兵庫県立大学

データ計算科学連携センター

2023年度 利用報告書集

Annual Report
Center for Cooperative Work on
Data science and Computational science
April 2023 - March 2024

兵庫県立大学

University of Hyogo

分子シミュレーションによるPHBHの結晶化に関する研究

小田 望[A], 岡本隆一[B]
株式会社カネカ Material Solutions New Research Engine Planning Team[A]
兵庫県立大学大学院情報科学研究科[B]
（世話人：鷲津 仁志 教授）

生分解性ポリマーとして知られているPHBH(3-ヒドロキシブチレート-co-3-ヒドロキシヘキサノエート重合体)は昨今盛んに研究されているが、その結晶化機構の詳細については解明されていない。本研究ではPHBHの結晶を構成するPHB(Polyhydroxybutyrate)の結晶化過程について分子動力学シミュレーションを用いた解析を行い、結晶化における重要因子を特定することを目的とする。

本研究では、様々な環境下におけるPHBの各コンフォーメーションについて議論するために、GROMACSを用いた全原子分子動力学シミュレーションを実施した。具体的には、Accelerated Weight Histogram method (AWH法）を用いて様々な環境におけるPHBの各コンフォーメーションに対する平均力ポテンシャル（Potential of Mean Force, PMF）を作成した。得られたPMFから、結晶構造に対応するコンフォーメーションの安定性やコンフォーメーション間の活性化エネルギーの大きさなどを評価し、結晶化過程などについて考察した。

今後は、PHBの結晶構造である2回らせん構造の形成などに注目し、さらなる結晶化過程の考察などを行う予定である。

学会発表

小田望，岡本隆一，鷲津仁志，”分子シミュレーションによる PHB の結晶化に関する研究”，
2023 年度高分子基礎物性研究会・高分子計算機科学研究会 合同討論会，三重大学，12/21（2023）．[ポスター発表]

油中における粘度調整剤挙動のシミュレーション解析による解明

山本 周平，遠藤 聡太，小林 直樹，
岡本 隆一[A]，ハージュー コーサー[A]，鷲津 仁志[A]
三井化学株式会社，兵庫県立大学大学院情報科学研究科[A]
（世話人：兵庫県立大学大学院情報科学研究科　鷲津 仁志 教授）

地球温暖化防止のため，自動車や建設機械をはじめとする産業機械では CO_2 排出量の低減を目的にエネルギー効率の向上が一層強く求められており，潤滑油による省燃費化は重要な技術として期待されている．近年，液状オレフィンコポリマーを粘度調整剤とした作動油が，循環を妨げる副次流の発生が少なくエネルギー効率で優位に作用することが報告[1),2)]されている．同現象のメカニズム解明として，粘度調整剤が及ぼす流体への影響に着目し，これまでに分子動力学（MD）シミュレーションやマルチフィジックス・シミュレーションを用いて液状オレフィンコポリマーとポリメタクリレート挙動解析を進め，極性の有無によって流体中での挙動に大きな差異が生じることを明らかとしてきた[3)-5)]．本研究では，実際に使用されている作動油を模した，基油及び粘度調整剤ポリマー，金属壁面からなる約 40 万原子系大規模界面モデルで，粘度調整剤ポリマーの極性差異が金属壁面吸着挙動へ及ぼす影響を検討した[6)]．

基油分子及び粘度調整剤ポリマーからなる溶液層が 2 枚の金属壁面に挟まれた界面モデルを構築し（Fig. 1(a), (b)），粘度調整剤ポリマーの油中挙動の全原子分子動力学シミュレーションを実施した．セルサイズは 8.19×9.83×64.0 nm, 全原子数は約 42 万原子である．基油分子は 3,5-diethyl-dodecane（DED, Fig. 1(c)），粘度調整剤ポリマーは液状オレフィンコポリマーであるエチレン-プロピレン共重合体（L-OCP, Fig. 1(d)）及びメタクリル酸メチル-メタクリル酸トリデシル共重合体（PMA, Fig. 1(e)）でモデリングした．L-OCP，PMA の重合度はそれぞれ n=28, 19 とし，基油分子中に 1 分子を配置し希薄溶液を再現した．分子動力学シミュレーションには LAMMPS（Large-Scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator）を用いた．

解析の結果，L-OCP は金属壁面に吸着せず油中を拡散したのみであった一方で，PMA は金属壁面へ向かって油中を移動し吸着挙動を示すことを確認した（Fig.2)．本研究によって粘度調整剤ポリマーの極性が金属壁面吸着挙動に及ぼす影響が明らかとなり，潤滑油省燃費技術における粘度調整剤ポリマー設計の新たな知見が得られた．

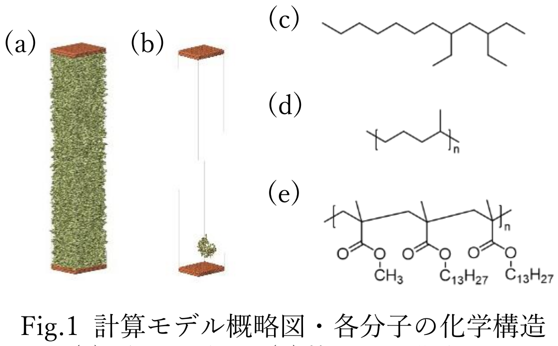


Fig.1 計算モデル概略図・各分子の化学構造
(a) 全原子表示, (b)基油分子非表示,
(c) DED, (d) L-OCP, (e) PMA

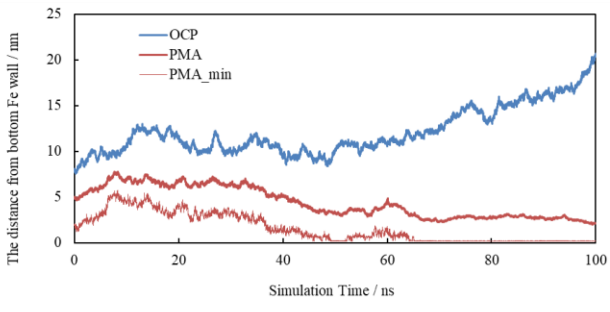


Fig. 2 金属壁面-粘度調整剤ポリマー距離の経時変化

文献

1） M. Moon: Lubes ‘n’ Greases, 25 (No. 10), 20, 34 (2019).

2） I.K. Karathanassis, et al.: J. Nonnewton. Fluid Mech. 275, 104221 (2020).

3） 山本・遠藤・神尾・石井・Deboprasad・Khajeh・沢井・河北・富山・鷲津,：油中における粘度調整剤挙動のシミュレーション解析による解明，兵庫県立大学データ計算科学連携センター2021 年度利用報告書集，14-16.

4） 山本・遠藤・神尾・尾嶋・石井・Khajeh・富山・鷲津,：油中における粘度調整剤挙動のシミュレーション解析による解明，兵庫県立大学データ計算科学連携センター2022 年度利用報告書集，2-4.

5） K. Khajeh, D. Talukdar, S. Yamamoto, S. Endo, K. Kamio, H. Washizu, "A Comparative study of polymer viscosity modifiers: Flow field challenges & alternative trends", J. Mol. Liq. 393, 123590 (2024).

6） 山本：油中の粘度調整剤ポリマーに関する分子動力学シミュレーション，HPCI システム利用研究課題利用報告書，「富岳」産業課題，hp220119.

論文

K. Khajeh, D. Talukdar, S. Yamamoto, S. Endo, K. Kamio, H. Washizu, "A Comparative study of polymer viscosity modifiers: Flow field challenges & alternative trends", J. Mol. Liq. 393, 123590 (2024).

