

「マルチスケール・マルチフィジックス現象の統合シミュレーション」

平成 18 年度採択研究代表者

山本 量一

(京都大学 大学院工学研究科 助教授)

「ソフトマターの多階層/相互接続シミュレーション」

## 1. 研究実施の概要

ソフトマター(柔らかく複雑な物質の総称)の中でも特に機能性材料として重要な高分子系とコロイド系を対象とし、①「マイクロ階層(原子・分子レベル)・メソ階層(濃度分布や界面など)・マクロ階層(材料の形や製造プロセスなど)が物理的に矛盾なく相互に影響し合う多階層/相互接続シミュレーション手法の確立」と、②「それを用いた全く新しい包括的材料・プロセス設計ソフトウェアの開発」を行う。

①はソフトマター分野にとどまらず広く望まれていることであり、他の先端基礎科学・工学分野にも大きなインパクトを与えるものである。マイクロとマクロをいきなり接続するのは難しいが、ソフトマターでは両者の中間にあたるメソスケールのシミュレーション手法が発達しており有利である。また、②により物質の化学的な個性と系が示す物理的な普遍性をつないだ予測計算が可能となり、シミュレーションによる材料・プロセス設計への貢献という重要課題を達成できる。

平成 18 年度については、1)分子動力学拠点(泰岡)、2)高分子拠点(増淵)、3)コロイド拠点(山本)、4)マクロ材料拠点(谷口)の4研究拠点が十分に機能するようにプロジェクトの実施体制の整備と準備を主にを行い、一部の試験的な試みについて検討を行った。平成 19 年度より順次本格的なプログラム開発に着手する。

## 2. 研究実施内容

ソフトマター(柔らかく複雑な物質の総称)の中でも特に機能性材料として重要な高分子系とコロイド系に対し、マイクロ階層(原子・分子レベル)・メソ階層(濃度分布や界面など)・マクロ階層(材料の形や製造プロセスなど)が物理的に矛盾なく相互に影響し合う多階層/相互接続シミュレーションを実現する。具体的な研究目標と概要は以下の通りである。

①多階層/相互接続シミュレーション法の確立: 計算科学の最先端では、各階層に適した手法を組み合わせたマルチスケールシミュレーションによるブレイクスルーがいたる所で期待されている。我々は、独自のアイデアに基づく多階層/相互接続シミュレーション法の開発によって、ソフトマター分野におけるマルチスケール問題の解決を目指す。ここでの成果はソフトマター分野にとどまら

ず、他の先端基礎科学・工学分野へも大きなインパクトを与えるものである。

②包括的材料・プロセス設計ソフトウェアの開発：高分子、コロイド、及びその混在する系で、物質の化学的な1次構造を入力とした分子シミュレーション、メソスケールシミュレーションを介し、最終的にマクロな加工プロセスシミュレーションを実現するシステムを構築する。シミュレーションによる材料・プロセス設計への貢献という重要課題に取り組む。

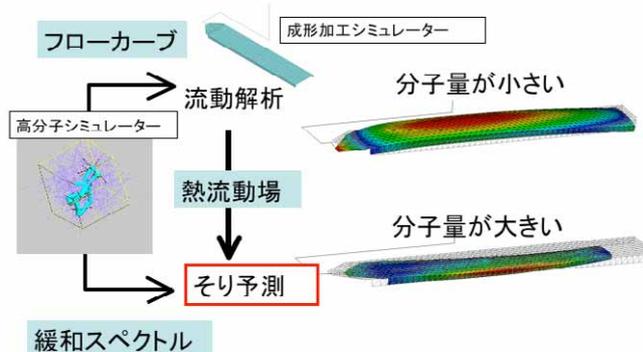
1)分子動力学拠点、2)高分子拠点、3)コロイド拠点、4)プラットフォーム/プロセス拠点の4研究拠点を置き、それぞれの拠点が開発した異なる階層のシミュレータの相互接続を主な開発項目とする。平成18年度の各研究拠点における実施内容は以下の通りである。

