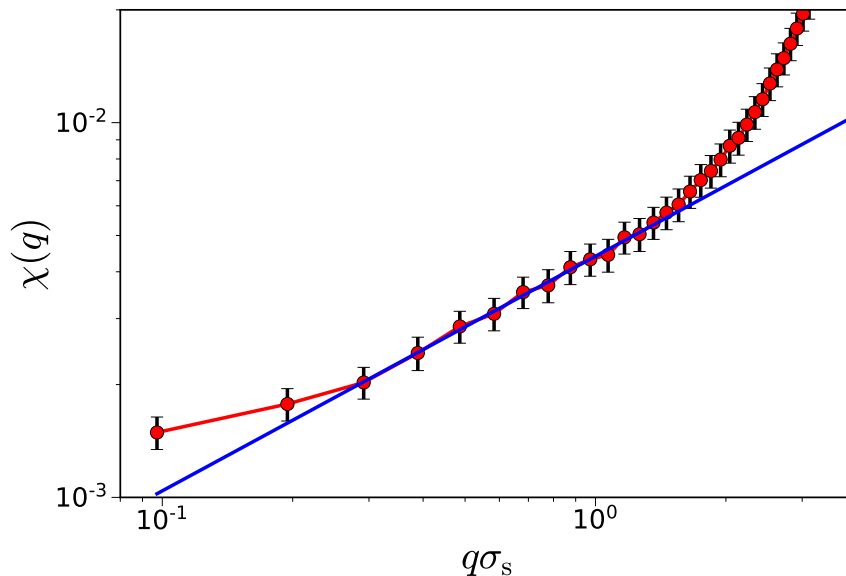


Fig.4.13 2次元 Jamming 転移点直上での  $\chi(q)$ 。赤丸が数値シミュレーションによって得られた結果を表しており、誤差は標準誤差である。青線はべき関数  $\chi(q) \sim q^\alpha$  でフィッティングして得られた線であり、ここでの指数は  $\alpha = 0.626 \pm 0.012$  であった。フィッティングは  $0.3 \leq q \leq 1.3$  の範囲のデータを用いて行った。ここで得られた  $\alpha \approx 0.63$  という値は3次元の Jamming 転移直上で報告されていた  $\alpha \approx 1$  よりも小さい。

計算したのが図 4.14 である。低波数領域では、全ての定義の  $\chi(q)$  の振る舞いが一致しており、全ての定義において同じべきが見えている。しかし、高波数領域では、定義によってその振る舞いが変わることから、べき的な振る舞いが見える範囲は定義によって異なる。 $\chi(q)$  のこのような振る舞いは、Hyperuniformity は  $\chi(q)$  の定義の仕方に依存しないことを示している。低波数領域で定義に依存性せず同じ振る舞いをするのは先行研究でも報告されている [19]。

ここで、実空間での数密度揺らぎに関して述べておく。実空間の数密度揺らぎと構造因子の関係は、式 (2.23) であり、数密度揺らぎ  $\sigma_N(R)$  には、構造因子全体の影響が現れる。そのため、 $\chi(q)$  の中間的な波数で生じる Hyperuniformity は、主に高波数領域に大きな揺らぎに覆いかぶさってしまい、 $\alpha$  に対応するようなべき的な振る舞いは現れない。また、 $\chi(q)$  の低波数領域では全てのべき的な振る舞いは一致するものの、 $\sigma_N(R)$  で見ると、高波数領域の振る舞いの違いを拾ってしまい、 $\sigma_N(R)$  は、局所密度に依存した結果を示す [19]。以上の理由から、Jamming 系における Hyperuniformity を調べるには、数密度揺らぎよりも構造因子が適している。

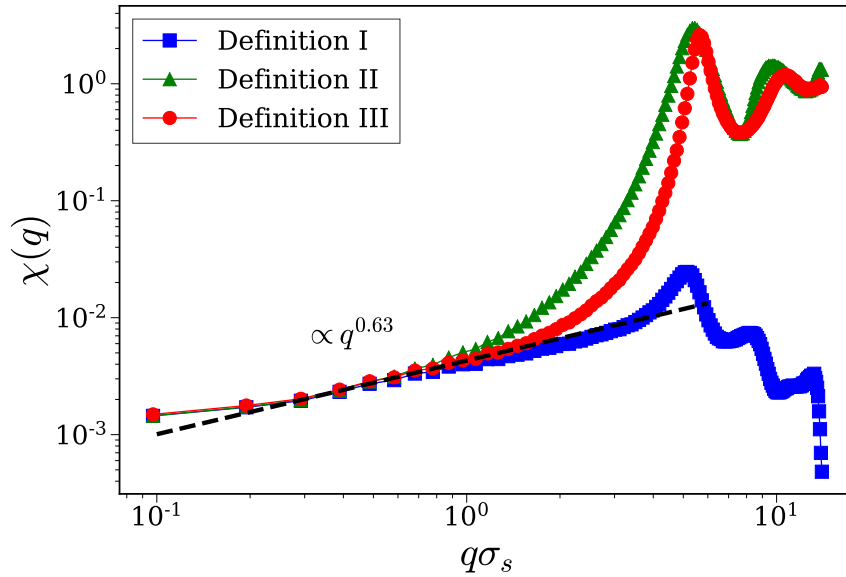


Fig.4.14 4.4節で定義した3つの定義に従って計算した $\chi(q)$ 。定義IIIの結果は、図4.13で示した結果と同じものである。高波数領域ではそれぞれの定義に依存して振る舞いに変化するものの、低波数領域では全てが同じ線に収束していることがわかる。ここでは、参考のために $q^{0.63}$ の線を引いた。

### 4.6 指数 $\alpha$ の次元依存性に関する議論

この節では、Hyperuniformity 指数が空間次元依存性を持ちうる理由について考える。ここでは、無限遠まで Hyperuniformity が続くような理想的な Jamming 系を仮定し、そこでの実空間の密度揺らぎ  $\sigma_\phi^2(R) \equiv \langle \delta\phi^2 \rangle$  を考える。 $\phi$  は数密度や充填率などを表す。Jamming 転移の平均場理論から、 $\sigma_\phi^2(R)$  は空間次元に対する依存性を持たないので、 $N$  が大きい領域では  $R$  ではなく  $N$  でスケールされ、 $\sigma_\phi^2(R) \sim N^{-\omega}$  となる [216, 217]。ここで、 $\omega$  は空間次元に依存しない指数である。これから、 $\sigma_\phi^2(R) \sim R^{-d\omega}$  であることがわかる。また、 $\sigma_\phi^2(R)$  の長距離での振る舞いは、対応する構造因子  $\chi_\phi(q)$  の低波数領域での振る舞いに対応している。Fourier 変換を行うことで、 $\chi_\phi(q) \sim q^{d\omega-d}$  であることがわかる。以上から、 $\alpha = d\omega - d$  がわかり、 $\alpha \propto d$  となることがわかる。また、すでに様々な数値計算から  $d = 3$  では、 $\alpha = 1$  ということが知られているので、2次元では、 $\alpha = 2/3 \approx 0.6$  となることがわかる。

もちろん、この議論は  $N$  が大きい極限で成立するため、系は長距離でも Hyperuniformity を示す理想的な系でなければいけない。しかし、実際の Jamming 系では、Hyperuniformity の振る舞い  $\chi_\phi(q) \sim q^\alpha$  は  $q_{\text{HU}}$  の波数までしか存在しない。また、前節で述べたように有限系における実空間での揺らぎ  $\sigma_\phi^2(R)$  も部分系における表面項等の所為で、綺麗な Scaling の振る舞いにならないことが先行研究で明らかになっている [45]。そのため、実空間系でこの  $\alpha$  に対応す

る指数を見るのは難しい。だが、波数空間での構造因子  $\chi(q)$  の方が、有限サイズ効果に対して実空間揺らぎよりは鈍感であったため、 $\chi_\phi(q) \sim q^\alpha$  が、 $q > q_{\text{HU}}$  の波数領域では存在するので、今回は指数が捉えられた。

最後に、 $d > 3$  での密度揺らぎの振る舞いについて述べておく。ここまでの議論で得られた密度揺らぎ  $\sigma_\phi^2(R) \sim R^{-d\omega}$  はバルクにおける密度揺らぎである。一方で、表面の密度揺らぎの寄与は、 $\langle \delta\phi^2(R) \rangle_s \propto R^{-d-1}$  である。表面とバルクでの揺らぎと比較すると、両者が等しくなるのは、空間次元  $d_c$  が  $d_c + 1 = \omega d_c$  となったときである。つまり、 $d_c = \frac{1}{\omega-1}$  のとき、バルクの揺らぎと表面の揺らぎが等しくなる。先ほど得た  $\omega = 4/3$  を用いると、 $d_c = 3$  であることがわかる。よって、3次元以上では、表面の揺らぎがバルクの揺らぎよりも大きく、 $S(q)$  の指数は、 $\alpha = 1$  となる [218]。これは、Jamming 系では、その臨界性によりバルクの揺らぎが強く抑えられていることに依存している。

## 4.7 まとめ

この章では、2次元2成分系における Jamming 転移点直上の Hyperuniformity の性質を調べた。その結果、2次元においては構造因子  $\chi(q) \sim q^\alpha$  のべき指数  $\alpha$  は  $\alpha \approx 0.63$  となることを示した。これは、3次元において報告されていた  $\alpha \approx 1$  とは異なる。2次元系における先行研究では、この  $\alpha$  の値は報告していなかったものの確かに、データがその値になっていることを確認している [19]。また、我々は、 $\alpha \approx 0.63$  という値は構造因子  $\chi(q)$  の定義に依存せず、べき的減衰が見えるスケールのみが定義に依存していることを示した。また、本章では理想的な Hyperuniformity を示す Jamming 系を仮定した上で、Jamming 転移の平均場描像から、Hyperuniformity 指数が空間次元依存性が生じうることを示した。

## 第 5 章

# 力学的トレーニングによる系の構造変化と Hyperuniformity

### 5.1 背景

系に対して、力学的操作を加えると系の性質が変化することが知られている。例えば、系に対して膨張圧縮サイクルを加えると、系の Jamming 転移点が上昇することが知られている [203]。また、系に対して周期剪断を加えると、その周期剪断の強度に依存して、可逆不可逆転移が起きることが知られている [219]。前章では、2 次元 Jamming 転移点近傍の Hyperuniformity の性質について調べた。この章では、系に対する膨張圧縮サイクルと系に対する周期剪断の 2 つの力学的操作を系に加えることで、この Hyperuniformity の性質がどのように変化するかを調べる。

この章は次のような構成になっている。5.2 節では、系に対して膨張圧縮サイクルを加えた際に、Jamming 転移点の変化に伴って、Jamming 転移点直上の系の構造がどのように変化するかを調べた。この節では、膨張圧縮サイクルの強度に依存し、Jamming 転移点のラトラー粒子数と Hyperuniformity のべき指数がどのように変化するかについて調べた。5.3 節では、Jamming 転移よりわずかに低い密度の系に対して周期剪断を加え、系の密度揺らぎがどのように変化するかを調べた。我々が周期剪断を加えた密度では、可逆相には、粒子間衝突が生じない point-reversible 相と粒子間衝突が生じる loop-reversible の 2 つの相が存在することが知られている。我々は、主にこの 2 つの可逆相において粒子軌道の性質が変化するのに伴って、どのような構造変化が生じるかを調べた。最後に、5.4 節において、本研究で得られた内容をまとめる。

## 5.2 膨張圧縮トレーニング

系に対して外力を加える力学的アニール [203] や熱揺らぎに晒す熱的アニール [200–202] を用いることで、Jamming 転移点を系統的に変化させることができることが知られている。Kumar *et al.* が示したように、系を unjam している配置からスタートし、圧縮していくと  $\varphi_{J0}$  で Jamming 転移を起こす。 $\varphi_{J0}$  からさらに  $\varphi_{MAX}$  まで圧縮し、その後、膨張させていくと、 $\varphi_J$  で unjam する。この  $\varphi_J$  は  $\varphi_{J0}$  よりもわずかに大きくなる [203]。もし、系に対して一度の膨張圧縮を施すのではなく、複数回施すと、 $\varphi_J$  はさらに大きな値になる。また、熱的アニールによる Jamming 転移点のシフトは、モード結合理論が予想する動的転移点近傍で系をアニールすることで生じることが知られており [201]、Jamming 転移点の変化は系がエネルギーランドスケープのより深いミニマへと遷移することに起因していると考えられる。この熱的アニールの場合を施した系では、粒子構造に対して2つの変化が生じることが知られている [202]。1つ目は、系の内部に粒子間接触を持たない粒子であるラトラー粒子の数が増える点である。2つ目は、Jamming 転移点近傍における Hyperuniformity が消えていくという振る舞いである。素朴な直感では、アニールによって安定化された構造では、粒子は粒子間接触を持たない粒子を減らすように思われる。また、理論的な解析から理想ガラス転移点においては、系は Hyperuniformity になりうるという示唆がされており [220]、系を低温でアニールすると Hyperuniformity が消えていくのは、理論的な予想とは異なる振る舞いである。このようなアニールによる系の構造変化に関する理解は十分に得られておらず、上記のような変化が力学的アニールの場合にも生じるかは知られていない。以上の理由から、本研究では、系に対するアニールによって系の Hyperuniformity の性質及び、ラトラー数の変化がどのように変化するかを最初に調べる。本研究では、熱的アニールに比べて、Jamming 転移点をより容易に変化させることができる膨張圧縮サイクルを用いる。また、本研究では、システムサイズとサンプル数を十分大きくするために、2次元系を用いて解析を行った。

### 5.2.1 数値シミュレーション設定

この章では、基本的には前章で用いた設定と同じ設定で数値シミュレーションを行う。我々は、粒子数が  $N = 1000$  及び、 $N = 3000$  の摩擦のない大小の2種類の粒子が同じ数だけ含まれる2次元2成分系を用いた。粒子の大きさのサイズ比は、 $\sigma_L/\sigma_S = 1.4$  である。粒子間の相互作用には、Harmonic ポテンシャルを用い、系の境界条件には周期的境界条件を用いた。数値計算においては、 $\sigma_S$ 、 $\varepsilon$  と  $\varepsilon/k_B$  をそれぞれ長さ、エネルギー、温度の単位として用いた。

本研究では、最初に充填率  $\varphi_{ini} = 0.835$  で系に粒子をランダムに配置させる。その後、準静的に系を  $\varphi_{MAX}$  まで圧縮していき、系を再び膨張させ、Jamming 転移点  $\varphi_J$  を見つける。圧縮

及び膨張の際の、密度変化のさせ方や Jamming 転移点の定義等は、前章と同じ方法で行った。本研究では、主に系を一度だけ膨張圧縮させる。系に加えるトレーニング強度は最大圧縮密度  $\varphi_{\text{MAX}}$  を変化することで制御する。本研究では、 $\varphi_{\text{MAX}}$  を 0.845 ~ 1.3 の範囲で変化させた。

図 5.1 は、典型的な 1 粒子あたりのエネルギーの変化の振る舞いを示している。unjam な粒

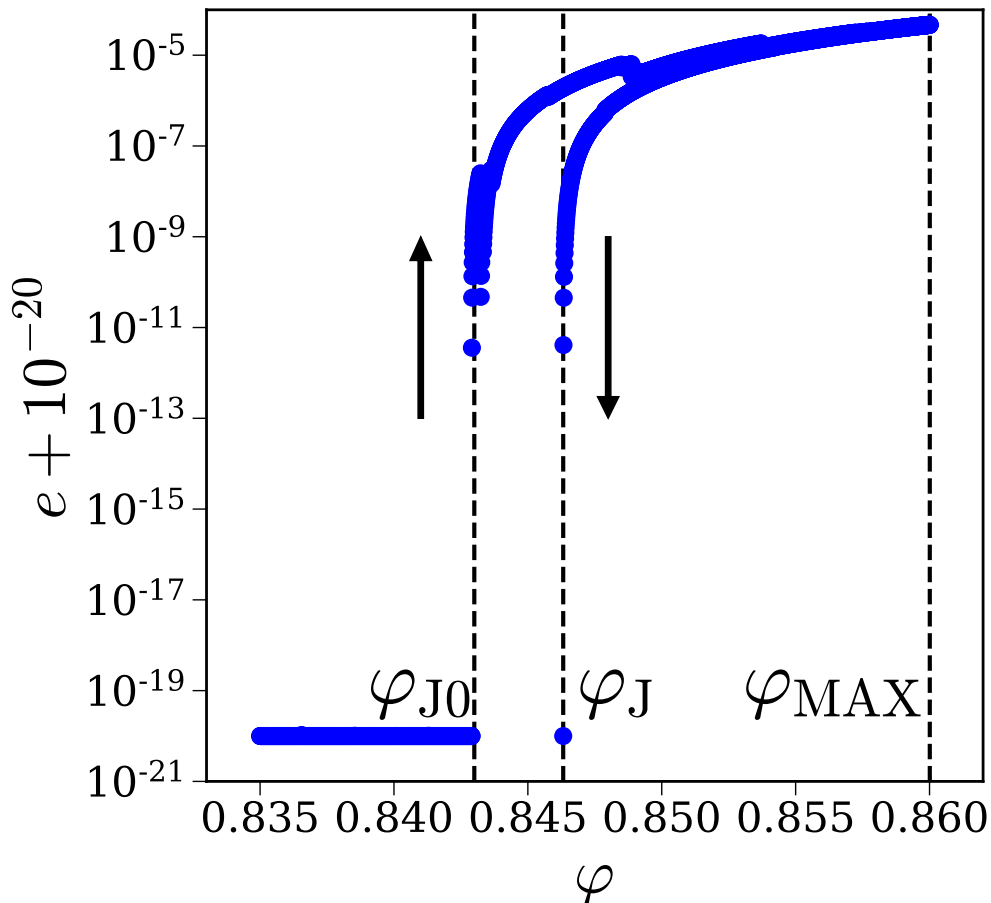


Fig.5.1 膨張圧縮サイクル 1 周期における 1 粒子あたりのエネルギー  $e$  の変化。ここで、unjam 領域では  $e = 0$  なので、 $e$  を  $10^{-20}$  だけ上げている。系を unjam 領域から圧縮していくと、ある点で  $e$  が急上昇することがわかる。ここでこの密度を  $\varphi_{\text{J0}}$  と定義する。一方で、系を  $\varphi_{\text{MAX}}$  まで圧縮し、その後膨張すると、ある点で、急激にエネルギーが 0 になる。この系が再び unjam になる点を  $\varphi_{\text{J}}$  と定義する。 $\varphi_{\text{J}}$  の位置は、 $\varphi_{\text{J0}}$  とは明らかに異なる。

子配置から系を圧縮していくと、ある充填率  $\varphi_{\text{J0}}$  で、系は有限のエネルギーを持つようになる。これは、Jamming 転移が生じたことを示している。系を  $\varphi_{\text{MAX}}$  まで圧縮した後、系を膨張させていくと、 $\varphi_{\text{J}}$  で系が再び unjam になることがわかる。 $\varphi_{\text{J0}}$  と  $\varphi_{\text{J}}$  は明らかに異なる値を持っており、圧縮の効果によって系がトレーニングされ Jamming 転移点が大きい方へと移動していることがわかる。本論文では、アニールと同義でトレーニングという言葉を用いる。

### 5.2.2 力学的アニールとラトラー数の関係

Hyperuniformity について議論する前に、力学的トレーニングによってラトラー数がどれだけ変化するかを調べる。熱的アニールが施された Jamming 配置は、熱的アニールを施さなかった Jamming 配置に比べて、系のラトラー数が上昇していることが報告されている [202]。熱的アニールを施すことで、 $\varphi_J$  は上昇する。 $\varphi_J$  の上昇は、系がより効率的な充填方法を見つけ出すことを意味するが、ラトラー数の上昇は粒子間接触の無いうまく詰まることのできていない無駄な粒子が増えているように素朴には考えられ、ラトラー数の上昇は直感とは対照的である。そこで、実際にこのようなラトラー数の上昇が力学的アニールを施した系でも生じるかを調べる。この章では、 $N = 1000$  の系を用い、アンサンブル平均には各点について 600 サンプルとった。

まず初めに、先行研究 [203, 212] で示されたように、 $\varphi_J$  が  $\varphi_{MAX}$  の大きさに依存し、上昇することを確かめる。その結果を示したのが、図 5.2(a) である。 $\varphi_J$  は、 $\varphi_{MAX} = 1$  程度の圧縮ま

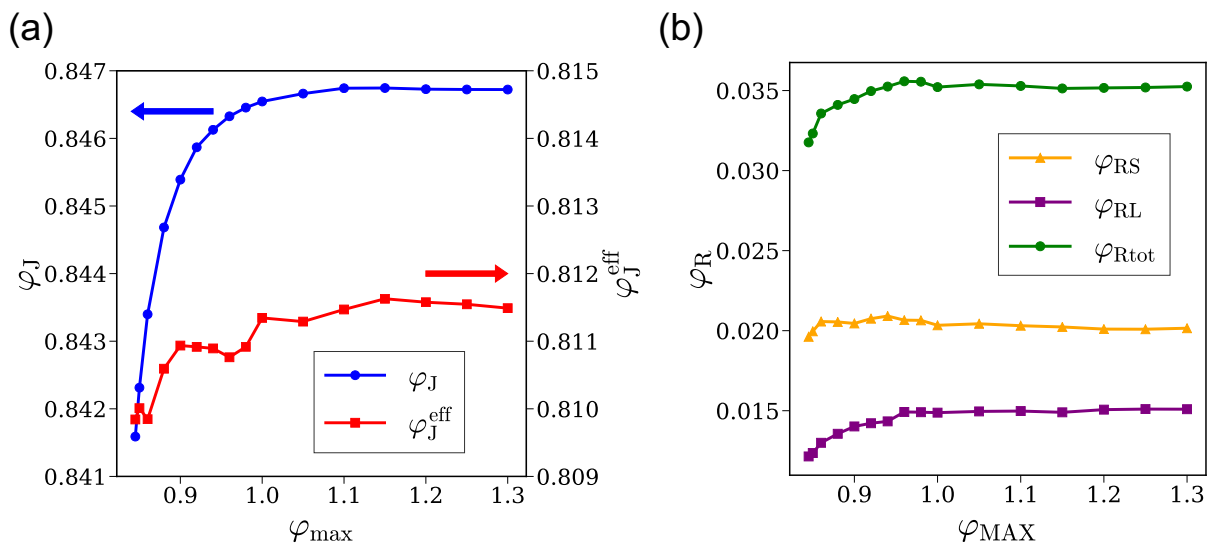


Fig.5.2 (a) Jamming 転移点  $\varphi_J$ (青丸) と有効的な Jamming 転移点  $\varphi_J^{eff}$ (赤四角) の  $\varphi_{MAX}$  依存性。  $\varphi_J^{eff}$  は、系の構造を支えるのに必要な粒子をのみで計算される充填率である。  $\varphi_J$  と  $\varphi_J^{eff}$  は  $\varphi_{MAX}$  を上昇させると、 $\varphi_{MAX} \approx 1$  程度までは上昇し、その後  $\varphi_{MAX}$  を上げてても変化は生じない。一方で、両者の上昇率は大きく異なり、 $\varphi_J^{eff}$  の上昇率は  $\varphi_J$  の上昇率に比べて小さい。(b) 系の内部の全ラトラー粒子による充填率  $\varphi_{Rtot}$ (緑丸)、小ラトラー粒子による充填率  $\varphi_{RS}$ (黄三角)、大ラトラー粒子による充填率  $\varphi_{RL}$ (紫四角) の最大圧縮率  $\varphi_{MAX}$  依存性。  $\varphi_{MAX}$  に対する  $\varphi_{RL}$  の上昇率は、 $\varphi_{RS}$  に比べて大きい。よって、 $\varphi_{Rtot}$  の上昇は  $\varphi_{RL}$  によるものであることがわかる。