学会発表

S. Yamamoto, K. Kamio, S. Endo, H. Oshima, K. Khajeh, E. Tomiyama, H. Washizu, "Analysis of the Viscosity Modifiers' Behavior in Hydraulic Fluid by Means of Simulation", 9th International Tribology Conference (ITC), Fukuoka 2023, 29-F-07, Fukuoka, Japan (2023.09.29). [口頭発表]

遠藤 聡太，山本 周平，神尾 和教，鷲津 仁志，（小林 直樹，岡本 隆一），“油中の粘度調整剤ポリマーに関する分子動力学シミュレーション”，第 10 回「富岳」を中核とする HPCI システム利用研究課題 成果報告会，hp220119 (2023.10.25-26)．[ポスター発表]

SCALE-SDM による PI Chamber 再現数値実験サポート

高橋 伸吉
東京コンピュータサービス株式会社 神戸支店 システム部
（世話人：島 伸一郎 准教授）

2023 年度は島准教授からの業務委託が無かったため、スパコンの利用実績はありませんでした。

基板表面へのモノオレイルリン酸エステルとジオレイルリン酸エステルの吸着と凝集過程の計算

濱野　藍，甲嶋　宏明[A]
出光興産株式会社[A]
（世話人：鷲津仁志教授）

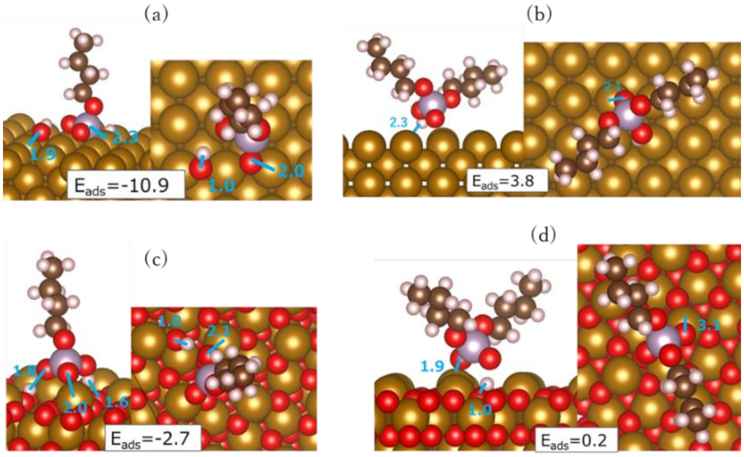
【背景・目的】

リン酸エステルは耐摩耗剤の代表的化合物であり，金属表面に吸着し化学反応により皮膜を形成して表面を保護すると考えられている。リン酸エステルには複数のエステル種が存在し通常は混合物として用いられているが，各エステル単体に関する知見は少なく，その基礎データを収集することは潤滑油開発に有用である。本研究では，モノオレイルリン酸エステル，ジオレイルリン酸エステルそれぞれで第一原理計算及び分子動力学法を用いて，基板表面に対する吸着エネルギーや凝集過程を算出し，反応膜形成段階における初期状態の差異を明らかにした。

【結果・考察】

Vienna ab-initio simulation package（VASP）で(1)式により摺動で露わになった鉄新生面を模した Fe(100)，酸化被膜に覆われた状態である Fe_2O_3(001)に対するモノブチルリン酸，ジブチルリン酸の吸着エネルギーを算出した。

$$E_{ads} = E_{slab+molecule} - E_{slab} - E_{molecule} \quad \cdots \quad (1)$$



モノブチルリン酸はジブチルリン酸と比較して基板に強く吸着し，特に Fe(100)に吸着した場合にはリン酸エステル部が鉄と反応し，C-O が解離して亜リン酸エステルになっていることが確認された。

また，Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator(LAMMPS)で添加剤（モノオレイルリン酸/ジオレイルリン酸）10 分子，基油 65 分子を Fe_2O_3 スラブで挟み込み，密度平衡化を実施した後，-z 軸方向の力を加え圧縮した結果，モノオレイルリン酸のほうが基板表面近傍に凝集する割合が高いことが示された。

論文

Hiroaki Koshima, Ai Hamano, Hiroshi Tokairin, Yuko Murakami, Hitoshi Washizu, ” Experimental and Theoretical Study on Tribological Characteristics of Organophosphate on Metal Surface”, **Tribology Online,** 19,11-22(2024).

プラズマ物理に関するシミュレーションの共同研究

西村 征也
量子科学技術研究開発機構 那珂研究所
（世話人：沼田 龍介）

1. 研究概要

天体近傍の宇宙空間や磁場閉じ込め装置においては、高温プラズマが背景磁場に磁化された状態にある。このような磁化プラズマにおいては、磁気流体力学的不安定性が発生する。本研究課題においては、(1)地磁気の磁力線に沿った非一様性がオーロラの構造形成の原因となるフィードバック不安定性に与える影響の解析、(2)トカマクプラズマにおけるバルーニングモード乱流の非線形発展の解析、の 2 つに取り組んだ。以下に、それぞれの研究に関する成果を報告する。

2. フィードバック不安定性に関する研究成果

電離圏におけるプラズマの揺らぎと磁気圏におけるアルフベン波が共鳴・増幅する現象をフィードバック不安定性と呼び、オーロラの構造形成を説明する理論である。近年の研究においては、磁気圏における運動論的効果の重要性が指摘されており、速度空間の密度分布関数の発展を記述するジャイロ運動論モデルを用いた解析が必要である。双極子磁場などの非一様性のある地磁気モデルに対してジャイロ運動論モデルを適用してフィードバック不安定性の解析を行なった例はないため、これまでの共同研究において、この解析を行うためのコードの開発を進めてきた。

今年度の研究においては、開発されたコードを用いたシミュレーション研究を実施した。シミュレーションの結果、一様磁場モデルの場合と同様に、運動論的効果によって線形成長率が強く抑制され、成長率の波数スペクトルにピークが形成されることが観察された。また、フィードバック不安定性の成長において、電子の自由エネルギーが電磁揺動のエネルギーよりもはるかに大きな値となることが観察された。エネルギー保存則に基づく解析の結果、運動論的効果によって形成される電子の密度分布関数の微細構造と背景場の磁力線に沿った非一様性との結合によって熱力学的な仕事が発生し、電子の自由エネルギーが増大することが明らかになった。

3. バルーニングモード乱流に関する研究成果

核融合発電の実用化を目指したトカマクプラズマの研究開発においては、プラズマ周辺において発生するバルーニングモード乱流を制御する必要がある。これまでの共同研究においては、簡約化二流体モデルを用いた非線形シミュレーションコードの開発を進めてきた。

今年度の研究においては、バルーニングモードの非線形シミュレーションを行った。シミュレーションの結果、バルーニングモードの非線形発展に伴って二次的な乱流の広がりが発生し、大域的な熱輸送が駆動されることが観察された。プラズマ周辺部に勾配を持った流れ（シアフロー）を考えた場合、乱流広がりが抑制され、大域的な熱輸送も抑制されることが明らかになった。また、この乱流広がりの抑制に必要なシアフローの強さを理論的に評価することに成功した。

論文

[1] A. Takano, S. Nishimura, M. Sasaki, and Yusuke Kosuga, ”Effect of edge shear flow on radial spreading of ballooning mode turbulence”, Plasma Fus. Res. 19, 140316 (2024).