### 1)分子動力学拠点：

高分子およびコロイドシミュレータに求められる分子動力学コードを開発するための準備として、以下のことを行った。高分子に求められるものとして、粗子化粒子動力学法による計算を行い、その可能性を探索した。粗子化粒子動力学法では、約10個程度の原子を一つの粒子と置き換え、また発散しにくい力の形式を用いるので、分子動力学シミュレーションより長い( $\mu s$  や  $ms$ )の計算が比較的簡単にできる。高分子の計算を行う際に、本方法を用いることができるかを探索することを目的として、計算を行った。本年は紐状ミセルの生成過程についての計算を行い、結果の一部を国内の学会にて発表した。コロイドに求められるものとして、IPS (isotropic periodic sum method) 法と呼ばれる方法の可能性を探索した。IPS法は2005年にWuとBrooksによって開発された方法で、Ewald法などの方法を用いずにクーロン力やファンデルワールス力を比較的短いカットオフ距離内の力で置き換えることができる方法である。エネルギーや密度等比較的単純な物理量については報告されているが、拡散係数等の輸送係数については報告がない。本年度は特にLJについて(一部水について)報告した。その結果を国内学会にて発表した。

### 2)高分子拠点：

本年度は高分子シミュレーターとマクロシミュレーターおよびマイクロシミュレーターとの連結の試行と調査を行った。まずマクロシミュレーターとの連結では、シミュレーターにより分子形状からレオロジーを取得し、得られたレオロジーを連続体の構成方程式でフィッティングして連続体計算を試みた。その結果、射出成形品のそり方向が分子量によって逆転する現象の予測に成功した(プラスチック成形加工学会シンポジア06で発表済み)。一方マイクロシミュレーターとの連結では、マイクロシミュレーターで得られるからみあい構造と高分子シミュレーターで得られるネットワーク構造の類似性、整合性について詳細に検討し、投稿論



文を準備している.

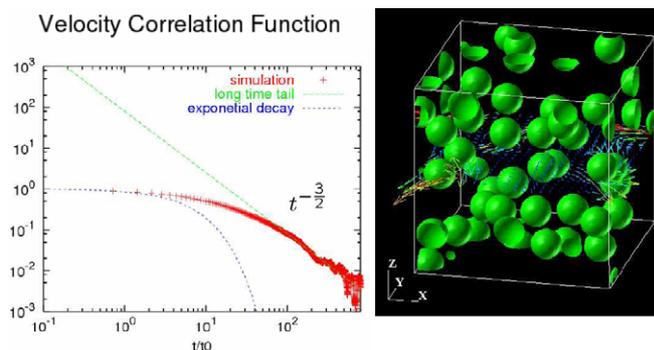
(図1: 高分子シミュレーターと成形加工シミュレーターとの結合による成型品のそり予測)

### 3) コロイド拠点:

コロイド系に有効なメソシミュレータと大規模分子動力学シミュレーションによるマイクロシミュレータとの相互接続を目指している. 空間を分割してマイクロ階層とメソ階層を力学的に接続するのは困難なので, 自由度をイオンとコロイド・ホスト流体に分割し, それぞれマイクロとメソでモデルを与えることで統計力学的に矛盾のない独自の手法が必要である. 現在はその定式化を行っている段階である.

試験的な試みとして, H18 年度はメソシミュレータでコロイド粒子のブラウン運動を考慮するための拡張を行った. イオンのない微粒子と溶媒だけの単純な系で計算を行い, 自己速度相関関数の計算結果を図2に示す. 短時間領域では指数関数的減衰を示し, 通常のランジュバン方程式から求まる解析的な相関関数の結果と一致している. 長時間領域ではべき則で減衰する長時間テールを示しており, これは流体を介した運動量輸送の効果に由来している  $t^{-\frac{3}{2}}$  というべき則を示している. 今回の拡張によってブラウン運動と流体力学相互作用を正確に考慮したシミュレーションを実現することができ, 両者の競合が重要な役割を果たす微粒子分散系の幅広い問題への適用が可能になった. これまでに複数の国内学会にて発表しており, 現在論文を投稿準備中である.

