

# ソフトマターのマルチスケールシミュレーション

谷口 貴志 〈京都大学工学研究科 615-8510 京都市西京区京都大学桂 e-mail: taniguch@cheme.kyoto-u.ac.jp〉  
山本 量一 〈京都大学工学研究科 615-8510 京都市西京区京都大学桂 e-mail: ryoichi@cheme.kyoto-u.ac.jp〉

時間・空間スケールが異なる複数のシミュレーション法を連結し、大規模で複雑な問題の解決を目指すマルチスケールシミュレーションが注目されている。この手法は様々な研究領域で広く最先端の手法として認識されており、ソフトマターに対しても極めて有効である。ソフトマターは、マイクロ～メソスケールの内部構造を反映した複雑な巨視的性質（相挙動や流動挙動）を示す物質であるので、微視的な計算機シミュレーションでは計算量が膨大になり最先端のスパコンでも計算ができない。我々はメソスケールの高分子鎖の構造・運動と巨視的な流動現象を連結するマルチスケールシミュレーションでこの問題の解決に取り組み、分子描像に直結した高分子流体の流動挙動の解析を実現した。

## 1. はじめに

物理学の諸問題に計算機シミュレーションが使われるようになって久しく、今では実験的・理論的アプローチに並ぶ新しい第三のアプローチとして完全に定着している。通常、計算機シミュレーションでは、物質や現象をある単一スケールの構成要素に分解し、それらの相互作用を定式化（モデル化）することで、集合体の巨視的な性質に迫る。例えば材料科学の分野でよく用いられる分子シミュレーション（分子動力学法（MD: Molecular Dynamics）、モンテカルロ法など）では、物質を原子・分子レベルのマイクロモデルで表現する。マイクロモデルの利点は、マイクロな構成要素の特徴とそれらの集合体のマクロな性質を直接関係付けられる点にあるが、同時に計算量が膨大になるため大きな空間スケールの現象への適用性の悪さが最大の欠点となっている。

高分子、液晶、ゲル、コロイド、膜など、我々人間にとって「柔らかい物質」は古くから我々の生活において重要な役割を果たしてきた。これらの物質は、内在する相構造のような特徴的構造が、原子のスケールに比べてはるかに大きく、しばしば階層的構造を持ち、更にその構造は壊れ易く平衡構造に戻るまでに長い緩和時間を要するという特徴を有する。ド・ジャンがノーベル賞受賞講演で、これらの「柔らかい物質」を総称してソフトマターと呼んだことを契機に、今日、この用語が1つの研究分野名として広く使われている。我々が研究対象としているこのソフトマターの巨視的レベルの物性は、分子配向、高分子であれば分子の絡み合いのような微視的な状態や、相界面、相構造、欠陥の空間分布などのメソスケールの状態、また他の材料物質と接した表面の状態のような境界条件にも依存し、場合によっては周囲の流体やイオンを介した長距離相互作用による大規模な協調運動からも影響を受ける。それゆえに、これらの物質のマクロな物性を数値計算によって予測する場合、分子レベルからメソスケールの相構造や物質全体のスケールまでに及ぶ幅広い時間・空間スケールを考慮しなければならず、<sup>1)</sup> マイクロモデルのみを用いた分子シミュレーションでは、たとえ世界最速の計算機を占有したとしても現状では全く歯が立たない。全原子モデルではなく複数

の原子や分子をひとまとめにした粗視化分子モデルを用いたとしても、この状況は変わらない。

一方、流体力学や固体力学の分野では古くから連続体描像に基づくマクロモデルを用いたシミュレーション（計算流体力学（CFD: Computational Fluid Dynamics））が盛んに行われてきた。この場合、物質の個性は、物質に印加される歪みや歪速度とその応答である応力の間の関係式のような物質固有の関係式としてマクロな変数を用いて表現されており、通常は原子・分子のマイクロスケールはもとより、ソフトマターで興味の対象となるメソスケールの構造やダイナミクスも考慮されない。そのためソフトマターでは、個別の対象に対し、目的とする空間スケールの問題を取り扱うことができるような独自のメソスケールモデル（時間依存ギンツブルグ・ランダウ方程式、密度汎関数法、ブラウン動力学法など）が構築されてきた。系の物理的な普遍性のみを抽出することで、メソスケールモデルは相転移などの物質の詳細に依らない普遍的な現象の解明に大きな成功を収めた。その反面、メソスケールモデルでは分子の個性（分子形状や化学的な性質）を粗視化により生じた少数のパラメーターに押し込めざるを得ないため、分子シミュレーションのようにマイクロな構成要素の特徴とそれらの集合体のマクロな性質を直接関係づけることはできない。これは材料開発に必要な物性を予測するシミュレーションでは致命的な欠点である。

我々が実際に目にする巨視的現象は、マクロスケール（上位階層）で点と考える各場所に膨大なマイクロ・メソスケールの自由度（下位階層）が内在しており、それらの下位階層が相互に関連し合って発現したものである。他方、いくつかの空間および時間スケールにおいてはそのスケール特有の物理法則が存在し、それを記述するのに有効な物理モデルが成立することもよく知られている。このような観点から「各階層を連結してマクロな物性を予測する階層間接続法」や「マクロな物性からマイクロパラメータを推定するという逆問題」を扱う方法論の発展が強く望まれている。そこで注目されているのが、マイクロモデル・メソモデル・マクロモデルを相互に組み合わせて行うマルチスケール・シミュレーションである。この方法はソフトマターの