学会発表

[1] 西村征也, “双極子磁場におけるフィードバック不安定性の線形安定性解析”, NIFS共同研究研究会「MHDとその周辺に関する理論・シミュレーション研究」, 核融合科学研究所, 12/7 (2023). [口頭発表]

[2] 高野歩海，西村征也, “バルーニングモード乱流の径方向広がりにおけるシア流の影響”, NIFS共同研究研究会「MHDとその周辺に関する理論・シミュレーション研究」, 核融合科学研究所, 12/7 (2023). [口頭発表]

[3] 西村征也，沼田龍介, “双極子磁場中のフィードバック不安定性の線形成長における位相混合”, 日本物理学会 2024 年春季大会，オンライン開催, 20aB1-5, 3/20 (2024). [口頭発表]

天然ゴムと臭気成分の相互作用に関する研究

阿知良　浩人[A]
兵庫県立工業技術センター[A]
（世話人：鷲津　仁志）

天然ゴムはゴムの木の樹液が原料で様々な処理工程を経てゴム製造業に輸送される。その中でも、燻煙工程がなされたシート状の天然ゴム（Ribbed Smoked Sheet: RSS）は独特の臭気を放ち、その成分が燻煙チップを燃やすことで発生する 2,6-dimethoxyphenol などのフェノール類であることがガスクロマトグラフィ-質量分析（GC-MS）で明らかとなっている。本研究ではゴム分子（*cis*-1,4-polyisoprene）と臭気成分である 2,6-dimethoxyphenol）との相互作用について分子動力学シミュレーションにより評価を行った。

ゴム分子（重合度 15、30 本の鎖）の集団系と 2,6-dimethoxyphenol が 10 分子の集団の間に界面を作成し、600 K の NVT アンサンブルシミュレーション（700 ps）で安定化してから NPT アンサンブルシミュレーション（700 ps）で溶融状態にし、313 K までアニーリング処理をしてきたが、この条件で 1,000 ps ずつシミュレーション時間を長くすると、臭気成分が界面から離れてしまい、相互作用を評価することができなくなった。ゴムの素練り課程を想定するために、シミュレーションの系の構造（図 1）や条件の検討を行っている。また、燻煙処理がなされていない天然ゴムを用いて比較するために GC-MS で頻繁に検出される *d*-Limonene の系のシミュレーションも進めている。

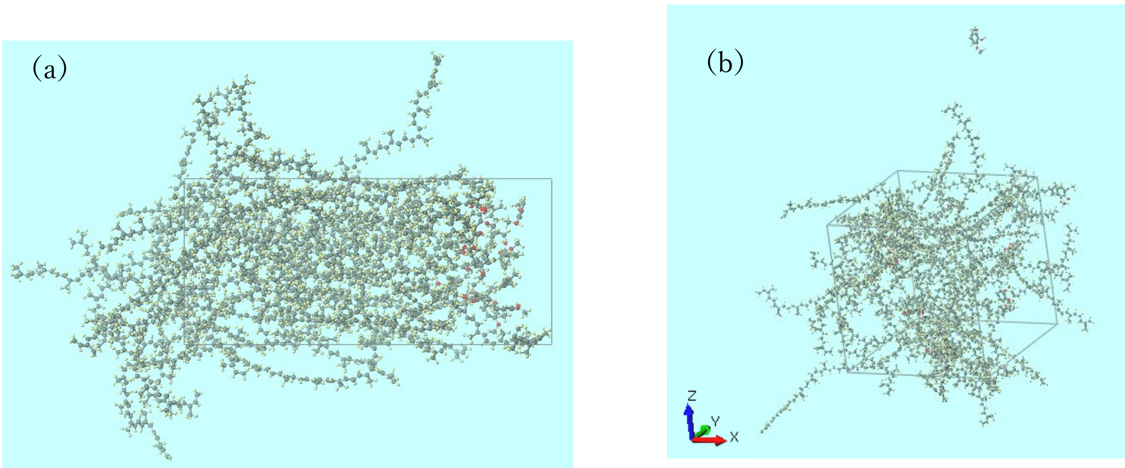


図 1　ゴム分子と臭気成分の 2 成分系の構造
（a）ゴム分子の界面に臭気成分が存在する系
（b）ゴム分子の内部に臭気成分を挿入してからシミュレーションを行った系

論文

H. Achira, H. Washidzu, *to be prepared*.

学会発表

阿知良　浩人，”天然ゴム（RSS）と臭気成分の溶解度パラメータおよび分子動力学シミュレーション”，2023 年日本コンピュータ化学会春季年会，東京工業大学大岡山キャンパス，2023 年 6 月 2 日[口頭発表]

運動論的モデルを用いた液滴蒸発に関する研究

宮内 拓夢 [A]

京都大学大学院　工学研究科　航空宇宙工学専攻 [A]

（世話人：安田 修悟）

[背景]

液滴蒸発は，学術的興味だけでなく工学的応用においても重要な現象である．特に近年では，ファインバブルと呼ばれるナノスケールの液滴が注目を集めている．我々のプロジェクトにおいては，微視的な記述による実在気体モデルを用いることで，ファインバブルの蒸発に対する新たな知見を得ることを目標としている．そのような背景のもと，我々が開発した，Enskog–Vlasov 方程式を簡易的にモデル化した模型［1］を支配方程式とし，空間 2 次元の液滴の解析を試みる．ただし，時間 1 次元，空間 2 次元，分子速度 2 次元の計 5 次元の速度分布関数を扱うことになるため，必要なデータを効率よく得るためには，効率の良いプログラムを実装することが求められる．

[本計算の目的]

これまでのコード開発において，我々は慣習的に MPI による CPU 並列化を採用してきたが，GPU の性能が向上し，多くのスーパーコンピュータに GPU が搭載されるようになった現状を踏まえ，今後は GPU 並列化も取り入れることを検討している．本プロジェクトではその準備として，OpenACC を用いた GPU 並列化プログラムの開発とそのベンチマークテストの実施を行った．

[結果]

詳細は省略するが，今回作成したプログラムでは，(i)支配方程式を，Strang-splitting に基づいていくつかのサブステップに分割し，(ii)各サブステップについて semi-Lagrangian 法を用いるというアプローチを採用している．結果として，計算の大部分は，補間によって参照点における速度分布関数の値を求める操作に費やされる．

ベンチマークテスト結果の一例として，今回作成した GPU 並列プログラムによる 1 ステップあたりの計算時間を表 1 に示す [1]．また比較のため，MPI を用いた CPU 並列プログラムによる計算時間を表 2 に示す [2]．

表 1 では使用する GPU 枚数を変えた結果を並べているが，GPU の枚数が増えるにつれて計算時間が短縮されることが確認できる．さらに，GPU1 枚のみを用いた計算でも，8 ノードを用いた CPU 計算より高速に計算できていた．この結果から，今回開発した GPU 並列プログラムが，既存のプログラムよりも効率的に計算を行うことができると結論付けられる．

今後は，このプログラムを用いてファインバブルの蒸発に関する本格的な解析を行う予定である．

表 1　GPU 並列における計算時間.

1GPU	2GPU	4GPU	8GPU
0.3978 [s]	0.2068 [s]	0.1202 [s]	0.0748 [s]

表 2　CPU 並列における計算時間.

1 ノード	2 ノード	4 ノード	8 ノード	16 ノード
1.6682 [s]	0.9358 [s]	0.7605 [s]	0.5321 [s]	0.2202 [s]

参考文献

1] Takumu Miyauchi, Shigeru Takata, Masanari Hattori, and Aoto Takahashi. Constructions of simple kinetic equations for a dense gas. In *International Seminar on Gas Kinetic/Dynamics and Life Science*, pages 19–39. Springer, 2021.

1　計算時間は，25 ステップ分計算した結果を平均することで求めている．また，本プログラムでは空間 2 方向に計算を分割しており，分割数の組み合わせによって経過時間が変化する．本報告書においては，確認した組み合わせの中で最速のものを記載している．

2　九州大学の大規模計算機システム（ITO-システム A）により計測したデータを用いて作成している（並列数=36 コア×ノード数）.

