

「ソフトマター材料の複雑挙動に対する超並列多階層シミュレーション」
兵庫県立大学大学院シミュレーション学研究科 安田 修悟

1 研究の背景と目的

ソフトマターとは柔らかくて変形しやすい物質を総称する言葉であり、例えば高分子、コロイド、液晶、エマルジョンなどが挙げられる。ソフトマターは我々の身近な生活に欠かせない多くの製品や食品に含まれている。また、近年のナノテクノロジーの発展によって医療や電子機器などにおいて様々なソフトマターを利用した新奇機能性材料が開発されており、ソフトマターは機能性材料の宝庫としても注目されている。

通常、流体シミュレーション (CFD) では、流体の移動現象を密度、温度、流速などの巨視的変数の“連続体”として記述し、その巨視的変数に対する連立偏微分方程式を数値計算することによって実行される。即ち、その基礎となる連続体近似においては、流体を構成する分子の運動にまで立ち返って考慮することはない。これは、ミクロな分子の運動と巨視的な流動現象との階層間の関係性を完全に切り離して扱うことができるという物理的な仮定に基づいており、実際に、通常の流体 (単純流体) に対しては広く成り立つことが知られている。しかしながら、単純流体とは異なり、ソフトマターではバルクを構成する分子が緩和時間の長く、長距離相関を有する協調運動を行う。その結果、分子レベルの運動の時空間スケールが、巨視的な流動におけるそれと同程度になり、分子の運動と巨視的な流動が互いに強く相関した複雑な現象があらわれるようになる。このため、ソフトマターの複雑な流動現象をシミュレーションするためには、連続体近似に基づく CFD 法をそのまま適用することはできない。

一方、ミクロな視点から物質を構成する分子をモデル化し、その個々の分子の運動を追跡する分子動力学法 (MD) では、原理的にはソフトマターの複雑な流動現象をシミュレーションすることは可能である。しかし、MD では物質を構成する全ての分子の運動を追跡する必要があるため、計算時間が膨大となるという問題がある。実際に、現在の世界最先端の計算機を占有したとしてもソフトマターの巨視的な流動現象を再現するためには数十年はかかる見込みである。

著者らは近年、ソフトマターの複雑流動シミュレーションにおける上述の問題を解決するための新しいシミュレーション技術として MD と CFD の相互接続によるマルチスケールシミュレーション法の開発を行い、いくつかの具体的な問題に対して高分子液体の粘弾性挙動の解析を行った。これまでに開発した手法ではその適用が流体の温度場が一様な場合に制限されており、高分子成型加工プロセスや摩擦潤滑など流動に伴う熱の移動が重要になる問題には応用することができない。そこで本研究では、これまで等温場の流動に対して開発された同手法を温度場が非一様な場合にも適用できるように拡張を行い、熱の移動が重要となる基礎的な問題に対して高分子液体の熱流動解析を行う。

2 研究方法・研究内容

著者らが開発したマルチスケールシミュレーション法では、流体のマクロな流動は CFD を用いて計算するが、CFD 計算において必要とされる各時間ステップにおける局所応力については、予め定義される構成方程式 (応力テンソルと速度勾配テンソルの関係のモデル) を用いることなく、CFD 計算の各タイムステップ毎にそれぞれの格子点上に関係づけられた MD セルにおいて、その瞬間の各格子点上での局所流速場に応じた応力を直接 MD 計算によって求め、それを次の時間ステップの CFD 計算に用いる。この方

法を用いることで、構成関係が非常に複雑で適切な構成方程式が分かっていない複雑流体に対してもその流動をシミュレーションすることが可能となる。さらに大規模計算に関する特筆すべき点として、このマルチスケールシミュレーションはスーパーコンピュータ等に代表されるような超並列計算機との親和性が非常に高い点が挙げられる。これは CFD 計算の各格子点上におかれた MD セルがそれぞれの場所での局所応力を計算する際に、多数の MD セルが同時に独立に計算を行うことができることによる。

本研究においては、これまでに開発されたマルチスケール法を温度場が非一様な場合に適用できるように拡張することを最大の目的とする。これまでのマルチスケール法では、温度場は一様一定であると仮定して MD セルでは温度一定の制御を課して MD シミュレーションを行ってきた。即ち、流体と境界壁との間での熱伝導や流体内部でのせん断流などによる粘性発熱の効果を無視している。マルチスケール法の工学や医療などの分野への実用を見据えた時、この非一様な温度場への拡張は重要な課題である。例えば、潤滑剤として利用されるソフトマターに対しては、その摩擦特性と同様に発熱特性も重要な性能評価のポイントとなり、発熱挙動を解析・予測することのできるシミュレーションが重要となる。