で上がり続け、 $\varphi_J \approx 0.847$  程度まで上昇することがわかる (青丸)。アニールが最も弱い系から



は Jamming 転移点は約 0.61% 上昇しており、この上昇率は 3 次元で報告されている上昇率と同程度である [203]。

ここで、Jamming 転移点におけるラトラー粒子の数を調べる。ここでは、粒子間の接触数  $Z$  が 0 の粒子をラトラー粒子と定義した。図 5.2(b) の緑線は、系の中のラトラー粒子が占める充填率  $\varphi_{\text{Rtot}}$  が  $\varphi_{\text{MAX}}$  に依存してどのように変化するかを示したものである。 $\varphi_{\text{Rtot}}$  は確かに、 $\varphi_{\text{MAX}}$  が大きくなるに従って、上昇していることがわかる。これは、熱的アニールで得られていた結果と一致している。ここで、ラトラー粒子ではない系を支えるのに重要な役割を果たしている粒子の影響を定量化するために、系を支える働きをしている粒子のみで計算される有効的な Jamming 転移点  $\varphi_{\text{J}}^{\text{eff}} = \varphi_{\text{J}} - \varphi_{\text{Rtot}}$  を定義する。 $\varphi_{\text{J}}^{\text{eff}}$  の力学的トレーニング依存性を示したのが、図 5.2(a) の赤線である。 $\varphi_{\text{J}}^{\text{eff}}$  の  $\varphi_{\text{MAX}}$  に伴った変化は、 $\varphi_{\text{J}}$  の変化に比べて小さい。実際、 $\varphi_{\text{J}}$  の上昇率 0.61% に比べ、 $\varphi_{\text{J}}^{\text{eff}}$  の上昇率 0.22% に比べ 1/3 程度になっており、 $\varphi_{\text{J}}$  の上昇のほとんどの寄与をラトラー粒子が占めていることがわかる。

先行研究では、ラトラー粒子の定義として  $Z < d + 1$  を用いているものもある [202]。この定義を用いた場合にも、 $\varphi_{\text{J}}^{\text{eff}}$  の値が、全体に 0.002 上に上がるものの  $\varphi_{\text{MAX}}$  依存性は変化しない。よって、 $Z = 0$  のラトラー粒子の上昇が Jamming 転移点の上昇の主要な寄与である。

この結果は次の点で興味深い。Jamming 転移点の上昇は、ガラスの平均場理論から、アニールの効果によって系の状態がエントロピーランドスケープのより低いミニマへと遷移していくことに起因して、より密度の高いガラス配置ができると説明される [190, 192]。一方で、ラトラー粒子は平均場描像には含まれていない。Jamming 転移点の増加が生じ始める点は、有限次元の数値計算の場合にも、平均場理論の予測と一致しているのに対して、Jamming 転移点の増大の仕方の主要因が平均場描像に含まれていないラトラーであることは興味深い。これは、エントロピーランドスケープのより低いミニマへと遷移した結果、有限次元では、粒子間接触を持たないつまり、系のポテンシャルエネルギーに寄与しないラトラーを生じさせることが得であることを示唆している。

さらに、興味深い結果として、このラトラー粒子数の増大は、主に粒径の大きい粒子がラトラーになることで生じているという点である。図 5.2(b) に、全ラトラー粒子の充填率  $\varphi_{\text{Rtot}}$  と大小のラトラー粒子の充填率  $\varphi_{\text{RL}}, \varphi_{\text{RS}}$  の  $\varphi_{\text{MAX}}$  依存性を示した。小粒子のラトラー粒子の充填率  $\varphi_{\text{RS}}$  の方が大粒子のラトラー粒子の充填率  $\varphi_{\text{RL}}$  に比べて多いものの、小粒子のラトラー粒子の充填率  $\varphi_{\text{RS}}$  は力学的トレーニングを加えてもほとんど変化しないのに対して、大粒子のラトラー粒子の充填率  $\varphi_{\text{RL}}$  は力学的トレーニングによって明らかに増大していき、その振る舞いは  $\varphi_{\text{J}}$  の増大の仕方と一致している。このことから、大粒子のラトラー粒子の増大が  $\varphi_{\text{J}}$  の増大の主要な寄与であることがわかる。

力学的トレーニングによる粒子配置の変化を示したのが、図 5.3 である。左図が  $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  のほとんどトレーニングが施されていない系であり、右図が  $\varphi_{\text{MAX}} = 0.98$  のトレーニングされた系のスナップショットである。ここで、水色及びオレンジ色の粒子はそれぞれ粒子間

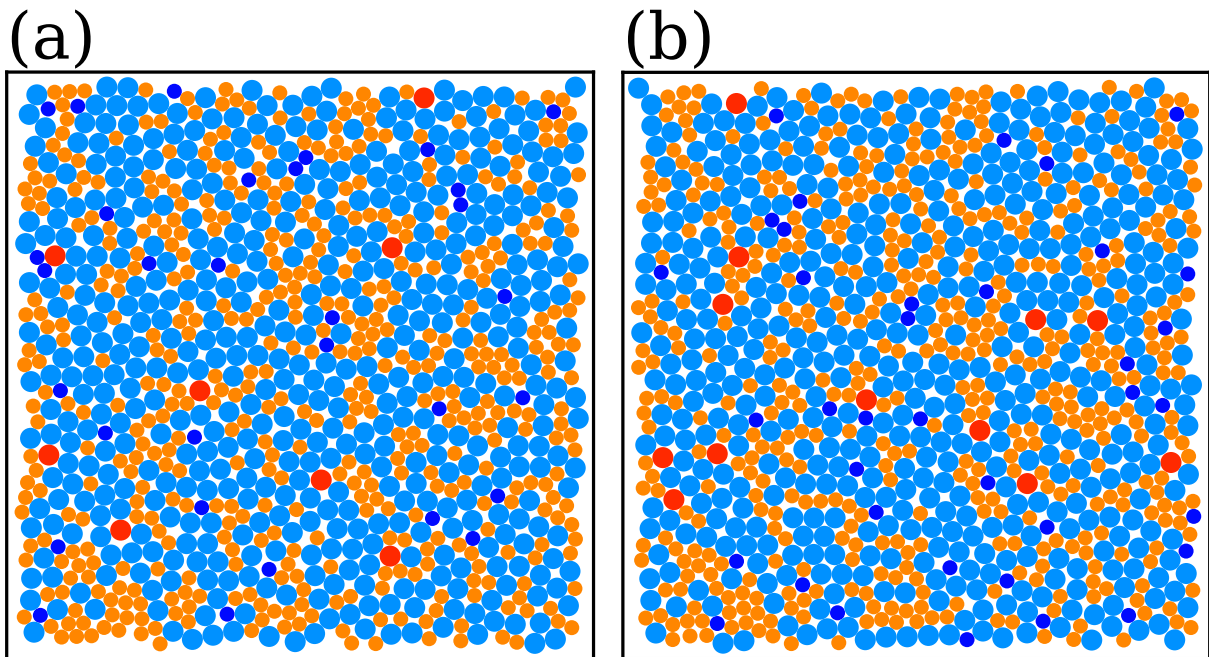


Fig.5.3  $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  のほとんどトレーニングが施されていない系のスナップショット (a) と  $\varphi_{\text{MAX}} = 0.98$  のトレーニングされた系のスナップショット (b)。 $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  のサンプルの Jamming 転移点は  $\varphi_J = 0.840$  であり、 $\varphi_{\text{MAX}} = 0.98$  のサンプルの Jamming 転移点は  $\varphi_J = 0.846$  である。水色及びオレンジ色の粒子はそれぞれ粒子間接触を持つ大小の粒子であり、赤色及び青色の粒子はそれぞれ大小のラトラー粒子である。スナップショットにおけるトレーニング強度の違いによる粒子配置の変化は目にはほとんど見えない。

接触を持つ大小の粒子であり、赤色及び青色の粒子はそれぞれ大小のラトラー粒子である。ラトラー粒子は増えているものの目に見えて特徴的な配置は生じていない。また、ラトラー粒子の変化の仕方はサンプルごとに大きく揺らぐため、サンプルによってはラトラー粒子が増大しないこともあるなど、ラトラー数の増大はアンサンブル平均によってしか見えない。よって、1つの粒子配置から特徴的な構造を取り出すことは難しいと考えられる。

図 5.3 において、トレーニングが施された系では、粒子がより密に詰まっており、粒子に囲まれてできる余剰スペース (スナップショットにおける粒子の間に存在する白い領域) が小さくなっていることがわかる。そこで、この粒子に囲まれてできる領域のサイズ分布を定量化する。この粒子に囲まれてできる領域を測定するために、系を  $3000 \times 3000$  個の小さいボックスに区切り、そのボックスの中心に粒子の内部にどうかを調べることで、粒子のいない位置を調べる。その後、小さいボックスの上下左右のボックスに粒子がいるかを調べ、粒子がいないボックスの連結サイズを測定する。この最終的に得られた連結ボックスの大きさを粒子に囲まれてできる空間のサイズとする。その結果を示したのが、図 5.4 である。ここで、 $S_{\text{space}}$

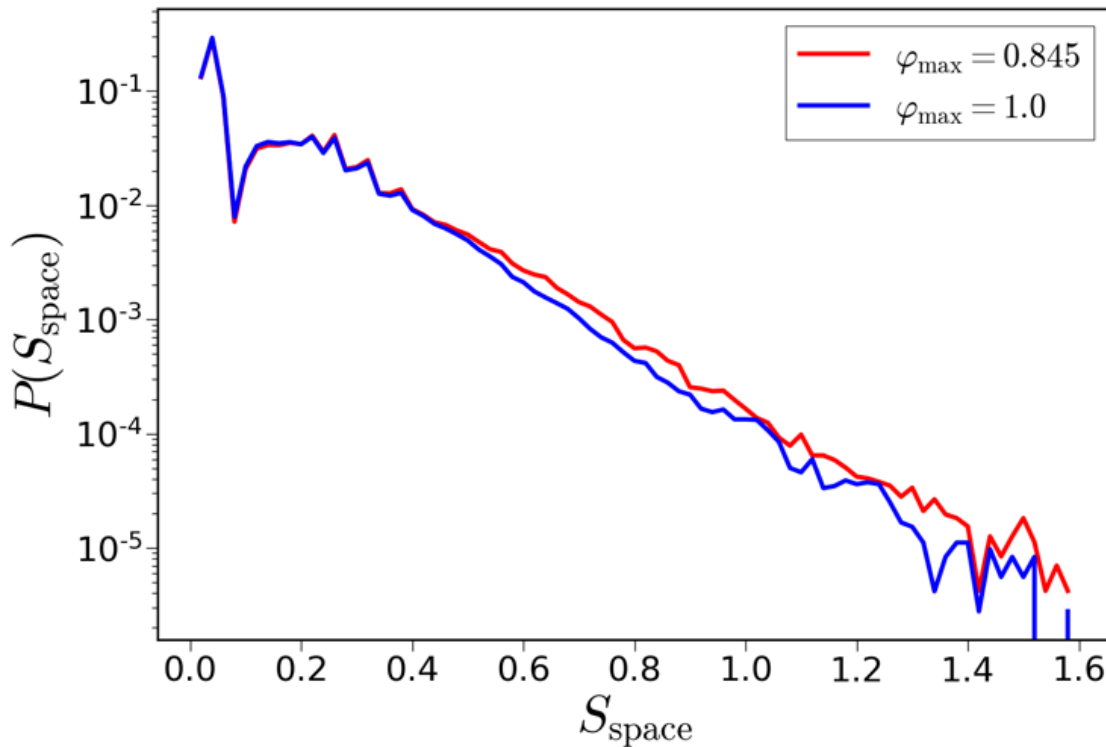


Fig.5.4  $\varphi = 0.845$  と  $\varphi = 1.0$  で系をトレーニングした際に生じる粒子間の空間  $S_{\text{space}}$  が系の中に生じる確率分布  $P(S_{\text{space}})$ 。  $S_{\text{space}}$  が小さい場合には、両者の振る舞いは基本的に変化しない。最初にピーク位置は、3つの粒子が近接することで形作られる三角形に対応している。一方で、大きい  $S_{\text{space}}$  が生じる確率はトレーニングをすることによって減少している。これはトレーニングによって系の無駄な隙間が消えたことを意味している。

は粒子間の空間を表し、 $P(S_{\text{space}})$  は  $S_{\text{space}}$  が系に生じる確率を表している。 $S_{\text{space}}$  の小さい領域では、 $\varphi = 0.845$  と  $\varphi = 1.0$  の振る舞いは同じになっており、 $P(S_{\text{space}})$  は同じ値でピークを持っていることがわかる。このピークは3つの粒子が密に三角形を作っている場合に生じている隙間の大きさに対応している。 $P(S_{\text{space}})$  は  $S_{\text{space}}$  の大きい領域でべき的な振る舞いが生じている。だが、その傾きは、 $\varphi = 1.0$  の場合の方が  $\varphi = 0.845$  に比べて、急であり、 $\varphi = 1.0$  では、大きな粒子間の空間  $S_{\text{space}}$  が生じる確率が  $\varphi = 0.845$  に比べて小さくなっていることがわかる。これは力学的トレーニングの効果によって、系に存在した粒子間の無駄な隙間が消えたことを意味している。

### 5.2.3 力学的アニールと Hyperuniformity

次に、力学的アニールによって Jamming 転移点  $\varphi_J$  が変化したときに、Jamming 転移点直上での Hyperuniformity の性質がどのように変化するかを調べる。まずはじめに、1回の膨張圧縮サイクルを考え、 $\varphi_{\text{MAX}}$  を変化させることで力学的アニールの強さを制御した。この節で

は、4.4節の定義 III の  $\chi(q)$  を用い、各  $\varphi_{\text{MAX}}$  に対して 300 のサンプルを用いてアンサンブル平均をとった。力学的アニールの強さ  $\varphi_{\text{MAX}}$  を変化させて、Jamming 転移点直上の  $\chi(q)$  を計算したのが図 5.5(a) である。全ての  $\varphi_{\text{MAX}}$  において、中間的な波数  $0.3 \leq q \leq 1.3$  で  $\chi(q)$  のべき的な振る舞い  $\chi(q) \sim q^\alpha$  が存在することがわかる。 $\varphi_{\text{MAX}}=0.845$  は第 4 章で示した結果と同じものであり、べき指数は  $\alpha \approx 0.63$  であった。 $\varphi_{\text{MAX}}$  を大きくしていくと、わずかではあるものの  $\alpha$  が変化していることが見て取れる。この  $\chi(q)$  のべき  $\alpha$  の  $\varphi_{\text{MAX}}$  による変化を示したのが図 5.5(b) の緑線である。ここで指数  $\alpha$  はべき的な領域が見える範囲でフィッティングして求めた。フィッティング範囲は  $\varphi_{\text{MAX}}$  が  $0.845 \leq \varphi_{\text{MAX}} \leq 0.9$  の場合には、 $0.3 \leq q \leq 1.3$  であり、 $\varphi_{\text{MAX}}$  が  $0.9 < \varphi_{\text{MAX}}$  の場合には、 $0.1 \leq q \leq 1.0$  である。図 5.5(b) の赤線は  $\varphi_J$  の  $\varphi_{\text{MAX}}$  依存性を示したものである。 $\varphi_{\text{MAX}} \approx 0.95$  における  $\alpha$  のわずかな減少をのぞいて、 $\varphi_J$  と同様に  $\varphi_{\text{MAX}}$  に依存して増大していく振る舞いが見られる。 $\varphi_{\text{MAX}} \approx 0.95$  において、有効的な Jamming 転移点  $\varphi_J^{\text{eff}}$  も減少している (図 5.2)。このことから、ラトラ数と Hyperuniformity のスケーリングの間には相関が存在する可能性があるが、 $\alpha$  のエラーバーが大きいため、この関係を決着づけるためには、より詳細な議論が必要である。図 5.5(b) から  $\varphi_{\text{MAX}} = 1.3$  における得られた  $\alpha$  の最大値は  $\alpha \approx 0.739 \pm 0.012$  であった。 $\alpha$  の上昇は、密度揺らぎ  $\langle \delta\rho^2(R) \rangle$  がより抑圧されることを意味しており、4.6 節の議論から、システムサイズに依存した Jamming 転移密度の分布の幅が力学的トレーニングに依存してより強くなることがわかる。Jamming 転移点における  $\alpha$  の増大は、熱的アニールによって見えるはずである。実際、近年の研究で Chieco *et al.* [46] は、2次元の Jamming 系を低温でアニールした場合の  $\chi(q)$  の変化を報告している。彼らは指数については議論していないものの、彼らの結果からは、熱的アニールを施した系の指数は、高温からクエンチした系に比べて指数が増大しているように見える。また、一度の圧縮膨張サイクルでは  $\varphi_{\text{MAX}}$  をどれだけ上げても、 $\alpha \approx 0.74$  程度までしか  $\alpha$  を増大できないことは、力学的アニールの効果に上限が存在することを意味している。この結果は周期剪断を加えた非線形レオロジーの研究で知られている結果と一致している [211, 221, 222]。これらの研究から周期剪断は、熱的アニールと同様に、系をエネルギーランドスケープにおけるより安定な構造へと遷移させることができることが知られているが、周期剪断には系のエネルギーを下げることでできる最大剪断強度が存在し、それより強い剪断強度では系のエネルギーを下げることはできない。この結果は我々の圧縮膨張サイクルによるトレーニングによって得られた最大の  $\alpha$  が存在することと一致している。

2 つめの図 5.5(a) における重要な変化は、Hyperuniformity が見える中間領域が力学的トレーニングの強度  $\varphi_{\text{MAX}}$  をあげるに従って、広がっているように見える点である。つまり、Hyperuniformity が終わる長さスケールである Hyperuniformity 長  $q_{\text{HU}}$  がより低波数へと移動している。これは、Jamming 配置が力学的アニールによって安定化されると考えると、近年の理論的な Godfrey *et al.* の議論と一致している [220]。Godfrey *et al.* は、 $\lim_{q \rightarrow 0} \chi(q)$  と系の構造エントロピーを結びつけた。彼らの議論では、 $q \rightarrow 0$  において理想的な Hyperuniformity で

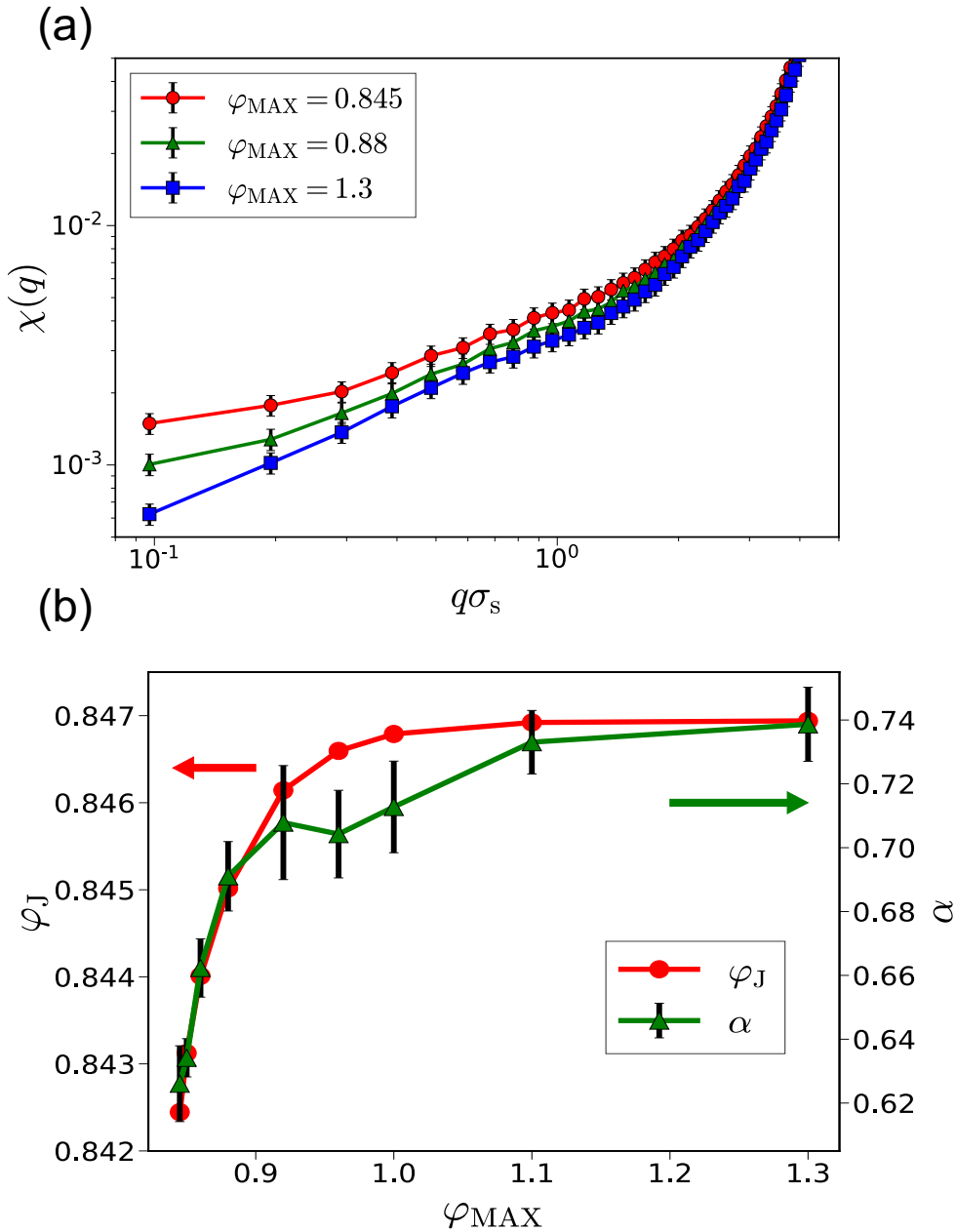


Fig.5.5 (a) いくつかの  $\varphi_{\text{MAX}}$  に対する  $\chi(q)$  の振る舞い。ここで、 $q$  を  $\sigma_s$  でスケールしている。 $\chi(q)$  で見られるべき的な振る舞いが、力学的トレーニングの強度  $\varphi_{\text{MAX}}$  に依存して強くなっている。また、このべき的な振る舞いは中間的な長さスケールにおいてのみ見られるが、 $\varphi_{\text{MAX}}$  を強くすることによってより小さい波数  $q$  へと、べき的な振る舞いが見える領域が広がっている。(b)  $\alpha$  と  $\varphi_J$  の  $\varphi_{\text{MAX}}$  依存性。ここで  $\alpha$  は  $\chi(q)$  のべき的振る舞いを  $\chi(q) \sim q^\alpha$  でフィッティングして得られた指数である。 $\alpha$  は  $\varphi_{\text{MAX}}$  を上げるのに従って、増大し  $\varphi_{\text{MAX}} \approx 1.3$  では、 $\alpha \approx 0.74$  となる。この  $\alpha$  の  $\varphi_{\text{MAX}}$  依存性は、 $\varphi_J$  の  $\varphi_{\text{MAX}}$  依存性に類似している。

ある  $\chi(q) \rightarrow 0$  が実現するのは、構造エントロピーが示量的でなくなる場合のみであり、これは理想ガラス転移点においてのみ系が理想的な Hyperuniformity となることを示唆している。一方で、系をアニールしていくことで系の構造エントロピーは減少するため、 $\lim_{q \rightarrow 0} \chi(q)$  の振る舞いは、有限値に収束するものの、アニールによってより理想的な Hyperuniform の振る舞いに近い振る舞いになっていくことが予想される。しかし、本節の研究からは、系をより深くアニールしていくことによって  $q_{\text{HU}}$  がより低波数側へと移動していくかという議論に対して完全に決着をつけることはできない。この問題に対して完全に決着をつけるためには、より巨大なシステムサイズの計算を行う必要がある。

ここまでは、系に対して一度の膨張圧縮サイクルをかけることによって、系に生じる Hyperuniformity の指数  $\alpha$  が増大する振る舞いを見てきた。次に、系に対して、複数回の膨張圧縮サイクルをかけた場合にどのような変化が生じるかを考える。先行研究では、 $\varphi_{\text{MAX}}$  を固定し、複数回の膨張圧縮を加えた場合、一度しか膨張圧縮を加えない場合に比べ、 $\varphi_{\text{J}}$  が上昇することが報告されている [203]。実際に、その結果を調べたのが図 5.6(a) である。ここでは、Jamming 転移点  $\varphi_{\text{J}}$  が膨張圧縮サイクルの回数  $M$  に対して、どれだけ増大するかを示している。 $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  の場合には、 $M = 5$  程度までは  $\varphi_{\text{J}}$  は上昇するもののすぐに収束する。一方で、 $\varphi_{\text{MAX}} = 1.0$  の場合には、 $M = 20$  程度の膨張圧縮を繰り返したのちに、 $\varphi_{\text{J}}$  は最大値に収束している。 $\varphi_{\text{MAX}} = 1.0$  の場合には、 $M = 50$  の時、 $\varphi_{\text{J}} \approx 0.848$  が得られた。 $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845, 1.0$  のどちらの場合にも、 $\varphi_{\text{J}}$  が収束した後に、どれだけ同じ  $\varphi_{\text{MAX}}$  で膨張圧縮を加えても  $\varphi_{\text{J}}$  は上昇しない。また、 $\varphi_{\text{J}}$  の上昇率は  $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  の場合に比べて、 $\varphi_{\text{MAX}} = 1.0$  の方が大きいことがわかる。Jamming 転移点の上昇は系がエネルギーランドスケープを降っていくことで理解できる。 $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  の場合には、系に加えられるエネルギーは小さいため、最初の数回のトレーニングをのぞいて、すぐに、系がトラップされているエネルギーミニマを乗り越えるために必要なエネルギーを系に加えることができなくなる。そのため、 $M$  を回数加えると  $\varphi_{\text{J}}$  は上昇しなくなる。一方で、 $\varphi_{\text{MAX}} = 1.0$  の場合には、系により大きなエネルギーを加えることができるので、 $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  の場合に比べて、より大きなエネルギー障壁を乗り越えることができる。これにより、系はより深いエネルギーミニマへと遷移することができるので、 $\varphi_{\text{J}}$  はより大きな値になる。また、系はより多くのエネルギー障壁を乗り越えることができることから、 $\varphi_{\text{J}}$  が収束するのに必要な  $M$  の回数は  $\varphi_{\text{MAX}} = 0.845$  の場合よりも多くなる。この結果は、3次元系の膨張圧縮サイクルによる先行研究の結果と一致している [203]。