運動論的モデルを用いた気泡発生に関する研究

宮内 拓夢 [A]

京都大学大学院　工学研究科　航空宇宙工学専攻 [A]

（世話人：安田 修悟）

1. 背景

気泡発生は，学術的興味だけでなく工学的応用においても重要な現象である．特に近年ではファインバブルと呼ばれる，ナノスケールの気泡を取り扱う研究も盛んである。そのような背景のもと，我々が開発した，実在気体を記述する簡易的な運動論模型［1］を支配方程式とし，空間 2 次元の液滴を解析することを試みている．その際，空間 2 次元，分子速度 2 次元の 4 次元の速度分布関数を扱うことになるため古典流体的な模型と比べて計算コストが高く，効率良く動作するようなプログラムを実装することが求められている．

2. 本計算の目的

これまでのコード開発において，我々は慣習的に MPI による CPU 並列化を採用してきたが，GPU の性能が向上し，多くのスーパーコンピュータに GPU が搭載されるようになった現状を踏まえ，今後は GPU 並列化も取り入れることを検討している．本プロジェクトではその準備として，OpenACC を用いた GPU 並列化プログラムの開発とベンチマークテストの実施を行った．

3. 結果

詳細は省略するが，今回作成したプログラムでは (i) Strang-splitting に基づいて支配方程式をいくつかのサブステップに分割し，(ii)各サブステップについて semi-Lagrangian 法を用いて解くというアプローチを採用している．結果として本計算の大部分は，参照点における速度分布関数の補間に費やされる．

ベンチマークテスト結果の一例として，空間格子数 120x120 分子速度格子数 128x128 のケースで GPU 並列プログラムを用いたときの，1 ステップあたりの計算時間を表 1 に示す [1]．また比較のため，MPI を用いた CPU 並列プログラムによる計算時間を表 2 に示す [2]．表 1 には計算に使用する GPU 枚数を変えた結果がまとめられているが，GPU の枚数におよそ反比例して計算時間が短縮されており，CPU 並列と比較してオーバーラップが小さいといえる．この結果から，今回開発した GPU 並列プログラムを用いることで，従来の CPU プログラムと同程度かそれ以上の効率で計算できると期待できる．

表 1　GPU 並列における計算時間.

1GPU	2GPU	4GPU	8GPU
0.3978 [s]	0.2068 [s]	0.1202 [s]	0.0748 [s]

表 2　CPU 並列における計算時間.

1 ノード	2 ノード	4 ノード	8 ノード	16 ノード
1.6682 [s]	0.9358 [s]	0.7605 [s]	0.5321 [s]	0.2202 [s]

謝辞

本研究の一部は、HPCI システム利用研究課題(課題番号：hp230028)を通じて、九州大学が提供するスーパーコンピュータ ITO-システム A の計算資源の提供を受け、実施した。

参考文献

1] Takumu Miyauchi, Shigeru Takata, Masanari Hattori, and Aoto Takahashi. Constructions of simple kinetic equations for a dense gas. In *International Seminar on Gas Kinetic/Dynamics and Life Science*, pages 19–39. Springer, 2021.

1　計算時間は，25 ステップ分の計算を行い，1 ステップ当たりの平均値を取っている．また，本プログラムでは空間 2 方向に計算を分割しており，分割の方法よって経過時間が変化する．本報告書においては，確認した組み合わせの中で最速のものを記載している．

2　表 2 は，九州大学の大規模計算機システム（ITO-システム A）により計測したデータを用いている（並列数=36 コア×ノード数).

熱帯低気圧形成のコリオリパラメータ閾値とその領域サイズ依存性に関する研究

井野 創開, 山崎 一哉, 三浦 裕亮 [A]
東京大学大学院 理学系研究科 [A]
（世話人：島 伸一郎）

熱帯低気圧の形成過程には、SST をはじめとした熱的因子や、惑星渦度や鉛直シア等の力学的因子といったさまざまな要因が複雑に関係している。その中でも惑星渦度(コリオリパラメータ)は熱帯低気圧の回転や構造形成などに寄与しており、その値が小さい赤道付近では熱帯低気圧の発生数が少ないことが統計的事実として知られている。しかし、熱帯低気圧形成にコリオリパラメータの大きさが寄与するかについては十分に解明されていない。そこで、本研究では鉛直シアや陸地等の環境場の影響を除いた理想的な条件を用意して、熱帯低気圧形成に必要なコリオリパラメータの大きさを調査した（図 1)。雲解像モデル SCALE-RM を用いて回転を与えた放射対流平衡系シミュレーションを行い、熱帯低気圧の形成にコリオリパラメタの閾値が存在するか、そして、その閾値は領域サイズへ依存するかを調査した。

実施した実験は大きく分けて 3 つである。まず、(i)水平解像度 4 km で正方形領域の一辺の長さを 96 km から 960 km まで変更して、熱帯低気圧形成に必要なコリオリパラメタの閾値の存在を調べた。次に(ii)水平解像度を変更して熱帯低気圧形成に必要なコリオリパラメタの閾値が変化するかを調べた。最後に(iii)領域サイズを拡大して(i)の実験を行った。(i)の結果、領域サイズが 96 km 四方から 960 km 四方に至るまで、すべての実験で熱帯低気圧形成が確認できるコリオリパラメータの閾値が実験ごとに確認できた。(iii)においてこの閾値は、領域サイズが大きくなるにつれて小さくなっていた。領域サイズを1600 km, 3200 km, 4800 km 四方とさらに拡大して同様の実験を行うと、赤道近傍のコリオリパラメータでも熱帯低気圧の形成が確認できた。また、これらの領域サイズを熱帯低気圧の形成に必要な空間スケールと考え、横軸を領域サイズ、縦軸をコリオリパラメータの閾値とし

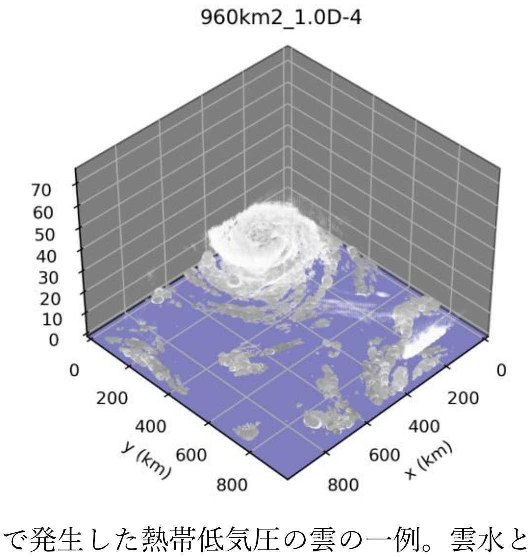


図 1: 960 km 四方の領域で発生した熱帯低気圧の雲の一例。雲水と雲氷を描画。コリオリパラメータの値は$f = 1.0 \times 10^{-4}\ s^{-1}$。

て作図すると、等価深度を一定として評価したロスビー変形半径に近い値をとることが分かった。

学会発表

Sosaku Ino and Kazuya Yamazaki，The Coriolis parameter dependence of tropical cyclone formation under radiative-convective quasi-equilibrium in the f-plane and its variation with domain size，JpGU Meeting 2024，幕張メッセ，2023 年 5 月（予定）．[ポスター発表]

