

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

1) 分子動力学拠点、2) 高分子拠点、3) コロイド拠点、4) 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と、それを用いたソフトマターの基礎研究を主な研究内容としている。

1) コロイド拠点

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分子動力学法によるミ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ィアに基づく計算流体力学(CFD)と分子動力学(MD)との連結計算法を開発し、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。また、この技術を用い高分子液体の非線形レオロジー解析及び熱流動挙動の解析を行った。

2) 分子動力学拠点

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3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。

3) 高分子拠点

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、ミ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。我々は、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。

4) プロセス拠点

本拠点では、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。このようなシミュレーション手法では、「各物質点がどのような場の中で時間発展を続けてきたか」という履歴を正確に捉えることが重要となる。そこで、我々のプロセス拠点ではマクロな流動場での物質点(内部自由度を有する流体粒子)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(京都大学大学院工学研究科、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

① 研究分担グループ長: 泰岡 顕治(慶應義塾大学理工学部機械工学科、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)「増渕」グループ

① 研究分担グループ長: 増渕 雄一(京都大学化学研究所複合基盤化学研究系、准教授)

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

① 研究分担グループ長: 谷口 貴志 (京都大学大学院工学研究科、准教授)

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

§3. 研究実施内容

(文中に番号がある場合は(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、ミクロ階層(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22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:

メソスケールコロイドシミュレーション法の拡張[4, 5, 11, 12]とMD/CFDの連結計算法の開発を行った。後者では、本年度はMD/CFD連結計算法を応用し高速振動平板間にある高分子液体について、平板の振動数を様々に変化させたときの高分子液体の流動挙動の変化、及びその非一様な流動場における高分子液体の複雑な力学特性の変化について詳細な解析を行った。図1はその解析を行った系の概略を表す。図2は平板振動数を変えたときの流速分布の変化を表す。振動数が大きいほど平板近傍で速度分布が急速に変化しているのが分かる。図3は高分子液体の様々な振動数(横軸)と局所歪速度(縦軸)に対する局所的な力学特性(損失正弦 $\tan\delta = G''/G'$ 、 G' は弾性、 G'' は粘性を表す。)の変化を示す。振動板に近いほど歪速度は大きくなるので図の上方は平板近傍を下方は平板遠方の領域に対応する。振動数が大きい場合には高分子液体は平板近傍で粘性的に、平板遠方で弾性的にその力学特性を大きく変化させていることが分かる。図4に振動数 ω_0 が大きい場合の振動平板近傍での歪 γ -歪速度 $\dot{\gamma}$ -応力 σ_{xy} の3次元リサージュ曲線を示す。線形応答でみられる純粋な楕円形とはかなり異なっており、高速振動板近傍においては振動数 ω_0 の高調波成分の影響(非線形効果)が強く表れることが分かる。特に歪速度 $\dot{\gamma}$ -応力 σ_{xy} 曲線では2次ループが生じているのが見える。これらの成果をまとめた論文は、現在投稿中である。

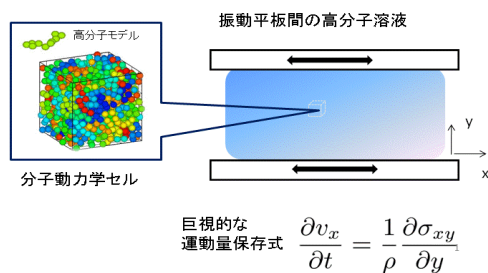


図1. 系の概略図。平板間の高分子液体のマクロな流速についてはCFDで計算するが、応力については構成方程式は用いず、CFDの計算格子に貼り付けたMDセルによって流動場に応じた局所応力をサンプリングする。(局所サンプリング法)