次に、膨張圧縮サイクルの回数  $M$  を増やしていくと、Hyperuniformity 指数  $\alpha$  がどのように変化するかを調べたのが図 5.6(b) である。この図では、 $\varphi_{\text{MAX}} = 1.0$  の時の、 $\alpha$  の膨張圧縮回数  $M$  依存性(青丸)を示している。 $\alpha$  は膨張圧縮回数  $M$  が増大するに従って、上昇していることがわかる。また、この  $\alpha$  の  $M$  依存性は、系に1度だけ膨張圧縮をかける場合と同様に、 $\varphi_{\text{J}}$  の  $M$  依存性と一致している。今回の結果から  $\varphi_{\text{MAX}} = 1.0$  の場合には、 $\alpha = 0.72 \pm 0.02$  から  $\alpha = 0.79 \pm 0.02$  まで増大することが確認された。以上より、膨張圧縮サイクルを複数回繰り返

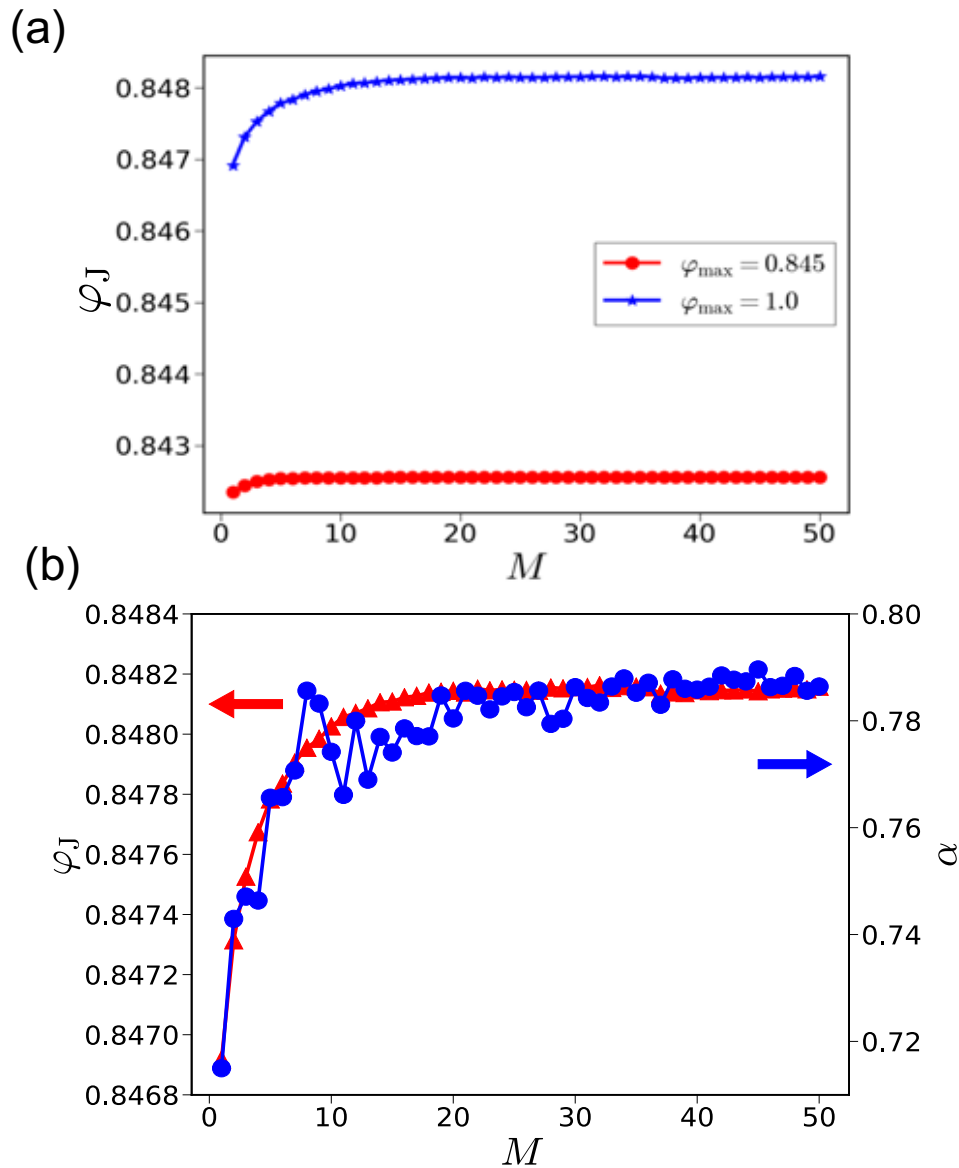


Fig.5.6 (a)  $\varphi_{\max} = 0.845, 1.0$  の圧縮膨張サイクル回数を  $M$  回系に加えた際の Jamming 転移点  $\varphi_J$  の変化。  $\varphi_{\max} = 0.845, 1.0$  の両方の場合において、  $\varphi_J$  は最初は急激に上昇するが、最終的にある一定の値に収束することがわかる。また、収束するまでに必要な  $M$  は  $\varphi_{\max}$  の大きさに依存している。(b)  $\varphi_{\max} = 1.0$  の膨張圧縮サイクルを系に加えた際の  $\alpha$  (青丸) と  $\varphi_J$  (赤三角) の膨張圧縮回数  $M$  依存性。  $\alpha$  は  $M$  が増加するにしたがって上昇し、  $\alpha$  の  $M$  依存性は  $\varphi_J$  の  $M$  依存性とよく対応している。

すことで  $\varphi_J$  の増大に伴って、Hyperuniformity 指数  $\alpha$  も増大していくことがわかった。

### 5.3 周期剪断と Jamming 転移点以下における Hyperuniformity

この章では、Jamming 転移点以下の密度で系を用意した時に、周期剪断を系に加えることで系の粒子配置がどのように変化するかを調べる。

近年、Jamming 転移点から遠い低密度の非熱的な粒子系に対して周期的な剪断を加えた系は、非平衡相転移の文脈で興味をもたれている [13, 24, 33, 35]。系に周期剪断を加えた時に、ランダムに配置した粒子は剪断流に流されて、周囲の粒子と衝突する。しかし、周期剪断強度  $\gamma$  が小さい場合には、粒子は複数回の周期剪断の末に、1 周期の間に周りの粒子と一切衝突をしない最適な場所を見つけることができる。つまり、粒子は 1 周期して再びまた同じ位置に戻ってくる。これは粒子の運動が周期剪断に対して可逆であることを意味している。一方で、 $\gamma$  が可逆な配置を得ることができる最大の周期剪断強度  $\gamma_c$  に比べて大きい場合には、粒子は決して元の位置に戻ってくることはできない。つまりこの場合には、系は周期剪断に対して不可逆である。この周期剪断強度  $\gamma$  に依存した、可逆相から不可逆相への転移を可逆不可逆転移と呼ぶ。この非平衡相転移は現在では、Directed Percolation(DP) クラス、もしくは conserved Directed Percolation (Manna) クラスに属すると考えられている [223]。さらに、可逆不可逆転移の相転移点近傍では、系の長距離の密度揺らぎが抑圧され、Hyperuniformity が生じることが知られている [13, 23, 24, 35]。この転移点直上では、構造因子は低波数領域でべき的な振る舞い  $\chi(q) \sim q^\alpha$  を示し、その Hyperuniformity 指数が 2 次元では  $\alpha \approx 0.45$  [13, 24, 35]、3 次元では  $\alpha \approx 0.25$  [23] であることが報告されている。この Hyperuniformity 指数は臨界指数と関連する普遍的な値であると考えられている。しかし、Tjhung *et al.* は 2 次元系では、 $\alpha \approx 0.45$  の振る舞いが見られた波数領域よりも、さらに低波数領域で  $\alpha \approx 1$  へとクロスオーバーすることを報告しており、指数の値は完全には決着していない。

では、この低密度における可逆不可逆転移は、Jamming 転移点近傍の領域ではどうなるのだろうか? 近年の研究で、Jamming 転移点近傍の構造に対して準静的な周期剪断を加えることで可逆不可逆転移がどのように変化するかが、2 次元 [219, 224] 及び、3 次元系 [225–227] において調べられた。次節で議論するが、これらの研究において、すでに Jamming 転移点近傍の可逆不可逆転移の相構造についてはかなり理解されている。Jamming 点よりわずかの低い密度では、可逆相が 2 種類存在することが知られている。1 つは、粒子間衝突が生じず元の位置に戻ってくる point-reversible 相であり、もう一つは粒子間衝突が生じるものの元の位置に戻ってくる loop-reversible 相である。本節では、この Jamming 転移点よりわずかに低密度の構造に対して、周期剪断を加えた際に、粒子軌道の変化に伴って、粒子配置がどのように変化するかを調べた。



### 5.3.1 Jamming 転移点近傍の系に対する周期剪断と相図

まずはじめに、この節では、先行研究で知られている Jamming 転移点近傍での可逆不可逆転移の性質について説明する。Jamming 転移点近傍の可逆不可逆相図を示したのが図 5.7 である。 $\Delta r_\infty$  は、1 周期した後に粒子がどれだけ元の位置から移動したかを示しており、青色の領

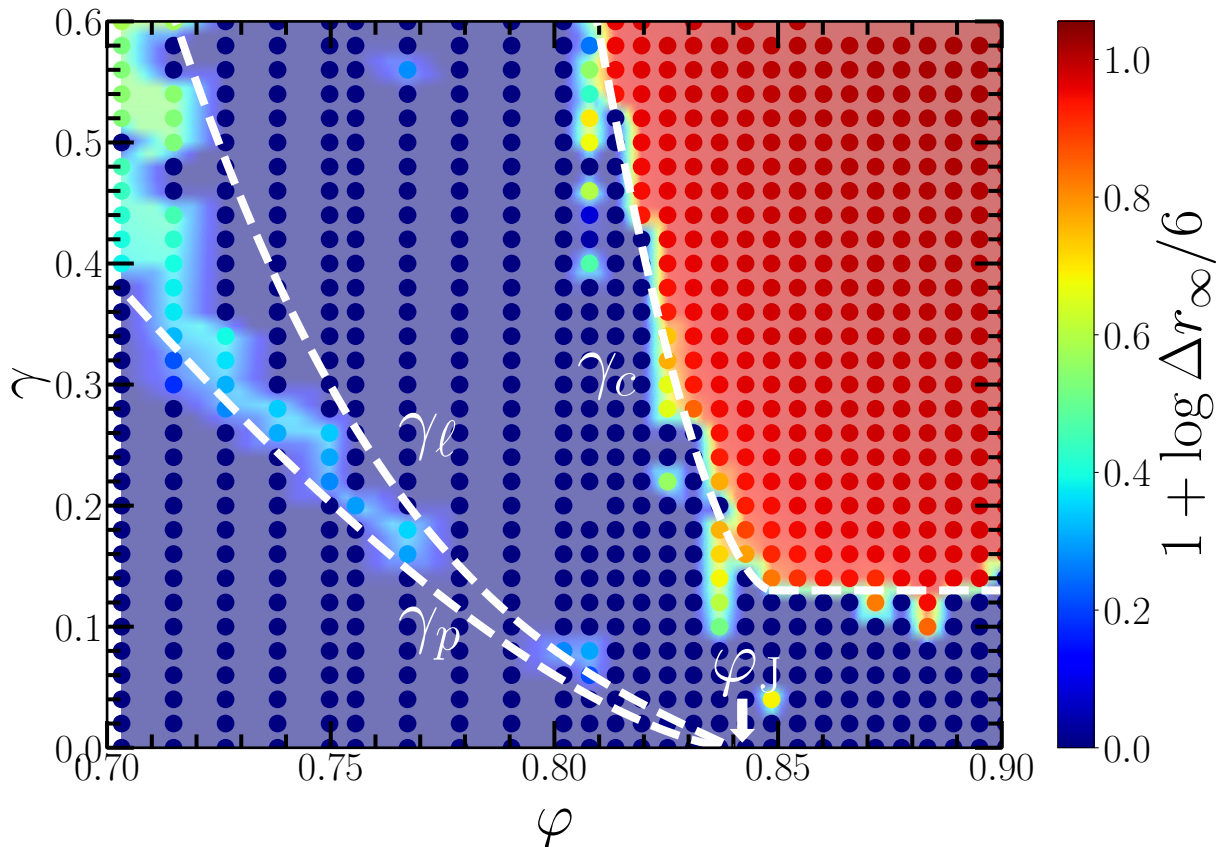


Fig.5.7 Jamming 転移点近傍における可逆不可逆転移に関する  $(\varphi, \gamma)$  相図 [219]。ヒートマップは定常状態における 1 周期あたりの粒子変位  $\Delta r_\infty$  を用いて色付けしており、相図上の点はシミュレーションデータから得られた値をプロットしたものであり、背景の色は線形補完で書いている。ここで青色が可逆相を示し、それ以外の色は有限の粒子変位を持つ不可逆相である。 $\gamma_p$  線は point-reversible 相と準不可逆相を分けており、 $\gamma_e$  線は準不可逆相と loop-reversible 相を分けている。 $\gamma_c$  線は可逆不可逆転移を示す線である。ここで、白い波線は相を見やすくするために書いたガイド線である。

域は粒子が元の位置に戻っていることを表している。つまり、青色の領域は可逆相を示している。一方で、青色以外の領域は、粒子が 1 周期の間に有限距離移動することを示しており、不可逆相である。

Jamming 転移点より高密度の構造では、 $\gamma_c$  はば降伏転移点  $\gamma_Y$  と一致する [228]。ミクロな

粒子軌道が可逆な領域はマクロには弾性領域に対応しており、ミクロな粒子軌道が不可逆で拡散的に振る舞う領域はマクロには流動相に対応している。一方で、Jamming 転移点に非常に近い場合だけは例外であり、弾性領域が狭くなり非線形応答が生じるようになる [229, 230]。

一方で、Jamming 転移点より低密度での可逆不可逆転移は、Jamming 転移点より高密度の場合と比べ複雑である。 $\gamma_c$  線は  $\varphi_J$  よりも高密度では、一定値であったが、 $\varphi_J$  よりも低密度領域にいくと、 $\gamma_c$  線は  $\varphi_J$  を境にして急激に上昇し始める。

次に、 $\varphi = 0.8$  のような比較的 Jamming 転移点  $\varphi_J$  から遠い系を考える [219, 224]。 $\gamma$  が小さい場合には、系は可逆相にある。この可逆相では、1 周期あたりの粒子軌道は真っ直ぐな線として描くことができる。これは、粒子は周りの粒子と衝突せず、剪断流による移動のみが生じていることを表している。我々はこの相のことを point-reversible 相と呼ぶことにする。これは、粒子軌道に対して自明な Affine 変位を抜くと、軌道が点になるからである。

$\gamma$  を上げていくと、 $\gamma_p$  に近づくとつれて、系が可逆相を見つけるまでの時間は伸びていく。実際、系が可逆な粒子配置を見つけるのにかかる周期剪断回数を用いて定義される緩和「時間」 $\tau_c$  は、 $\gamma$  を  $\gamma_p$  に近づけていくに従って急激に増大していくことが知られている [219, 224]。そのため、 $\gamma_p$  より  $\gamma$  が大きくなると、シミュレーション時間の範囲では、系は可逆相を見つけられず、粒子軌道は不可逆のままになる。また、不可逆粒子の割合や 1 周期における粒子の平均変位  $\Delta r_\infty$  といった秩序変数は  $\gamma_p$  において連続的に上昇する。これは、 $\gamma_c$  での可逆不可逆転移では  $\Delta r_\infty$  が 0 から有限の値へと不連続に変化するのとは対照的である。

$\gamma_p$  から上の不可逆領域は、 $\gamma$  に対して有限の範囲にしか存在しない [219]。実際、 $\gamma$  を  $\gamma_p$  からさらに上げていくと、 $\gamma = \gamma_\ell$  で粒子軌道は再び可逆となる。しかし、この可逆相での粒子軌道は point-reversible 相での粒子軌道とは大きく異なる。粒子は 1 周期の間に複数回の衝突を経験するものの、1 周期すると粒子は元の位置に戻ってくるのである。このような可逆相での粒子軌道は Affine 変位を抜くと閉じたループの形になることから、 $\gamma_\ell$  より上に存在する可逆相のことを loop-reversible 相と呼ぶことにする。この loop-reversible 相は、 $\gamma_c$  まで存在している。この  $\gamma_\ell$  線は密度  $\varphi$  を上げていくと、 $\varphi_J$  に向かって 0 に近づいていく。 $\gamma_p$  から  $\gamma_\ell$  の範囲に存在する不可逆相では、粒子軌道は完全に閉じてはいないものの  $\Delta r_\infty$  は小さく、軌道はわずかに緩和に向かうような振る舞いも見られており、この不可逆相が真の不可逆相であるかは明らかではない。しかし、粒子軌道の緩和時間が非常に長いことから、実際に、この領域が可逆か不可逆なのかを決定づけることは非常に難しい。そこで、我々はこの  $\gamma_p$  と  $\gamma_\ell$  によって囲まれる不可逆相のことを準不可逆相と呼ぶ。粒子軌道の緩和時間が非常に長いことから、 $\gamma_p$  と  $\gamma_\ell$  の位置についても正確に決定することは技術的に難しい。

### 5.3.2 数値シミュレーション設定

膨張圧縮トレーニングを行う際に用いた系と同じ設定で、系のサイズを  $L = 42$  とした2次元2成分系の数値シミュレーションを行った。系の充填率は Jamming 転移点  $\varphi_J \approx 0.842$  より低い  $\varphi = 0.82$  に固定し、定常状態として可逆相及び不可逆相を得るために、剪断強度  $\gamma$  の準静的な周期剪断を系に加えた。準静的な周期剪断を実現するために、 $\gamma$  を  $|\Delta\gamma| = 10^{-3}$  ずつ変化させ、 $|\Delta\gamma|$  変化するごとに、FIRE 法 [214] を用いて系のエネルギーを最小化した。FIRE 法は、粒子に有限の質量を与え、慣性の効果を用いて高速にエネルギー最小を行う手法である。この手法を用いることで、従来から用いられている最急降下法よりも高速にエネルギー最小化を行うことができる。だが、粒子が慣性の効果を持つために、Jamming 転移点以下では周期剪断1周期した後、粒子の位置がわずかに元の位置よりも行き過ぎてしまい、最急降下法ならば可逆相が得られるパラメータであっても可逆相が得られない。しかし、本研究では、FIRE 法と通常の最急降下法で得られた結果を比較し、両者の結果が構造因子を見る上では、変化ないことを確かめているため、計算が速い FIRE 法を用いてエネルギー最小化を行った。本研究では、系にかける  $\gamma$  の大きさは  $\gamma = 0 \sim 0.08$  の間で変化させた。 $\varphi = 0.82$  では、point-reversible 相と loop-reversible 相の間の不可逆相は非常に狭く、今回のパラメータ変化の精度では  $\gamma_p \approx \gamma_\ell$  である。今回用いた密度では  $\gamma_p \approx 0.04$  である。構造因子の計算においては、 $\gamma$  の値に依存して、300 から 900 サンプル平均をとった。

### 5.3.3 周期剪断系における Hyperuniformity の指数の変化

図 5.8(a) が、実際に系に対して周期剪断を加えて得られた定常系での構造因子である。 $\gamma = 0$  は、系に対して周期剪断を加えず、ランダムな粒子配置からクエンチして得られた構造である。この時には、Hyperuniformity の兆候は見られず、 $\chi(q)$  は低波数の領域で急激に増大している。これは、粒子配置がランダムであることを反映し、Poisson 分布である  $\chi(q \rightarrow 0) = 1$  に向かっていることを示している。一方で、周期剪断をわずかにでも系に加えると、この密度揺らぎの急激な上昇は抑えられる。 $\gamma$  が小さい  $\gamma = 0.02$  程度の場合には、低波数で密度揺らぎが増大し始める兆候は見えているものの、 $\gamma$  を大きくしていくに従って、増大の兆候が抑えられることがわかる。また、 $\gamma$  を上げていくに従って、 $\chi(q)$  がべき的な振る舞いをする領域が広がっていき、またべき指数もより大きくなっている。そして、 $\gamma_p$  に近い  $\gamma \approx 0.05$  付近で、この傾きが収束していることがわかる。この収束している  $\gamma = 0.05$  の場合の  $\chi(q) \sim q^\alpha$  の指数は  $\alpha \approx 0.642 \pm 0.014$  であった。驚くべきことに、この値は 4.5 節で見た、トレーニングを施していない2次元の Jamming 転移点直上での Hyperuniformity 指数に非常に近い。

実際に、Hyperuniformity 指数  $\alpha$  の  $\gamma$  依存性をプロットしたのが図 5.8(b) である。各  $\gamma$  にお

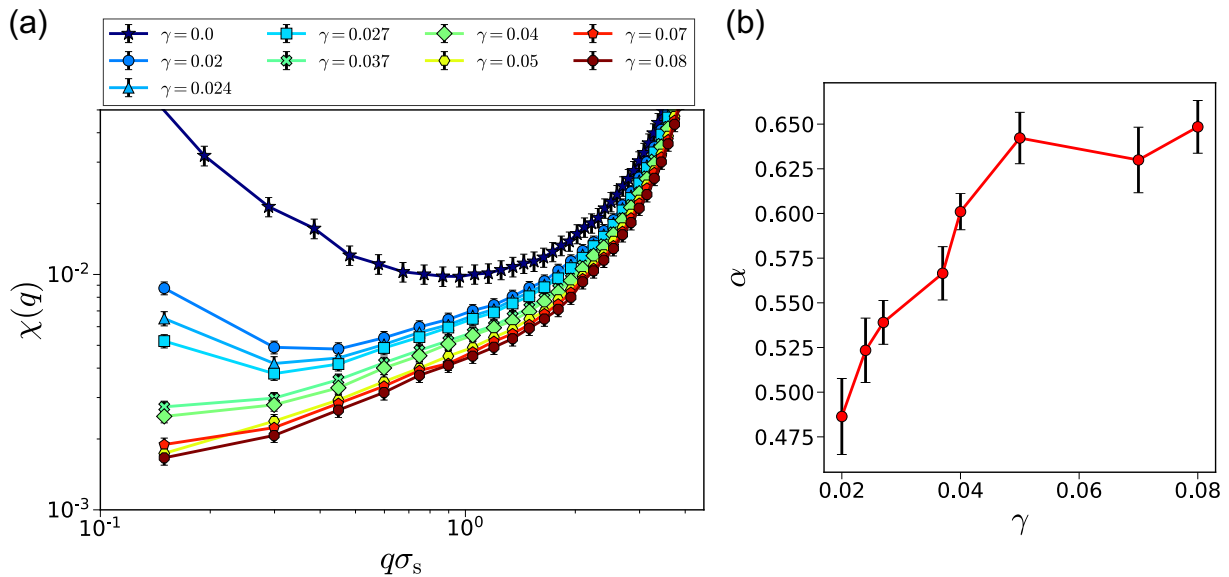


Fig.5.8 (a)  $\varphi = 0.82$  の系に対して、剪断強度  $\gamma$  を変化した際の構造因子  $\chi(q)$  の変化。この密度においては、準不可逆領域はほぼ見えず、point-reversible 相から loop-reversible 相への転移が  $\gamma_p \approx 0.04$  で生じる。 $\gamma = 0$  の系に周期剪断を加えていない場合には、密度揺らぎは低波数で急激に上昇するのに対して、系にわずかでも周期剪断を加えると、系の密度揺らぎがおさえられ、 $\chi(q)$  の中間的な波数領域にべき的な振る舞いが生じることがわかる。また、 $\gamma$  を大きくしていくに従って、べき的な振る舞いが強くなっていく傾向が見られる。(b)  $\alpha$  の  $\gamma$  依存性。 $\alpha$  は  $\gamma = 0.05$  程度まで単調に増加する。しかし、 $\gamma > 0.05$  の大きさの周期剪断を加えても、 $\alpha$  は大きくならない。興味深いことに、 $\gamma = 0.05$  は、point-reversible 相から loop-reversible 相への転移点  $\gamma_p \approx 0.04$  に近い。また、最終的に収束する  $\alpha$  の値は、 $\gamma = 0.05$  で  $\alpha \approx 0.64$  であり、2次元の Jamming 転移点直上での Hyperuniformity 指数に近い。