みならず、固体物理学や分子科学、あるいは地球科学などの分野においても、計算科学の最先端の手法として認識されている。新しい研究分野であるが、大きな動向として平成17年度にJST-CREST (Japan Science and Technology Agency-Core Research for Evolutional Science and Technology) 「マルチスケール・マルチフィジクス現象の統合シミュレーション領域」が発足し、本会会員も多数参加している。

## 2. 異なる階層間の接続

今日までに様々な方法でこのマルチスケールシミュレーションに関する研究が進められているが、それらは広い意味で次の3つ：(1)「パラメータ連結法」、(2)「領域分割法」、(3)「局所サンプリング法」に分類される。

(1) パラメータ連結法とは、小さなスケール(下位階層)で詳細なシミュレーションをあらかじめ行い、その結果からモデル定数や関数を決定し、それを用いて大きなスケール(上位階層)のシミュレーションを行う方法である。分子系を例にとると、分子軌道計算によって孤立分子間の相互作用ポテンシャル関数をあらかじめ決定し、その関数を用いて古典的分子動力学計算を行って分子集合体の性質を求める方法がこれにあたる。流体系であれば、分子動力学計算によって目的の物質のレオロジー特性を関数化し、その結果を流体力学方程式に反映させて流体挙動を計算する場合がこれに相当する。

(2) 領域分割法とは、対象とする系を2つ以上の領域に分割し、それぞれ異なるスケールのモデルによるシミュレーションを実行する方法である。この場合、各領域の一部を重ね合わせ、その重ね合わせた領域を介して、特定の物理量を異なる階層間で結合させて解く。例えば分子系では、大きな分子の一部を量子力学(QM: Quantum Mechanics)的に、他の部分は古典力学(MM: Molecular Mechanics)的に扱い、特定の原子を介して両者を接続するQM/MMと呼ばれる方法が開発されている。流体系の場合だと、液相中で気相が核生成する場合のような相転移が起こる部分だけを分子シミュレーションで扱い、他の部分は通常ナビエ・ストークス方程式で計算する場合がこれに相当する。

(3) 局所サンプリング法とは、上位階層の領域を細かく空間分割し、その各要素に対して下位階層のシステムを割り当て、その点での物理量を下位階層の自由度の統計平均で表し、上位階層と下位階層の方程式を連結させて解く方法である。分子系の場合、今日第一原理分子動力学法<sup>2)</sup>として知られる方法が、この考え方に近い。流体系では、本稿で解説する高分子流体のマルチスケール法がこれに相当する。

図1に流体系を例にとった場合の局所サンプリング法の概念図を示す。(a)は構成分子が内部構造を持たない球形粒子から成る単純流体のキャビティー流の場合(単純流体の一般的な流れの例)、(b)は高分子液体など複雑流体の平行流の場合(流れに沿って状態が一樣な場合の例)(c)

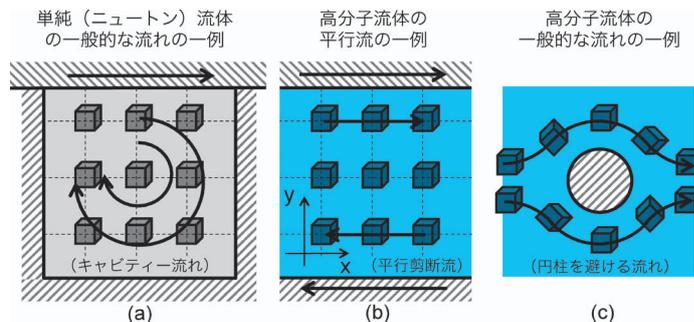


図1 連続体描像に基づく計算流体力学法(CFD)と粒子(分子・原子)描像に基づく分子動力学法(MD)や粗視化モデル(CG: Corase-Grained Model)を結合させたマルチスケールシミュレーション法の概念図。(a)-(c)それぞれの系の中に置かれた立方体の小さな箱は、MDまたはCGシミュレーションを実行するための単位セルを表し、適度な密度で系全体をびっしりと埋め尽くしている。それら全てのセルでシミュレーションを行うことによって、その場所の流体要素中の応力をサンプルする。(a)は定常状態へ達する時間がマクロスケールの特徴的時間 $\tau_m$ より十分に短い単純流体のキャビティー流(全ての境界壁面の中で、一面だけが一定速度で移動することで生じる流れ)の場合である。単純流体での応力の応答は、流体が過去に経験した歪速度に依存しないと考えてよいので、たとえ(a)のように渦がある流れを考える場合でも、ミクロな情報の移流が重要になることはなく単位セルを固定したオイラー描像で十分である。一方、高分子流体(応力の緩和時間が $\tau_m$ と同程度かそれ以上の場合)では、一般に、流体要素が流れる途中で分子が経験してきた歪速度の履歴が応力の応答に対して強く影響を及ぼす。よって、それを扱うためには、ミクロな情報の移流を正確に扱えるラグランジュ描像を用いることが本質的に重要となる。(b)は高分子流体の流動様式を平行流に限定した場合の問題、(c)は円柱周りの流れの問題をそれぞれ模式的に表している。(b)の問題では各々の流線に沿って並進対称性があり、図のようにセルを固定したオイラー描像で計算を行っても実質的にはラグランジュ的な描像で解くことと等価であるが、(c)ではそのような対称性がないため、単位セルを流線に沿って移動・回転させながら解くラグランジュ描像が本質的に必要となる。