図2 (左) 自己速度相関関数の時間変化. 短時間領域で指数関数減衰, 長時間領域でべき的な振舞いをしてい. (右) ブラウン運動している多粒子系のスナップショット. 矢印は粒子の Brown 運動により乱れた溶媒の流速.



### 4) プラットフォーム/プロセス拠点:

材料・プロセスシミュレーションでソフトマターの挙動を正しく予測するためには, 物質固有の複雑なマイクロな自由度の情報(分子の絡み合いや配向など)をマクロな変数(応力場など)の方程式にどのように反映させるかが重要となる. 実際, マクロなレベルで方程式を解こうとすると構成方程式(流動・変形と応力との関係式)を用いる必要がある. しかし, 多種多様なソフトマター一般に有効な構成方程式は存在しないし, 現実のプロセスは非平衡状態である場合も多いために, 従来知られている構成方程式の適用はさらに困難となる. そこで, 本研究では予め構成方程式を決めておくのではなく, 構成方程式により求めていたマクロな場をマイクロな自由度を取り込んだシミュレータにより求める方法を検討している. 中でも, 本研究では高分子溶融体や液晶流体の材料成形プロセスを対象にしている. このような系では, マイクロなシミュレータとして高分子鎖のシミュレーションや液晶の配向シミュレーションが重要であり, これらのシミュレータとマクロな流動シミュレータとの接続により, 精度の高いプロセスの予測を行うことが可能となると期待できる.

本年度は初年度であり、液晶のせん断流動下での配向シミュレーションに関して検討を行った。液晶配向のシミュレーション法では、配向分布関数を解く方法と分子の運動を Langevin 方程式を用いて直接解く方法がある。後者は前者に比べ数値計算負荷が高く、シミュレーションの連携に用いるには難しい。よって、配向分布関数を用いる方法のシミュレータを作成した。今後、このシミュレータを用いて液晶の流動シミュレーションの検討を行っていく予定である。また、来年度はフィルム成形など高分子の絡み合いが深く関連したプロセスのシミュレーションに取り組む予定である。

### 3. 研究実施体制

(1)「山本」グループ(京都大学大学院工学研究科化学工学専攻)

① 研究分担グループ長：山本 量一(京都大学 助教授)

② 研究項目

- ・コロイドシミュレータの拡張
- ・分子動力学法とコロイドシミュレータの連携手法の開発
- ・高分子シミュレーションとコロイドシミュレータの連携手法の開発
- ・プロセスシミュレータとコロイドシミュレータの連携手法の開発
- ・プラットフォームへの対応
- ・プロジェクト全体の総括

(2)「泰岡」グループ(慶應義塾大学理工学部機械工学科)

① 研究分担グループ長：泰岡 颯治(慶應義塾大学 助教授)

② 研究項目

- ・高分子、コロイド高速計算分子動力学コード開発
- ・粗視化分子動力学コード開発
- ・高分子シミュレータと分子動力学法の連携手法の開発
- ・コロイドシミュレータと分子動力学法の連携手法の開発
- ・プラットフォームへの対応

(3)「増淵」グループ(京都大学化学研究所複合基盤化学研究系)

① 研究分担グループ長：増淵 雄一(京都大学 助教授)

② 研究項目

- ・分子動力学法と高分子シミュレータの連携手法の開発
- ・コロイドシミュレータと高分子シミュレータの連携手法の開発
- ・プロセスシミュレータと高分子シミュレータの連携手法の開発
- ・プラットフォームへの対応

(4)「谷口」グループ(山形大学工学部機能高分子工学科)

①研究分担グループ長：谷口 貴志(山形大学 助教授)

②研究項目

- ・メソスケール高分子シミュレータとの連携によるマクロな流動シミュレーション手法の開発
- ・分子レベルシミュレータやコロイド系シミュレータとの連携によるマクロ系(連続体レベル)シミュレーション手法の開発
- ・階層間連携を志向したシミュレーション・プラットフォームの構築に関わる概念の研究とその開発