ける  $\alpha$  の値は、べき的な振る舞いが見えている領域において、 $\chi(q) \sim q^\alpha$  の関数でフィッティングすることで計算した。 $\gamma$  が小さい領域では、べきが見える領域が小さいため、値の信頼性が低いことに注意が必要である。 $\alpha$  は  $\gamma$  が  $\gamma_p$  より大きい領域では一定の値になっている点である。これは、密度の低い領域で見られる可逆不可逆転移での Hyperuniformity の性質とは異なっている。低密度での可逆不可逆転移では、Hyperuniformity は臨界点  $\gamma_c$  の近傍でしか観測されない。また、今回我々の結果で得られた Hyperuniformity は、3次元系の不連続な可逆不可逆転移が起こる点である  $\gamma_c (\gg \gamma_p)$  で見られた Hyperuniformity と異なる [226]。彼らは、強い周期剪断下では Hyperuniformity の指数は  $\alpha \approx 0.45$  となることを報告している。一方で、我々の今回の結果は、系に対して弱い周期剪断をかけると、系の密度揺らぎが2次元の周期剪断をかけていない Jamming 転移点での密度揺らぎと同じ性質が生じることを示している。また、 $\varphi > \varphi_J$  で膨張圧縮トレーニングを行った 5.2.3 小節の場合とは異なり、指数  $\alpha$  は  $\gamma$  を大き

くしても  $\alpha \approx 0.64$  程度より大きくなることはない。

## 5.4 まとめ

この章では、2次元2成分系に対して力学的な外力を加えた時に、系の構造がどのように変化するかを調べた。我々は、主に構造因子  $\chi(q)$  のべき的な減衰である Hyperuniformity に着目し、解析を行った。

はじめに、 $\varphi = \varphi_{\text{ini}}$  から  $\varphi = \varphi_{\text{MAX}}$  まで系の充填率を変化させる圧縮膨張サイクルを系に加えた。系の Jamming 転移点  $\varphi_J$  は、 $\varphi_{\text{MAX}}$  を大きくするに従って、増加する。我々は、この Jamming 点直上の構造を解析することで、 $\varphi_J$  の増加に伴って、ラトラー粒子の数が増加することを確認した。これは、Jamming 構造を支えるのに必要な粒子の充填率は、 $\varphi_J$  の増加によって増えていないことを示唆している。さらに、我々はラトラー粒子の中でも特に、大きい粒子のラトラーの数が増加していることを見つけた。これは、小粒子の方が粒子の間に存在する空いた空間に入りやすく、小粒子の方がラトラーになりやすいという我々の直感に反した結果である。この点に関しては、ラトラーの空間相関等のより詳細な解析が必要である。

また、我々は Jamming 転移点が増加に伴う、Jamming 転移点直上での Hyperuniformity の変化を調べた。Hyperuniformity 指数  $\alpha$  は、最大圧縮密度  $\varphi_{\text{MAX}}$  を変化させることで、 $\alpha \approx 0.63$  から  $\alpha \approx 0.74$  まで変化することを示した。この  $\alpha$  の値は、1度の膨張圧縮サイクルではこれ以上  $\varphi_{\text{MAX}}$  を大きくしても上昇しなかった。一方で、系に対して、 $\varphi_{\text{MAX}} = 1.0$  の圧縮強度で複数回の膨張圧縮サイクルをかけることで、べき指数は  $\alpha \approx 0.79$  程度まで増加することがわかった。しかし、この場合にも系にこれ以上の膨張圧縮を加えても  $\alpha \approx 0.79$  より大きくなることはなかった。これは、 $\alpha$  には力学的アニールであげることのできる最大値が存在していることを示唆している。また、力学的トレーニングは熱的アニールと同様の役割を果たすことから、系に対して熱的アニールを加えても、Jamming 転移点直上での Hyperuniformity が抑圧される振る舞いが観測されることが予想される。さらに、我々は Jamming 転移点直上の Hyperuniformity が終わり、揺らぎが増大し始める波数である  $q_{\text{HU}}$  が低波数へと移動している傾向を確認した。図 5.5(a) におけるこの傾向は、現在の我々のシミュレーション結果では系のサイズが十分ではないため、結論づけることはできないが、Hyperuniformity が存在する長さスケールが増大するという事は、系がより広い長さスケールでより安定な構造へと変化したことを示唆している。この結果は Godfrey *et al.* の理論的な示唆とも一致している [220]。近年、Das *et al.* [227] は、 $\varphi_J$  が弱い剪断強度で周期剪断をかけることによって増加することを報告した。よって、Hyperuniformity 指数や  $q_{\text{HU}}$  に関して同様の結果は  $\varphi_J$  より高い密度で周期剪断をかけた系に対しても得られることが期待される。

この章では、さらに Jamming 転移点  $\varphi_J = 0.842$  以下の充填率である  $\varphi = 0.82$  で、系に準静的な周期剪断をかける数値シミュレーションも行った。この系は、系に周期剪断をかけな

い  $\gamma = 0$  の場合には、Hyperuniformity に特徴的なべき的な振る舞いは生じないが、系にわずかにでも周期剪断を加えると、長距離の揺らぎが抑圧され、べき的な振る舞いが生じる。さらに、徐々に  $\gamma$  を大きくしていくと、Hyperuniformity 指数  $\alpha$  は増加していく。興味深いことに、point-reversible 相と loop-reversible 相の境目である  $\gamma_p \approx \gamma_\ell$  で、Hyperuniformity 指数は  $\alpha \approx 0.64$  となる。これは、系に対して外場を加えない時の2次元 Jamming 転移点直上の指数と非常に近い値である。ここで確認された Hyperuniformity は可逆相から不可逆相への転移が生じる  $\gamma_c$  で確認されたものとは異なる [225, 226]。

今回は  $\varphi = 0.82$  の一つの密度における Hyperuniformity しか示さなかったが、この計算をより低密度側にシフトさせて計算を行うことで、 $\alpha$  が低密度の DP クラスで生じる指数  $\alpha \approx 0.45$  に向かってどのように変化していくのかを調べるのは興味深い重要な問題である。

## 第 6 章

# 過冷却液体の Inherent Structure の Hyperuniform に対する熱的アニールの影響

### 6.1 背景

過冷却液体では、系の温度を下げていくと粘性が急激に増大する。これは、高温では自由に動き回れた粒子が、系が低温になると、粒子が周りの粒子に囲まれて動きづらくなり、同じ位置に囚われてしまうことに起因する。このようなダイナミクスの変化によって、過冷却液体では 2 段階緩和といった特徴的なダイナミクスが生じることが知られている。ダイナミクスには大幅な変化が起きる一方で、系の静的な構造には大きな変化が生じないことが知られている。系の静的構造因子  $S(q)$  は、粘性が急激に増大し始めてもなお、ピークがわずかに上昇する程度である。

近年、過冷却液体の Inherent Structure において、中間的な長さスケールで Hyperuniformity が生じることが報告された [213]。これは、過冷却液体には特徴的な構造が存在するものの、それが熱によって隠されていた可能性を示唆している。さらに、興味深いことに、系をより低温でアニールしていくと、Inherent Structure における Hyperuniformity のべき的振る舞いが変化することが報告された [231]。この変化が生じ始める温度は、系の Inherent Structure エネルギーが減少し始める位置、つまり、系がエネルギーランドスケープを降り始める温度と一致していることが知られている。また、別の先行研究では、Jamming 転移点近傍において、系を熱的アニールすると系の密度揺らぎが抑えられる長さスケールが増大することが報告されている [46]。これは熱的アニールの効果によって、Hyperuniformity がより長距離に渡って存在することを示唆している。さらに、彼らは、系の密度が高く Jamming 転移点から遠い場合には、熱的アニールによる長さスケールの増大は生じないことを報告している。これは、Jamming 転

移と熱的アニールの間に関係が存在することを示している。しかし、この先行研究では、系に対する熱的アニールが十分適切に行われているわけではない。この先行研究では、系の初期温度  $T_{\text{ini}}$  と最終温度  $T_{\text{fin}}$  を固定し、温度を下げていく速度  $r$  を変化することで、系に対するアニールの度合いを変化させている。彼らは、 $r \rightarrow 0$  の極限と  $\varphi \rightarrow \varphi_J$  の極限を取れば、系は真の Hyperuniformity となるとしている。 $r \rightarrow 0$  の極限とは、温度を下げるごとに全ての温度で平衡化できている状態をさす。しかし、彼らは、最終温度  $T_{\text{fin}}$  が、VFT から見積もられるガラス転移点  $T_K$  以下に来るようにしているため、どの温度まで系がアニールできているかは明らかではない。また、 $T_K$  は高密度であるほど上昇するが、彼らは  $T_{\text{ini}}$  と  $T_{\text{fin}}$  を固定しているため、高密度の場合においては、平衡化が実際に実現できた温度は高く、十分低温まで平衡化できたとは考えづらい。そのため、彼らの結論であった、 $\varphi \rightarrow \varphi_J$  の極限が真に重要なのか、それとも、低温までアニールできれば  $\varphi_J$  近傍でなくとも Hyperuniformity 長の増大が見られるかははっきりしない。

近年の理論的研究によって、系が理想ガラス転移点に近づくと系が Hyperuniformity になりうるという示唆がされている [220]。もしこの予想が正しければ、Chieco *et al.* の結論とは異なり、Jamming 転移点から遠い場合であっても、Hyperuniformity が存在する長さスケールが増大する可能性がある。これは、過冷却液体における Inherent Structure では、系を低温でアニールすると、Hyperuniformity が存在する長さスケールが増大する可能性を示唆している。実際、Shukawa は、2次元の巨大な系を用い、系を低温でアニールするに従って、構造因子において揺らぎが抑えられる距離が伸びる振る舞いを確認している [232]。しかし、この Hyperuniformity 長自体は明確に定量化されておらず、Mitra らが示した中間波数領域におけるべき振る舞いがどのように変化するかも示してはいない。そこで、本研究では、巨大な系を用いて、適切に平衡化することで、過冷却液体の Inherent Structure に存在する Hyperuniformity の性質がどのように変化するかを詳細に調べる。

この章は次のような構成になっている。まずはじめに、6.2 節では、本研究で用いた数値シミュレーションの設定について説明する。続いて、6.3 節において、系のエネルギーランドスケープの変化を調べるために、系の動的な性質の変化を調べ、この系における動的転移点を調べた。6.4 節において、本研究の主結果である過冷却液体の Inherent Structure における  $\chi(q)$  の熱的アニールによる変化を議論する。最後に、6.5 節において、今回の研究で得られた結果について議論する。

## 6.2 数値シミュレーションの設定

本章では、結晶化を阻害するために、大小粒子のサイズ比が  $\sigma_S : \sigma_L = 1 : 1.4$  の2次元2成分系を用いた。粒子間相互作用には、Harmonic ポテンシャル  $U(r_{ij}) = \frac{\epsilon}{2}(1 - r_{ij}/\sigma_{ij})^2$  [233] を用いた。ここで、 $r_{ij} = |\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|$  は粒子  $i$  と粒子  $j$  の距離であり、 $\sigma_{ij} = \frac{1}{2}(\sigma_i + \sigma_j)$  は粒子  $i$  と粒



子  $j$  の平均粒径である。

我々は、系を低温で平衡化するためにブラウン動力学法を用いた。粒子のダイナミクスは次の Underdamped Langevin 方程式

$$m\dot{\mathbf{v}}_i = -\zeta\mathbf{v}_i - \sum_j \nabla U(r_{ij}) + \sqrt{2k_B T \zeta} \mathbf{f}_R(r). \quad (6.1)$$

に従う。ここで、 $\mathbf{f}_R(r)$  は白色ガウスノイズであり、 $\zeta$  は抵抗係数、 $T$  は系の温度である。私たちは  $\sigma = \sigma_S$  を数値計算における長さスケールとし、時間の単位には  $\tau = \sqrt{m\sigma^2/\epsilon}$  を用いた。数値計算における無次元化パラメータは、無次元化抵抗係数  $\zeta^* = \frac{\zeta}{m} \sqrt{\frac{m\sigma^2}{\epsilon}}$  と無次元化温度  $T^* = k_B T/\epsilon$  である。本研究では、充填率  $\varphi = \frac{1}{L^2} \sum_i \frac{\sigma_i^2}{4} = 0.9$  で数値シミュレーションを行い、 $\zeta^* = 1$  と固定し、 $T^*$  をコントロールすることで、平衡化温度を制御した。ある温度  $T^*$  における緩和時間等の動的な性質を調べる場合には、粒子数  $N = 1024$  の系を用い、系の密度揺らぎ等の静的な性質を調べる場合には、粒子数  $N = 262144$  の系を用いた。 $N = 1024$  の系は CPU を用いて数値計算を行い、大規模な計算を高速に行うために  $N = 262144$  の系は GPU を用いて行った。本研究は、オイラー法を用いて Langevin 方程式の差分化を行い、時間刻みを  $dt = 10^{-2}$  と設定し、周期的境界条件を用いて数値計算を行った。

ブラウン動力学法を用いて得られた平衡系での構造に対して、FIRE 法 [214] を用いて系のエネルギーを最小化することで、系の Inherent Structure を得た。本研究では、4.3 節と同様の設定で FIRE 法を行った。系の Inherent Structure は、平衡化させた系がいたポテンシャルエネルギーランドスケープの底の構造に対応する。

### 6.3 2次元系における Mermin-Wagner 揺らぎと系の緩和時間

まずはじめに、この章では、 $\varphi = 0.9$  における 2次元 2成分過冷却液体の動的性質を調べる。4.2.1 小節で議論したように、2次元過冷却液体では、Mermin-Wagner 揺らぎが存在する。この揺らぎによって、粒子が動かされてしまうために、粒子変位が生じてしまい、通常の間散乱関数  $F_s(k, t)$  等の物理量を用いると系は緩和しているように見え、ガラス特有の遅いダイナミクスが見えない。Mermin-Wagner 揺らぎは長いスケールでの揺らぎであるため、注目している粒子の周りの粒子も同じ揺らぎによってうごかされている。これは、着目している粒子がケージの中に留まったまま、変位が生じていることを意味しており、ガラスの構造緩和におけるケージ間のジャンプというダイナミクスを捉えているわけではない。そこで、ケージ間のジャンプを捉えるために周りの粒子との協動的な移動を抜いた変位であるケージ相対変位を用いる [180, 196–198]。ケージ相対変位  $\Delta \mathbf{r}_i^{\text{CR}}$  は、

$$\mathbf{r}_i^{\text{CR}} = \Delta \mathbf{r}_i - \frac{1}{N_{nm}} \sum_{j \in N_{nm}} \Delta \mathbf{r}_j. \quad (6.2)$$

と書くことができる。1 項目は  $i$  番目の粒子の変位を表しており、2 項目は  $i$  番目の第一近接粒子全体の重心移動を示している。つまり、 $i$  番目の粒子の変位のうち、周りの粒子と一緒に移動している部分を抜いているのである。本研究では、 $i$  番目の第一近接粒子は、 $i$  番目との粒子の距離が  $r_{ij} < 1.25\sigma_{ij}$  である粒子とした [180]。ケージ相対変位はケージに所属する粒子の協同的な運動を抜いているので、大きな変位が生じるのはケージから抜け出て別のケージへと遷移する場合だけであり、このケージ相対変位を用いることで、Mermin-Wagner 揺らぎに隠されたガラスの遅いダイナミクスを捉えることができる。また、ケージ相対変位を用いた物理量は系の有限サイズ効果を受けないため [180]、 $N = 1024$  で得られた緩和時間等の結果は、 $N = 262144$  の系でも成立する。

本研究では、ケージ相対変位を用いた量として、ケージ相対平均二乗変位  $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$

$$\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle = \frac{1}{N} \sum_i \langle (\Delta \mathbf{r}_i^{\text{CR}}(t))^2 \rangle. \quad (6.3)$$

とケージ相対中間散乱関数  $F_s^{\text{CR}}(q, t)$

$$F_s^{\text{CR}}(q, t) = \frac{1}{N} \sum_i \langle e^{iq \cdot \mathbf{r}_i^{\text{CR}}(t)} \rangle \quad (6.4)$$

を用いた。両者の関数はそれぞれ平均二乗変位  $\langle \Delta \mathbf{r}(t) \rangle$  と中間散乱関数  $F_s(q, t)$  で用いる粒子変位を、通常の粒子変位からケージ相対変位に変えて計算を行った量である。

まずはじめに、通常の平均二乗変位  $\langle \Delta \mathbf{r}^2(t) \rangle$  とケージ相対平均二乗変位  $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$  について計算を行った。両者の結果を示したのが図 6.1 である。図 6.1(a) は通常の平均二乗変位  $\langle \Delta \mathbf{r}^2(t) \rangle$  であり、図 6.1(b) はケージ相対平均二乗変位  $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$  である。短時間領域では、両者の振る舞いは一致しており、 $\langle \Delta \mathbf{r}^2(t) \rangle \propto t^2$  という弾道的な振る舞いが観測される。しかし、 $t \geq 1$  の弾道的な領域を超えたプラトーが見える時間スケールでは、両者の振る舞いはやや異なっている。高温側では、ガラス特有のプラトーはほとんど見えないため、 $\langle \Delta \mathbf{r}^2(t) \rangle$  と  $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$  の間には、変化は見られないが、プラトーが観測されるような、十分低温である  $T = 0.0012$  では、プラトー領域の振る舞いが異なる。通常の平均二乗変位  $\langle \Delta \mathbf{r}^2(t) \rangle$  はケージ相対平均二乗変位  $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$  に比べ、緩和が速くなっている。これは Mermin-Wagner ゆらぎによる粒子の協同的な運動を  $\langle \Delta \mathbf{r}^2(t) \rangle$  が拾ってしまうことに起因している。一方で、ケージジャンプの効果のみを拾う  $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$  では、ガラスのスローダイナミクスを捉えられている。ここで、ケージ相対平均二乗変位  $\langle (\Delta \mathbf{r}^{\text{CR}}(t))^2 \rangle$  のプラトー領域も 4.2.1 小節で見た、平均二乗変位に比べて完全な一定値になっているわけではない。これは、相互作用ポテンシャルに Lennard-Jones ポテンシャルに比べて柔らかく短距離の相互作用である Harmonic ポテンシャルを用いているからである。Harmonic ポテンシャルの場合には、注目している粒子がケージ

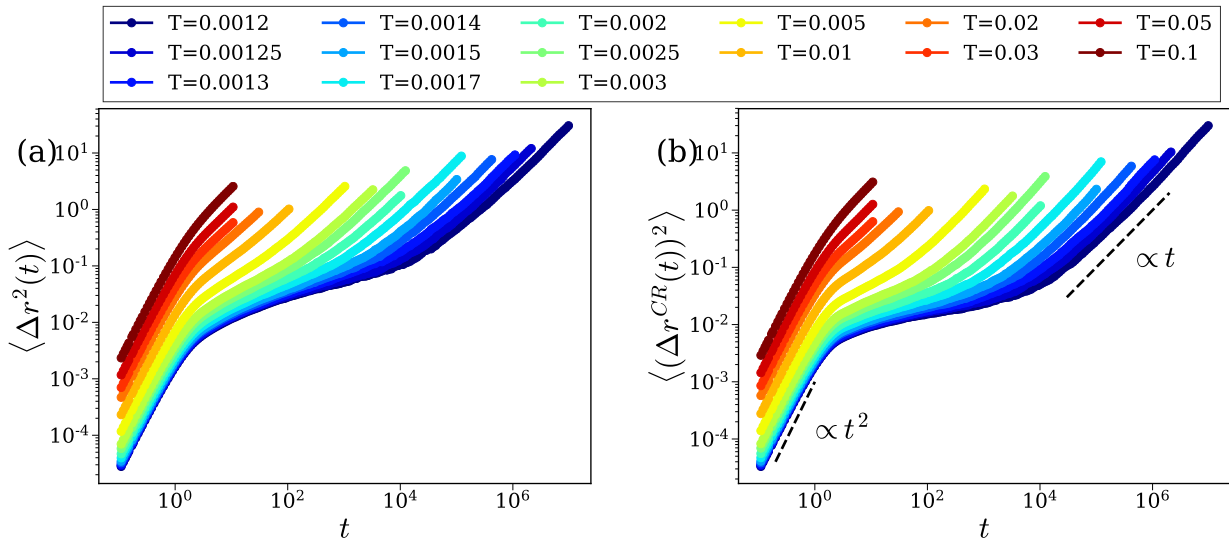


Fig.6.1 平均二乗変位  $\langle \Delta r^2(t) \rangle$  (a) とケージ相対平均二乗変位  $\langle (\Delta r^{CR}(t))^2 \rangle$  (b)。ここで  $T = 0.0012 \sim 0.1$  までの結果を示している。 $t \leq 1$  の弾道的な領域では、両者の振る舞いは類似しており、 $\langle \Delta r^2(t) \rangle \propto t^2$  の振る舞いが見られている。一方で、プラトーが見える時間スケールでは、 $\langle \Delta r^2(t) \rangle$  の傾きは  $\langle (\Delta r^{CR}(t))^2 \rangle$  に比べて大きくなっている。さらに長時間の領域では、両者の振る舞いは一致し、粒子は拡散的な振る舞いを示す。この時間スケールでは、 $\langle \Delta r^2(t) \rangle \propto t$  となっている。

を構成する粒子の間を抜けることが、Lennard-Jones ポテンシャルの場合に比べて、容易だからであり、Harmonic ポテンシャル系ではケージが Lennard-Jones 系に比べて弱いということができる。プラトー領域を超えた長時間領域では、平均二乗変位  $\langle \Delta r^2(t) \rangle$  とケージ相対平均二乗変位  $\langle (\Delta r^{CR}(t))^2 \rangle$  の両者の振る舞いは一致している。この時間領域では、粒子は拡散的に振る舞い、 $\langle \Delta r^2(t) \rangle \propto t$  となる。

次に、系の構造緩和時間  $\tau_\alpha$  を調べるために中間散乱関数を調べた。中間散乱関数も先に述べたように、通常の変位を用いた中間散乱関数  $F_s(q, t)$  とケージ相対変位を用いたケージ相対中間散乱関数  $F_s^{CR}(q, t)$  を計算した。図 6.2 に、中間散乱関数  $F_s(q, t)$ (a) とケージ相対中間散乱関数  $F_s^{CR}(q, t)$ (b) の結果を示した。ここでは、粒子径程度のスケールでの緩和を捉えるために  $q = 2\pi/\sigma_S$  と選んでいる。 $F_s(q, t)$  と  $F_s^{CR}(q, t)$  の両者とも高温側では、 $t \approx 1 \sim 10$  程度の時間で緩和しており、両者の振る舞いにほとんど変化は見られない。一方で、系の温度を下げると、 $F_s(q, t)$  と  $F_s^{CR}(q, t)$  の振る舞いは異なる。 $F_s(q, t)$  では、温度を下げてもはっきりとしたプラトーが見られず、緩和が緩やかになっていくのみである。 $F_s(q, t)$  のこのような緩やかな緩和の振る舞いは、今回の数値計算で用いた最も低温の場合である  $T = 0.0012$  の場合でも見られており、このような低温の場合もはっきりとしたプラトー領域は観測されない。こ

