やわらかい粒子のジャミング

一粒子が変形するとどうなる? 一

京都産業大学 理学部 物理科学科 齊藤国靖

2025年1月4日

キーワード:粉体、ソフトマター、ジャミング転移、分子動力学法

1 はじめに

粉体をはじめ、巨視的な粒子から成る粒子系は通常の流体とは異なる流動特性(レオロジー)や 輸送現象を示す。粒子系にとって粒子の密度 ϕ は重要なパラメーターであり、ある臨界密度 ϕ_c を 境に液相からアモルファス固体への**ジャミング転移**が起きる。近年、粒子系のレオロジーや輸送現 象を調べる研究においては、ジャミング転移との関係性に焦点を当てることが多い。例えば、粒子 系の粘性率は ϕ_c で発散するが、密度差 $|\phi - \phi_c|$ を使った臨界スケーリングにより、 ϕ_c 近傍の粘性 率の振る舞いはほぼ解明されている [1]。また、 ϕ_c 近傍での拡散係数や [2]、熱伝導に関連した粒 子系の固有振動も詳しく調べられており、粘弾性とジャミング転移の関係も注目されている [3]。

ところで、粒子系のジャミングに関する研究において、分子動力学法が果たしてきた役割は大き い。分子動力学法の基本は全粒子の運動方程式を数値的に解くことであり、粒子をどのようにモデ ルするかが重要である。例えば、弾性力を模擬した斥力、粒子の相対速度に比例する粘性力、電気 的な相互作用による引力、粒子表面に付着した液体の表面張力、粒子間の摩擦力など、これまで 様々な粒子モデルが考案され、粒子系のレオロジーや輸送現象への影響が議論されてきた。しか し、これまでのモデルは基本的に球形であり、計算効率の都合上、粒子自身は変形しないと仮定さ れてきた。もちろん、実際の粒子は粒子同士の接触により(多少なりとも)変形し、完全な球形で はあり得ない。また、粒子の形状や粒子自身の変形がレオロジーや輸送現象に与える影響は未知な 部分が多い。そこで、これまでの研究を**変形する粒子モデル**によって見直し、ジャミングの理解を さらに進めようというのは野心的な目標である。そのための第一歩として、本稿では変形する粒子 の分子動力学法について簡単な解説を行う。

2 変形する粒子の数値計算

2.1 粒子モデル

変形する粒子モデルには様々なものがあり、数値計算による研究も進んでいる。例えば、1 つの 粒子をポリゴン(多角形)に置き換え、多数の頂点を動かすことで粒子の変形を再現するモデルが ある [4,5]。このモデルでは、粒子の大変形をシミュレートできるというメリットがあり、頂点同 士の相互作用を調節すれば、粒子の硬さをコントロールすることもできる。しかし、粒子が受ける 力は多数の頂点に働く力の合力として与えられるため、多くの粒子からなる粒子系を考えるとき、 各粒子の位置や形状から粒子間に働く力を直接求めることができないというデメリットがある。さ らに、粒子の滑らかな形状を保つために頂点の数を増やせば、その分計算コストが高くなってしま うのも難点である。そこで、ここでは分子動力学法を念頭に、各粒子の位置と形状から力を計算で きる Morse-Witten モデルを紹介する [6,7]。Morse-Witten モデルでは、粒子間に働く力が理論 的な表式で与えられるため、数値計算だけでなく、理論解析にも適しているというメリットがあ る。一方、粒子の変形に対して線形のモデルであるため、粒子の大変形を再現できないというデメ リットがある。しかし、通常粉体の構成粒子としては、ある程度硬いものを想定するため、大変形 を無視した Morse-Witten モデルでも十分有用な結果が得られるはずである。なお、以下では簡単 のため、2 次元の粒子系を考えることにする。

