

山本 量一

京都大学大学院工学研究科・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、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、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。

コロイド拠点では、この拠点が持つコロイド系のシミュレーション技術を基盤とし、コロイド系に有効なメソシミュレータとMD法によるマイクロシミュレータとの相互接続を行っている。局所サンプリングのアイデアに基づく計算流体力学(CFD)と分子動力学(MD)とのハイブリット手法を開発し、単純液体や複雑流体の流れの問題に応用した。全時空間をMDで行う場合に比べて数百倍程度の効率で計算を行うことができることを実証した。

分子動力学拠点では、ハードウェアとソフトウェアの両面で高速化のための開発を行っている。グラフィックカード(GPU)はもともと三次元グラフィックスを高速に描画するために進化してきたものであるが、近年汎用の計算にも使用することが出来るようになった。GPUを用いて、実用的な分子動力学シミュレーションの実行を劇的に加速することに成功している。

高分子の長時間ダイナミクスの記事には”からみあい”という概念が用いられる。高分子間の幾何的な束縛を理想化した概念であるが、マイクロな実体は明らかではなく、からみあいの定義もモデルによって様々であった。高分子拠点では、分子動力学シミュレーションにより、幾何的な束縛をからみあいとして定量化して抽出し、分子動力学シミュレーションと半経験的なモデルに基づく高分子シミュレーション技術との定量的な接続を試みている。

プロセス拠点は、マイクロな情報からマクロな現象を再現する数値計算手法を確立することを目的としている。各物質点におけるマクロな場を決定するために予め構成方程式を用意する代わりに、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。このようなシミュレーション手法では、各物質点の流動場中における履歴を正確に捉えることが重要となる。そこで、我々の拠点ではマクロな流動場中の内部自由度を有する物質点の運動を追跡する粒子描像による流体シミュレーションの開発を進めている。

2. 研究実施内容(文中にある参照番号は 4.(1)に対応する)

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。1)コロイド拠点、2)分子動力学拠点、3)高分子拠点、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 20 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)コロイド拠点:

本拠点では、メソスケールシミュレーションの拡張[2,4,7,9,17,18]に加え、新しいアイデアに基づく CFD+MD のハイブリット計算法の開発[1,5]を行った。この方法を用いて、Lennard-Jones 流体の一次元、二次元の基本的な流れを解析し、得られた結果を Navier-Stokes 方程式の結果と比較することで、我々のハイブリット計算法の妥当性について検証した[5]。とくに、CFD で計算されるスケールと CFD に連結させられた個々の MD で計算されるスケールとの比とその場合の計算精度に注目して調べた。図1は2平板間におけるポアズイユ流れの一次元計算の結果である。MD 計算では、計算される Box の長さ l_{MD} は CFD のメッシュ間隔 Δx の $1/4$ 、 $l_{MD}/\Delta x=1/4$ 、サンプリング時間 t_{MD} は CFD の時間ステップ間隔 Δt の $1/4$ 、 $t_{MD}/\Delta t=1/4$ 、に相当するスケールの計算である。即ち、我々のハイブリット法ではフル MD の場合に比べて時空間で 4×4 倍の効率の良い計算をしていることに対応する。図の実線はナビエ・ストークスの解、□印が我々のハイブリット法の結果である。図1(a)はある時刻の瞬間の流れ、図1(b)はある時間間隔で平均をとった時の流れを表す。図1(a)から、ハイブリット法の結果がナビエ・ストークスの解の周りで大きく揺らいでいる様子がみられる。これは、MD 計算に含まれるノイズが CFD レベルで拡大されて入ってくることによると考えられる。しかし、図1(b)から、そのノイズは時間平均をとることにより取り除かれることがわかる。また他の計算結果から、MD の計算スケールを大きくしていくことでノイズが小さくなることも確認された。