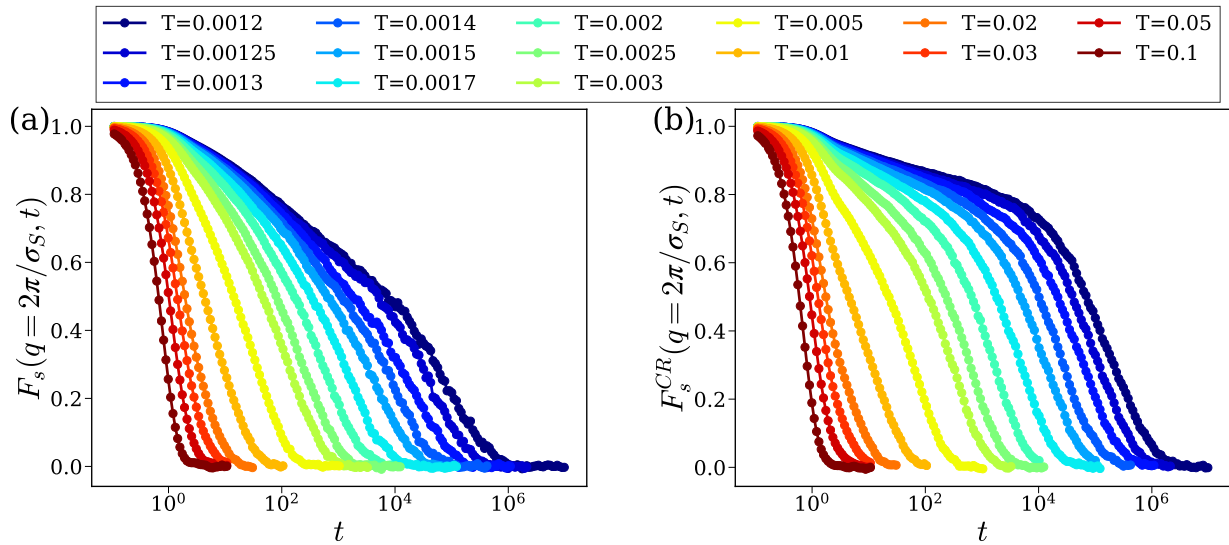


Fig.6.2 (a) 中間散乱関数  $F_s(q, t)$  と (b) ケージ相対中間散乱関数  $F_s^{CR}(q, t)$ 。ここで  $T = 0.0012 \sim 0.1$  までの結果を示している。高温側では、両者の振る舞いは一致しており、短時間で急速に緩和している。一方で、低温側での振る舞いは大きく異なる。中間散乱関数  $F_s(q, t)$  では、プラトーが見られず相関は緩やかに落ちていく。一方で、ケージ相対中間散乱関数  $F_s^{CR}(q, t)$  では、プラトーが生じており、ガラス特有の2段階緩和が見えている。

これは、粒子が Mermin-Wagner 揺らぎによって動かされているために、ケージジャンプによる構造緩和を起こさなくとも、変位できるため、ケージジャンプが見える特徴的な時間スケールが隠されてしまうためである。一方で、ケージ相対中間散乱関数  $F_s^{CR}(q, t)$  では、 $T \approx 0.01$  程度で2段階緩和の兆候が見え始め、温度をさらに下げていくことで、このプラトー領域は広がっていくことがわかる。このプラトー領域が完全な一定値にならないのは、平均二乗変位の場合で議論したように相互作用ポテンシャルに Harmonic ポテンシャルを用いているためである。

$F_s^{CR}(q, t)$  では、プラトー領域が伸びていくため、 $F_s(q, t)$  に比べて相関が緩和するのにかかる時間が明らかに長くなっていることがわかる。これは、 $F_s^{CR}(q, t)$  では、ケージを構成する粒子との協同的な運動を抜いていることに起因している。では、次に、実際に  $F_s^{CR}(q, t)$  と  $F_s(q, t)$  の場合でどれだけ構造緩和時間が異なるかを調べる。本研究では、 $F_s(q, t) = 1/e$  となる時間を構造緩和時間  $\tau_\alpha$  と定義した。 $F_s(q, t)$  と  $F_s^{CR}(q, t)$  から求めた構造緩和時間を区別して書く必要がある場合には、それぞれ  $\tau_\alpha, \tau_\alpha^{CR}$  と書く。 $F_s(q, t)$  と  $F_s^{CR}(q, t)$  から求めた構造緩和時間を示したのが、図 6.3 である。高温領域では  $\tau_\alpha$  と  $\tau_\alpha^{CR}$  はほとんど変化しない。一方で、低温領域では、 $\tau_\alpha^{CR}$  は  $\tau_\alpha$  に比べて大きくなっている。今回得られた結果では、最も低温側の  $T = 0.0012$  の場合には、 $\tau_\alpha^{CR}$  は  $\tau_\alpha$  に比べて1桁近く大きい。これは、図 6.2 で示したように Mermin-Wagner 揺らぎによる変位が含まれる  $F_s(q, t)$  は、ケージジャンプのみの効果を捉える  $F_s^{CR}(q, t)$  に比べて、早く緩和するように見えるからである。しかし、Mermin-Wagner 揺らぎ

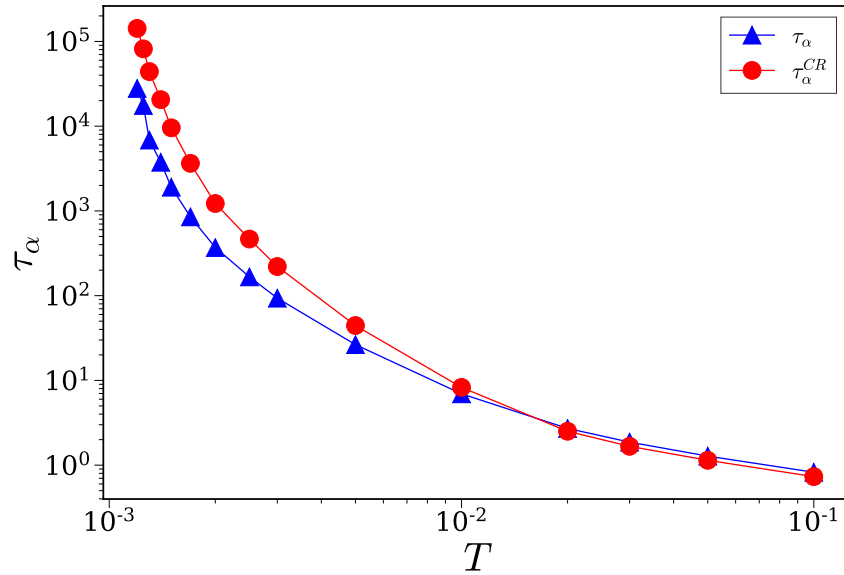


Fig.6.3  $F_s(q, t)$  から得られた  $\tau_\alpha$  (青三角) と  $F_s^{CR}(q, t)$  から得られた  $\tau_\alpha^{CR}$  (赤丸) の温度  $T$  依存性。高温側では、 $\tau_\alpha$  と  $\tau_\alpha^{CR}$  は一致している。それに対して、ケージジャンプが構造緩和に重要な役割をはたす低温側では、ケージジャンプのみによる構造緩和を捉える  $\tau_\alpha^{CR}$  が、Mermin-Wagner 揺らぎの効果も含む  $\tau_\alpha$  に比べて大きな値になっている。

による変位は、ケージを構成する粒子との協動的な運動なので、実際には構造は緩和しておらず、正確な構造緩和時間は  $\tau_\alpha^{CR}$  であることに注意が必要である。以上から、2次元系の低温領域においては、通常の  $F_s(q, t)$  で捉えられる緩和時間  $\tau_\alpha$  は Mermin-Wagner 揺らぎによって、ケージジャンプによる構造緩和時間  $\tau_\alpha^{CR}$  と大きく異なることがわかった。また、 $T = 10^{-2}$  以下の温度領域に注目すると、 $\tau_\alpha^{CR}$  は温度がおおよそ一桁変化する間に、緩和時間が4桁近く増大していることがわかる。

本研究では、系を平衡化させる時の温度の違いによって系の構造の違いにどのような変化が生じるかを調べるのが目的である。そのために、ここで系のエネルギーランドスケープの構造変化が起きる動的転移点  $T_d$  がどこに存在するかを調べる。ここで、ケージ相対中間散乱関数  $F_s^{CR}(q, t)$  によってもとまった構造緩和時間  $\tau_\alpha^{CR}$  を用いて動的転移点の位置を調べる。以降では、 $\tau_\alpha^{CR}$  のことを簡単に  $\tau_\alpha$  と書くことにする。動的転移点はモード結合理論が予測するダイナミクスが凍結する点であり、モード結合理論から動的転移点での緩和時間の発散は

$$\tau_\alpha \propto |T - T_d|^y \quad (6.5)$$

という関数形であることが知られている [171, 173, 184, 185]。そこで、実際に数値計算で得られた緩和時間を式 (6.5) でフィッティングすることで動的転移点を求める。ここで、 $F_s^{CR}(q, t)$  に遅いダイナミクスが見え始める  $T^{-2}$  以下のデータを用いて、フィッティングを行った。実際に、フィッティングで得られた結果が図 6.4(a) である。確かに、低温側において、べき的な発散傾向

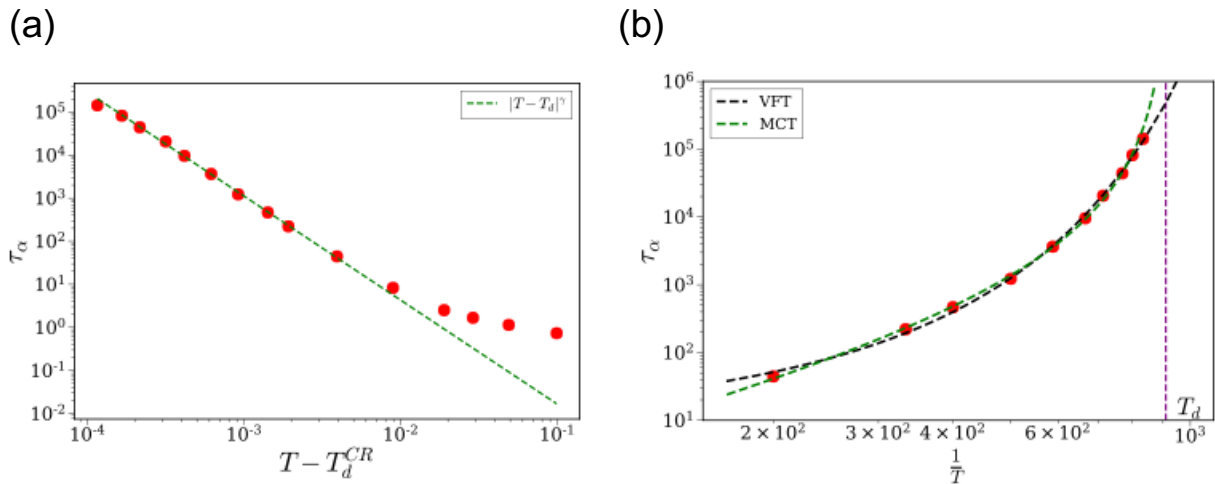


Fig.6.4 (a) 緩和時間  $\tau_\alpha$  とモード結合理論が予想する  $\tau \propto |T - T_d|^\gamma$  の関数でフィッティングして得られた結果をプロットしている。ここで、フィッティングには  $T < 10^{-2}$  のデータを用いた。フィッティングで得られた動的転移点は  $T_d \approx 0.0011$  であり、指数は  $\gamma \approx 2.4$  であった。プロットでは、横軸を動的転移点  $T_d$  を用いてスケールしている。(b) 緩和時間  $\tau_\alpha$  の逆温度  $1/T$  依存性。緑色の波線はモード結合理論が予想する  $\tau \propto |T - T_d|^\gamma$  を示し、黒色の波線は Vogel-Fulcher-Tamman(VFT) 則  $\tau_\alpha \propto \exp\left(\frac{A}{T - T_K}\right)$  を示す。今回得られた温度範囲では、2つの発散の振る舞いは同程度データをよく説明していることがわかる。紫の波線はモード結合理論のべき則に対するフィッティングから得られた動的転移点  $T_d$  を示している。

が見られ、よくフィッティングにあっていることが確認できる。このフィッティングによって得られた動的転移点は  $T_d^{CR} \approx 0.0011$  であり、指数  $\gamma \approx 2.4$  であった。この指数は、Lennard-Jones 液体で知られている指数の値  $2.5 \sim 2.7$  [171, 173] に近い。また、通常の  $F_s(q, t)$  から得られる構造緩和時間を用いて、同様のフィッティングを行うと、動的転移点は  $T_d \approx 0.0011$  となり、指数は  $\gamma \approx 1.9$  となった。このことからどちらの構造緩和時間を用いても、予測される動的転移点の温度は変化しないことがわかる。一方で、指数  $\gamma$  の値は、大きく異なっている。これは、高温領域では  $F_s(q, t)$  と  $F_s^{CR}(q, t)$  の構造緩和時間はほとんど変化しないのに対して、低温領域において  $F_s(q, t)$  の構造緩和時間は  $F_s^{CR}(q, t)$  の構造緩和時間よりも小さくなるからである。

また、 $F_s^{CR}(q, t)$  によってもとまった構造緩和時間を用いて、ガラス転移点  $T_K$  を求める。ガラス転移点  $T_K$  は、Vogel-Fulcher-Tamman(VFT) 則  $\tau_\alpha \propto \exp\left(\frac{A}{T - T_K}\right)$  のフィッティングから求める。我々のデータに対してフィッティングし、もとまった VFT 則を示したのが図 6.4(b) の黒点線である。ここで、モード結合理論が予測するべき則も図 6.4(b) に緑点線としてプロットした。今回、計算した範囲では、VFT 則もモード結合理論が予測するべき則も得られたデータをうまく説明することがわかる。今回、VFT 則のフィッティングによって得られたガラス転移温度は  $T_K \approx 0.00035$  であった。

## 6.4 過冷却液体の Inherent Structure における Hyperuniformity

本研究の中心的テーマである熱的アニールによる系の密度揺らぎの変化を調べる。ここで、長距離における系の密度揺らぎの相関を捉えるために、 $N = 262144$  の系を用いて解析を行った。また、密度揺らぎを特徴付けるための物理量として、4.4 節で定義した定義 III の構造因子  $\chi(q)$  を用いる。定義 III の構造因子  $\chi(q)$  は

$$\chi(q) = \frac{S_{SS}(q)S_{LL}(q) - S_{LS}^2(q)}{x_S^2 S_{LL}(q) + x_L^2 S_{SS}(q) - 2x_S x_L S_{LS}(q)}, \quad (6.6)$$

である [18]。ここで、 $S_{\nu\mu}(q)$  は  $S_{\nu\mu}(q) = \langle \delta\rho_\nu(q)\delta\rho_\mu^*(q) \rangle / N$  である各成分の間の静的構造因子である。過冷却液体の Inherent Structure では、Hyperuniformity が観測されることが知られている [213]。そこで、この章では、系の Inherent Structure における密度揺らぎが熱的アニールによってどのように変化するかを調べる。本研究では、各温度に対して 300 個の独立なサンプルに対してアンサンブル平均を行った。

実際に、我々の数値シミュレーションによって得られた構造因子  $\chi(q)$  を示したのが図 6.5 である。図 6.5(a) からわかるように、高波数  $q \gtrsim 2$  程度の領域では、アニール温度による変化は生じていない。これは、熱的アニールによって短距離の構造はほとんど変化していないことを示している。一方で、系を低温でアニールすると中間的な波数領域 ( $0.3 \lesssim q \lesssim 2$ ) で、 $\chi(q)$  の振る舞いに変化している。特に、 $0.3 \lesssim q \lesssim 1.3$  の領域では、Jamming 転移点近傍と同様にべき的な振る舞いが観測されているが、このべき的な振る舞いが熱的アニールの強度に依存して、弱くなっていることが確認できる。実際に、 $0.3 \lesssim q \lesssim 1.3$  の領域で  $\chi(q)$  を  $\chi(q) \sim q^\alpha$  としてフィッティングし、べき指数  $\alpha$  の温度依存性をプロットしたのが図 6.6 の赤線である。べき指数  $\alpha$  は確かに、系を平衡化させる温度  $T$  を低くするに従って、下がっていくことが確認できる。ここで、 $\alpha$  は  $T = 0.01$  の場合には、 $\alpha \approx 0.55$  だったのに対して、 $T = 0.0015$  で平衡化させた場合には、 $\alpha \approx 0.43$  程度まで減少している。この結果と同様の振る舞いは、3次元の Lennard-Jones 液体においても確認されている [231]。一方で、彼らの  $\alpha$  は  $\alpha \approx 0.4 \sim 0.15$  の範囲で変化しており、指数の値自体は我々の結果とは異なる。Mitra は、このべき指数  $\alpha$  の減少は系の Inherent Structure エネルギーの減少と対応していることを報告している。そこで、我々の系の Inherent Structure エネルギーを図 6.6 に緑線としてプロットした。確かに、 $\alpha$  の減少は、系の Inherent Structure エネルギーの減少と対応していることがわかる。これは、系が熱的アニールによってエネルギーランドスケープを降っていくことによって、Inherent Structure におけるべき的な振る舞いが弱くなっていくことを意味している。この熱的アニールによる  $\alpha$  の減少は、第5章で見た力学的アニールによる Jamming 転移点近傍における  $\alpha$  の増大と逆の振る舞いである。もちろん、今回我々は  $\varphi = 0.9$  という Jamming 転移点から離れた充填率に

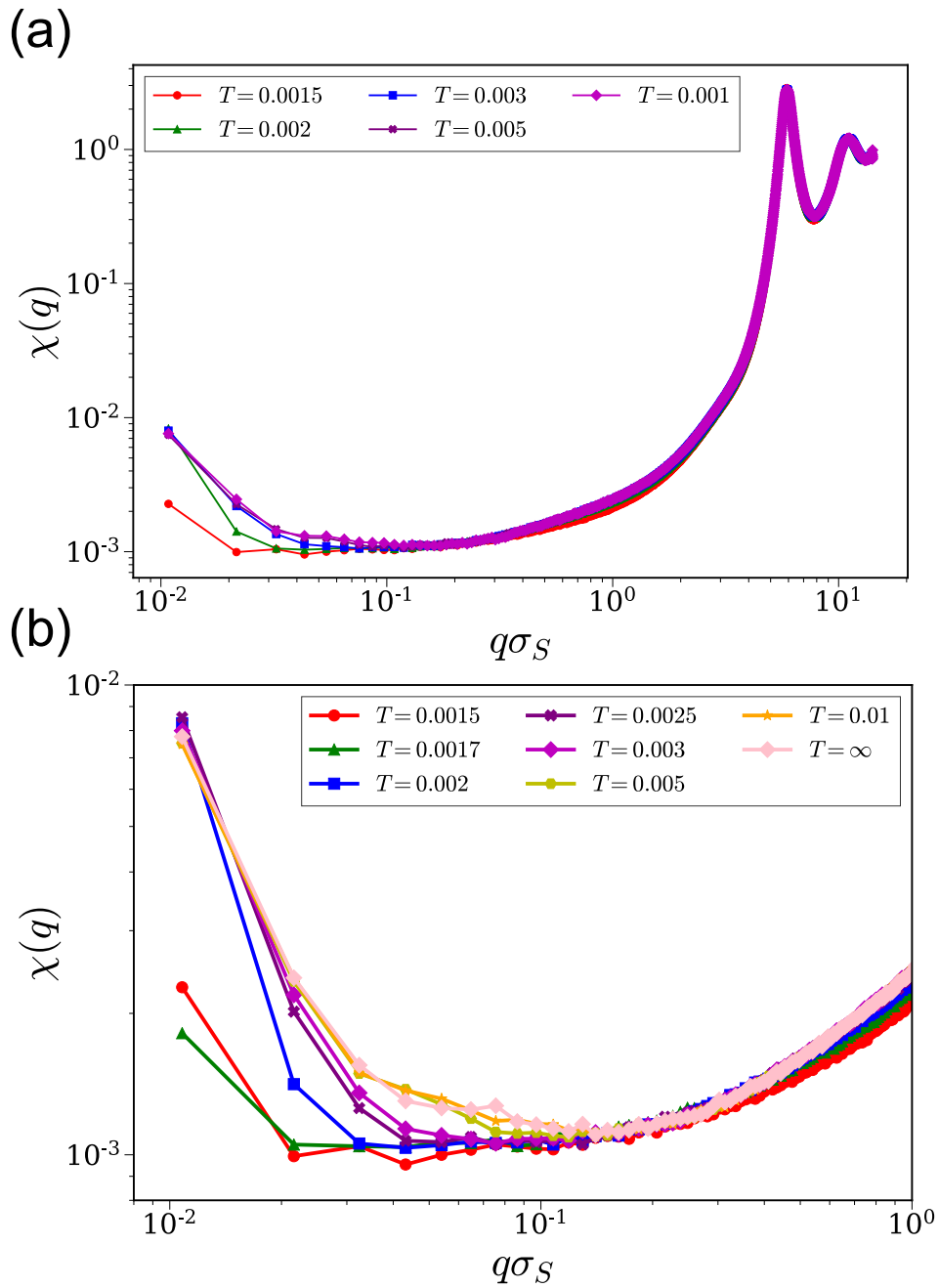


Fig.6.5 (a) 系を平衡化させる温度  $T$  を変化させた際の構造因子  $\chi(q)$  と (b) その構造因子の低波数領域での振る舞い。ここで  $T = \infty$  は、系を平衡化させずにランダムな粒子配置からクエンチした際に得られた結果であり、高温側でアニールした場合と振る舞いはほとんど変化しない。一方で、 $T = 0.002$  のように低温で系をアニールすると、その振る舞いは高温側での振る舞いとは異なったものになる。構造因子は平衡化する温度を低くしていくと中間領域で生じるべき的振る舞いが弱くなることが観測された。また、低波数領域に着目すると、平衡化する温度を低くしていくと  $\chi(q)$  の最小値が小さくなり、揺らぎが増大し始める波数  $q_{\text{HU}}$  が低波数へとシフトしていく。



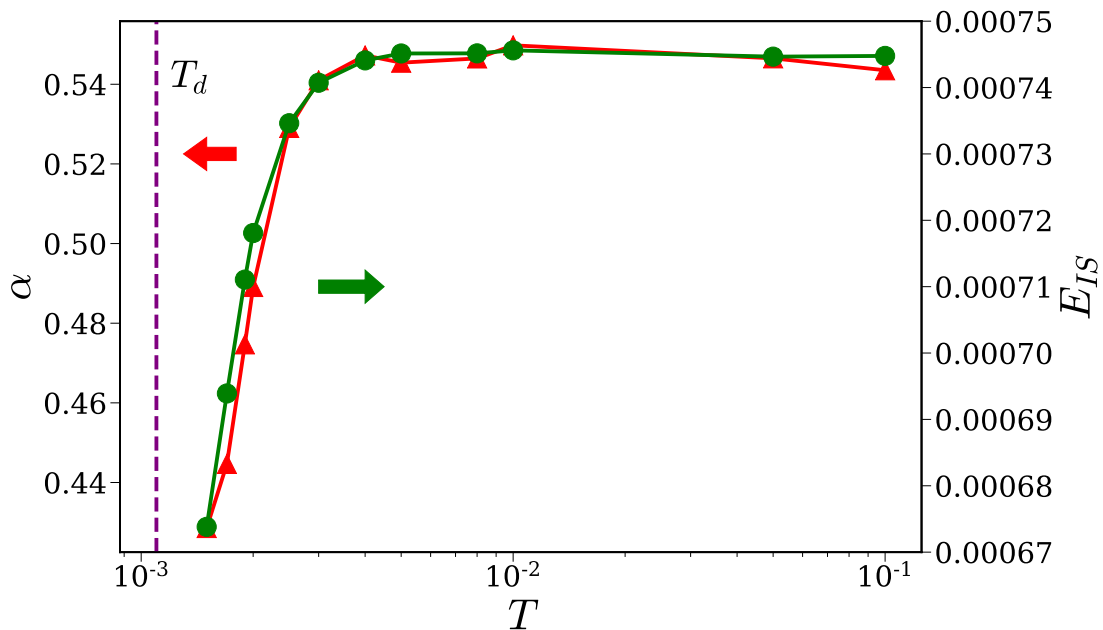


Fig.6.6  $\alpha$  と Inherent Structure エネルギー  $E_{IS}$  の温度依存性。  $T > 0.05$  の温度領域では、 $\alpha$  は一定だが、 $T < 0.05$  で系をアニールすること、 $\alpha$  は温度が減少するに従って小さくなっていく。この  $\alpha$  の  $T$  依存性は、 $E_{IS}$  の  $T$  依存性と一致している。これは、系がエネルギーランドスケープを降っていくに従って、 $\alpha$  が小さくなっていくことを示唆している。

おける密度揺らぎを調べているため、Jamming 転移点近傍の振る舞いと一致する理由はないが、系に対するアニールの効果が Jamming 転移点近傍と離れた密度領域で真逆の振る舞いをするのは興味深い。