まず、Morse-Witten モデルでは、i番目の粒子の輪郭 $\rho_i(\theta)$ を次式で表す。

$$\rho_i(\theta) = R_i + \Delta R_i(\theta) \tag{1}$$

ここで、 R_i は変形していないときの粒子の半径であり、 $\Delta R_i(\theta)$ は変形によって生じる θ 方向のズ レを表している。粒子の変形は他の粒子との接触により力を受けたときに発生し、式 (1) の θ は受 けた力の作用線から測った角度である。図 1(a) の実線は式 (1) の輪郭をプロットしたものであり、 i 番目の粒子が j 番目の粒子から力 f_{ij} を受けている場合である。このとき、i 番目の粒子の輪郭 は力の作用点を中心に鋭い凹み(**カスプ**)を形成することに注意しよう。また、式 (1) の右辺にあ る粒子の輪郭の円形からのズレは

$$\Delta R_i(\theta_j) = \frac{R_i}{2\pi\gamma} f_{ij} g(\theta_j) \tag{2}$$

で与えられる。但し、 $f_{ij} = |\mathbf{f}_{ij}|$ は力の大きさ、 γ は線張力、 $g(\theta_j)$ は θ_j のある関数である。なお、 式 (2) では j 番目の粒子から受ける力の作用線から測った角度であることを明示するため、 θ では なく θ_j を用いた。さらに、i 番目の粒子が複数の粒子と接触して力を受ける場合、円形からのズレ はそれらの粒子に対する式 (2) を重ね合わせて

$$\Delta R_i(\theta) = \frac{R_i}{2\pi\gamma} \sum_{j \in c(i)} f_{ij} g\left(\theta_j\right) \tag{3}$$

となる。ここで、和の記号にある *c*(*i*) は *i* 番目の粒子と接触する粒子の番号を要素とする集合であ り、左辺の θ は水平方向(*x* 軸方向)から測った角度として再定義した。



図 1: (a) Morse-Witten モデルにおける粒子の輪郭。実線は式 (1) を表し、点線は半径 R_i の円を 表す。また、 θ は力 f_{ij} の作用線から測った角度を表す。(b) 角度 θ_{ijk} と θ_{jik} の位置関係。

次に、Morse-Witten モデルにおける力の表式を説明しよう。Morse-Witten モデルでは、接触 する粒子の間に働く力を接触面における圧力により表し、ヤング・ラプラスの式を使って力の表式 を求める。これにより、力の大きさは次式を満たすことになる。

$$\delta_{ij} = -\frac{R_i}{2\pi\gamma} \sum_{k \in c(i)} f_{ik}g\left(\theta_{ijk}\right) - \frac{R_j}{2\pi\gamma} \sum_{k \in c(j)} f_{jk}g\left(\theta_{jik}\right) \tag{4}$$

ここで、左辺の δ_{ij} は変形する前の粒子間の重なりであり、*i* 番目と *j* 番目の 2 つの粒子の中心間 距離 r_{ij} を用いて、 $\delta_{ij} = R_i + R_j - r_{ij}$ で与えられる。これは変形しない粒子の数値計算でも度々 登場する量であり、基本的には 2 つの粒子の位置さえ解れば直ちに計算できるものである。一方、 式 (4) の右辺は力の大きさ f_{ik} および f_{jk} の線形結合であり、添え字の *k* はそれぞれ *i* 番目と *j* 番 目の粒子の接触相手の番号を表している。また、2 つの角度 θ_{ijk} と θ_{jik} は 3 つの粒子の中心間を 結ぶ直線と直線の間の角度として定義され、図 1(b) に示すような位置関係を満たす。このように、 Morse-Witten モデルにおける力の大きさを求めるには、式 (4) を f_{ik} や f_{jk} について解けばよい。 しかし、右辺の係数が角度の関数 $g(\theta_{ijk})$ や $g(\theta_{jik})$ を含み複雑であるため、数値解法を用いる必 要がある。特に、式 (4) は力の大きさの連立一次方程式なので、Gauss-Jordan 法などで数値解を 求めることになる。また、力の大きさ f_{ij} は *i* 番目と *j* 番目の粒子の接触だけでなく、*i* 番目と *k* 番目、*j* 番目と *k* 番目など、他の粒子同士の接触にも依存することに注意しよう。これは変形しな い粒子間に働く力 f_{ij} が粒子間の重なり δ_{ij} と 1 対 1 に対応する状況とは全く異なっている。