は複雑流体が障害物の周りを流れる場合(複雑流体の一般的な流れの例)をそれぞれ模式的に表している。ここでいう複雑流体と単純流体は、応力の応答が、流体が過去に受けた歪速度に依存するか、しないかによって分けられている。図1中の立方体の小さな箱は、ミクロレベルのシミュレーションを実行するための単位セルを表し、適度な密度で系全体をびっしりと埋め尽くしている。また、(c)では全ての箱を流れに従って回転・移流させている。これらの箱の中で粒子(原子・分子)描像に基づく分子動力学法を用い、マクロレベルに連続体描像に基づく計算流体力学法を用いて結合させることでマルチスケールシミュレーションを行っている。つまり、マクロな流動を解く際に必要な流動状態と応力との関係を与える構成方程式を一切使わずに、流体中の各点に液体のミクロな状態を解くシミュレーターを埋め込み、応力をその点でのミクロ状態の統計平均(サンプリング)から求めるのである。<sup>3-5)</sup>

従来、メソスケールもしくはマクロスケールの現象を扱う場合には、対象とする空間スケールの現象を物理的に考察し、(i) 微視的世界の中から遅い自由度、あるいは、(ii) 巨視的現象を記述するのに最も適した変数を探し出し、それ以外の自由度を適切な方法(射影演算子の方法、速い自由度の輸送係数等への繰り込み、あるいは物理的考察による直感的方法)により消去することが行われてきた。このような方法がうまくいくのは、ミクロな自由度のダイナミ

クスと適切に選択されたマクロな自由度のダイナミクスとの間の時間スケールが大きく異なり、両者の分離が可能な場合である。この時間スケールの分離は、単純流体に図1(a)のように遅い流動を印加した系で可能である。図1(a)の系を局所サンプリング法により解く場合、過去の流動状態に対する記憶効果が無視できるため、時刻 $t$ 、場所 $\mathbf{r}$ における局所応力 $\sigma$ は、局所的な歪速度テンソル $\dot{\gamma}$ の関数、つまり、次式となる。

$$\sigma(\mathbf{r}, t) = f(\dot{\gamma}(\mathbf{r}, t)). \quad (1)$$

一方、ミクロな状態の緩和速度とマクロスケールの状態変化の速度が同程度で、相互に関連し合いながら時間発展するような場合、前述の局所定常の仮定は成立しない。よってマクロな状態とミクロな状態の変化を同時並行的に考えなければならず、状況はずっと困難になる。高分子流体の流れのように分子変形の緩和時間がマクロな特徴的空間スケールを移動する時間程度である場合がこれに相当する。この場合、ミクロな速い自由度の消去といった解析的なアプローチは有効ではなく、ミクロな状態とマクロな状態を同時に扱い、過去の履歴の扱いを容易にする図1(b)と(c)のような方法を用いたアプローチが必要となる。(b)では高分子液体が1次元な振動剪断流(平行流)中にあるが、この場合は流れの勾配は剪断方向( $y$ )のみに存在し、流動方向( $x$ )には勾配がない。つまり流線の方向( $x$ )に沿って流動状態が同一であるので、局所応力は過去の時間 $t' \leq t$ における固定された場所 $y$ の剪断速度の関数として次のようになる：

$$\sigma(y, t) = F[\dot{\gamma}(y, t'); t' \leq t]. \quad (2)$$

(c)は円柱状の障害物の周囲を流れる高分子液体の場合(一般的な流れの一例)である。この場合は高分子の状態が流れる流線に沿って変化するため、局所応力は、次式のように過去の時間 $t' \leq t$ において高分子が存在した場所 $\mathbf{R}(t')$ で受けた歪速度 $\dot{\gamma}(\mathbf{R}(t'), t')$ の関数となる：

$$\sigma(\mathbf{r}, t) = F[\dot{\gamma}(\mathbf{R}(t'), t'); t' \leq t]. \quad (3)$$

以上から分かるように図1で挙げた系は(a)→(c)の順序で技術的困難度が大きく増加する。

本稿では、上述した図1(c)の場合を具体的に取り上げ、ミクロな自由度とマクロな流動が相互に結合したマルチスケールシミュレーション法を解説する。図1(a), (b)の場合については文献6, 7を参照されたい。

### 3. 高分子流体マルチスケールシミュレーション

#### 3.1 高分子鎖ダイナミクスの基礎

図2(a)のような高分子流体のマクロな流動挙動の予測は、最新の計算機シミュレーション技術を持ってしても容易ではない。なぜなら、マクロな流れがミクロスケールの高分子の状態に非常に強く依存することに加えて、非常に