水圏機能材料の高精度モデリングと分子シミュレーション研究

石井 良樹，鷲津 仁志[A]
北里大学未来工学部，兵庫県立大学大学院情報科学研究科[A]
（世話人：鷲津仁志）

高分子界面における水分子の水素結合ネットワークは，生体分子の吸着を防止する特性をもつことが示唆され，この高分子-水界面における水素結合機能を解明する観点から，赤外分光スペクトルの測定と分子シミュレーションに基づく理論化学研究が進められてきた。そこで我々は近年，分子動力学（MD）シミュレーションを応用することで，高分子界面近傍の局所空間に存在する水分子の OH 伸縮振動モードに由来する赤外（IR）スペクトルを高精度に解析可能な空間分割解析法を開発した。この手法では，水分子の水素原子にかかる静電場と OH 伸縮振動シフトの第一原理計算に基づく関係式（H. Torii, R. Ukawa, *J. Phys. Chem. B* **2021**, *125*, 1468.）を基にしていることから，IR バンドのサンプリングを多様な水圏機能材料に対して展開可能であることが検証できる。そこで本研究では，まずこの空間分割法を応用して生体適合性の優れた高分子 poly(2-methoxyethyl acrylate)（PMEA）の界面で生じる水分子の OH 伸縮振動モードを解析するため，湿潤環境を模した高分子 PMEA と水溶液の大規模 MD シミュレーションを展開し（図 1)，界面近傍の数 nm 領域で IR ピークの変化がを定量的に計算することに成功した。その際，まず界面近傍では PMEA がもつ水素結合受容体の割合が顕著に変化し，それに応じて水分子の水素結合分布が変調したが，高分子バルクから界面近傍に近づくにつれて水分子の OH 伸縮振動モードは一度高波数シフトする傾向を示した。その後，界面近傍から水溶液中へとより近づいていくと，OH 伸縮振動モードは徐々に低波数シフトする傾向を示しており，界面近傍で OH 伸縮振動モードのピーク振動数は単調に変化しないことがわかった。さらに我々は，令和 5 年度課題のなかで高分子化学・生命科学・機械工学系の様々なソフトマテリアルに対する普遍的な分子設計と構造物性の理解統合に向けて，新たに SMILES コードから分子溶解性と溶媒和構造を定量的に自動探索可能な計算科学プラットフォームの開発を進めてきた。特に，水相とオクタノール相への溶解性を MD 計算から定量解析することで，水・オクタノール分配係数 $\log P_{ow}$ の実験値を良い相関性で再現でき，その精度は有機化合物の官能基の種類によらずほぼ同一であることを解明した。

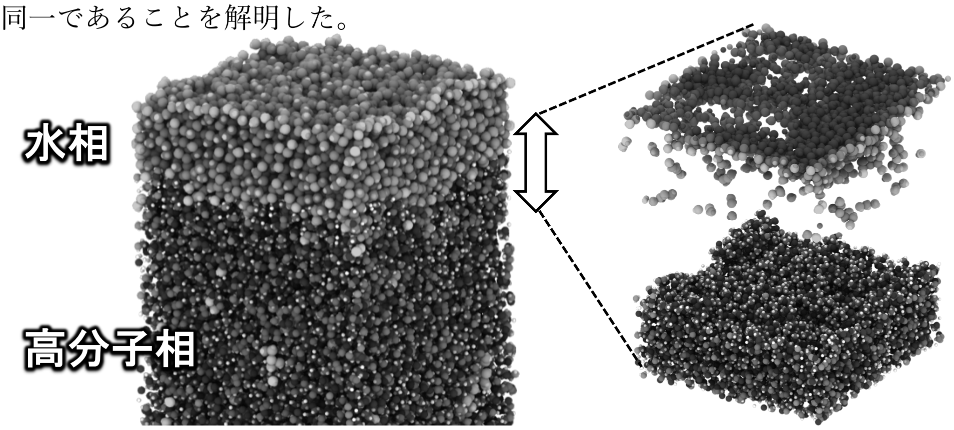


図 1: 高分子 PMEA と水界面の大規模 MD シミュレーション。右に示す界面の 3nm 領域において IR ピーク振動数の顕著な変化を定量的に解析することに成功した。

論文

J. Park, Y. Sasaki, Y. Ishii, S. Murayama, K. Ohshiro, K. Nishiura, R. Ikura, H. Yamaguchi, A. Harada, G. Matsuba, H. Washizu, T. Minami, Y. Takashima, "Leaf-Inspired Host–Guest Complexation-Dictating Supramolecular Gas Sensors", *ACS Appl. Mater. Interfaces*, **15**, 39777-39785 (2023).

学会発表

Y. Ishii, H. Washizu, G. Watanabe, "On Structural and Transport Properties of Confined Water in Functional Soft Materials Investigated by Using All-Atom MD Calculation with Self-Consistent Modeling Scheme", ICMS2023, Taipei, 2023/10/6-9. [招待講演]

石井良樹，鷲津仁志，"ソフトマテリアル界面の水和機能解明に向けた計算化学とその応用展開"，第 72 回高分子討論会，香川, 2023 年 9 月 26-28 日. [招待講演]

超水滴法を用いた浅い積雲の超高解像度実験に関する研究

松嶋 俊樹[A]
神戸大学 惑星科学研究センター[A]
（世話人：島伸一郎）

本研究課題では、世話人の島伸一郎氏らとの共同研究により、超水滴法を用いた浅い雲に関する研究を進めている。2023 年度は、主に前年度に投稿した論文についての改訂を進め、出版された。
開発した数値モデルにより計算点課題の多くを克服した一方で、地形の効果や地球の曲率が重要な系の計算には適さない。また、数値モデルのアクセラレータへの対応は行っていない。そこで、次のステップに向けて、適用範囲を大きく広げるための検討を始めた。

論文

Matsushima, T., Nishizawa, S., and Shima, S.: Overcoming computational challenges to realize meter- to submeter-scale resolution in cloud simulations using the super-droplet method, Geosci. Model Dev., 16, 6211–6245, https://doi.org/10.5194/gmd-16-6211-2023, 2023.

量子力学に基づく数値シミュレーションと可視化に関する研究

数納 広哉，大野 暢亮[A]
法政大学情報メディア教育研究センター，兵庫県立大学データ計算科学連携センター[A]
（世話人：大野 暢亮）

本課題の目的は、原子分子物理分野における数値シミュレーションおよび可視化技法に関する研究を実施することである。今年度は、「冷却原子の 3 体再結合反応過程」および「水素原子軌道可視化 VR アプリケーション開発」に取り組んだので、以下に成果を述べる。

1.　冷却原子の 3 体再結合反応過程

相互作用する少数の粒子系の性質や振る舞いを研究する「少数系物理学」は、原子分子物理、原子核、素粒子物理学における重要な課題となっている。特に、相互作用する 3 つの粒子を量子力学的従い数値的に解く「量子 3 体系問題」には高度な数値シミュレーション技術が必要となる。ここで、著者は 2 つのヘリウム(He)原子と 1 つの銀(Ag)原子が反応し、2 原子分子 1 つと原子 1 つが生成される 3 体再結合反応過程に注目した。相互作用する 3 原子系のシュレーディンガー方程式をハイパー球面座標系で表現し、R 行列法と呼ばれる数値計算手法を用いて ^{4}He+^{4}He+Ag 系を記述するプログラムを開発し、1 μ K から 0.02mK までのエネルギーの関数として 3 体再結合レートの計算に成功した。結果の一部を図 1 に示す。