2.2 数値計算の手順

2.2.1 初期条件の設定

変形する粒子の数値計算を行うには、式 (4) を解いて粒子間に働く力を求めることから始める。 そのために各粒子の位置 \mathbf{r}_i と粒子間の重なり δ_{ij} を初期条件として与える必要がある。数値計算 によって、粒子系は力学的な平衡状態に緩和し、その過程で \mathbf{r}_i と δ_{ij} は最終的な値へと変化してい く。従って、数値計算を効率よく行うためには、力学的な平衡状態になるべく近い状態での \mathbf{r}_i と δ_{ij} を初期条件に選ぶのがよい。そこで、プログラムでは変形しない粒子からなる系の力学的な平 衡状態における \mathbf{r}_i と δ_{ij} を初期条件として与え、各粒子の初速度をゼロに設定する。このような 初期条件は FIRE アルゴリズムを用いて直ちに得られ、異なるサンプルを量産するのにも適してい る。なお、変形しない粒子からなる系の様子は図 5(a) に示している。

2.2.2 接触リストの作成

初期条件として与えた $\mathbf{r}_i \geq \delta_{ij}$ は変形しない粒子に対するものなので、数値計算の過程でこれ らの値は時々刻々と変化する。このとき問題なのは、接触する粒子のペアが新しく生じたり失わ れたりするイベントが時折発生することである。このようなイベントを正しく検知しなければ、 Morse-Witten モデルにおける力の計算が誤った結果となり、粒子系は力学的な平衡状態にいつま で経っても到達しない。そこで、接触する粒子ペアの生成と消滅を正しく検知するため、プログラ ムでは接触する粒子ペアのリストをリアルタイムで監視する仕組みを導入する。このようなリスト を**接触リスト**と名付け、全ての粒子の接触相手の粒子番号を一列に並べたものとする。例えば、*i* 番目の粒子と接触する粒子が 4 つあり、粒子番号がそれぞれ j = 5, 2, 10, 7 であったとすると、こ れらを昇順に並べた {2,5,7,10} が接触リストのうち該当する部分である。粒子番号 *i* についても 昇順に並べるため、接触リストの要素数は接触する粒子ペアの総数 N_c に一致する。但し、粒子ペ アの重複を避けるため、i < jという条件を付けて接触リストを作成する(つまり、 $i \geq j$ のペア と $j \geq i$ のペアを同一視するということである)。また、粒子の総数を N、粒子系の平均配位数を zとすれば、接触リストの要素数あるいは粒子ペアの総数は

$$N_c = \frac{zN}{2} \tag{5}$$

である。一方、式 (4) の右辺の係数を計算するため、 $i \ge j$ の大小とは無関係に(つまり、 $i \ne j$ として)作成した接触リストも準備し、これを**重複接触リスト**と名付ける。

2.2.3 力の計算

接触する粒子ペアの間には**斥力**が働く。例えば、*i*番目の粒子が*j*番目の粒子と接触し、 力 f_{ij} を受ける場合、力の向きはそれぞれの粒子の中心間を結ぶ直線に平行な単位ベクトル $n_{ij} = (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) / r_{ij}$ の向きである。一方、Morse-Witten モデルでは、力の大きさ f_{ij} は式 (4)の 連立一次方程式の解である。つまり、粒子間の重なり δ_{ij} を i < jの条件を付けて縦一列に並べた ベクトルを $|\delta\rangle$ とし、 f_{ij} も同様に i < j の条件を付けて縦一列に並べたベクトルを $|f\rangle$ とすれば、式 (4) は

$$|\delta\rangle = \mathcal{K}^{-1}|f\rangle \tag{6}$$

となり、これを $|f\rangle$ について解かなければならない。ここで、2 つのベクトル $|\delta\rangle$ と $|f\rangle$ の要素の 並べ方は接触リストと同じであり、いずれも N_c 次元の縦ベクトルである。一方、右辺にある \mathcal{K}^{-1} は $N_c \times N_c$ の正方行列であり、その要素は式 (4) の右辺にある 2 つの力の大きさ f_{ik} と f_{jk} に掛 かっている係数によって構成される。このとき,式 (4) の右辺の粒子番号 k に関する和は 3 つの 粒子番号 i, j, k の大小とは無関係に計算されるため、接触リストではなく重複接触リストを参照 することになる。また、 f_{ik} と f_{jk} の係数の表式から、 \mathcal{K}^{-1} は対称行列であることも解る。数値 計算では、式 (6) の連立一次方程式は時間に関するステップ毎に異なるものが得られる。従って、 Gauss-Jordan 法などで式 (6) を毎ステップ解けば、その時刻における粒子間に働く力の大きさ $|f\rangle$ を一遍に算出できるのである。