図 6.5 で示した構造因子  $\chi(q)$  は、系を平衡化する温度の違いによって低波数領域の振る舞いが大きく変化することがわかる。構造因子  $\chi(q)$  の低波数領域を示したのが図 6.5(b) である。この低波数領域での振る舞いには、主に 2 つの変化が生じている。1 つは、系を低温で平衡化するとわずかではあるものの  $\chi(q)$  の最小値が減少している点である。2 つ目は、系を低温で平衡化すると密度揺らぎが増大し始める点がより低波数領域へとシフトしていく [232]。ここで我々は、この密度揺らぎが増大し始める波数を  $q_{HU}$  と呼ぶことにする。

まずはじめに、平衡化温度  $T$  に依存して  $\chi(q)$  の最小値がどのように変化していくかを調べる。ここで、 $\chi(q)$  の最小値を  $H = \min_q \chi(q)$  と書くことにする。我々の系では、 $\chi(q)$  の最大値はほとんど変化していないことから、この量は先行研究で用いられている Hyperuniformity index に類似した量である [234]。  $H$  は最も密度揺らぎが抑えられる長さスケールにおける、密度揺らぎの大きさを示しており、 $H$  が小さい場合には密度揺らぎが小さくなっていることを意味している。我々の構造因子から計算された  $H$  を示したのが図 6.7 である。この最小値  $H$  も、 $T \approx 0.017$  付近でわずかな上昇が見られるものの、 $T$  を下げていくに従って、減少していくことが確認できる。また、 $H$  の振る舞いも、 $\alpha$  の場合と同様に Inherent Structure エネルギー

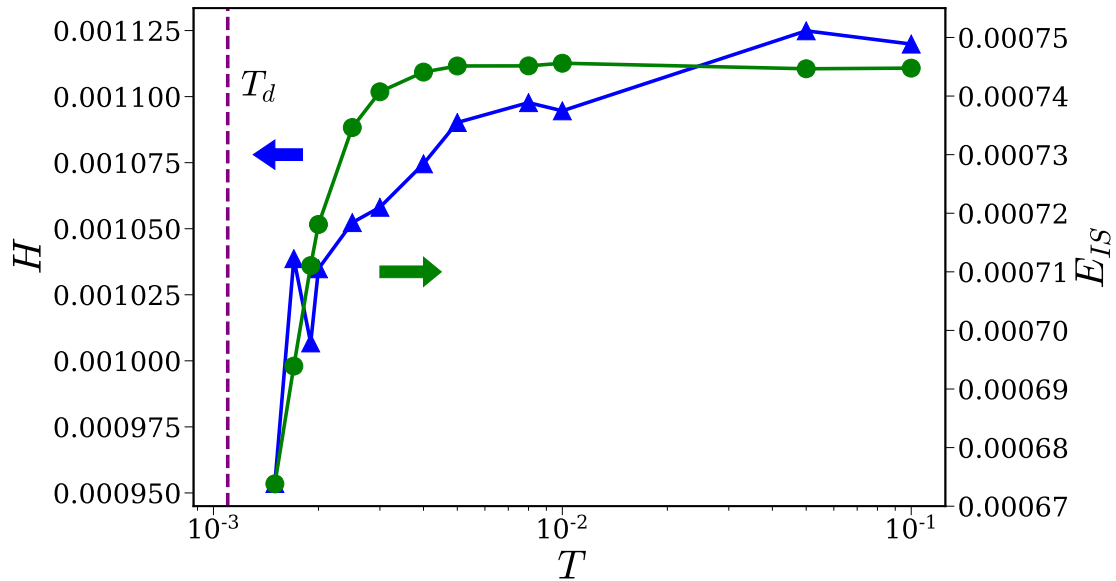


Fig.6.7  $\chi(q)$  の最小値  $H$  と Inherent Structure エネルギー  $E_{IS}$  の温度依存性。  $H$  は最も密度揺らぎが抑えられる長さスケールにおける、密度揺らぎの大きさを示している。  $H$  は、  $T = 0.017$  においてわずかに上昇しているものの、基本的な振る舞いは  $E_{IS}$  の振る舞いと類似している。これは、系がエネルギーランドスケープを降っていくに従って、系の密度揺らぎが小さくなることを意味している。

$E_{IS}$  と同じ振る舞いをしていることが確認できる。系のエネルギーランドスケープを下がっていくに連れて、  $H$  が小さくなっていくことは、系の密度揺らぎがより抑えられた構造が熱的アニールによって得られるということを示唆している。

次に、2つ目の点である系の熱的アニールに伴って、  $q_{HU}$  が低波数領域へとシフトしていくことについて調べる。ここで、我々が得た低波数領域での  $\chi(q)$  は、低波数ではデータ点が少なく、シミュレーションデータから直接  $q_{HU}$  を推定するのは難しい。そこで、我々は先行研究で用いられた最小値を持つような関数 [235]

$$\chi(q) = Aq^a + Bq + C \tag{6.7}$$

を用いて、シミュレーションデータをフィッティングし、得られたフィッティング関数における最小値を与える波数を  $q_{HU}$  と定義した。ここで、フィッティングにおいては、  $0.01 \leq q \leq 0.4$  までのデータを用いて、フィッティングを行った。実際に、フィッティングによって得られた関数とシミュレーションデータを示したのが図 6.8(a) である。確かに、フィッティング関数によって得られた関数がシミュレーションデータをよく再現していることが確認できる。このフィッティング関数の最小値を与える波数  $q_{HU}$  をプロットしたのが図 6.8(b) である。  $q_{HU}$  も  $\alpha$  や  $H$  と同様に  $E_{IS}$  の減少に伴って、小さくなっていることがわかる。これは、揺らぎが抑えられている長さスケールがより長距離になっていることを示唆している。今回数値シミュレーションで得られ

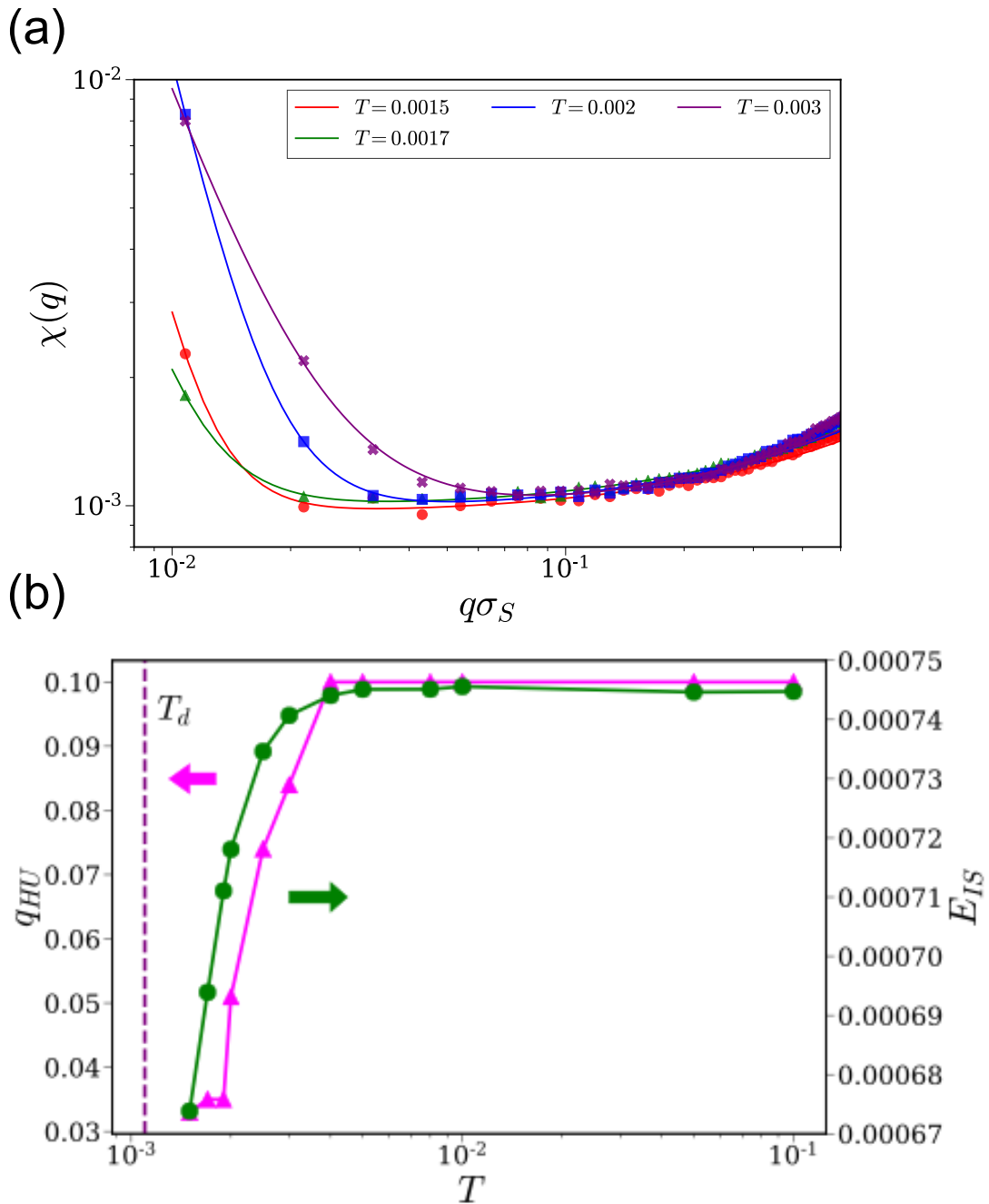


Fig.6.8 (a) 数値シミュレーションによって得られたデータ (点) と式 (6.7) でフィッティングした関数 (線)。式 (6.7) によるフィッティングは、よく数値シミュレーションによって得られたデータと一致していることがわかる。(b)  $q_{HU}$  と Inherent Structure エネルギー  $E_{IS}$  の温度依存性。ここで、 $q_{HU}$  は、式 (6.7) のフィッティングによって得られた関数の最小値を与える波数として定義している。 $q_{HU}$  は  $T > 0.05$  の温度で系をアニールした場合には変化しないが、より低温で系をアニールすると小さくなっていく。これは、密度揺らぎの増大に関連する長さスケールがより長くなっていくことを示しており、 $T = 0.0015$  では、 $\xi_{HU} = q_{HU}^{-1} \approx 200\sigma$  程度まで長くなっている。また、 $q_{HU}$  の  $T$  依存性も、 $E_{IS}$  の  $T$  依存性と酷似していることから、この長さスケールの増大は系がエネルギーランドスケープを降っていくことに起因している。

た長さスケール  $\xi_{\text{HU}} = q_{\text{HU}}^{-1}$  は、高温でアニールした場合には  $\xi_{\text{HU}} \approx 60$  程度であったのに対して、低温でアニールした場合には  $\xi_{\text{HU}} \approx 200$  程度まで増大していることがわかる。

先行研究では、このような Hyperuniformity 長の増大は、Jamming 転移点近傍でのみ生じる現象であると考えられていた [46]。6.1 節で議論したように、先行研究は適切に系を平衡化できていなかったことが予想される。一方で、我々の研究では、各温度に対して系が平衡化を正確に確認しており、動的転移点近傍で平衡化することで、高密度でも Hyperuniformity 長が増大するという振る舞いが生じることを示した。

以上の密度揺らぎ  $\chi(q)$  の解析の結果から、系に対して熱的アニールを施すことによってその振る舞いが長距離の長さスケールに大きな影響を与えることがわかった。また、今回調べた  $\chi(q)$  の中間的な長さスケールにおけるべき的振る舞い、 $\chi(q)$  の最小値、 $\chi(q)$  において揺らぎが増大し始める波数  $q_{\text{HU}}$  が全て Inherent Structure エネルギー  $E_{\text{IS}}$  と関連していることがわかった。つまり、系が熱的アニールによってエネルギーランドスケープを降っていくのに従って、Inherent Structure における密度揺らぎが変化することがわかった。

## 6.5 まとめ

この章では、2次元2成分系の充填率  $\varphi = 0.9$  の Harmonic ポテンシャルで相互作用する過冷却液体系を低温で平衡化させた時の Inherent Structure における密度揺らぎについて解析を行った。まずはじめに、粒子数が  $N = 1000$  でこの系のダイナミクスについて解析を行った。2次元系では、Mermin-Wagner 揺らぎによって系の緩和時間  $\tau_\alpha$  が、見かけ上小さく見えてしまう。そこで、Mermin-Wagner 揺らぎの効果を排除することのできる物理量であるケージ相対変位を用いたケージ相対中間散乱関数  $F_s^{CR}(q, t)$  を用いて、系の構造緩和時間を定義した。ケージ相対変位を用いた物理量はシステムサイズ依存性を示さない [180]。これを用いて、系の動的転移点  $T_d$  を求めた。この系では、動的転移点は  $T_d \approx 0.0011$  であった。興味深いことに、動的緩和時間の値自体は Mermin-Wagner 揺らぎの影響を強く受ける中間散乱関数  $F_s(q, t)$  から計算しても同じ値が得られる。両者を用いた時の違いは、動的転移点における発散のべきの値であり、中間散乱関数  $F_s(q, t)$  を用いると発散のべきは弱くなる。

次に、我々は粒子数が  $N = 262144$  の系を用いて、系の Inherent Structure における密度揺らぎの性質を調べた。図 6.5 に示したように、構造因子  $\chi(q)$  は3つの点で変化が生じる。1つ目は、 $\chi(q)$  の中間的な波数領域に生じるべき的な振る舞いの変化である。このべき指数  $\alpha$  は、低温で系を平衡化させるに従って、 $\alpha$  は小さくなる。この時、 $\alpha$  は、 $T = 0.01$  の時には  $\alpha \approx 0.55$  であったのに対して、 $T = 0.0015$  では  $\alpha \approx 0.43$  まで減少した。ここで、べきは温度を下げるに従って、小さくなるものの、低温での  $\chi(q)$  の値自体は、高温での  $\chi(q)$  に比べて短い長さスケールで小さくなっている。2つ目は、 $\chi(q)$  の最小値  $H$  が、系の平衡化温度を下げるに従って、減少する点である。最後に、 $\chi(q)$  の低波数領域において、揺らぎが増大し始める波数  $q_{\text{HU}}$

が低波数領域へとシフトしていく振る舞いが観測された。このような揺らぎが増大し始める長さスケール  $\xi_{\text{HU}} = q_{\text{HU}}^{-1}$  は、Jamming 転移点直上でのみ増大するとされていた [46] が、我々の結果は系を十分低温でアニールできれば、Jamming 転移点から離れた高密度でも  $\xi_{\text{HU}}$  が増大することを示している。今回の結果で最も興味深いのは、 $\alpha, H, q_{\text{HU}}$  の全ての振る舞いが系の Inherent Structure エネルギーの変化と対応して変化している点である。これは、系がエネルギーランドスケープを降っていくに従って、系の揺らぎが長距離に渡って抑えられている構造が実現することを示唆している。

## 第 7 章

# 結論

この章では、本論文で得られた主要な結果についてまとめる。

本論文では、Active Matter 系、Jamming 系、過冷却液体系の 3 つの非平衡系における Hyperuniformity について考えた。その結果、それぞれの系では、各系個別のパラメータ等に強く依存して Hyperuniformity の性質が変化することがわかった。これは、非平衡系における共通した Hyperuniformity の性質はないことを示唆している。以下では、それぞれの系において得られた結果についてまとめる。

### 7.1 Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle 模型における Hyperuniformity

第 3 章において、我々は Scalar Active Matter 模型の一つである Active Ornstein-Uhlenbeck Particle(AOUP) 模型を一般化した、Generalized Active Ornstein-Uhlenbeck Particle(GAOUP) 模型の研究を行った。GAOUP 模型は、応答関数とノイズの相関関数がそれぞれ異なる記憶時間  $\tau_m, \tau_p$  を持つ非平衡模型である。GAOUP 模型は、 $\tau_m = \tau_p$  では平衡の Underdamped Langevin 方程式に一致し、 $\tau_m \rightarrow 0$  の極限では、AOUP 模型になる。

GAOUP 模型のパラメータが  $\tau_m < \tau_p$  の場合には、AOUP に漸近する領域であることから予想されるように、このパラメータ領域では、系は AOUP 模型と類似した振る舞いをする。系は、Motility Induced Phase Separation と呼ばれる非平衡相分離を起こし、系の密度揺らぎ  $S(k)$  は、低波数領域で増大する振る舞いを示す。一方で、我々は GAOUP 模型に特徴的な  $\tau_m > \tau_p$  の領域において、系に Hyperuniformity が生じることを確認し、その Hyperuniformity 指数が  $\alpha \approx 1.5$  という非自明な値を示すことを発見した。この値は先行研究では報告されていない値である。我々は、この値がどの程度普遍的に見られるか調べるために、系の密度や相互作用ポテンシャル、システムサイズを変化させた数値シミュレーションを行い。これらの変化に対して、 $\alpha \approx 1.5$  という値は変化しないことを示した。また、この GAOUP 模型における

Hyperuniformity は流動相において生じることが特徴的である。この Hyperuniformity は、粒子間の平均自由時間  $\tau_{\text{col}}$  と相互作用に対する記憶時間  $\tau_m$  が  $\tau_{\text{col}} > \tau_m$  となる領域において生じることがわかった。これは、粒子が一つ前の衝突の記憶を保持した状態で、次の粒子に衝突することで Hyperuniformity が生じることが示している。この結果は、相互作用の記憶時間が長いことによって、粒子間相互作用が有効的に長距離になることを示唆しており、長距離斥力が平衡系における Hyperuniformity において重要な要素であったことと一致している。

また、我々は、 $\tau_m > \tau_p$  の領域で各粒子の速度分布の非ガウス性パラメータと速度の空間相関を調べた。これらは、パラメータ空間の局所的な領域においてピークを持つことがわかった。この振る舞いは、 $\tau_m > \tau_p$  の広い領域で存在する Hyperuniformity とは異なる振る舞いである。また、速度の空間相関は先行研究 [156, 157] で見られていた指数型の相関ではなく、べき的な相関であることがわかった。

## 7.2 アモルファス系における Hyperuniformity

### 7.2.1 2次元 Jamming 転移点直上での Hyperuniformity の性質

第4章において、我々は2次元2成分系の Jamming 転移直上の Hyperuniformity における構造因子  $\chi(q)$  の振る舞いを解析した。その結果、2次元系における Jamming 転移点近傍の指数は  $\alpha \approx 0.63$  であることがわかった。これは、3次元系の Jamming 点近傍で報告されてきた指数である  $\alpha = 1$  に比べて小さい値である。また、我々はこの指数の次元依存性が、Jamming 転移の平均場の議論から正当化できることを示した。

### 7.2.2 力学的アニールによる Jamming 転移点直上での Hyperuniformity の性質の変化

第5章において、我々は系に対して力学的操作を加え、それに伴う系の密度揺らぎの変化を調べた。まずはじめに、我々は2次元2成分系に対して、膨張圧縮サイクルを加え、Jamming 転移点の増加に伴って Jamming 転移点直上の構造がどのように変化するかを調べた。最初に、Jamming 転移点の増大に伴って、系の中の粒子間接触を持たない粒子であるラトラー粒子の数がどのように変化するかを調べた。我々は、Jamming 転移点の増大に伴って、粒径の大きいラトラー粒子の数が増加することを確認した。さらに、構造を支えるのに必要な粒子だけで計算される有効的な Jamming 転移点  $\phi_j^{\text{eff}}$  を計算したところ、Jamming 転移点の増大に比べて、その増加は小さいことがわかった。これは、Jamming 転移点の増加は主に、ラトラー粒子の増加がなっていることがわかる。この結果は、平均場描像で説明される Jamming 転移点の増加の主要な役割を果たしているのが、平均場描像には含まれないラトラー粒子によっていることは、いささか不思議であり、平均場描像とラトラーの関係を理解するためには、ラトラー粒

子に関するより詳細な解析が必要である。

さらに、我々は Jamming 転移点の増加に伴って、Jamming 転移点直上の Hyperuniformity がどのように変化するかを調べた。前章の結果から、Jamming 転移点直上の Hyperuniformity のべき指数は  $\alpha \approx 0.63$  であったが、系に対して最大充填率  $\varphi_{\text{MAX}} = 1.3$  まで圧縮するサイクルを加えると、 $\alpha \approx 0.74$  となることがわかった。また、このべき指数  $\alpha$  は、系の Jamming 転移点  $\varphi_J$  の増大に伴って、増加していることを明らかにした。これは、系に力学的アニールを加えることで、系が安定化していると考え、理想ガラス転移点では系が Hyperuniformity を示すという近年の理論的な予想と一致する [220]。  $\varphi_{\text{MAX}}$  を制御するだけでなく、系に対する膨張圧縮サイクル回数  $M$  を制御した場合にも、同様の  $\alpha$  の増大を観測した。

次に、系に対して膨張圧縮サイクルではなく、周期剪断を加えた場合の研究を行った。我々は、系の密度が Jamming 転移点よりわずかに低い  $\varphi = 0.82$  という 2 次元 2 成分系に対して、周期的剪断を系に加えた。Jamming 転移点以下の密度では、系は point-reversible 相と loop-reversible 相という異なる粒子軌道を持つ 2 つの可逆相を持つ。この 2 つの中間領域では、準不可逆領域が存在するものの、 $\varphi = 0.82$  ではこの準不可逆領域は非常に狭く、この 2 つの可逆相の間の転移が剪断強度  $\gamma \approx \gamma_p$  程度で生じる。我々は、この 2 つの可逆領域に渡って、 $\gamma$  を変化させ、粒子軌道の変化に伴って、系の密度揺らぎの変化を調べた。周期剪断を系に加えない場合には、構造因子  $\chi(q)$  は低波数で急激に増大する振る舞いを示す。一方で、わずかに系に対して周期剪断を加えると、低波数領域での揺らぎの増大はおさえられ、 $\chi(q)$  の中間的な波数領域にべき的な振る舞いが生じることを明らかにした。中間領域でのべきの指数  $\alpha$  は、point-reversible 相では  $\gamma$  を上げていくと、徐々に増大していく。興味深いことに、point-reversible 相と loop-reversible 相から転移する  $\gamma \approx \gamma_p$  付近で、Hyperuniformity のべき指数  $\alpha$  は  $\alpha \approx 0.64$  という、系に対して力学的アニールを一切加えていない場合の 2 次元 Jamming 転移点直上での指数と等しくなることがわかった。また、loop-reversible 相では、 $\gamma_p$  よりも強い剪断を加えても、 $\alpha$  は変化せず、 $\alpha \approx 0.64$  に止まることがわかった。

本章の研究は、全ての力学的操作を準静的に行うため、数値計算コストが高く、密度揺らぎの計算は、十分な精度を得るには非常に多くのサンプルが必要であったため、解析全体の数値計算コストが高く、比較的小さい系を用いてしか研究を行うことができなかった。今回得られた結果をより大きい系で検証することは、Jamming 転移点近傍の構造の変化の全貌を捉える上で非常に重要である。

### 7.2.3 熱的アニールによる過冷却液体の Inherent Structure での Hyperuniformity の性質の変化

第6章において、我々は  $\varphi = 0.9$  の 2 次元 2 成分過冷却液体の Inherent Structure の平衡化温度依存性を調べた。近年の研究で、3 次元 Lennard-Jones 液体の Inherent Structure の構造因子



$\chi(q)$  では、Jamming 転移点直上の Hyperuniformity に類似したべき的振る舞いを示すことが報告された [213]。我々は2次元の巨大な系を用いることで、過冷却液体の Inherent Structure における密度揺らぎの性質を調べた。その結果、我々の2次元系においても  $\chi(q)$  にべき的な振る舞いが生じることを示した。また、この際のべき指数  $\alpha$  は、系の Inherent Structure エネルギー  $E_{IS}$  に伴って現象していくことがわかった。この  $\alpha$  のアニール温度依存性は3次元系の Lennard-Jones 系の場合でも報告されており [231]、その振る舞いは先行研究の結果と我々の結果は類似している。一方で、先行研究では、 $\alpha \approx 0.4 \sim 0.15$  の範囲で変化しているが、今回の我々の結果は  $\alpha \approx 0.55 \sim 0.43$  の範囲で変化しており、2次元と3次元で値自体は大きく異なる。Inherent Structure における指数の値は系の空間次元や密度にも依存しうるため、さらなる解析が必要である。