ソフトマターの発熱のメカニズムもまた単純液体とは異なり複雑である。これは、ソフトマターの内部のエネルギー状態が、密度や温度などの巨視的変数によるだけでなく、むしろ物質を構成する分子（高分子）の構造・形態に強く依存していることによる。このことはまた、ソフトマターのエネルギー変化に対しては巨視的変数による連続体近似が難しいことを意味している。先に述べたように、本研究で開発するマルチスケール法では、流体の局所的な応力を MD 計算によって求める。一方で、巨視的な運動量の保存は CFD レベルで満たされるようになっている。この考え方を温度場（エネルギー保存）の計算にも拡張する。即ち、流体の局所的な温度（発熱）については CFD の各格子点に関係づけられた MD セルによって計算する。一方、それぞれの MD セルの内部エネルギーは巨視的なエネルギー保存を満たされるようにエネルギー輸送方程式によって CFD 計算の各タイムステップにおいて適切に補正される。即ち、以上をまとめると、本マルチスケール法では、多数の微小な MD セルを空間中に分散する各流体要素に張り付けておき、そこで流体の局所的な応力と発熱を計算する。一方、各 MD セルではそれぞれ独立に応力と発熱が計算されるが、ある一定の時間ステップで巨視的な運動量輸送とエネルギー輸送が満たされるように、適切に流動と内部エネルギーが補正（同期）される。このマルチスケールシミュレーション法を用いることにより、流動と発熱と応力の複雑な構成関係を予めモデル化することなく、ソフトマターの複雑な熱流動を直接解析することが可能となる。

本研究では、上述のアイディアに基づいて具体的にマルチスケール法を開発し、高分子液体の摩擦潤滑の問題に適用した。以下ではその成果の概要を記述する。

3 研究成果

図 1 にシミュレーションした系の概略を示す。2 平板間にある高分子液体は密度が高く温度が低く設定されており過冷却状態にある。2 平板の温度は低温で一定 $T_0 = 0.2$ (以下、全ての物理量は Lenard-Jones 単位であらわされる) に保たれており初期の高分子液体の温度と同じである。ある時刻から上下 2 枚の平板に一定のせん断応力 σ_0 を加える。平板はそれぞれ水平に逆方向に動き始め、それに伴い高分子液体にはせん断流が駆動される。シミュレーションした系は単純であるが、高分子液体は単純な流体と異なり、せん断流によって誘起された温度場ともカップリングして複雑な粘弾性挙動を示す。高分子液体はビーズ

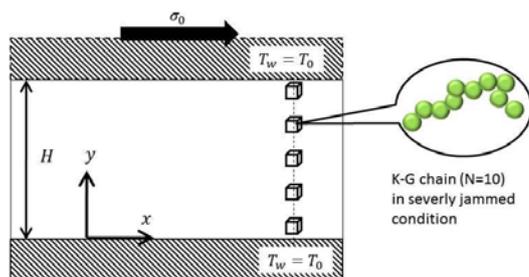


図1: 問題の概略

を10個だけつなげた短いKremer-Grestの高分子鎖モデルで構成される。巨視的な物理量は平板に沿う方向には一様一定であると仮定し、平板に垂直な方向(y方向)の運動量とエネルギーの輸送を考える。また、高分子液体の平板上での温度と速度は平板のそれと一致する速度のすべりと温度の跳びなしの境界条件を考える。

問題を解析するにあたり鍵となるパラメータは、エネルギー輸送における粘性発熱と熱伝達の影響の比をあらゆる無次元量である。以下では、高分子液体の粘度を十分に变化させるのに必要な温度上昇に対する熱伝達と局所的なせん断歪速度によって生じる粘性発熱の比によって定義されるNahme-Griffith数(Na)を考える。Na数はせん断速度が大きく粘性発熱が熱伝達の影響を上回る場合に1を超える値をとる。