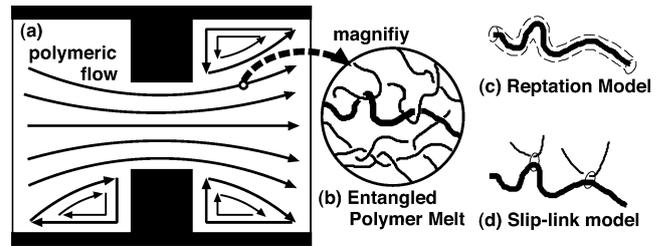


図2 急縮小急拡大路中の高分子溶融体の流動の模式図 (a)、図中の小さな○は、ある流体要素を表しており、その中で高分子同士が互いに絡み合っている様子の模式図を (b) に示す。(c) は、(b) で着目した1本の高分子鎖の運動が仮想的なチューブにより束縛されているレプテーション・モデルを表す。(d) は、同じ高分子鎖に対するスリップ・リンクモデルの模式図を示している。

長い分子長を有する高分子のミクロな状態が非常に複雑で、かつ長い緩和時間を持つためである。つまり、マクロな高分子流動の予測は本質的にマルチスケールの問題であり、マクロとミクロのダイナミクスで時間スケールの分離が可能ではない場合がほとんどである。

高分子溶融体(図2(b))がある分子量以上の高分子からなるとき、高分子は互いに絡み合った状態にあることが知られている。この分子量を絡み合い点間分子量 $M_e$ という。高分子溶融体が $M_e$ より大きな分子量の高分子からなるとき、高分子のコンフォメーション(形状や絡み合いの情報)の緩和時間は希薄系のそれに比べ格段に長くなる。それゆえに、高分子の内部自由度に対して適切な粗視化を行わなければ、ミクロモデルからマクロな流動挙動を予測することは均一な高分子バルク系においてさえ困難である。ド・ジャンらは高分子溶融体中の1本の高分子鎖に注目し、周囲の多数の高分子鎖との絡み合いの効果を仮想的なチューブによる拘束に置き換えたモデル(図2(c))を提案した。高分子鎖の長時間スケールの運動はチューブに沿った運動が本質的であると考え、この運動をレプテーションと呼んだ。そのモデルに基づいてレプテーション理論<sup>8-10)</sup>(土井・エドワーズ理論)が構築され、高分子のミクロモデルから絡み合った単分散の高分子溶融体の複雑なレオロジー挙動を理論的に予測する礎となった。その後、このレプテーション理論はチューブ長の揺らぎやチューブ径の膨張の効果や束縛解放機構などのいくつかの重要な物理機構を導入することによって改良され、非常に多くの実験結果の説明に成功してきた<sup>11-13)</sup>。しかしながら、この理論を任意の分岐構造を有する高分子に適用することは難しい。なぜならレプテーション理論は、チューブセグメントの存在確率に対するフォッカー・プランク方程式によって記述されており、任意の分岐構造の寄与を同方程式に組み込むことは数学的に煩雑で、ほとんど実行不可能だからである。

一方、工学的な観点での高分子溶融体のマクロな流動挙動の予測には、通常、構成方程式を用いた流体シミュレーション法が用いられている。ここでいう構成方程式とは、応力テンソルと歪速度テンソルとを結びつける式で、一般には非線形関数で、物質固有の方程式である。また、式(3)

にあるように過去に流体要素に作用した速度勾配の履歴にも依存する。しかし、構成方程式が与える情報はせいぜいミクロな自由度の統計平均のみであり、ミクロ状態の詳細までは含まれていない。また多くの工学的な問題においては、用いられる構成方程式はミクロレベルから導かれたものではなく、経験的な式が用いられることが多い。レプテーション理論から導かれる構成方程式はミクロな高分子モデルから導かれた式であるが、同じ枠組みで任意の分岐構造を持った高分子の絡み合いを記述できる構成方程式の導出にはまだ誰も成功していない。このことが単純な流動様式においてさえ、工業的に使われているような多分散で多様な分岐構造を有する高分子の応力応答の予測を難しいものになっている。

レプテーション理論の根幹であるチューブや束縛リンク(スリップリング: 2本の高分子対を束縛している輪(図2(d)参照))の概念を取り入れ、複雑な分岐構造を有する高分子のダイナミクスを絡み合い点と絡み合い点間に含まれるセグメント数に対するランジュバン型の確率微分方程式によって記述するモデルの研究が進められている。このアプローチの有利な点は、高分子の幾何学的構造変化や新しい物理機構の方程式への導入が、フォッカー・プランク型の方程式に比べれば容易であるという点にあり、近年、様々な分岐構造や分子量分布を持つ高分子溶液体に応用され、それらのレオロジー特性を定量的に、かつ低計算負荷で予測することに成功している。<sup>14-17)</sup> この低計算負荷という利点は、現実の高分子鎖を「絡み合い点の位置」と「絡み合い点間のセグメント長」という少数の自由度を持ったプリミティブ・パスと呼ばれる仮想的な鎖に粗視化していることに由来している。

このようにバルクの高分子溶液体のレオロジー特性が高精度かつ低計算コストで予測できるようになってきているが、それでもこのモデルだけを用いてマクロスケールの流れを直接シミュレートすることは、数値計算技術と計算コストの両面で非現実的であり、我々が目指している空間的に非一様な流動の予測は不可能である。結論として、現状ではマクロな、あるいはミクロなシミュレーションだけで適用可能な対象はかなり限定されると言わざるを得ない。