$\alpha$  の変化に加えて、 $\chi(q)$  において揺らぎが増大し始める波数である  $q_{HU} = \xi_{HU}^{-1}$  も  $E_{IS}$  の減少に伴って、より低波数側へとシフトしていくことを確認した。このような Hyperuniformity 長  $\xi_{HU}^{-1}$  の増大は先行研究でも議論されたが、Jamming 転移点直上でのみ起きる現象であるとされていた [46]。しかし、先行研究では系に対して適切な平衡化が行えていないことが予想され、我々は系に対して適切に平衡化を行うことで、高密度の Jamming 転移点よりも遠い場合においても、熱的アニールによって  $\xi_{HU}$  が増大することを確認することができた。また、この長さスケールはアニールによって、 $\xi_{HU} \approx 60\sigma \sim 200\sigma$  程度まで増大する。つまり、系のサイズと同程度まで増大する長さスケールが存在する可能性を示唆している。今回得られた結果は、全て系の Inherent Structure エネルギーの減少に伴って生じている。これは、系がエネルギーランドスケープを降っていくにつれて、系の密度揺らぎが広いスケールに渡って小さく抑えられることを示唆している。

# 謝辞

指導教官である宮崎州正教授には、自分の興味の赴くままに研究していたにもかかわらず、様々な場面において懇切丁寧なご指導をいただき、ここで深く感謝申し上げます。このような様々な分野に渡る研究を行えたのは自由に研究を行える環境があったからと感じています。川崎猛史講師には物理や数値計算に関する議論にとどまらず、研究生活を送る上で多くのアドバイスをいただきました。ありがとうございました。このコロナ禍において研究が遂行できたのは宮崎州正教授、川崎猛史講師の支援があったからです。心から感謝申し上げます。お忙しい中、本博士論文の審査をしてくださる名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻の先生方には深く感謝申し上げます。

Jamming 転移点における Hyperuniformity に関する研究で共同研究をさせていただいた東京大学の池田昌司准教授にも強く感謝いたします。池田昌司准教授には鋭い様々なご指摘をいただき、研究をより良いものにすることができました。東京大学の西口大貴助教、理化学研究所の足立景亮氏のお二人には、セミナー等の機会に Active Matter に関する様々な問題について教えていただけたこと感謝いたします。豊田中央研究所の大山倫弘氏には、GAOUP 模型の研究に非常に興味を持っていただき、セミナーの機会を与えてくださったこと感謝いたします。

GAOUP 模型に関する研究は、共同研究者である游夏氏が最初に Hyperuniformity が存在するという結果を出したことから本研究に発展しました。この結果は、私に Active Matter における Hyperuniformity という非常に魅力的な問題を提供してくれただけでなく、非平衡系における Hyperuniformity という問題を考えるきっかけをくださいました。この結果がなければ本論文の問題を考えることはありませんでした。ありがとうございます。

力学的アニールの研究における、周期的剪断の結果は豊田万莉氏が実行してくださいました。彼女の非常に注意深く忍耐強い解析によって、周期剪断系においても Hyperuniformity が生じることを示すことができました。ありがとうございます。また、倉橋拓良氏には2次元熱的アニールにおけるラトラの解析を行っていただき、先行研究や力学的アニールと同様の振る舞いが生じることを確認していただきました。

過冷却液体に関する研究では、共同研究者である朱川聖人氏が大規模な計算を実行してくださり、Hyperuniformity 長がアニールによって変化する振る舞いをするという示唆する結果を

出したことから本研究は始まりました。また、彼には数値計算の様々な高速化手法を教えてください、今回の大規模な数値計算を実行することができました。ありがとうございます。

繰り返しになりますが、研究室において共同研究してくださった游夏氏、豊田万莉氏、朱川聖人氏、倉橋拓良氏、黒田裕太氏に感謝します。彼らとの議論がなければ様々な問題に対して理解を深めることはできませんでした。

様々な場面で議論してくださった現研究室のメンバーである、江口和輝氏、高倉真直氏、別所秀将氏、Duc, Truyen Dam 氏、また、これまで研究室で共に研究をしてくださった、伊丹将人氏、Wei-Ting Yeh 氏、今村桃太氏、小野嘉己氏、山森和晃氏、二村有哉氏にも感謝いたします。これらの方々の支えなしに研究生活は出来なかったものと思います。本当にありがとうございました。最後に大学院への進学を認め、経済的な支援をしてくれた家族に感謝します。ありがとうございました。

# List of Publication

1. K. Miyazaki, Y. Nakayama, H. Matsuyama, “Entropy anomaly and linear irreversible thermodynamics”, *Physical Review E*, **98**, 022101 (2018).
2. H. Matsuyama, M. Toyoda, T. Kurahashi, A. Ikeda, T. Kawasaki, K. Miyazaki, “Geometrical properties of mechanically annealed systems near the jamming transition”, *European Physical Journal E*, **44**, 133 (2021).
3. H. Matsuyama, K. Miyazaki, “Anomalous transport phenomenon of a charged Brownian particle under the thermal gradient and the magnetic field”, *Physical Review E*, **104**, 054134 (2021).
4. Y. Kuroda, H. Matsuyama, T. Kawasaki, K. Miyazaki, (in preparation)
5. H. Matsuyama, Y. Xia, Y. Kuroda, T. Kawasaki, K. Miyazaki, (in preparation)
6. M. Shukawa, H. Matsuyama, T. Kawasaki, K. Miyazaki, (in preparation)

# Bibliography

- [1] J. M. O. de Zarate and J. V. Sengers, *Hydrodynamic fluctuations in fluids and fluid mixtures*, en (Elsevier, Apr. 2006).
- [2] M. C. Marchetti, J. F. Joanny, S Ramaswamy, T. B. Liverpool, J Prost, M. Rao, and R. A. Simha, “Hydrodynamics of soft active matter”, *Rev. Mod. Phys.* **85**, 1143 (2013).
- [3] C. Bechinger, R. D. Leonardo, C. Reichhardt, and G. Volpe, “Active particles in complex and crowded environments”, *Rev. Mod. Phys.* **88**, 045006 (2016).
- [4] S Ramaswamy, R Aditi Simha, and J Toner, “Active nematics on a substrate: giant number fluctuations and long-time tails”, *EPL* **62**, 196 (2003).
- [5] J. Toner, Y. Tu, and S. Ramaswamy, “Hydrodynamics and phases of flocks”, *Ann. Phys.* **318**, 170 (2005).
- [6] H. Chaté, F. Ginelli, G. Grégoire, and F. Raynaud, “Collective motion of self-propelled particles interacting without cohesion”, *Phys. Rev. E* **77**, 046113 (2008).
- [7] H. Chaté, “Dry aligning dilute active matter”, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* (2020).
- [8] V. Narayan, S. Ramaswamy, and N. Menon, “Long-lived giant number fluctuations in a swarming granular nematic”, *Science* **317**, 105 (2007).
- [9] S. Ngo, A. Peshkov, I. S. Aranson, E. Bertin, F. Ginelli, and H. Chaté, “Large-scale chaos and fluctuations in active nematics”, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 038302 (2014).
- [10] F. Ginelli, F. Peruani, M. Bär, and H. Chaté, “Large-scale collective properties of self-propelled rods”, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 184502 (2010).
- [11] M van Hecke, “Jamming of soft particles: geometry, mechanics, scaling and isostaticity”, *J. Phys. Condens. Matter* **22**, 033101 (2010).
- [12] A. J. Liu, S. R. Nagel, W. van Saarloos, and M. Wyart, “The jamming scenario— an introduction and outlook”, in *Dynamical heterogeneities in glasses, colloids, and granular media*, edited by L. Berthier, G. Biroli, J.-P. Bouchaud, L. Cipeletti, and W. van Saarloos (2010).

- [13] D. Hexner and D. Levine, “Hyperuniformity of critical absorbing states”, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 110602 (2015).
- [14] E. Tjhung and L. Berthier, “Hyperuniform density fluctuations and diverging dynamic correlations in periodically driven colloidal suspensions”, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 148301 (2015).
- [15] S. Torquato, “Hyperuniform states of matter”, *Phys. Rep.* **745**, 1 (2018).
- [16] S. Torquato and F. H. Stillinger, “Local density fluctuations, hyperuniformity, and order metrics”, *Phys. Rev. E* **68**, 041113 (2003).
- [17] A. Donev, S. Torquato, and F. H. Stillinger, “Pair correlation function characteristics of nearly jammed disordered and ordered hard-sphere packings”, *Phys. Rev. E* **71**, 011105 (2005).
- [18] L. Berthier, P. Chaudhuri, C. Coulais, O. Dauchot, and P. Sollich, “Suppressed compressibility at large scale in jammed packings of size-disperse spheres”, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 120601 (2011).
- [19] Y. Wu, P. Olsson, and S. Teitel, “Search for hyperuniformity in mechanically stable packings of frictionless disks above jamming”, *Phys. Rev. E* **92**, 052206 (2015).
- [20] A. Ikeda and L. Berthier, “Thermal fluctuations, mechanical response, and hyperuniformity in jammed solids”, *Phys. Rev. E* **92**, 012309 (2015).
- [21] C. E. Zachary, Y. Jiao, and S. Torquato, “Hyperuniform long-range correlations are a signature of disordered jammed hard-particle packings”, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 178001 (2011).
- [22] C. E. Zachary, Y. Jiao, and S. Torquato, “Hyperuniformity, quasi-long-range correlations, and void-space constraints in maximally random jammed particle packings. i. polydisperse spheres”, *Phys. Rev. E* **83**, 051308 (2011).
- [23] S. Wilken, R. E. Guerra, D. J. Pine, and P. M. Chaikin, “Hyperuniform structures formed by shearing colloidal suspensions”, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 148001 (2020).
- [24] Y. Zheng, A. D. S. Parmar, and M. Pica Ciamarra, “Hidden order beyond hyperuniformity in critical absorbing states”, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 118003 (2021).
- [25] Y. Jiao, T. Lau, H. Hatzikirou, M. Meyer-Hermann, J. C. Corbo, and S. Torquato, “Avian photoreceptor patterns represent a disordered hyperuniform solution to a multiscale packing problem”, *Phys. Rev. E* **89**, 022721 (2014).
- [26] L. Pietronero, A. Gabrielli, and F. S. Labini, “Statistical physics for cosmic structures”, *Physica A* **306**, 395 (2002).
- [27] K. Vynck, R. Pierrat, R. Carminati, L. S. Froufe-Pérez, F. Scheffold, R. Sapienza, S. Vignolini, and J. J. Sáenz, “Light in correlated disordered media”, *arXiv* (2021).

- [28] A. Gabrielli, M. Joyce, and F. Sylos Labini, “Glass-like universe: real-space correlation properties of standard cosmological models”, *Phys. Rev. D* **65**, 083523 (2002).
- [29] M. Huang, W. Hu, S. Yang, Q.-X. Liu, and H. P. Zhang, “Circular swimming motility and disordered hyperuniform state in an algae system”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **118** (2021).
- [30] J.-P. Hansen and I. R. McDonald, *Theory of simple liquids: with applications to soft matter* (Academic Press, Aug. 2013).
- [31] Q.-L. Lei, M. P. Ciamarra, and R. Ni, “Nonequilibrium strongly hyperuniform fluids of circle active particles with large local density fluctuations”, *Sci. Adv.* **5**, eaau7423 (2019).
- [32] D. J. Pine, J. P. Gollub, J. F. Brady, and A. M. Leshansky, “Chaos and threshold for irreversibility in sheared suspensions”, *Nature* **438**, 997 (2005).
- [33] L. Corte, P. M. Chaikin, J. P. Gollub, and D. J. Pine, “Random organization in periodically driven systems”, *Nat. Phys.* **4**, 420 (2008).
- [34] L. Corté, S. J. Gerbode, W. Man, and D. J. Pine, “Self-organized criticality in sheared suspensions”, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 248301 (2009).
- [35] E. Tjhung and L. Berthier, “Criticality and correlated dynamics at the irreversibility transition in periodically driven colloidal suspensions”, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2016**, 033501 (2016).
- [36] D. Hexner and D. Levine, “Noise, diffusion, and hyperuniformity”, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 020601 (2017).
- [37] D. Hexner, P. M. Chaikin, and D. Levine, “Enhanced hyperuniformity from random reorganization”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **114**, 4294 (2017).
- [38] D. Samtleben, S. Staggs, and B. Winstein, “The cosmic microwave background for pedestrians: a review for particle and nuclear physicists”, *Annu. Rev. Nucl. Part. Sci.* **57**, 245 (2007).
- [39] P. J. E. Peebles and P. J. Peebles, *Principles of physical cosmology* (Princeton University Press, May 1993).
- [40] Y. Zheng, Y.-W. Li, and M. P. Ciamarra, “Hyperuniformity and density fluctuations at a rigidity transition in a model of biological tissues”, *Soft Matter* **16**, 5942 (2020).
- [41] S.-Z. Lin, S. Ye, G.-K. Xu, B. Li, and X.-Q. Feng, “Dynamic migration modes of collective cells”, *Biophys. J.* **115**, 1826 (2018).
- [42] S. Mahdisoltani, R. B. A. Zinati, C. Duclut, A. Gambassi, and R. Golestanian, “Nonequilibrium polarity-induced chemotaxis: emergent galilean symmetry and exact scaling exponents”, *Phys. Rev. Res.* **3**, 013100 (2021).

- [43] R. Kurita and E. R. Weeks, “Incompressibility of polydisperse random-close-packed colloidal particles”, *Phys. Rev. E* **84**, 030401 (2011).
- [44] R. Dreyfus, Y. Xu, T. Still, L. A. Hough, A. G. Yodh, and S. Torquato, “Diagnosing hyperuniformity in two-dimensional, disordered, jammed packings of soft spheres”, *Phys. Rev. E* **91**, 012302 (2015).
- [45] A. Ikeda, L. Berthier, and G. Parisi, “Large-scale structure of randomly jammed spheres”, *Phys. Rev. E* **95**, 052125 (2017).
- [46] A. T. Chieco, M. Zu, A. J. Liu, N. Xu, and D. J. Durian, “Spectrum of structure for jammed and unjammed soft disks”, *Phys. Rev. E* **98**, 042606 (2018).
- [47] F Lado, “Hypernetted-chain solutions for the two-dimensional classical electron gas”, *Phys. Rev. B* **17**, 2827 (1978).
- [48] M. Baus and J.-P. Hansen, “Statistical mechanics of simple coulomb systems”, *Phys. Rep.* **59**, 1 (1980).
- [49] L. Landau, E. Lifšic, E. Lifshitz, L. P, L. Pitaevskii, J. Sykes, and M. Kearsley, *Statistical physics: theory of the condensed state*, Course of theoretical physics (Elsevier Science, 1980).
- [50] Q.-L. Lei and R. Ni, “Hydrodynamics of random-organizing hyperuniform fluids”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **116**, 22983 (2019).
- [51] S. Shankar, A. Souslov, M. J. Bowick, M Cristina Marchetti, and V. Vitelli, “Topological active matter”, arXiv (2020).
- [52] M. Bär, R. Großmann, S. Heidenreich, and F. Peruani, “Self-Propelled rods: insights and perspectives for active matter”, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* (2020).
- [53] X. You, “一般化された active ornstein-uhlenbeck particle モデル”, M.S. thesis (Nagoya University, Mar. 2019).
- [54] A. Doostmohammadi, J. Ignés-Mullol, J. M. Yeomans, and F. Sagués, “Active nematics”, *Nat. Commun.* **9**, 3246 (2018).
- [55] R. Alert, J. Casademunt, and J.-F. Joanny, “Active turbulence”, *Annual Review of Condensed Matter Physics* **13** (2022).
- [56] H. P. Zhang, A. Be’er, E.-L. Florin, and H. L. Swinney, “Collective motion and density fluctuations in bacterial colonies”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **107**, 13626 (2010).
- [57] A. Creppy, O. Praud, X. Druart, P. L. Kohnke, and F. Plouraboué, “Turbulence of swimming sperm”, *Phys. Rev. E* **92**, 032722 (2015).
- [58] A. Cavagna and I. Giardina, “Bird flocks as condensed matter”, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **5**, 183 (2014).



- [59] F. Cichos, K. Gustavsson, B. Mehlig, and G. Volpe, “Machine learning for active matter”, *Nat. Mach. Intell.* **2**, 94 (2020).
- [60] T. Vicsek and A. Zafeiris, “Collective motion”, *Phys. Rep.* **517**, 71 (2012).
- [61] H. Löwen, “Chirality in microswimmer motion: from circle swimmers to active turbulence”, *Eur. Phys. J. Spec. Top.* **225**, 2319 (2016).
- [62] C. Lozano, B. Ten Hagen, H. Löwen, and C. Bechinger, “Phototaxis of synthetic microswimmers in optical landscapes”, *Nat. Commun.* **7**, 12828 (2016).
- [63] H. H. Wensink, J. Dunkel, S. Heidenreich, K. Drescher, R. E. Goldstein, H. Löwen, and J. M. Yeomans, “Meso-scale turbulence in living fluids”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **109**, 14308 (2012).
- [64] T. S. Ursell, J. Nguyen, R. D. Monds, A. Colavin, G. Billings, N. Ouzounov, Z. Gitai, J. W. Shaevitz, and K. C. Huang, “Rod-like bacterial shape is maintained by feedback between cell curvature and cytoskeletal localization”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **111**, E1025 (2014).
- [65] Y. Sumino, K. H. Nagai, Y. Shitaka, D. Tanaka, K. Yoshikawa, H. Chaté, and K. Oiwa, “Large-scale vortex lattice emerging from collectively moving microtubules”, *Nature* **483**, 448 (2012).
- [66] L. Huber, R. Suzuki, T. Krüger, E. Frey, and A. R. Bausch, “Emergence of coexisting ordered states in active matter systems”, *Science* **361**, 255 (2018).
- [67] N. Kumar, H. Soni, S. Ramaswamy, and A. K. Sood, “Flocking at a distance in active granular matter”, *Nat. Commun.* **5**, 4688 (2014).
- [68] W. F. Paxton, K. C. Kistler, C. C. Olmeda, A. Sen, S. K. St Angelo, Y. Cao, T. E. Mallouk, P. E. Lammert, and V. H. Crespi, “Catalytic nanomotors: autonomous movement of striped nanorods”, *J. Am. Chem. Soc.* **126**, 13424 (2004).
- [69] R. Großmann, I. S. Aranson, and F. Peruani, “A particle-field approach bridges phase separation and collective motion in active matter”, *Nat. Commun.* **11**, 5365 (2020).
- [70] X.-Q. Shi and H. Chaté, “Self-Propelled rods: linking Alignment-Dominated and Repulsion-Dominated active matter”, *arXiv* (2018).
- [71] C. Dombrowski, L. Cisneros, S. Chatkaew, R. E. Goldstein, and J. O. Kessler, “Self-concentration and large-scale coherence in bacterial dynamics”, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 098103 (2004).
- [72] J. Dunkel, S. Heidenreich, K. Drescher, H. H. Wensink, M. Bär, and R. E. Goldstein, “Fluid dynamics of bacterial turbulence”, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 228102 (2013).
- [73] C. Blanch-Mercader, V. Yashunsky, S. Garcia, G. Duclos, L. Giomi, and P. Silberzan, “Turbulent dynamics of epithelial cell cultures”, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 208101 (2018).

- [74] C. W. Wolgemuth, “Collective swimming and the dynamics of bacterial turbulence”, *Biophys. J.* **95**, 1564 (2008).
- [75] L. Giomi, “Geometry and topology of turbulence in active nematics”, *Phys. Rev. X* **5**, 031003 (2015).
- [76] A. Baskaran and M. C. Marchetti, “Enhanced diffusion and ordering of self-propelled rods”, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 268101 (2008).
- [77] A. Baskaran and M. C. Marchetti, “Hydrodynamics of self-propelled hard rods”, *Phys. Rev. E* **77**, 011920 (2008).
- [78] A. Baskaran and M. Cristina Marchetti, “Nonequilibrium statistical mechanics of self-propelled hard rods”, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2010**, P04019 (2010).
- [79] T. Sanchez, D. T. N. Chen, S. J. DeCamp, M. Heymann, and Z. Dogic, “Spontaneous motion in hierarchically assembled active matter”, *Nature* **491**, 431 (2012).
- [80] K. Kawaguchi, R. Kageyama, and M. Sano, “Topological defects control collective dynamics in neural progenitor cell cultures”, *Nature* **545**, 327 (2017).
- [81] R. Großmann, F. Peruani, and M. Bär, “Mesoscale pattern formation of self-propelled rods with velocity reversal”, *Phys. Rev. E* **94**, 050602 (2016).
- [82] L. Giomi, M. J. Bowick, X. Ma, and M. C. Marchetti, “Defect annihilation and proliferation in active nematics”, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 228101 (2013).
- [83] T. B. Saw, A. Doostmohammadi, V. Nier, L. Kocgozlu, S. Thampi, Y. Toyama, P. Marcq, C. T. Lim, J. M. Yeomans, and B. Ladoux, “Topological defects in epithelia govern cell death and extrusion”, *Nature* **544**, 212 (2017).
- [84] O. J. Meacock, A. Doostmohammadi, K. R. Foster, J. M. Yeomans, and W. M. Durham, “Bacteria solve the problem of crowding by moving slowly”, *Nat. Phys.* **17**, 205 (2020).
- [85] Y. Maroudas-Sacks, L. Garion, L. Shani-Zerbib, A. Livshits, E. Braun, and K. Keren, “Topological defects in the nematic order of actin fibres as organization centres of hydra morphogenesis”, *Nat. Phys.* **17**, 251 (2020).
- [86] K. Copenhagen, R. Alert, N. S. Wingreen, and J. W. Shaevitz, “Topological defects promote layer formation in *myxococcus xanthus* colonies”, *Nat. Phys.* **17**, 211 (2020).
- [87] G. Duclos, R. Adkins, D. Banerjee, M. S. E. Peterson, M. Varghese, I. Kolvin, A. Baskaran, R. A. Pelcovits, T. R. Powers, A. Baskaran, F. Toschi, M. F. Hagan, S. J. Streichan, V. Vitelli, D. A. Beller, and Z. Dogic, “Topological structure and dynamics of three-dimensional active nematics”, *Science* **367**, 1120 (2020).
- [88] T. Vicsek, A. Czirók, E. Ben-Jacob, I. Cohen, and O. Shochet, “Novel type of phase transition in a system of self-driven particles”, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 1226 (1995).

- [89] J Toner and Y Tu, “Long-Range order in a Two-Dimensional dynamical XY model: how birds fly together”, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4326 (1995).
- [90] E. Bertin, M. Droz, and G. Grégoire, “Boltzmann and hydrodynamic description for self-propelled particles”, *Phys. Rev. E* **74**, 022101 (2006).
- [91] E. Bertin, M. Droz, and G. Grégoire, “Hydrodynamic equations for self-propelled particles: microscopic derivation and stability analysis”, *J. Phys. A Math. Theor.* **42**, 445001 (2009).
- [92] T. Ihle, “Kinetic theory of flocking: derivation of hydrodynamic equations”, *Phys. Rev. E* **83**, 030901 (2011).
- [93] T. Ihle, “Chapman–Enskog expansion for the vicsek model of self-propelled particles”, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2016**, 083205 (2016).
- [94] F. D. C. Farrell, M. C. Marchetti, D Marenduzzo, and J Tailleur, “Pattern formation in self-propelled particles with density-dependent motility”, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 248101 (2012).
- [95] B. Mahault, A. Patelli, and H. Chaté, “Deriving hydrodynamic equations from dry active matter models in three dimensions”, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2018**, 093202 (2018).
- [96] N. D. Mermin and H Wagner, “Absence of ferromagnetism or antiferromagnetism in one- or Two-Dimensional isotropic heisenberg models”, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
- [97] V. Soni, E. S. Bililign, S. Magkiriadou, S. Sacanna, D. Bartolo, M. J. Shelley, and W. T. M. Irvine, “The odd free surface flows of a colloidal chiral fluid”, *Nat. Phys.* **15**, 1188 (2019).
- [98] N. H. P. Nguyen, D. Klotsa, M. Engel, and S. C. Glotzer, “Emergent collective phenomena in a mixture of hard shapes through active rotation”, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 075701 (2014).
- [99] H. C. Berg and L Turner, “Chemotaxis of bacteria in glass capillary arrays. *escherichia coli*, motility, microchannel plate, and light scattering”, *Biophys. J.* **58**, 919 (1990).
- [100] W. R. DiLuzio, L. Turner, M. Mayer, P. Garstecki, D. B. Weibel, H. C. Berg, and G. M. Whitesides, “*Escherichia coli* swim on the right-hand side”, *Nature* **435**, 1271 (2005).
- [101] E. Lauga, W. R. DiLuzio, G. M. Whitesides, and H. A. Stone, “Swimming in circles: motion of bacteria near solid boundaries”, *Biophys. J.* **90**, 400 (2006).
- [102] D. M. Woolley, “Motility of spermatozoa at surfaces”, *Reproduction* **126**, 259 (2003).
- [103] I. H. Riedel, K. Kruse, and J. Howard, “A self-organized vortex array of hydrodynamically entrained sperm cells”, *Science* **309**, 300 (2005).
- [104] G Corkidi, B Taboada, C. D. Wood, A Guerrero, and A Darszon, “Tracking sperm in three-dimensions”, *Biochem. Biophys. Res. Commun.* **373**, 125 (2008).
- [105] J. L. Souman, I. Frissen, M. N. Sreenivasa, and M. O. Ernst, “Walking straight into circles”, *Curr. Biol.* **19**, 1538 (2009).