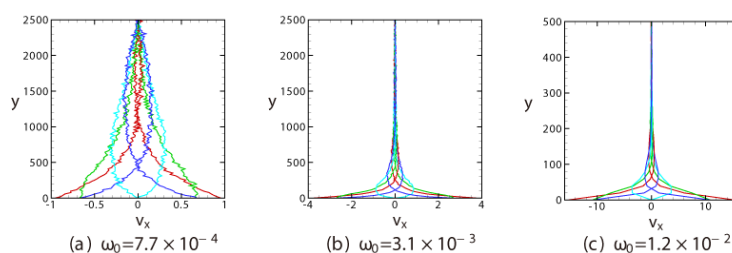


図2. 平板振動数 ω_0 を変えたときの流速分布。図の各線は異なる時間での流速分布を表す。

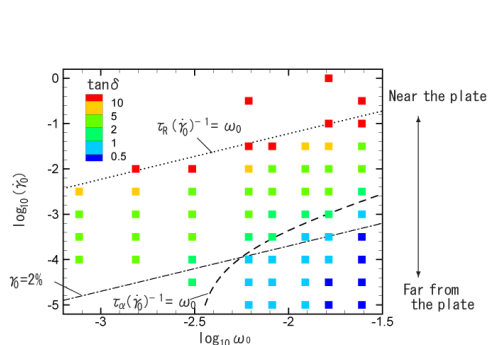


図3. 高分子溶液の局所力学特性の変化。 $\tan \delta = G''/G'$ は弾性(G')と粘性(G'')の比を表す。

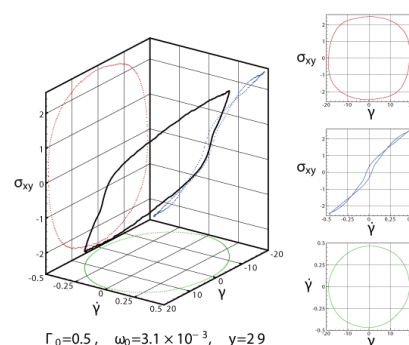


図4. 高速振動板近傍での3次元リサージュ曲線とその2次元平面への射影。

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、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。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ので、GPUを用いることで高速な演算速度を安価に達成することを試みた。昨年度は、クーロン力などの長距離力をマルチポールに展開して拘束に計算する方法であるFMMをGPU上で計算することでゴードン・ベル賞を受賞したが、本年はそこで開発したコードをより使いやすくするための開発を重点的に行った。具体的には分子動力学シミュレーションのコードからサブルーチンを呼ぶことでFMM+GPUを使用できるようにした。このコードはMPIを使用して複数のノード(GPU)に対応しているものとなっている。また、水の系やタンパク質/水の系について、タンパク質用の汎用コードであるCHARMM上や他のコード[9]でGPUを用いて計算するコードの開発にも取り組んだ。さら

に、GPU を用いて境界要素法等の計算の高速化も行った[8]。液晶のシミュレーションについても、原子レベルのシミュレーションと粗視化分子動力学シミュレーションを連結させ高速化計算を実現した。

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 H22 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: 分子動力学計算における構造と高分子シミュレータで実現される構造との整合性を定量的に確認し、構造上の接続因子を確定させた[2]。関連して、高分子シミュレータにおける大変形下での構造変化が非線形粘弾性に及ぼす効果を報告した[1]。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: 開発中の固体粒子分散系用の高分子シミュレータについて検討を進めた。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: 前年度に引き続き谷口グループとの連携により相互接続理論の検討を行った。4) プラットフォームへの対応: プラットフォーム設計のための議論を他拠点と継続した。

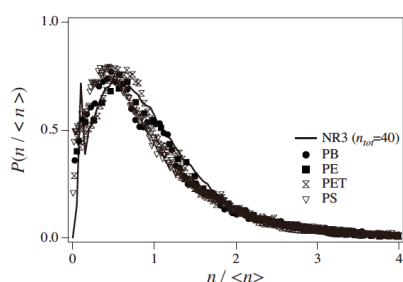


図5 高分子のからみあい点間に含まれる繰り返し単位数 n の分布。NR3 が高分子シミュレータの結果。PB, PE, PET, PS は各合成高分子に対する原子レベルでの計算に対する結果。

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(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。

流体要素を高分子シミュレータにより構成し、マクロな流動を粒子描像によって記述する、マルチスケール高分子流動シミュレーションを開発し[3]、それを用いて、空間に固定されたシリンダー状の物体周りの高分子流体の流れを解析した。高分子の形態変形はある特徴的な時間スケール(緩和時間)で起こるために、ある時刻の分子の形態は緩和時間程度過去のせん断流動場からの履歴の影響を受ける。シリンダー状物体の周囲を高分子流体が通り過ぎる際、上流側と下流側でたとえ同じせん断流動場下にあったとしても上流と下流では分子の形態は全く異なる。それは、上流側ではシリンダーの存在しないせん断流動場からの履歴の影響を受けているのに対し、下流側

ではシリンダーの存在により影響を受けたせん断流動場の履歴の影響を受けるためである。上流側・下流側で高分子は異なる分子形態をとる為、その形態を反映し応力場は上流側・下流側で全く異なる振る舞いを示す。そのためシリンダーに対して上流側と下流側で対称なせん断流動場下にある高分子流体は非対称な応力場を示す。下図はその様子を示す。この非対称な応力場は緩和時間程度過去からの流動履歴の影響を受けるために現れる。我々の開発した計算手法はこのような流動履歴の影響を受ける流体に対して有効であり、本研究ではその有効性を実証した。来年度は、高分子拠点(増渕G)で開発されたGPU用の高速な高分子シミュレータをマルチスケールシミュレーションに接続することにより、より規模の大きな計算への応用(例えば、より精度の高い計算、複雑な境界条件の問題、3次元の系への応用)を行っていく。