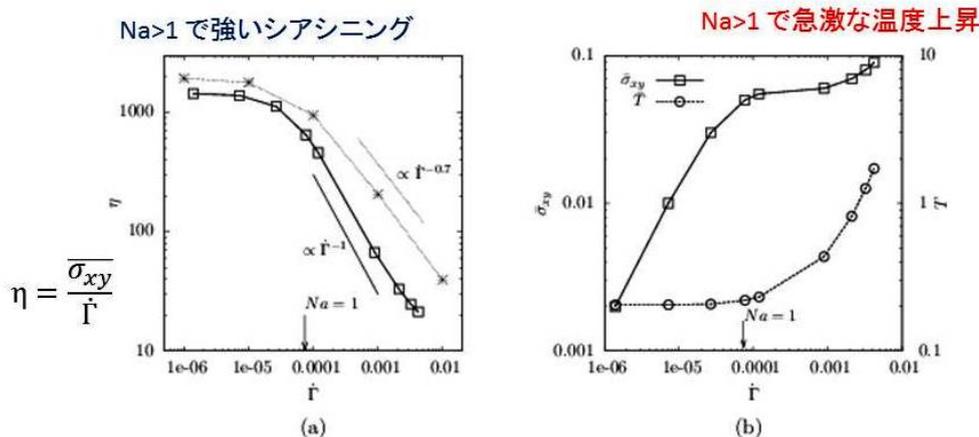


図2: せん断速度 vs. みかけの粘度(a)、せん断速度 vs. せん断応力と温度の空間平均。(a)における“*”は温度一定の非平衡MDの結果。

図2に系全体での歪速度($\dot{\Gamma} = v_w/H$)に対する系のみかけの粘度 η 、せん断応力 σ_{xy} 、温度 T 、配向テンソル $Q_{\alpha\beta}$ の空間平均の結果をあらわす。ここで上付きの $\bar{}$ は空間平均を表す。(a)の“*”は温度一定の非平衡MDで粘度を計算した結果をあらわす。流動による発熱を考慮したことで系の力学特性(レオロジー特性)が大きく変化したことがわかる。特に、 $Na > 1$ では、せん断の増加に伴う粘性の低下(シアニング)が大きく、およそ $\dot{\Gamma}$ の逆数に比例することが分かる。一方、温度の変化(b)を見てみると、 $Na > 1$ で急激な温度上昇が起こるのがわかる。即ち、 $Na > 1$ での急激なシアニングは温度上昇とカップリングして起こった現象であると言える。

図3に $\dot{\Gamma}$ に対する高分子鎖の配向テンソル $Q_{\alpha\beta}$ の変化を示す。歪速度に対して高分子鎖の配向テンソルが非単調に振舞うことがわかる。 $Na < 1$ では、高分子鎖は歪速度の上昇と共に流れの方向に傾き引き伸ばされて行く。一方、 $Na > 1$ では、せん断速度の上昇と共に再び元のランダムな配向へと変化する。この配向テンソルの転移的な振舞いも温度上昇によって説明される。即ち、 $Na < 1$ では配向テンソルは流れ場によって支配されるが、 $Na > 1$ で急激な温度上昇が始まると高分子鎖は温度上昇によって熱運動が活発となり配向テンソルは元のランダム状態へと変化する。

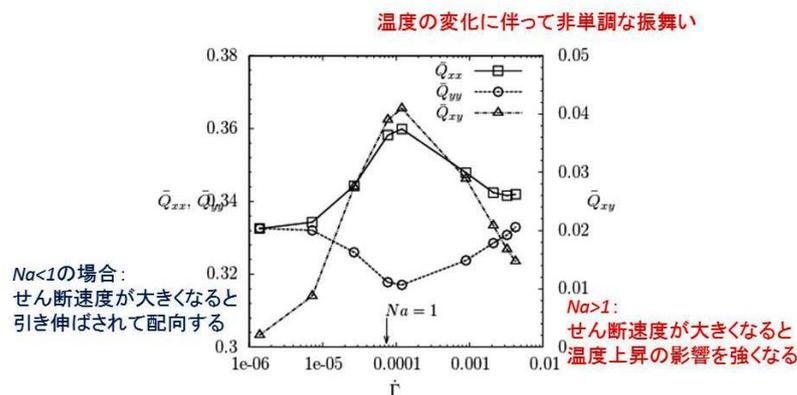


図3: 系の歪速度 $\dot{\gamma}$ vs. 配向テンソル $Q_{\alpha\beta}$ の空間平均。

このような歪速度と温度変化のカップリングによってもたらされる高分子液体の力学特性や配向テンソルの変化は、本研究によって開発されたマルチスケール法によってはじめて明らかにされる結果であり、本研究の重要な成果である。また、本報告書では紙面の都合上割愛するが、高分子液体の光学—応力特性という観点からも非常に興味深い転移現象が起こることも明らかにされている。これらの研究成果についてはアメリカ物理学会の March Meeting など、いくつかの国際会議において発表し、また参考文献で示す 2 編の学術論文誌に現在投稿中である。

4 生活や産業への貢献および波及効果

ソフトマターは様々な身近な製品や最先端の機能性材料に利用されており、我々のライフスタイルの成り立ちにも深くかかわる重要な材料である。ソフトマターの振舞いを正確に予測することのできるシミュレーション技術を開発することは製品の製造プロセスの効率化や新奇の機能性材料の開発につながると期待される。また本研究で開発する超並列多階層シミュレーションは、スーパーコンピュータ京に代表されるような膨大な数の演算コアを高速ネットワークで繋いだ超並列計算機への親和性が非常に高く、近年のハイパフォーマンスコンピューティングで要請される重要な特徴を持つ。本研究で開発するシミュレーション技術はソフトマターの分野に留まらず、計算科学の様々な分野への波及が期待される新しい基盤技術の開発としての重要な意義を持つ。

参考文献

1. S. Yasuda and R. Yamamoto, “Multiscale simulation for thermo-hydrodynamic lubrication of a polymeric liquid between parallel plates”, (submitted to *Molecular Simulation*).
2. S. Yasuda and R. Yamamoto, “Synchronized molecular dynamics simulation via macroscopic heat and momentum transfer: an application to polymer lubrication”, (submitted to *Physical Review X*).