またハイブリット法で入ってくるノイズについて詳細に調べるために、ナビエ・ストークス方程式の応力項に揺動散逸定理を満たす白色ノイズを加えた揺らぎの流体力学(Fluctuating Hydrodynamics, FH)との比較も行った[5]。今後は、本手法を分子モデルがより複雑な場合や液体中にイオンを含む場合などの複雑流体に対して拡張していく予定である。

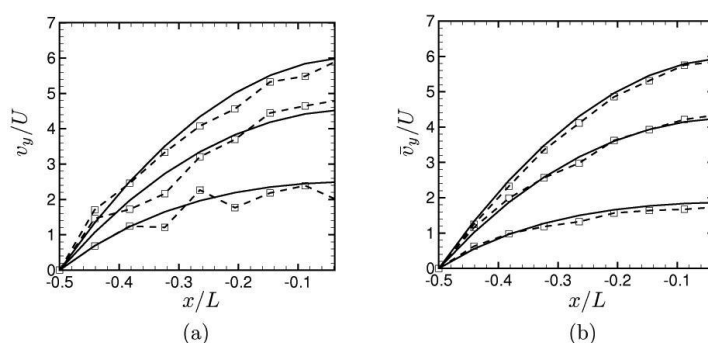


図:1 平板チャネルにおけるポアズイユ流れの時間発展を表す[5]。□はハイブリット法による結果。実線はCFDの結果。(a) CFD タイムステップで 200, 500, 1500 における瞬間の速度分布。(b) CFD タイムステップで 300 ステップの時間平均をとった結果。

2) 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、本年度は前年度に引き続き分子動力学シミュレーションの高速化について取り組んだ。近年ゲーム用途に開発された SONYPlaystation 3(PS3)や NVIDIA 社のグラフィックカード(GPU)は、ゲーム以外の汎用の機能を搭載しながら一般の CPU よりも高速なピーク速度を持つ。そこで、PS3 や GPU を用いることで並列コンピュータなしに高速な演算速度を安価に達成することを試みた。前年の Lennard Jones 粒子の分子動力学シミュレーションに引き続き、水の系やタンパク質／水の系について、PS3、GPU、MDGRAPE-3 (分子動力学専用計算機)を用いた計算速度を比較した[6]。この結果、PS3 や GPU は汎用 CPU の 10 倍の計算速度、10 倍以上の価格性能比を達成し、PS3 や GPU が今後の分子動力学シミュレーションに有効に活用出来る可能性が示された。また、高分子およびコロイドシミュレータに求められる方法を含めたより複雑な系に対しても PS3やGPUを使用するコードを開発した。

さらに、上記の他に DPD 法を用いたシミュレーションとして、ナノチューブ内に閉じこめられた界面活性剤水溶液についてバルクにはみられない新たな構造を見だし、論文として発表した[16]。また、平板間に閉じこめられた液晶に関するシミュレーションにも取り組み、システムサイズ依存性について議論し、論文として発表した[8]。

3) 高分子拠点:

プロジェクト全体の研究開発項目とロードマップに従い、本グループにおける研究計画の各項目について本年度は以下の研究を行った。1) 分子動力学法と高分子シミュレータの連携手法の開発: 本拠点独自の高分子シミュレータは半経験的な粗視化パラメータを導入することで高速計算を可能にしている。このパラメータをミクロに意味づけすることが本プロジェクトの主要な課題の一つである。そのような目的で、二様分布系で実験や他の理論モデルとの比較により、主に時間方向での粗視化について検討[10,13]、非線形流動下での挙動から非平衡状態でのモデルの妥当性を検討[15]、緩和ダイナミクスの評価法について検討[14]した。これらをふまえ、ミクロな記述をもつ分子動力学シミュレーションと、本拠点の高分子シミュレータとの接続手法を開発した。開発された手法に基づき、高分子を対象とした分子動力学計算で標準となっている Kremer-Grest モデルと本拠点のモデルとの間で時間空間のスケールファクターを検討した。ミクロな場の記述に基づく高分子用の新モデルの検討は継続して行っているが、モデル構築に必要な知見を得るために実験を実施した[11]。2) 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: 固体粒子分散系用の高分子シミュレータの開発検証を継続実施した。3) 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: 本拠点のシミュレータをプロセス拠点にインストールし、連携に必要な仕様の策定を開始した。また、プロセスシミュレーションで実際に用いられる構成方程式について、本拠点のシミュレータにより記述を検討、根本的な適用の限界を議論した[12]。4) プラットフォームへの対応: 東京大学土井正男教授による OCTA プロジェクトプラットフォームへの対応を昨年に続き実施した。また別の汎用データフォーマットである HDF の検討を開始した。