### 3.2 高分子鎖の分子論的粗視化モデル(下位階層)

マルチスケールシミュレーションのミクロレベル(下位階層)を担う高分子鎖のダイナミクスには、直感的分かり易さと拡張性の観点から前節で説明したランジュバン型の粗視化モデルを用いる。既存の研究では、比較的短い(つまり高分子同士の絡み合いが無い)鎖からなる高分子溶液の流動挙動の予測に対して、マルチスケールシミュレーション法のアプローチが用いられてきた。そこでは高分子の特徴を最小限まで簡略化したモデルの1つであるダンベルモデル(流体中でストークス抵抗を持つ2つの質点がバネで繋がれたモデル)を用いている。ダンベルモデルが用いられた理由は、(a) 高分子の特徴である粘弾性を示す最も

単純なモデルであるということ、(b) ダンベルに対するランジュバン方程式から等価なフォッカー・プランク方程式と構成方程式が解析的に導けるため、理論との比較による検証が可能であったこと、(c) ダンベル同士に絡み合いがなく、かつ異なるダンベルが互いに相互作用を及ぼすことがないため、ダンベルの大規模な統計集団を計算することが可能なためである。

高分子溶液体では希薄な高分子溶液系とは違い、近隣の高分子同士が絡み合っている。そのため溶液体のダイナミクスは溶液と比べると非常に遅く、適切に粗視化された高分子モデルを用いることが重要となる。絡み合いのある高分子のミクロな状態をシミュレートするためのモデルには、粗視化の程度に応じて、Kremer-Grest粗視化高分子モデル(KGモデル)、<sup>18)</sup> PCN(Primitive Chain Network)モデル、<sup>14)</sup> SL(Slip-Link)モデル<sup>15-17)</sup>などの候補がある。

KGモデル<sup>18)</sup>は、複数のモノマー単位を1つのビーズで置き換え粗視化した高分子モデルであり、通常MDシミュレーションで用いられる。KGモデルでは絡み合い点間のビーズ数が35~100程度であると報告されているので、十分に絡み合った高分子流体を扱うには少なくとも数百~数千ビーズ以上の長さの高分子の運動を長時間計算する必要がある。<sup>19)</sup> 計算に必要な時間は高分子の長さの3乗に比例するので、このモデルを用いて膨大な数の高分子が絡み合う溶液体のシミュレーションを行うことは、計算量の観点からほぼ不可能であることが容易に試算できる。

一方、PCNモデルとSLモデルは空間的に一様な流動を想定したバルクのレオロジー特性の計算に特化したモデルである。PCNモデル<sup>14)</sup>は絡み合い点での力の釣り合いを考慮して、絡み合い点と絡み合い点間にあるセグメント数のダイナミクスを解きレオロジーを計算するモデルである。SLモデル<sup>15,16)</sup>は、PCNモデルで扱っている絡み合い点の力の釣り合いは考慮していないが、仮想的に選んだ高分子鎖のペアを絡み合い点とし、バルクの高分子溶液体のレオロジーを効率よく計算する方法である。SLモデルでは、絡み合い点を表すスリップリングを結ぶボンドベクトルと高分子鎖長(各ボンドベクトルの長さの和)の集合で高分子鎖の状態を表す。1本の高分子上のスリップリングの数(絡み合い点の数)は $Z$ で表され、チューブがその両端でスリップリングから抜けるか、対となっているもう一方の高分子がリンクから抜ける場合に減少し、高分子端の自由なチューブがある長さ以上になったときに増加する。平衡状態では、1本の高分子中の絡み合い点の数 $\langle Z \rangle_{eq}$ は、高分子の分子量 $M$ と絡み合い点間分子量 $M_e$ により $\langle Z \rangle_{eq} = M/M_e$ で表される。マルチスケールシミュレーションでは、上述の全てのモデルをミクロレベルのモデルとして用いることが可能であるが、3.6節の解説ではこのSLモデルを採用している。

### 3.3 ラグランジュ描像による流体力学(上位階層)

マルチスケールシミュレーションの巨視的レベル(上位

階層)を担うのが、流体力学計算である。通常、マクロな流動を解くときは、空間を格子に分割したオイラー的な描像で計算を行う場合がほとんどである(図1(a), (b))。しかし、局所サンプリング法では応力をその点に埋め込まれたミクロな系の自由度の統計平均から求めるので、流体が格子間の距離 $a$ 程度進む時間 $t_a$ より応力の緩和時間が長い場合にはミクロな自由度の情報の移流が非常に重要となり、オイラー描像では支障が出てくる。特に、絡み合いがある高分子溶融体では高分子の絡み合いがほどける時間 $\tau_d$ が、マクロな流れの特徴時間 $\tau$ よりも長い状況( $\tau_d \gg \tau$ )が容易に起こり得るため、マクロな流動をオイラー描像ではなくラグランジュ描像で扱うことが本質的な解決策となる(図1(c))。もしミクロな状態をオイラー描像において移流させなければ、ミクロな自由度で表された物理量の統計的平均量を考え、その量をマクロなレベルで移流させた後で、新しい統計平均量を再現するミクロな状態を逆問題として再構成するような手続きが必要になる。このような方法は、deformation field method<sup>20)</sup>と呼ばれる方法で用いられているが、通常このような統計的な操作を行うと、各高分子鎖上にある絡み合い点の位置などといったミクロな詳細情報は失われる。よって、ミクロな状態の詳細を保ったまま、それらを移流させるには、ラグランジュ描像を用いる以外に有効な手段は今のところない。一般に、マクロスケールの流れ場 $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$ は、時間 $t$ と位置 $\mathbf{r}$ に依存し、速度勾配テンソル $\boldsymbol{\kappa} \equiv \nabla \mathbf{v}$ で表される変形場を引き起こす。時間に依存した変形場は巨視的レベルでの流体要素に、その流線上を流れていく間に流体要素に歪を生じさせ、これがマクロな流動に影響を及ぼすのである。ゆえに、図1(c)のように流体要素の軌跡を追っていきけるラグランジュ流体粒子法が非常に有効であり、その流体粒子の中で絡み合った高分子の遅いダイナミクスを追っていくことができるようになるのである。<sup>21, 22)</sup> また、局所サンプリング法では、マクロレベルと繋ぐ物理量をミクロな自由度の統計平均から求めるので、十分多くのミクロな自由度を扱う必要がある。