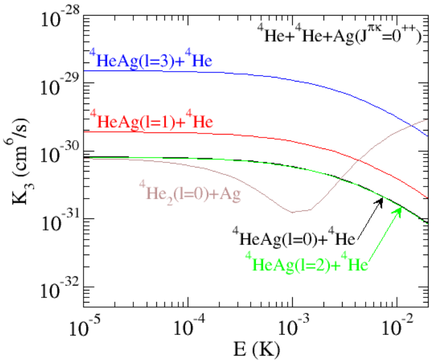


図 1. エネルギーの関数としての ^{4}He＋^{4}He+Ag 系の 3 体再結合レート。

2.　水素原子軌道可視化 VR アプリケーション開発

物理学や化学において、3 次元空間における物体の可視化は重要な役割を果たしている。例えば、原子分子物理学では電子状態や分子構造の理解のためには、これらの 3 次元可視化が必須であり、また、流体力学においても流線を 3 次元可視化することが必須となる。これらの 3 次元可視化においては仮想現実(Virtual Reality, VR)が有用な技術となりうると考えられる。この点に注目し、物理学・化学教育における VR の可能性を探求し、教育支援ツールの開発に取り組んできた。今年度は、大学学部初年度の物理学や化学の授業で習得する水素原子の軌道を 3 次元空間で可視化するアプリケーションの開発に取り組んだ。本アプリケーションの開発には兵庫県立大学で開発されたゲームエンジン Unity 向けの科学技術計算の可視化ツール VOIR を利用した。水素原子の 1s 状態から 6h 状態までの波動関数の数値計算を行い、データファイルとして保存し、VOIR の等値面可視化機能を用いることにより、これら原子軌道のパソコン上での可視化に成功した(図 2)。また、VR ヘッドマウントディスプレイ Meta Quest2 での原子軌道の可視化にも成功した。

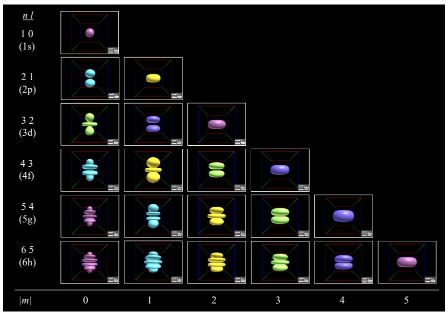


図 2. 水素原子の 1s 状態から 6h 状態までの原子軌道の可視化結果。

論文

Hiroya Suno, “Cold three-body recombination in helium-helium-silver-atom collisions using the hybrid SVD-adiabatic hyperspherical *R*-matrix approach”, **Physical Review A**, accepted (2024).

Hiroya Suno, “Three-Body Recombination Between Helium and Silver Atoms at Cold Collision Energies”, **Few-Body Systems**, 65:4 p.1-7 (2024).

Hiroya Suno, Nobuaki Ohno, “Virtual Hydrogen, a virtual reality education tool in physics and chemistry”, **Procedia Computer Science**, 225, p.2283-2291 (2023).

学会発表

Hiroya Suno, Nobuaki Ohno, “Virtual Hydrogen, a virtual reality education tool in physics and chemistry”, 27th International Conference on Knowledge-Based and Intelligent Information and Engineering Systems, アテネ（ギリシア）, 9 月 6 日-8 日(2023). [口頭発表]

Hiroya Suno, “Three-Body Recombination Between Helium and Silver Atoms at Cold Collision Energies”, 25th European Conference on Few-Body Problems in Physics, マインツ（ドイツ）, 7 月 30 日-8 月 4 日 (2023). [口頭発表]

その他

なし

血管のバイオデジタルツインの作成と実装

川尻 絵留[A]
兵庫県立大学社会情報科学部社会情報科学科[A]
（世話人：島 伸一郎）

バイオデジタルツインは、現実の人間の情報を利用して仮想空間上にその人間を再現する仕組みである。シミュレーションと併用することで患者の病状や薬の治療効果の予測を行うことができ、個別化医療の推進に繋がるとされている。本研究では、物理モデルと AI モデルを併用した血管のバイオデジタルツインを実装し、物理モデルのみを使用したツインとの比較を行う。

ツインの実装には、血管の物理モデル、血管の AI モデル、個人の生理データが必要である。今年度は血管の物理モデルを作成するため、Navier Stokes 方程式と有限要素法を用いた血流解析に取り組んだ。次年度は物理モデルの作成を引き続き行い、オープンデータを使用して AI モデルの作成にも取り組む。

気象・生体分子系・結合振動系など

時空間階層性のある現象に関する研究

戸田　幹人[AB]
兵庫県立大学情報科学研究科[A]
北海道大学電子科学研究所[B]
（世話人：）島　伸一郎

　気象・生体分子などの動力学は、時間空間に階層性のある現象である。このような現象の解析には、数値計算・理論の両面において、階層性に焦点を当てた手法が必要になる。本年は、気象に関しては、共同研究者である島伸一郎氏を中心として開発されてきた超水滴法を対象に、Lagrangean 描像に基づく階層的な統計解析に向けて手法の開発を行った。また生体分子や化学反応論、時空間階層性・拘束系の動力学に関しても、数値計算・理論の両面の研究を行ってきた。

論文

Udoy S. Basak, Sulimon Sattari, Md. Motaleb Hossain, Kazuki Horikawa, Mikito Toda, Tamiki Komatsuzaki
" Comparison of particle image velocimetry and the underlying agents dynamics in collectively moving self propelled particles"
Scientific Reports volume 13, 12566 (11 pages) (2023)

学会発表

田中 綾一, 水野 雄太, 堤 拓朗, 戸田 幹人, 武次 徹也, 小松崎 民樹
"教師つき次元縮約を用いた化学反応動力学の相空間構造解析"
第25回理論化学討論会(5.16-5.19 ,2023), 資生堂 S/PARKホール 横浜市（口頭）(発表日: 2023.5. 16)

Ryoichi Tanaka, Yuta Mizuno, Takuro Tsutsumi, Mikito Toda, Tetsuya Taketsugu, Tamiki Komatsuzaki
"Visualization of Chemical Reaction Phase Space Using Supervised Dimensional Reduction Method"
The 24th RIES-HOKUDAI International Symposium(12.6-12.7 ,2023), Akira Suzuki Hall, Sapporo 12, 6 (Poster)

Ryoichi Tanaka, Yuta Mizuno, Takuro Tsutsumi, Mikito Toda, Tetsuya Taketsugu, Tamiki Komatsuzaki
"A Phase Space Structure Analysis of Chemical Reaction Dynamics Using Supervised Dimensionality Reduction"
Energy Landscapes: Theory and Applications 2023 (6.5-6.9 ,2023),
Centre IGESA, Porquerolles, France 6, 5 (Oral)

乱流モデルのレファレンス作成のための直接数値計算

深川宏樹[A]，石井大海[A]，小井土真一[A]，神志那純[A]，石原拓哉[A]
DeepFlow 株式会社[A]
（世話人：芝 隼人）

産業応用を目的とする実用的なシミュレーションでは高レイノルズ数流体での乱流を忠実に再現することの困難さがしばしば問題となる。細かいメッシュを使って直接数値シミュレーション（Direct Numerical Simulation: DNS）を実施するには計算コストがかかるため、実用的には粗いメッシュを使い、メッシュサイズ以下の挙動を乱流モデルで扱うといった方法が採られる。本研究では、細かいメッシュを使って高レイノルズ数流体の DNS を実施して高精度データを取得し、リファレンスとすることで乱流モデルを洗練させていくことを戦略としている。2023 年度においては、DeepFlow 社の開発する Elkurage を用いた DNS を行った。

空気や水の流体シミュレーションで微小な密度変動を高精度で計算するのは難しく、これを回避するために、流体を密度変動がない非圧縮性流体として計算されることがある。しかし、この方法は並列計算性能が著しく落ちるため、大規模な DNS には向かない。そこで本研究では流体を圧縮性流体として扱い、微小な密度変動も直接計算することで、並列性能を維持したまま大規模な DNS を行った。

当初、空気を想定した大規模 DNS では計算誤差からメッシュ幅に依存した微小な密度振動が発生したため、シミュレーション結果は乱流のリファレンスデータとしては不適切なものとなった。その後、数値誤差が少なくなるように計算方法を工夫することで、この問題を解決した。その結果、レイノルズ数が 10^4 の高レイノルズ数流体でも、Elkurage で安定的に DNS ができるようになった。