2.2.4 接触リストの更新

全粒子の位置 $\mathbf{r}_i \ \epsilon \ r_y \ c \ r_i \ \epsilon \ r_y \ c \ r_i \ \epsilon \ r_i \ r_i \ \epsilon \ r_i \$

まず、Morse-Witten モデルにおける粒子ペアの生成プロセスを考えよう。図 2(a) のように、 接触していない 2 つの粒子があったとする。このとき、それぞれの粒子が平行移動したり変形 するなどして、図 2(b) のように初めて接触したとしよう。変形しない粒子同士であれば、接触 により粒子間の重なり $\delta_{ij} = R_i + R_j - r_{ij}$ が正になるので、 δ_{ij} の符号だけを監視しておけば、 粒子ペアの生成と消滅を検知することができる。変形する粒子同士の場合でも、粒子間の重なり $\Delta_{ij} = \rho_i + \rho_j - r_{ij}$ が $\Delta_{ij} > 0$ であれば接触したとみなせる。ところが、変形する粒子同士が一 度接触すると、接触した点に斥力が作用し、図 1(a) で見た通り、接触点を中心にカスプが形成さ れる。図 2(c) は接触によりカスプが形成された 2 つの変形する粒子の様子であり、*i* 番目と *j* 番目 の粒子にはそれぞれ斥力 $f_{ij} \ge f_{ji} = -f_{ij}$ が作用している。このように、一旦カスプが形成され てしまうと、斥力が作用しているにも関わらず、粒子間の重なりは $\Delta_{ij} < 0$ になってしまう。つま り、変形する 2 つの粒子が接触する瞬間は $\Delta_{ij} > 0$ となるが、それ以降、接触が保たれているかど うかを Δ_{ij} の符号によって判断することはできない。従って、プログラムでは Δ_{ij} を毎ステップ 計算し、もし $\Delta_{ij} > 0$ になった場合、*i* $\ge j$ のペアを接触リストに追加し、それ以降は Δ_{ij} の計算 を除外する(つまり、接触リストに既に入っている粒子ペアの Δ_{ij} は計算しない)ことにする。 一方、Morse-Witten モデルにおける粒子ペアの消滅を検知することは簡単である。上述の通 り、粒子同士の重なりが $\Delta_{ij} < 0$ であっても、粒子間に斥力が働いていれば、その粒子ペアは接触 しているとみなされる。より正確には、式 (4) の連立一次方程式を f_{ij} について解いた結果、 f_{ij} が 正であれば $i \ge j$ のペアは接触していることになる。 $f_{ij} = |\mathbf{f}_{ij}|$ であるから、 $f_{ij} > 0$ となるのが 正常な状態であり、Morse-Witten モデルとも整合する。従って、プログラムでは式 (4) を f_{ij} に ついて毎ステップ解き、 $f_{ij} < 0$ になった時点で $i \ge j$ のペアを接触リストから削除する。



図2: Morse-Witten モデルにおける粒子ペアの生成プロセス。

ここで、粒子ペアを接触リストに追加または削除する手順について簡単に説明しよう。まず、粒 子間の重なりが $\Delta_{ij} > 0$ となり、 $i \ge j$ のペアを接触リストに追加することになったとする。この とき、粒子番号の大小関係が *i < j* であれば、接触リストの中で *i* の接触相手の粒子番号が並んだ 部分に、新たに j を追加することになる。図 3 のように、まずは追加前の接触リストにおいて、i の接触相手のためのスペースを1つ空ける。そのために i+1 以降の接触相手の粒子番号を全て右 に1つだけシフトし、粒子ペアの総数を N_c から N_c+1 に増やす。さらに、プログラムではiの接 触相手の個数とi+1以降の最初の接触相手を示すポインターをいずれも1つずつ増やしておく。 これにより*i*の接触相手として*j*を追加する準備が整うので、*i*の接触相手の最後の要素として*j* を接触リストに格納する。因みに、粒子ペアの生成により、式 (6) の左辺にある縦ベクトル |δ) の 要素も増えるため、接触リストに追加する手順と全く同様に、新しく加わる粒子ペアの間の重なり δ_{ij} を $|\delta\rangle$ にも追加する。次に、式 (4) の解が $f_{ij} < 0$ となり、i と j のペアを接触リストから削除 することになったとする。ここでも粒子番号の大小関係が*i < j* であれば、*i* の接触相手から *j* を 削除することになる。図4のように、まずは削除前の接触リストにおいて、iの接触相手から j を 削除し、j 以降の接触相手の粒子番号を左に 1 つだけシフトする。さらに、i + 1 以降の接触相手 の粒子番号を全て左に1つだけシフトし、粒子ペアの総数を N_c から $N_c - 1$ に減らす。このとき、 プログラムでは i の接触相手の個数と i + 1 以降の最初の接触相手を示すポインターをいずれも 1