### 3.4 下位階層と上位階層の連結

下位階層のスリップリンクは、上位階層の流体力学計算で決まる速度勾配テンソル $\boldsymbol{\kappa}$ によって相対的に流され、その結果チューブの配位は歪められる。高分子鎖のレプテーション運動はスリップリンクの消滅と生成を引き起こす。高分子鎖のコンフォメーションが与えられたとき、応力テンソル $\boldsymbol{\sigma}_p$ は、

$$\sigma_{p\alpha\beta} = \sigma_e \sum_j \langle r_{ja} r_{j\beta} / |\mathbf{r}_j| \rangle / a_s \quad (4)$$

で求められる。ここで $a_s$ はスリップリンクモデルの単位長さ、 $r_{ja}$ は $j$ 番目と $j+1$ 番目のスリップリンク間を結ぶチューブセグメントベクトルの $\alpha$ 成分( $\alpha = \{x, y, z\}$ )を表す。応力の単位 $\sigma_e$ は、平坦弾性率 $G_N$ と $\sigma_e = (15/4)G_N$ の関係<sup>15)</sup>で結ばれている。この平坦弾性率 $G_N$ とは、高分子流体の動的粘弾性測定において、比較的振動数の高い領域でほぼ

一定の値を示す貯蔵弾性率の値である。

スリップリンクモデルは2つの特徴的な時間スケールを持っている。1つはラウス緩和時間 $\tau_R$ でもう1つは最長緩和時間(束縛開放時間) $\tau_d$ である。この2つの特徴時間は $Z$ を用いて、 $\tau_R \propto \langle Z \rangle_{\text{eq}}^2 t_e$ 、 $\tau_d \propto \langle Z \rangle_{\text{eq}}^{3.4} t_e$ と表される。ここで $t_e$ はスリップリンクモデルの時間単位である。チューブの長さの緩和は $\tau_R$ の時間スケールで起こり、チューブの配向の緩和は $\tau_d$ の時間スケールで起こる。これら2つの特徴的な時間は応力緩和の中に見れる。スリップリンクモデルはチューブセグメントの長さ以下のミクロなダイナミクスを無視しているので、マクロスケールでの流体の局所応力 $\boldsymbol{\sigma}$ をスリップリンクモデルからの直接的な寄与 $\boldsymbol{\sigma}_p$ とスリップリンクモデルで無視した $M_e$ より短い高分子からの応力の寄与(ニュートン流体的な寄与を与えると仮定) $\boldsymbol{\sigma}_d = \eta_d \dot{\boldsymbol{\gamma}}$ の和と考えるのが妥当である。ここで $\dot{\boldsymbol{\gamma}}$ は歪速度テンソル $\dot{\boldsymbol{\gamma}} = \boldsymbol{\kappa} + \boldsymbol{\kappa}^T$ である。このようにして下位階層であるSLモデルで局所応力 $\boldsymbol{\sigma}$ を求め、それを上位階層である流体力学計算で用いて流動場を時間発展させると、新しい速度勾配テンソル $\boldsymbol{\kappa}$ が決まる。この一連の操作を繰り返すことで、下位階層と上位階層が矛盾なく相互に連結したマルチスケールシミュレーションを実現する。

流体粒子中に埋め込まれている高分子シミュレーターでは、高分子の全コンフォメーションをマクロスケールで適切な時間ステップ間隔毎 $\Delta t_M$ の時刻で通信し、この情報を次のステップでの初期条件として用いる。既に述べたようにマクロな現象の特徴的時間とミクロなスケールの現象の特徴的時間との間に大きな時間スケールのギャップがある場合(図1(a))には、ミクロな系に局所定常の仮定を適用してよく、各時刻で用いるミクロな系の初期条件に特に気を付ける必要はない。<sup>6)</sup> 一方、時間スケールの分離が十分ではないがまだ大きな差がある場合(図1(b)と(c))、マクロレベルで時間間隔 $\Delta t_M$ だけ時間を進めるとき、ミクロレベルでは、 $\Delta t_M = N \Delta t_m$ のように多くのステップ数 $N (\gg 1)$ の計算が必要である。<sup>7)</sup> しかしながら、ここで用いるスリップリンクモデルは十分に粗視化されているので、ミクロな状態を解くために用いる時間間隔が、マクロな流動を解くのに用いる時間間隔に近い。3.6節で述べる具体例では、マクロなスケールを解く際に用いる時間間隔を、ミクロな系の $\Delta t_m$ と等しく取っている( $\Delta t_M = \Delta t_m$ )。<sup>27)</sup> また、1つの高分子鎖の重心の拡散距離は、今考えている時間スケールでは、マクロな流体を記述する流体粒子のサイズと比較して十分に小さいので、隣り合う流体粒子間での高分子鎖の移動は無視できると仮定する。この仮定の下で、異なる流体粒子中のミクロ系のシミュレーションは独立に計算できることになる。このことは、この計算手法において並列計算が非常に有効であることを意味する。