- [106] F. Kümmel, B. ten Hagen, R. Wittkowski, I. Buttinoni, R. Eichhorn, G. Volpe, H. Löwen, and C. Bechinger, “Circular motion of asymmetric self-propelling particles”, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 198302 (2013).
- [107] B. C. van Zuiden, J. Paulose, W. T. M. Irvine, D. Bartolo, and V. Vitelli, “Spatiotemporal order and emergent edge currents in active spinner materials”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **113**, 12919 (2016).
- [108] A. Souslov, K. Dasbiswas, M. Fruchart, S. Vaikuntanathan, and V. Vitelli, “Topological waves in fluids with odd viscosity”, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 128001 (2019).
- [109] D. Banerjee, A. Souslov, A. G. Abanov, and V. Vitelli, “Odd viscosity in chiral active fluids”, *Nat. Commun.* **8**, 1573 (2017).
- [110] G. Volpe, I. Buttinoni, D. Vogt, H.-J. Kümmerer, and C. Bechinger, “Microswimmers in patterned environments”, *Soft Matter* **7**, 8810 (2011).
- [111] M. N. van der Linden, L. C. Alexander, D. G. A. L. Aarts, and O. Dauchot, “Interrupted motility induced phase separation in aligning active colloids”, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 098001 (2019).
- [112] Y. Fily and M. C. Marchetti, “Athermal phase separation of self-propelled particles with no alignment”, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 235702 (2012).
- [113] Y. Fily, S. Henkes, and M. C. Marchetti, “Freezing and phase separation of self-propelled disks”, *Soft Matter* **10**, 2132 (2014).
- [114] É. Fodor, C. Nardini, M. E. Cates, J. Tailleur, P. Visco, and F. van Wijland, “How far from equilibrium is active matter?”, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 038103 (2016).
- [115] X. L. Wu and A. Libchaber, “Particle diffusion in a quasi-two-dimensional bacterial bath”, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3017 (2000).
- [116] C. Maggi, M. Paoluzzi, N. Pellicciotta, A. Lepore, L. Angelani, and R. Di Leonardo, “Generalized energy equipartition in harmonic oscillators driven by active baths”, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 238303 (2014).
- [117] I. Buttinoni, J. Bialké, F. Kümmel, H. Löwen, C. Bechinger, and T. Speck, “Dynamical clustering and phase separation in suspensions of self-propelled colloidal particles”, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 238301 (2013).
- [118] M. E. Cates and J. Tailleur, “Motility-Induced phase separation”, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **6**, 219 (2015).
- [119] G. S. Redner, M. F. Hagan, and A. Baskaran, “Structure and dynamics of a phase-separating active colloidal fluid”, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 055701 (2013).
- [120] K. Adachi and K. Kawaguchi, “Universality of active and passive phase separation in a lattice model”, *arXiv* (2020).

- [121] G. Liu, A. Patch, F. Bahar, D. Yllanes, R. D. Welch, M. C. Marchetti, S. Thutupalli, and J. W. Shaevitz, “Self-Driven phase transitions drive myxococcus xanthus fruiting body formation”, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 248102 (2019).
- [122] C. Maggi, M. Paoluzzi, A. Crisanti, E. Zaccarelli, and N. Gnan, “Universality class of the motility-induced critical point in large scale off-lattice simulations of active particles”, *Soft Matter* **17**, 3807 (2021).
- [123] B. Partridge and C. F. Lee, “Critical Motility-Induced phase separation belongs to the ising universality class”, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 068002 (2019).
- [124] J. T. Siebert, F. Dittrich, F. Schmid, K. Binder, T. Speck, and P. Virnau, “Critical behavior of active brownian particles”, *Phys. Rev. E* **98**, 030601 (2018).
- [125] J. Stenhammar, D. Marenduzzo, R. J. Allen, and M. E. Cates, “Phase behaviour of active brownian particles: the role of dimensionality”, *Soft Matter* **10**, 1489 (2014).
- [126] J. Bialké, J. T. Siebert, H. Löwen, and T. Speck, “Negative interfacial tension in Phase-Separated active brownian particles”, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 098301 (2015).
- [127] A. Patch, D. M. Sussman, D. Yllanes, and M. C. Marchetti, “Curvature-dependent tension and tangential flows at the interface of motility-induced phases”, *Soft Matter* **14**, 7435 (2018).
- [128] T. Speck, “Collective forces in scalar active matter”, *Soft Matter* **16**, 2652 (2020).
- [129] C. B. Caporusso, P. Digregorio, D. Levis, L. F. Cugliandolo, and G. Gonnella, “Motility-Induced microphase and macrophase separation in a Two-Dimensional active brownian particle system”, *Phys. Rev. Lett.* **125** (2020).
- [130] E. Tjhung, C. Nardini, and M. E. Cates, “Cluster phases and bubbly phase separation in active fluids: reversal of the ostwald process”, *Phys. Rev. X* **8**, 031080 (2018).
- [131] X.-Q. Shi, G. Fausti, H. Chaté, C. Nardini, and A. Solon, “Self-Organized critical coexistence phase in repulsive active particles”, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 168001 (2020).
- [132] D. Bi, X. Yang, M. C. Marchetti, and M. L. Manning, “Motility-driven glass and jamming transitions in biological tissues”, *Phys. Rev. X* **6** (2016).
- [133] H. Honda, “Description of cellular patterns by dirichlet domains: the two-dimensional case”, *J. Theor. Biol.* **72**, 523 (1978).
- [134] T. E. Angelini, E. Hannezo, X. Trepast, M. Marquez, J. J. Fredberg, and D. A. Weitz, “Glass-like dynamics of collective cell migration”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **108**, 4714 (2011).
- [135] S. Henkes, K. Kostanjevec, J. M. Collinson, R. Sknepnek, and E. Bertin, “Dense active matter model of motion patterns in confluent cell monolayers”, *Nat. Commun.* **11**, 1405 (2020).

- [136] D. Bi, J. H. Lopez, J. M. Schwarz, and M. L. Manning, “A density-independent rigidity transition in biological tissues”, *Nat. Phys.* **11**, 1074 (2015).
- [137] J.-A. Park, J. H. Kim, D. Bi, J. A. Mitchel, N. T. Qazvini, K. Tantisira, C. Y. Park, M. McGill, S.-H. Kim, B. Gweon, J. Notbohm, R. Steward Jr, S. Burger, S. H. Randell, A. T. Kho, D. T. Tambe, C. Hardin, S. A. Shore, E. Israel, D. A. Weitz, D. J. Tschumperlin, E. P. Henske, S. T. Weiss, M. L. Manning, J. P. Butler, J. M. Drazen, and J. J. Fredberg, “Unjamming and cell shape in the asthmatic airway epithelium”, *Nat. Mater.* **14**, 1040 (2015).
- [138] L. Oswald, S. Grosser, D. M. Smith, and J. A. Käs, “Jamming transitions in cancer”, *J. Phys. D* **50**, 483001 (2017).
- [139] X. Li, A. Das, and D. Bi, “Biological tissue-inspired tunable photonic fluid”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **115**, 6650 (2018).
- [140] A. Mayer, V. Balasubramanian, T. Mora, and A. M. Walczak, “How a well-adapted immune system is organized”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **112**, 5950 (2015).
- [141] D. F. Ready, T. E. Hanson, and S Benzer, “Development of the drosophila retina, a neurocrystalline lattice”, *Dev. Biol.* **53**, 217 (1976).
- [142] R. Kubo, M. Toda, and N. Hashitsume, *Statistical physics II: nonequilibrium statistical mechanics* (Springer Science & Business Media, Dec. 2012).
- [143] R. Zwanzig, *Nonequilibrium statistical mechanics* (Oxford University Press, Apr. 2001).
- [144] S. Mandal, B. Liebchen, and H. Löwen, “Motility-Induced temperature difference in co-existing phases”, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 228001 (2019).
- [145] L. Berthier and J. Kurchan, “Non-equilibrium glass transitions in driven and active matter”, *Nat. Phys.* **9**, 310 (2013).
- [146] P Bohec, F Gallet, C Maes, S Safaverdi, P Visco, and F van Wijland, “Probing active forces via a fluctuation-dissipation relation: application to living cells”, *EPL* **102**, 50005 (2013).
- [147] D. Selmeczi, S. Mosler, P. H. Hagedorn, N. B. Larsen, and H. Flyvbjerg, “Cell motility as persistent random motion: theories from experiments”, *Biophys. J.* **89**, 912 (2005).
- [148] C. Scholz, S. Jahanshahi, A. Ldov, and H. Löwen, “Inertial delay of self-propelled particles”, *Nat. Commun.* **9**, 5156 (2018).
- [149] H. Löwen, “Inertial effects of self-propelled particles: from active brownian to active langevin motion”, *J. Chem. Phys.* **152**, 040901 (2020).
- [150] A. R. Sprenger, S. Jahanshahi, A. V. Ivlev, and H. Löwen, “Time-dependent inertia of self-propelled particles: the langevin rocket”, *Phys Rev E* **103**, 042601 (2021).

- [151] J. D. Weeks, D. Chandler, and H. C. Andersen, “Role of repulsive forces in determining the equilibrium structure of simple liquids”, *J. Chem. Phys.* **54**, 5237 (1971).
- [152] A. J. Bray, “Theory of phase-ordering kinetics”, *Adv. Phys.* **51**, 481 (2002).
- [153] R. Yamamoto and K. Nakanishi, “Computer simulation of Vapor-Liquid phase separation”, *Mol. Simul.* **16**, 119 (1996).
- [154] A. Onuki, *Phase transition dynamics* (Cambridge University Press, June 2002).
- [155] L. Caprini, U. Marini Bettolo Marconi, and A. Puglisi, “Spontaneous velocity alignment in Motility-Induced phase separation”, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 078001 (2020).
- [156] L. Caprini, U. M. B. Marconi, C. Maggi, M. Paoluzzi, and A. Puglisi, “Hidden velocity ordering in dense suspensions of self-propelled disks”, *Phys. Rev. Res.* **2**, 023321 (2020).
- [157] G. Szamel and E. Flenner, “Long-ranged velocity correlations in dense systems of self-propelled particles”, *EPL* **133**, 60002 (2021).
- [158] R. L. Jack, I. R. Thompson, and P. Sollich, “Hyperuniformity and phase separation in biased ensembles of trajectories for diffusive systems”, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 060601 (2015).
- [159] M. Skoge, A. Donev, F. H. Stillinger, and S. Torquato, “Packing hyperspheres in high-dimensional euclidean spaces”, *Phys. Rev. E* **74**, 041127 (2006).
- [160] A. Nicolas, E. E. Ferrero, K. Martens, and J.-L. Barrat, “Deformation and flow of amorphous solids: insights from elastoplastic models”, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 045006 (2018).
- [161] C. A. Angell, “Formation of glasses from liquids and biopolymers”, *Science* **267**, 1924 (1995).
- [162] P. G. Debenedetti and F. H. Stillinger, “Supercooled liquids and the glass transition”, *Nature* **410**, 259 (2001).
- [163] L. Berthier and G. Biroli, “Theoretical perspective on the glass transition and amorphous materials”, *Rev. Mod. Phys.* **83**, 587 (2011).
- [164] F. Arceri, F. P. Landes, L. Berthier, and G. Biroli, “Glasses and aging: a statistical mechanics perspective”, arXiv (2020).
- [165] A. J. Liu and S. R. Nagel, “Jamming is not just cool any more”, *Nature* **396**, 21 (1998).
- [166] A. Ikeda, L. Berthier, and P. Sollich, “Unified study of glass and jamming rheology in soft particle systems”, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 018301 (2012).
- [167] C. A. Angell, “Spectroscopy simulation and scattering, and the medium range order problem in glass”, *J. Non-Cryst. Solids* **73**, 1 (1985).
- [168] G. S. Fulcher, “Analysis of recent measurements of the viscosity of glasses”, *J. Am. Ceram. Soc.* **8**, 339 (1925).
- [169] H. Bässler, “Viscous flow in supercooled liquids analyzed in terms of transport theory for random media with energetic disorder”, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 767 (1987).

- [170] W. Kob, “Computer simulations of supercooled liquids and glasses”, *J. Phys. Condens. Matter* **11**, R85 (1999).
- [171] W Kob and H. C. Andersen, “Scaling behavior in the beta -relaxation regime of a supercooled Lennard-Jones mixture”, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1376 (1994).
- [172] W. Kob and H. C. Andersen, “Testing mode-coupling theory for a supercooled binary Lennard-Jones mixture i: the van hove correlation function”, *Phys. Rev. E* **51**, 4626 (1995).
- [173] W. Kob and H. C. Andersen, “Testing mode-coupling theory for a supercooled binary Lennard-Jones mixture. II. intermediate scattering function and dynamic susceptibility”, *Phys. Rev. E* **52**, 4134 (1995).
- [174] C. Bennemann, C. Donati, J. Baschnagel, and S. C. Glotzer, “Growing range of correlated motion in a polymer melt on cooling towards the glass transition”, *Nature* **399**, 246 (1999).
- [175] R. Yamamoto and A. Onuki, “Heterogeneous diffusion in highly supercooled liquids”, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4915 (1998).
- [176] R. Yamamoto and A. Onuki, “Dynamics of highly supercooled liquids: heterogeneity, rheology, and diffusion”, *Phys. Rev. E* **58**, 3515 (1998).
- [177] N Lačević, F. W. Starr, T. B. Schröder, and S. C. Glotzer, “Spatially heterogeneous dynamics investigated via a time-dependent four-point density correlation function”, *J. Chem. Phys.* **119**, 7372 (2003).
- [178] L. Berthier, “Revisiting the slow dynamics of a silica melt using monte carlo simulations”, *Phys. Rev. E* **76**, 011507 (2007).
- [179] D. Coslovich, M. Ozawa, and W. Kob, “Dynamic and thermodynamic crossover scenarios in the Kob-Andersen mixture: insights from multi-CPU and multi-GPU simulations”, *Eur. Phys. J. E Soft Matter* **41**, 62 (2018).
- [180] H. Shiba, Y. Yamada, T. Kawasaki, and K. Kim, “Unveiling dimensionality dependence of glassy dynamics: 2D infinite fluctuation eclipses inherent structural relaxation”, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 245701 (2016).
- [181] K. Kim and S. Saito, “Multiple length and time scales of dynamic heterogeneities in model glass-forming liquids: a systematic analysis of multi-point and multi-time correlations”, *J. Chem. Phys.* **138**, 12A506 (2013).
- [182] E Leutheusser, “Dynamical model of the liquid-glass transition”, *Phys. Rev. A* **29**, 2765 (1984).
- [183] U Bengtzelius, W Gotze, and A Sjolander, “Dynamics of supercooled liquids and the glass transition”, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **17**, 5915 (1984).



- [184] D. R. Reichman and P. Charbonneau, “Mode-coupling theory”, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2005**, P05013 (2005).
- [185] L. M. C. Janssen, “Mode-Coupling theory of the glass transition: a primer”, *Front. Phys.* **6**, 97 (2018).
- [186] T. R. Kirkpatrick and D Thirumalai, “Dynamics of the structural glass transition and the p-spin-interaction spin-glass model”, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2091 (1987).
- [187] T. R. Kirkpatrick and D Thirumalai, “P-spin-interaction spin-glass models: connections with the structural glass problem”, *Phys. Rev. B* **36**, 5388 (1987).
- [188] T. R. Kirkpatrick and P. G. Wolynes, “Connections between some kinetic and equilibrium theories of the glass transition”, *Phys. Rev. A* **35**, 3072 (1987).
- [189] T. R. Kirkpatrick, D Thirumalai, and P. G. Wolynes, “Scaling concepts for the dynamics of viscous liquids near an ideal glassy state”, *Phys. Rev. A* **40**, 1045 (1989).
- [190] G. Parisi, P. Urbani, and F. Zamponi, *Theory of simple glasses: exact solutions in infinite dimensions* (Cambridge University Press, Cambridge, 2020).
- [191] T. Castellani and A. Cavagna, “Spin-glass theory for pedestrians”, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2005**, P05012 (2005).
- [192] P. Charbonneau, J. Kurchan, G. Parisi, P. Urbani, and F. Zamponi, “Glass and jamming transitions: from exact results to finite-dimensional descriptions”, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **8**, 265 (2017).
- [193] A. Cavagna, “Supercooled liquids for pedestrians”, *Phys. Rep.* **476**, 51 (2009).
- [194] H. Mizuno, H. Shiba, and A. Ikeda, “Continuum limit of the vibrational properties of amorphous solids”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **114**, E9767 (2017).
- [195] R. C. Zeller and R. O. Pohl, “Thermal conductivity and specific heat of noncrystalline solids”, *Phys. Rev. B* **4**, 2029 (1971).
- [196] S Mazoyer, F Ebert, G Maret, and P Keim, “Dynamics of particles and cages in an experimental 2D glass former”, *EPL* **88**, 66004 (2010).
- [197] S Mazoyer, F Ebert, G Maret, and P Keim, “Correlation between dynamical heterogeneities, structure and potential-energy distribution in a 2D amorphous solid”, *Eur. Phys. J. E Soft Matter* **34**, 101 (2011).
- [198] B. Illing, S. Fritschi, H. Kaiser, C. L. Klix, G. Maret, and P. Keim, “Mermin-Wagner fluctuations in 2D amorphous solids”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **114**, 1856 (2017).
- [199] C. S. O’Hern, L. E. Silbert, A. J. Liu, and S. R. Nagel, “Jamming at zero temperature and zero applied stress: the epitome of disorder”, *Phys. Rev. E* **68**, 011306 (2003).

- [200] P. Chaudhuri, L. Berthier, and S. Sastry, “Jamming transitions in amorphous packings of frictionless spheres occur over a continuous range of volume fractions”, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 165701 (2010).
- [201] M. Ozawa, T. Kuroiwa, A. Ikeda, and K. Miyazaki, “Jamming transition and inherent structures of hard spheres and disks”, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 205701 (2012).
- [202] M. Ozawa, L. Berthier, and D. Coslovich, “Exploring the jamming transition over a wide range of critical densities”, *SciPost Phys.* **3**, 027 (2017).
- [203] N. Kumar and S. Luding, “Memory of jamming—multiscale models for soft and granular matter”, *Granular Matter* **18**, 58 (2016).
- [204] L. E. Silbert, A. J. Liu, and S. R. Nagel, “Structural signatures of the unjamming transition at zero temperature”, *Phys. Rev. E* **73**, 041304 (2006).
- [205] M. Wyart, L. E. Silbert, S. R. Nagel, and T. A. Witten, “Effects of compression on the vibrational modes of marginally jammed solids”, *Phys. Rev. E* **72**, 051306 (2005).
- [206] W. G. Ellenbroek, E. Somfai, M. van Hecke, and W. van Saarloos, “Critical scaling in linear response of frictionless granular packings near jamming”, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 258001 (2006).
- [207] M. Wyart, “On the rigidity of amorphous solids”, *Ann. Phys. Fr.* **30**, 1 (2005).
- [208] M. Wyart, S. R. Nagel, and T. A. Witten, “Geometric origin of excess low-frequency vibrational modes in weakly connected amorphous solids”, *EPL* **72**, 486 (2005).
- [209] P. Olsson, “Dimensionality and viscosity exponent in shear-driven jamming”, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 108003 (2019).
- [210] A. Ikeda, L. Berthier, and P. Sollich, “Disentangling glass and jamming physics in the rheology of soft materials”, *Soft Matter* **9**, 7669 (2013).
- [211] W.-T. Yeh, M. Ozawa, K. Miyazaki, T. Kawasaki, and L. Berthier, “Glass stability changes the nature of yielding under oscillatory shear”, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 225502 (2020).
- [212] T. Kawasaki and K. Miyazaki, “Shear jamming and shear melting in mechanically trained frictionless particles”, arXiv.
- [213] S. Mitra, A. D. S. Parmar, P. Leishangthem, S. Sastry, and G. Foffi, “Hyperuniformity in cyclically driven glasses”, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2021**, 033203 (2021).
- [214] E. Bitzek, P. Koskinen, F. Gähler, M. Moseler, and P. Gumbsch, “Structural relaxation made simple”, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 170201 (2006).
- [215] D. Hexner, A. J. Liu, and S. R. Nagel, “Two diverging length scales in the structure of jammed packings”, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 115501 (2018).
- [216] K. Binder, M. Nauenberg, V. Privman, and A. P. Young, “Finite-size tests of hyperscaling”, *Phys. Rev. B* **31**, 1498 (1985).

- [217] D. Hexner, P. Urbani, and F. Zamponi, “Can a large packing be assembled from smaller ones?”, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 068003 (2019).
- [218] A. Ikeda, (private communication).
- [219] K. Nagasawa, K. Miyazaki, and T. Kawasaki, “Classification of the reversible-irreversible transitions in particle trajectories across the jamming transition point”, *Soft Matter* **15**, 7557 (2019).
- [220] M. J. Godfrey and M. A. Moore, “Absence of hyperuniformity in amorphous hard-sphere packings of nonvanishing complexity”, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 075503 (2018).
- [221] A. D. S. Parmar, S. Kumar, and S. Sastry, “Strain localization above the yielding point in cyclically deformed glasses”, *Phys. Rev. X* **9**, 021018 (2019).
- [222] H. Bhaumik, G. Foffi, and S. Sastry, “The role of annealing in determining the yielding behavior of glasses under cyclic shear deformation”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **118** (2021).
- [223] S. Lübeck, “Universal scaling behavior of non-equilibrium phase transitions.”, *Int. J. Mod. Phys. B* **18**, 3977 (2004).
- [224] C. F. Schreck, R. S. Hoy, M. D. Shattuck, and C. S. O’Hern, “Particle-scale reversibility in athermal particulate media below jamming”, *Phys. Rev. E* **88**, 052205 (2013).
- [225] H. A. Vinutha and S. Sastry, “Disentangling the role of structure and friction in shear jamming”, *Nat. Phys.* **12**, 578 (2016).
- [226] H. A. Vinutha and S. Sastry, “Geometric aspects of shear jamming induced by deformation of frictionless sphere packings”, *J. Stat. Mech. Theory Exp.* **2016**, 094002 (2016).
- [227] P. Das, H. A. Vinutha, and S. Sastry, “Unified phase diagram of reversible–irreversible, jamming, and yielding transitions in cyclically sheared soft-sphere packings”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **117**, 10203 (2020).
- [228] T. Kawasaki and L. Berthier, “Macroscopic yielding in jammed solids is accompanied by a nonequilibrium first-order transition in particle trajectories”, *Phys. Rev. E* **94**, 022615 (2016).
- [229] M. Otsuki and H. Hayakawa, “Avalanche contribution to shear modulus of granular materials”, *Phys. Rev. E* **90**, 042202 (2014).
- [230] S. Dagois-Bohy, E. Somfai, B. P. Tighe, and M. van Hecke, “Softening and yielding of soft glassy materials”, *Soft Matter* **13**, 9036 (2017).
- [231] S. Mitra, “Structural changes in glasses under periodic shear deformation”, PhD thesis (Université Paris-Saclay, Mar. 2021).
- [232] M. Shukawa, “アニールを施した ジャミング系の大規模シミュレーション”, M.S. thesis (Nagoya University, Mar. 2021).

- 
- [233] D. J. Durian, “Foam mechanics at the bubble scale”, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4780 (1995).
- [234] F. Martelli, S. Torquato, N. Giovambattista, and R. Car, “Large-Scale structure and hyperuniformity of amorphous ices”, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 136002 (2017).
- [235] R. Xie, G. G. Long, S. J. Weigand, S. C. Moss, T. Carvalho, S. Roorda, M. Hejna, S. Torquato, and P. J. Steinhardt, “Hyperuniformity in amorphous silicon based on the measurement of the infinite-wavelength limit of the structure factor”, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **110**, 13250 (2013).