つずつ減らしておく。また、粒子ペアの消滅により、式 (6) にある縦ベクトル $|\delta\rangle$ と $|f\rangle$ の要素も減るため、接触リストから削除する手順と同様、 δ_{ij} と f_{ij} をそれぞれ $|\delta\rangle$ と $|f\rangle$ から削除する。



図3:粒子ペアを接触リストに追加する手順。



図4:粒子ペアを接触リストから削除する手順。

2.2.5 プログラムの流れ

これまで説明してきた事柄を整理し、プログラム全体の流れをまとめよう。まず、2.2.1 節の手順で初期条件を設定し、2.2.2 節で導入した接触リストと重複接触リストを初期条件から作成する。次に、2.2.3 節の手順で最初の力 $|f\rangle$ を求め、2.2.4 節で説明した方法に従い、 $f_{ij} < 0$ となる粒子ペアを接触リストと重複接触リストから削除し、 $\Delta_{ij} > 0$ となる粒子ペアを接触リストと重複接触リストに追加する。このように更新したリストを基に、再び 2.2.3 節の手順で $|f\rangle$ を求め、運動方程式を数値積分して各粒子の位置 \mathbf{r}_i をアップデートする。ここまでが時間に関する最初のステップで行う内容である。次に、求めた $|f\rangle$ と \mathbf{r}_i を使って 2.2.4 節と 2.2.3 節の手順を実行し、 $|f\rangle$ を更新した後、運動方程式を数値積分して \mathbf{r}_i を再びアップデートする。なお、運動方程式を数値積分する際、FIRE アルゴリズムを併用し、系が力学的な平衡状態へ効率よく緩和できるようにする。こ

れ以降、同じ手順を繰り返し、最終的に変形する粒子からなる系の力学的な平衡状態を達成する。

2.3 粒子の可視化

変形しない粒子の形状は常に円か球であるから、数値計算の結果を可視化することは簡単であ る。例えば、ステップ毎の各粒子の位置 \mathbf{r}_i と半径 R_i をデータとして出力しておけば、gnuplot などで簡単にアニメーションを作成することができる。一方、変形する粒子の形状は様々なの で、ステップ毎の \mathbf{r}_i に加え、式 (1) の輪郭 $\rho_i(\theta)$ を θ の関数として出力しなければならない。実 際には θ を 0 から 2 π まで等間隔に分割し、輪郭を離散的な点で描くことになる。つまり、変形 する粒子をポリゴンに置き換えて可視化するのである。ポリゴンの頂点の座標は単位ベクトル $\mathbf{n}(\theta) = (\cos\theta, \sin\theta)$ を用いて $\mathbf{r}_i + \rho_i(\theta)\mathbf{n}(\theta)$ で与えられるので、これを適当な可視化ルーチンを 使って線で結べばよい。

図 5(a) は変形しない粒子からなる系を可視化した結果である。この場合、粒子同士は接触して も形状が円のままなので、接触した部分は単に重ねて描かれており、かなり不自然である。一方、 図 5(b) は変形する粒子からなる系を可視化したものである。変形する粒子は接触によって形を変 えるため、粒子同士は重ならず、より現実的な結果である。また、この系は 2.2 節で説明した数値 計算の結果であり、力学的な平衡状態に達しているため、粒子の位置と形状がこれ以上変化するこ とはない。