### 3.5 熱力学との整合性

以上まで大まかに局所サンプリング法を用いた高分子流体のマルチスケール・シミュレーション法について述べた

が、このような異なる階層間を接続するシミュレーション法で用いている枠組みが熱力学的な観点からみたときに矛盾がないか、あるいは、如何に熱力学的な理論体系と整合しているかについての研究も進められている。その1つが GENERIC (General Equation for the Nonequilibrium Reversible-Irreversible Coupling)<sup>23)</sup> と呼ばれる理論形式である。例えば2つの階層をつなぐマルチスケールシミュレーション法があるとき、この理論形式では、全ての階層の全ての自由度  $\mathbf{x}$  に対する運動方程式が

$$\frac{d\mathbf{x}}{dt} = \mathbf{L} \cdot \frac{\delta E}{\delta \mathbf{x}} + \mathbf{M} \cdot \frac{\delta S}{\delta \mathbf{x}}, \quad \mathbf{L} \cdot \frac{\delta S}{\delta \mathbf{x}} = 0, \quad \mathbf{M} \cdot \frac{\delta E}{\delta \mathbf{x}} = 0 \quad (5)$$

の形式で書けることを要請する。<sup>24)</sup> ここで  $E$  と  $S$  は全エネルギーと全エントロピーであり、 $\mathbf{L}$  は反対称行列 ( $\mathbf{L}^T = -\mathbf{L}$ ) で、 $\mathbf{M}$  は正値対称行列である。(5) の第二式の要請は、第一式の運動方程式で  $\mathbf{L}$  と関連した項がエントロピー増大則 ( $dS/dt \geq 0$ ) を保証し、第三式の要請は、運動方程式で  $\mathbf{M}$  と関連した項がエネルギー保存則 ( $dE/dt = 0$ ) を保証する。異なる階層間の結合は、この行列の非対角項中の異なる階層間の自由度を仲介する項により表現される。すなわち、この GENERIC 形式は、全自由度が  $\mathbf{x}$  で表される階層間結合モデルに対して、式(5)を満たす反対称行列  $\mathbf{L}$  と正値行列  $\mathbf{M}$  を構築することができれば、そのモデルは熱力学との整合性を少なくとも担保できていることを保証する。

この解説で述べているマルチスケールモデルは、各々の流体粒子が持つ内部エネルギーの時間発展を考慮すると、先に述べた GENERIC 形式に整合することが確かめられている。<sup>21, 26, 27)</sup> GENERIC 形式は、熱的ゆらぎが重要となる場合に特に有効なものである。もし系内の温度が一定とみなせる場合であれば内部エネルギーの時間変化について考える必要がなくなり、GENERIC 形式にとらわれない、より直感的なモデルを考えることも可能である。

### 3.6 高分子の微視的状態の移流が必要な例題

上述したマルチスケールシミュレーション法の有効性を示すために、絡み合った高分子溶融体の流動履歴が流れ自身に影響を及ぼし、流動の方向に並進対称性のない系を考える。話を簡単にするために、高分子溶融体は温度が一定であり非圧縮流体と仮定する。そのような系の1つとして、円柱周りの高分子流体の流れ(円柱は無限に長く  $z$  方向を向く。流れと圧力勾配の方向は円柱軸に垂直で  $x$  軸の方向)について我々のグループで行った数値計算の結果について紹介する。<sup>27)</sup> 既に述べてきたように、マクロスケールの流れを扱うためにラグランジュ流体粒子を導入し、各流体粒子中にミクロレベルでの高分子鎖のダイナミクスを解くシミュレーションシステム(スリッリンクモデル)を導入する。系の形状の対称性より  $xy$ -平面上の流れの問題として取り扱う。図3(a)に示すように、半径  $r_c = 3a$  の円柱が一辺  $2H = 30a$  の正方形ボックスの中央に配置されている。 $a$  は流体計算での長さの単位で、流体粒子のサイズである。また、全ての流体粒子には質量  $m$  が与えられている。よ