今後は、継続的な計算精度を向上するための Elkurage の改良を行い、大規模 DNS を実行することで、10^4 から 10^7 までの高レイノルズ数流体のリファレンスデータを揃えていく予定である。また構造格子上だけではなく、形状やメッシングの自由度の高い非構造メッシュ上での DNS を実行することで、実用性を見据えた乱流のリファレンスデータの取得をしていくことも予定している。

DFT および MD 計算による二次電池材料の探索

稲本純一
兵庫県立大学大学院工学研究科
（世話人：藤原　義久）

近年、二次電池は電気自動車や定置用電源などの大型用途に使用の幅が広がっており、その性能向上や環境負荷への配慮、低コスト化は大きな課題となっている。我々の研究グループでは特に炭素材料の二次電池材料としての応用に重点をおいており、これまで炭素材料に対する様々なイオンの電気化学的挿入脱離反応を実験的に解析している。そこで、炭素材料への種々のイオンの挿入脱離反応について第一原理計算や分子動力学計算を実施することで、その反応機構の理論的考察を深めることを目標として研究を行っている。本年度は DFT 計算を進めるうえでの環境構築を主として行い、さらに手元の計算資源も併用しながら、ナトリウムイオン電池の負極反応として利用される炭素材料へのナトリウムイオン挿入脱離反応について、その反応電位に対する炭素材料の含酸素官能基の影響を調べた。

我々はまず黒鉛に対して、一部をケトンやラクトン、エーテルなどの含酸素官能基で置換したモデルを用意し、それらに対して DFT 計算により構造最適化を行ったあと状態密度計算等を行った。その結果、図 1 に示すように黒鉛ではよく知られているようにフェルミ準位付近で状態密度が極小となったのに対して、含酸素官能基を導入した多くのモデルではフェルミ準位近傍からやや高エネルギー側にバンドが認められた。特に、ケトン（K-GLG）およびラクトン（L-GLG）を導入したモデルではこのようなバンドが認められたのに対して、エーテル（E-GLG）を導入したモデルではフェルミ準位よりも高エネルギー側の状態密度は黒鉛とほぼ同様であった。これらのモデルに対してナトリウムイオンの挿入電位を DFT 計算で得られた熱力学的パラメータから計算したところ、状態密度から予想されるようにケトンやラクトンを導入したモデルではナトリウムイオン挿入がより高電位から進行することが示唆された一方で、エーテルを導入したモデルでは黒鉛と同様の低い反応電位を示した。このことから、黒鉛の化学酸化によりケトンやラクトンなどを導入することで、ナトリウムイオンがより高電位から高容量で挿入できることが明らかとなった。この結果は我々のこれまでの実験的事実とよく一致しており、電気化学反応に与える含酸素官能基の影響について、その要因を明らかにすることができた。

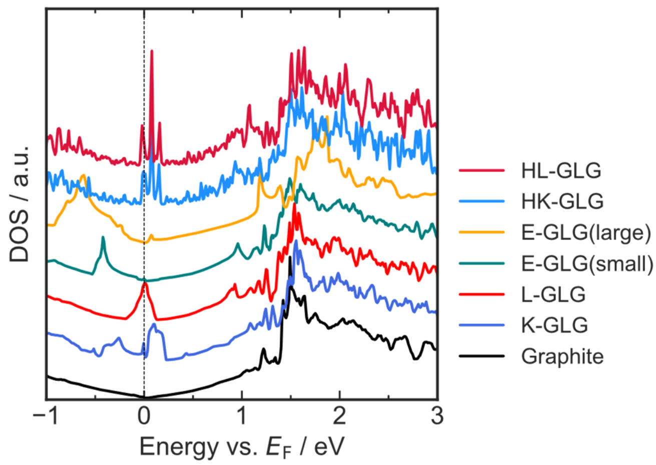


図 1 種々の炭素材料のモデルの状態密度

遷移金属ダイカルコゲナイド単層のフォノン状態解明

和達 大樹
兵庫県立大学大学院理学研究科
（世話人：島 伸一郎）

遷移金属カルコゲナイドは、遷移金属(Mo、W、Ta など)とカルコゲン（S、Se、 Te など）からなる二次元層状化合物であり、単層化による新しい物性発現の観点から、近年盛んに研究されている。バルクの MoS_2 は、約 1.3 eV のバンドギャップを 持つ間接遷移半導体である。一方、単原子層 MoS_2 は、バンドギャップ約 1.8 eV の直接遷移半導体となる。本研究で我々は、二次元遷移金属ダイカルコゲナイド MoS_2 におけるフォノンエネルギーの層数依存性を探求した。

我々はまず実験的に MoS_2 におけるフォノンエネルギーを観測するために、ラマン分光測定を行った。励起には実験室光源である 532 nm を用いた。試料は剥離法により、バルク MoS_2 単結晶から様々な層数の MoS_2 を作成した。

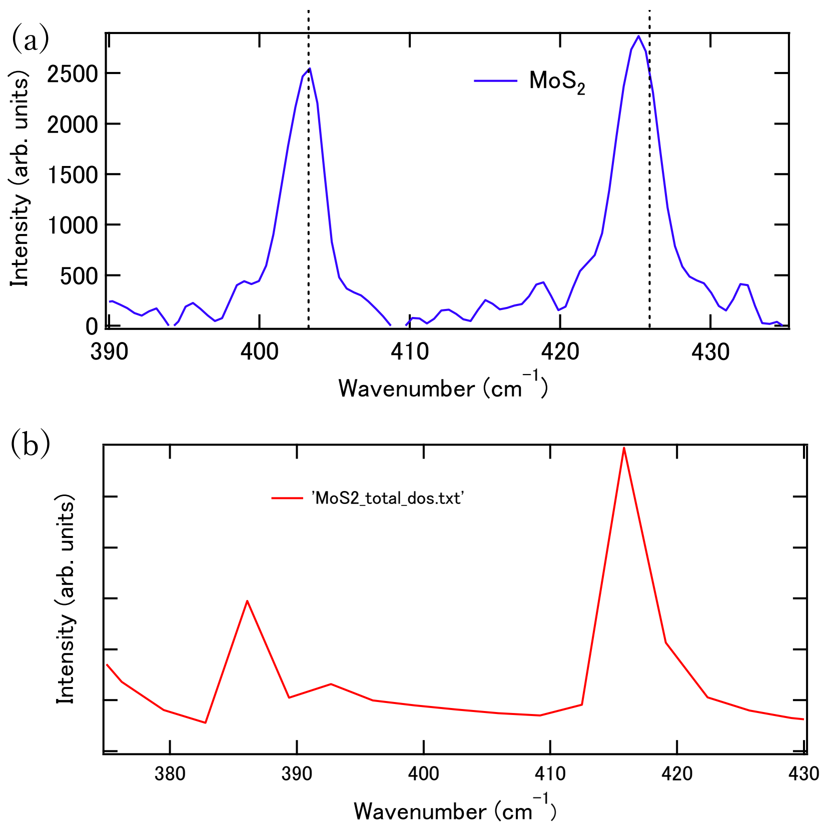


図 1 (a)：MoS_2 のラマン分光スペクトル。(b) Wien2k で phonopy を用いて計算されたフォノンの状態密度。

図 1 に室温で測定した MoS_2 ラマン分光スペクトルを示す。こうして得られた実験的な電子状態と比較するために Wien2k に phonopy を実装し、フォノンの情愛密度を計算した。同様のスキームでほかの遷移金属カルコゲナイドなどさらに多くの物質の研究まで広げたいと考えている。

Report on the Enhancement of Energy Efficiency in Hydraulic Fluids through Polymer Integration

Kosar Khajeh1, Hitoshi Washizu 1[A]

Graduate School of Information Science, University of Hyogo, 7-1-28 Minatojima-minamimachi, Chuo-ku, Kobe, Hyogo, 650-0047, Japan 1

Abstract

This report presents a study aimed at enhancing the energy efficiency of hydraulic fluids through the integration of polymers, utilizing a multiscale approach. By examining the evolution of polymer coil size and flow field characteristics, this research explores the dynamics of polymers within a solvent. The objective is to connect the atomic properties of additives with the macroscopic properties of dilute polymer solutions.