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、物質固有の複雑なミクロな自由度の情報(高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。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(流動・変形と応力の関係式)の適用は困難である。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ミクロな自由度を取り込んだシミュレータにより求め、それらと連携し合うことにより、ミクロな情報からマクロな現象を再現する数値計算手法を確立することを目的としている。

本研究では前年度から引き続き、マクロな流動場での物質点(流体粒子)の運動を追跡する「ラグランジュ粒子描像による流体シミュレーションの開発」を行い、計算手法の精度を向上させた。また本年度は、各粒子にミクロなシミュレータを組み込む連携手法の開発に着手し、計算負荷の少ないミクロなシミュレータを用いた試験的な計算において、手法の有効性を示した。来年度は、高分子拠点・コロイド拠点のシミュレータとの連携を行っていく予定である。

3. 研究実施体制

(1)「山本」グループ

①研究分担グループ長:山本 量一(京都大学大学院、教授)

②研究項目

- 1)コロイドシミュレータの拡張
- 2)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
- 3)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
- 4)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
- 5)プラットフォームへの対応
- 6)プロジェクト全体の総括

(2)「泰岡」グループ

①研究分担グループ長:泰岡 顕治(慶應義塾大学、准教授)

②研究項目

- 1)高分子、コロイド高速計算分子動力学コード開発
- 2)粗視化分子動力学コード開発
- 3)高分子シミュレータと分子動力学法の連携手法の開発
- 4)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
- 5)プラットフォームへの対応

(3)「増淵」グループ

①研究分担グループ長:増淵 雄一(京都大学、准教授)

②研究項目

- 1)分子動力学法と高分子シミュレータの連携手法の開発
- 2)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

- 3) 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
- 4) プラットフォームへの対応

(4)「谷口」グループ

①研究分担グループ長: 谷口 貴志 (山形大学大学院、准教授)

②研究項目

- 1) 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
- 2) 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
- 3) 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

4. 研究成果の発表等

(1) 論文発表 (原著論文)