図 5:(a) 変形しない粒子と(b) 変形する粒子の可視化。

2.4 緩和のシミュレーション

2.2 節で説明した数値計算は、図 5(a) の状態をインプットとし、図 5(b) の状態を最終的なアウ トプットとしている。この間、変形する粒子は様々な位置と形状をとりながら緩和する。そこで、 系が緩和する様子について少し調べてみよう。まず、力学的な平衡状態とは粒子の位置と形状がそ れ以上変化しない状態のことである。つまり、接触する粒子から受ける力 f_{ij} が全て釣合い、各粒 子に働く力の合力 $f_i = \sum_{j \in c(i)} f_{ij}$ がほぼゼロの状態である。これを確かめるため、合力の絶対値 を $|f_i|$ とし、全粒子の中の $|f_i|$ の最大値 f_{max} の時間変化を調べてみる。図 6 は f_{max} が数値計算 のステップ数と共にどのように変化するかを示しており、初期条件である変形しない粒子の被覆率 を変えて比較した結果である。プログラムでは、 f_{max} が図 6 の閾値(点線)を下回った時点で系 が力学的な平衡状態に到達したとみなしている。図 6 の結果より、初期条件の被覆率が 0.86 以上 であれば、f_{max} は最初から単調減少し、早い段階で閾値を下回ることが解る。一方、初期条件の 被覆率がジャミング転移点に近い 0.84 の場合、f_{max} の変化は最初停滞するが、ある段階で急減し て閾値を下回ることが解る。このように、ジャミング転移に近い系の緩和時間が長くなる傾向は変 形しない粒子でも見られる現象である [3,8]。また、f_{max} の緩和は異なるサンプルで調べても同様 であり、2.2 節の方法によって、変形する粒子からなる系の力学的な平衡状態が正しく達成されて いることが解る。



図 6: f_{max} とステップ数の関係。点線は閾値を表す。

3 おわりに

変形する粒子のジャミングを数値的に調べるため、Morse-Witten モデルを紹介し、数値計算の 手順について説明した。Morse-Witten モデルにおける力の表式は連立一次方程式を数値的に解か なければ得られないが、1 つの力に対して複数の接触する粒子ペアが関係しており、変形しない粒 子のモデルには無い複雑さと物理的な豊かさがある。変形しない粒子からなる系を初期条件とし て、変形する粒子からなる系の力学的な平衡状態を達成できたことは大きな成果である。今後は ジャミング転移点近傍における様々なスケーリングや固有振動の解析に加え、弾性率や粘性率など レオロジーに関する解析を行い、変形する粒子からなる系の物理について理解を進めたい。

参考文献

- P. Olsson and S. Teitel: "Critical scaling of shear viscosity at the jamming transition", *Phys. Rev. Lett.*, **99**, 178001 (2007).
- [2] Kuniyasu Saitoh and Takeshi Kawasaki: "Critical scaling of diffusion coefficients and size of rigid clusters of soft athermal particles under shear", *Front. Phys.*, 8, 99 (2020).

- [3] Kuniyasu Saitoh, Takahiro Hatano, Atsushi Ikeda, and Brian P. Tighe: "Stress relaxation above and below the jamming transition", *Phys. Rev. Lett.*, **124**, 118001 (2020).
- [4] A. Boromand, A. Signoriello, F. Ye, C. S. O'Hern, and M. D. Shattuck: "Jamming of deformable polygons", *Phys. Rev. Lett.*, **121**, 248003 (2018).
- [5] A. Boromand, A. Signoriello, J. Lowensohn, C. S. Orellana, E. R. Weeks, F. Ye, M. D. Shattuckf, and C. S. O'Hern: "The role of deformability in determining the structural and mechanical properties of bubbles and emulsions", *Soft Matter*, **15**, 5854 (2019).
- [6] D. C. Morse and T. A. Witten: "Droplet elasticity in weakly compressed emulsions", Eur. Phys. Lett., 22, 549 (1993).
- [7] F. F. Dunne, J. Winkelmann, D. Weaire, and S. Hutzler: "Implementation of Morse–Witten theory for a polydisperse wet 2D foam simulation", *Phil. Mag.*, 99, 2303 (2019).
- [8] Atsushi Ikeda, Takeshi Kawasaki, Ludovic Berthier, Kuniyasu Saitoh, and Takahiro Hatano: "Universal relaxation dynamics of sphere packings below jamming", *Phys. Rev. Lett.*, **124**, 058001 (2020).