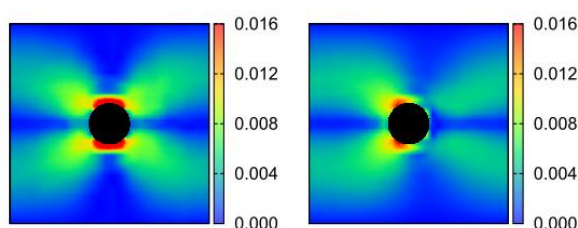


図6 左：せん断場。右：応力場。
せん断場がほぼ対称なのに対し
応力場が非対称になるのは流動
履歴の影響を反映しているため。

§4. 成果発表等

(4-1) 原著論文発表

●論文詳細情報

1. Kenji Furuichi, Chisato Nonomura, Yuichi Masubuchi and Hiroshi Watanabe, "Chain contraction and nonlinear stress damping in primitive chain network simulations", J Chem Phys, 133, [174902]1-10 (2010).
[DOI: 10.1063/1.3502681]
2. Yuichi Masubuchi, Takashi Uneyama, Hiroshi Watanabe, Giovanni Ianniruberto, Francesci Greco, and Giuseppe Marrucci, "Structure of entangled polymer network from primitive chain network simulations", J. Chem. Phys. 132, [134902]1 - 8 (2010).
[DOI: 10.1063/1.3370346]
3. Takahiro Murashima, Takashi Taniguchi, "Multiscale Lagrangian Fluid Dynamics Simulation for Polymeric Fluid", J. Polym. Sci. B, 48, 886-893 (2010).
[DOI: 10.1002/polb.21975]
4. Hideki Kobayashi and Ryoichi Yamamoto, "Tumbling motion of a single chain in shear flow: a crossover from Brownian to non-Brownian behavior", Phys.Rev.E, 81, 041807 (2010).

- [DOI: 10.1103/PhysRevE.81.041807]
5. Takuya Iwashita, Takuya Kumagai and Ryoichi Yamamoto, "A direct numerical simulation method for complex modulus of particle dispersions", *Eur. Phys. J. E*, 32, 357-363 (2010).
[DOI: 10.1140/epje/i2010-10638-7]
 6. Hideyuki Mizuno and Ryoichi Yamamoto, "Lifetime of dynamical heterogeneity in a highly supercooled liquid", *Phys. Rev. E*, 82, 030501(R) (2010).
[DOI: 10.1103/PhysRevE.82.030501]
 7. N. Arai, K. Yasuoka, T. Koishi, and T. Ebisuzaki, "Asymmetric Brownian motor driven by bubble formation in a hydrophobic channel", *ACS Nano*, 4, 5905(2010).
[DOI : 10.1021/nn101855d]
 8. T. Narumi, K. Yasuoka, M. Taiji, F. Zerbetto, and S. Hoefinger, "Fast Calculation of Electrostatic Potentials on the GPU or the ASIC MD-GRAPE-3", *Computer Journal*, (2010) on line.
[DOI : 10.1093/comjnl/bxq079]
 9. H. J. Myung, R. Sakamaki, K. J. Oh, T. Narumi, K. Yasuoka, and S. Lee, "Accelerating molecular dynamics simulation using graphics processing unit", *Bulletin of the Korean Chemical Society*, 31, 3639(2010).
[DOI: 10.5012/bkcs.2010.31.12.3639]
 10. K. Takahashi, T. Narumi, and K. Yasuoka, "Cutoff radius effect of isotropic periodic sum method in homogeneous system. II . Water", *J. Chem. Phys.*, 133, 014109(2010).
[DOI : 10.1063/1.3462241]
 11. Saeed Jafari, Ryoichi Yamamoto, and Mohamad Rahnema "Lattice-Boltzmann method combined with smoothed-profile method for particulate suspensions", *Phys. Rev. E*, 83, 026702 (2011).
[DOI:10.1103/PhysRevE.83.026702]
 12. H. Kobayashi and R. Yamamoto, "Implementation of Lees-Edwards periodic boundary conditions for direct numerical simulations of particle dispersions under shear flow", *J. Chem. Phys.*, 134, 064110 (2011).
[DOI: 10.1063/1.3537974]
 13. R. Sakamaki, A. K. Sum, T. Narumi, and K. Yasuoka, "Molecular dynamics simulations of vapor/liquid coexistence using the nonpolarizable water models ", *J. Chem. Phys.*, 134, 124708 (2011).
[DOI : 10.1063/1.3574038]
 14. K. Takahashi, T. Narumi, and K. Yasuoka, "Cutoff radius effect of the isotropic

- periodic sum method for polar molecules in a bulk1 water system", *Molec. Simul.*,
(in print).
15. K. Z. Takahashi, T. Narumi, and K. Yasuoka, "Cutoff radius effect of the isotropic periodic sum and Wolf method in liquid-vapor interfaces of water", *J. Chem. Phys.*
(in print).
 16. T. Narumi, T. Hamada, K. Nitadori, R. Sakamaki, and K. Yasuoka, "Fast Quasi Double-Precision Method with Single-Precision Hardware to Accelerate Scientific Applications", *Int. J. Comp. Methods*
(in print).