- 1. Shugo Yasuda and Ryoichi Yamamoto, "Rheological properties of polymer melt between rapidly oscillating plates: an application of multiscale modeling", *Europhys. Lett.*, in press.
- 2. Takuya Iwashita, Yasuya Nakayama, and Ryoichi Yamamoto, "Velocity autocorrelation function of fluctuating particles in incompressible fluids, -Toward direct numerical simulation of particle dispersions-", *Progress of Theoretical Physics Supplement*, in press.
- 3. 坂牧隆司, 成見哲, 泰岡顕治, "グラフィックカードを用いた水表面張力の高速分子動力学シミュレーション", *情報処理学会論文誌 コンピューティングシステム*, 掲載決定.
- 4. Takuya Iwashita and Ryoichi Yamamoto, "Short-time motion of Brownian particles in a shear flow", *Phys. Rev. E* **79**, 031401 (2009).
- 5. Shugo Yasuda and Ryoichi Yamamoto, "A Model for Hybrid Simulations of Molecular Dynamics and Computational Fluid Dynamics", *Phys. Fluids* **20**, 113101 (2008).
- 6. Tetsu Narumi, Shun Kameoka, Makoto Taiji, and Kenji Yasuoka, "Accelerating Molecular Dynamics Simulation on PLAYSTATION 3 Platform using "Virtual-GRAPe" Programming Model, *SIAM Journal on Scientific Computing*, **30**, 3108-3125 (2008).
- 7. Yasuya Nakayama, Kang Kim and Ryoichi Yamamoto, "Smoothed Profile Method for Direct Simulation of Flowing (Charged) Colloids in Solvents", *AES Technical Reviews International Journal of Nano and Advanced Engineering Materials*, **1**, 21-28 (2008).
- 8. Toshiaki Mima, Tetsu Narumi, Shun Kameoka, and Kenji Yasuoka, "Cell size dependence of orientational order of uniaxial liquid", *Molecular Simulation*, **34**, 761-773(2008).
- 9. Ryoichi Yamamoto, Kang Kim, Yasuya Nakayama, Kunimasa Miyazaki, David R. Reichman, "On the Role of Hydrodynamic Interactions in Colloidal Gelation", *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**, 084804 (2008).
- 10. Yuichi Masubuchi, Giovanni Ianniruberto, Francesco Greco, and Giuseppe Marrucci, "Primitive Chain Network Simulations for Bidisperse Linear Polymers", *Int. J. Nano Adv.*

- Eng. Mat., Part A. 1(1), 35-40 (2008).
11. Quan Chen, Yumi Matsumiya, Yuichi Masubuchi, Hiroshi Watanabe, and Tadashi Inoue, "Component Dynamics in Polyisoprene/Poly(4-tert-butylstyrene) Miscible Blends," *Macromolecules*, 41, 8694-8711, (2008)
 12. Kenji Furuichi, Chisato Nonomura, Yuichi Masubuchi, Hiroshi Watanabe, Giovanni Ianniruberto, Francesco Greco, and Giuseppe Marrucci, "Entangled polymer orientation and stretch under large step shear deformations in primitive chain network simulations," *Rheologica Acta*, 47, 591-599, (2008)
 13. Yuichi Masubuchi, Hiroshi Watanabe, Giovanni Ianniruberto, Francesco Greco, and Giuseppe Marrucci, "Comparison among Slip-Link Simulations of Bidisperse Linear Polymer Melts," *Macromolecules*, 41, 8275-8280, (2008)
 14. Yuichi Masubuchi, Hiroshi Watanabe, Giovanni Ianniruberto, Francesco Greco, and Giuseppe Marrucci, "Primitive chain network simulations of conformational relaxation for individual molecules in the entangled state," *NIHON REOROI GAKKAISHI (J. Soc. Rheol. Jpn.)*, 36, 181-185, (2008)
 15. Takatoshi Yaoita, Takeharu Isaki, Yuichi Masubuchi, Hiroshi Watanabe, Giovanni Ianniruberto, Francesco Greco, and Giuseppe Marrucci, "Statics, linear, and nonlinear dynamics of entangled polystyrene melts simulated through the primitive chain network model," *J Chem Phys*, 128, 154901 (2008)
 16. Noriyoshi Arai, Kenji Yasuoka, X. C. Zeng, "Self-Assembly of Surfactants and Polymorphic Transition in Nanotubes", *J. Am. Chem. Soc.*, **130**, 7916-7920 (2008).
 17. Yasuya Nakayama, Kang Kim and Ryoichi Yamamoto, "Simulating (electro) hydrodynamic effects in colloidal dispersions: smoothed profile method", *Eur. Phys. J. E*, **26**, 361-368 (2008).
 18. Takuya Iwashita, Yasuya Nakayama, and Ryoichi Yamamoto, "A numerical model for Brownian particles fluctuating in incompressible fluids", *J. Phys. Soc. Jpn.*, **77**, 074007, (2008).

(2) 特許出願

平成 20 年度 国内特許出願件数 : 0 件 (CREST 研究期間累積件数 : 0 件)