Introduction

Recent advancements highlight polymers' potential to significantly improve the energy efficiency of hydraulic fluids. This study employs an atomistic-continuum hybrid model that merges Brownian Dynamics and Lattice Boltzmann methods within a bead-spring conceptual framework. It concentrates on the influence of polymer configurations under varying shear rates.

Methodology

The study involves modeling a set number of polymer chains, with each chain consisting of n spherical particles, to understand their behavior under different shear rates. The key objective is to monitor alterations in the velocity and temperature distributions within the shear flow. It pays particular attention to how dipole-dipole interactions influence the arrangements of polymers, along with studying the effects of the intensity of shear rates, temperature variations, and the structural characteristics of the chains, which include the mass and radius of the particles, among other factors. Additionally, a foundational model of hydrodynamic coupling has been established, enhancing both the precision and efficiency of the integrated model.

Conclusion

The study sheds light on the behavior of dipole and non-dipole polymers in hydraulic fluids, paving the way for the creation of advanced, energy-efficient lubricants. It emphasizes the importance of merging atomistic and continuum methods to fully grasp the dynamics of polymers in complex fluid systems. Moreover, the research underlines the hybrid model's capacity to capture the multiscale nature of polymer dynamics, implying profound implications for improving fluid properties via polymer additives. Additionally, the application of this numerical technique and the developed Fortran code as a simulation package extends beyond industrial applications. It has been utilized to study the behavior of biomolecules in blood, aiming to understand vascular health and disease.

Figures and Tables

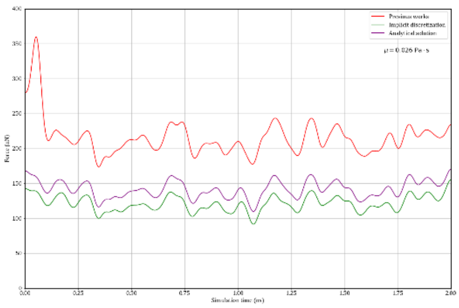


図 1: The comparison of Stokes force magnitude over time reveals significant differences between the basic Stokes force model, used as a means of coupling hydrodynamics (illustrated by a red line), an analytical method (shown with a purple line), and implicit discretization (represented by a green line), specifically within a solvent of a certain viscosity. Notably, as the viscosity number increases to a particularly high level, the discrepancy between the basic model and the other methodologies not only enlarges but also indicates that the basic model is likely to fail in converging when calculating high Stokes forces. This suggests limitations in the basic hydrodynamic coupling model's ability to accurately predict Stokes force in environments with high viscosity, contrasting with the potentially more reliable predictions offered by the analytical and implicit discretization methods.

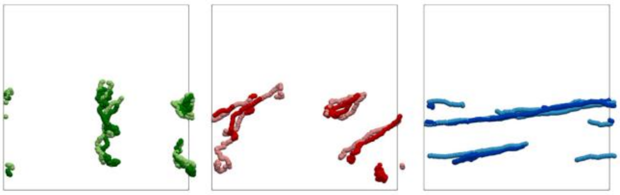


図 2: The 2D snapshot of the system at t = 50 ns; green (u = 1 m/s), red (u = 10 m/s), and blue (u = 100 m/s) with bright colors denoting non-dipole cases and dark colors corresponding to dipole cases.

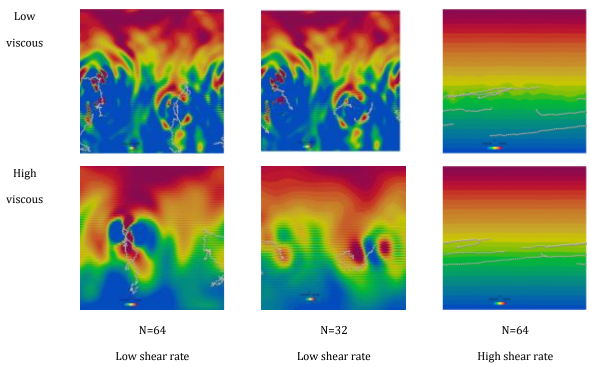


図 3: 2D snapshots (XY plane) of the polymer solution flow field at t=90 ns under different conditions; up: $\rho 1 \mu 1m1R1$, bottom: $\rho 1 \mu 2m1R1$. (left) n=64 and U=1 m/s, (middle) n=32 and U=1 m/s, and (c) n=64 and U=100 m/s.

Achievements

- **Papers**

1. K. Khajeh, D. Talukdar, G. Sawai, H. Washizu, A multiscale framework for polymer modeling applied in a complex fluid flow. Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics, Vol 325, (2024).

2. K. Khajeh, D. Talukdar, S. Yamamoto, S. Endo, K. Kamio, H. Washizu, A comparative study of polymer viscosity modifiers: Flow field challenges & alternative trends. Journal of Molecular Liquids, Vol 393, (2024).

- **Presentations**

1. K. Khajeh, H. Washizu, "Hybrid Model for Predicting the Rheological Properties of Polymer Additives under Shear Flow", The 9th International Tribology Conference (ITC), Fukuoka, Japan. September 25-30, 2023 (Oral presenter)

2. S. Yamamoto, K. Kamio, S. Endo, H. Oshima, K. Khajeh, E. Tomiyama, H. Washizu, "Analysis of the Viscosity Modifiers' Behavior in Hydraulic Fluid by Means of Simulation", The 9th International Tribology Conference (ITC), Fukuoka, Japan. September 25-30, 2023

3. T. Taiki, K. Khajeh, H. Washizu, "Contribution of Brownian motion and flow in the molecular of VWF protein during the early stages of thrombus formation", Summer undegraduate research poster session, University of Washington, Seatle, WA, USA. 16 August, 2023.

4. H. Washizu, K. Kawakita, T. Hasegawa, R. Araki, T. Horio, Le Nhu Minh Tue, Y. Ishii, R. Okamoto, K. Khajeh, N. Sugimura, "Molecular Simulations of Self-Assembled Structures in Oil Environ Molecular Simulations of Self-Assembled Structures in Oil Environment", 3d Korea Tribology International Symposium (K-TIRIB), BEXCO, Busan, Korea. April 3, 2023.

5. K. Khajeh, H. Washizu, "A hybrid approach for characterizing hydro-thermal effects of polymer additives under shear flow", The 4th The Fluids Engineering Divisions (FEDs) of the American Society of Mechanical Engineers (ASME), the Japan Society of Mechanical Engineers (JSME) and the Korean Society of Mechanical Engineers (KSME) (AJKFED), Osaka, Japan. July 9-13, 2023 (Oral presenter)

6. H. Washizu, K. Kawakita, T. Hasegawa, R. Araki, T. Horio, T. Kobayashi, Le Nhu Minh Tue, Y. Ishii, R. Okamoto, K. Khajeh, N. Sugimura, "Self-Assembly of Molecules in Oil Environment", Tribochemistry Beppu, Beppu, Japan, September, 2023.

7. K. Khajeh, H. Washizu. A digit hydraulic fluid: from field challenges to a multiscale simulation. Soft Materials Engineering Simulation Study (SMECS) meeting. Kobe, Japan. 9-10 March, 2023 (Oral presenter)