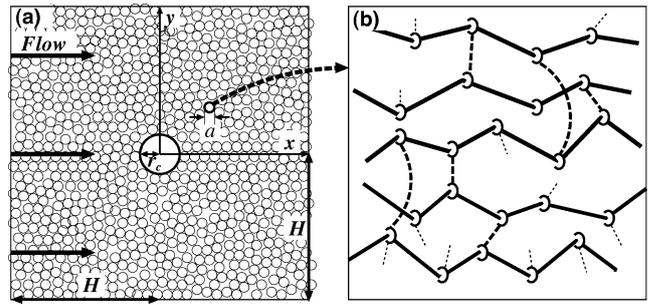


図3 図1(c)の局所サンプリング法を用いた高分子溶融体の流れのマルチスケールシミュレーション。(a)はマクロレベルの流体シミュレーション。半径  $r_c$  の円柱が正方形システム中央に配置され、流体はサイズ  $a$  の多数の流体粒子により表されている。システム境界には周期境界条件が課されている。(b)は、ある流体粒子中の高分子鎖のダイナミクス(ミクロレベル)のシミュレーションの模式図を表す。実線は高分子鎖を表し、鎖に付いている輪は他の高分子鎖との絡み合いを表すスリッリンクである。破線は絡み合い対を表し、太い破線は相手となる鎖が図中にある場合で、細い破線は、この図には書かれていない鎖が相手の場合を表す。全ての流体粒子に、このようなミクロな情報を持たせ、(a)と(b)を相互に連携させながら計算を行う。

って流体の密度は  $\rho = m/a^d$  となる。円柱壁面ではマクロな速度場に滑りなし境界条件が課されており、システム境界には周期境界条件が課されている。高分子溶融体の流体粒子は、各高分子鎖が平均で  $\langle Z \rangle_{\text{eq}} = 7$  の絡み合い数を有する単分散の線形高分子から構成されているとする(図3(b))。流体を構成している  $i$ -番目の流体粒子の方程式は

$$\rho_i \frac{d\mathbf{v}_i}{dt} = \nabla \cdot \boldsymbol{\sigma}_i - (\nabla p)_i + \mathbf{F}_b, \quad \frac{d\mathbf{r}_i}{dt} = \mathbf{v}_i \quad (6)$$

で与えられる。ここで  $\mathbf{F}_b$  は体積力、 $(\nabla p)_i$  は  $i$ -番目の粒子位置での圧力勾配であり、流体の非圧縮性を保証する。応力項を除く、式(6)中の他の全ての変数は、マクロレベルで求めることができる。この局所的な応力テンソルは、ミクロな自由度、すなわち、その流体粒子の位置  $\mathbf{r}_i$  での歪速度の下での高分子の絡み合い状態を表している変数の統計平均(式(4))を用いて  $\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\sigma}_p + \boldsymbol{\sigma}_d$  により計算される。この流れ問題のコントロールパラメータはレイノルズ数  $\text{Re} = \rho \bar{v} r_c / \eta_0$ 、ワイゼンベルグ数  $\text{Wi} = \tau_d \dot{\gamma}_{xy}$ 、( $\dot{\gamma}_{xy}$  は歪速度テンソル  $\boldsymbol{\gamma}$  の  $xy$  成分) 粘度比  $\eta_d / \eta_0$  ( $\eta_0 = \eta_d + \eta_{p0}$ ) の3つである。ここで、 $\bar{v}$  は平均流速、 $\eta_0$  は高分子溶融体のゼロ剪断粘度、 $\eta_{p0}$  はスリッリンクモデルの高分子溶融体のみからなる流体のゼロ剪断粘度である。絡み合い以下の高分子の効果も取り入れたバルクの数値計算から、この高分子溶融体のゼロ剪断粘度  $\eta_0$  と最長緩和時間  $\tau_d$  は  $\eta_0 = 19.4 t_c \sigma_c$  と  $\tau_d = 200 t_c$  である。この円柱の周りで流体粒子は、その流線に沿った位置に応じた歪速度を経験するので、高分子の分子形態は円柱に対して上流側と下流側で非対称となる。これらの2つの領域にいる高分子の形態の差は、式(4)を介してマクロスケールでの応力の分布として観測される。ここで紹介する計算では、約1,000個の流体粒子が、初期状態として系中にほぼ一様に配置され、その流体粒子1つ1つに10,000本の高分子鎖<sup>28)</sup>を有するミクロな系が埋めこまれており、流体粒子は式(6)に従って運動する。つまり、1千万本の

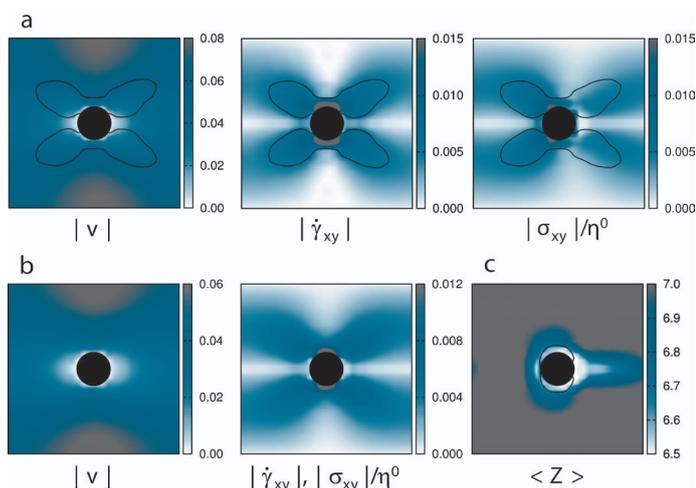


図4 円柱障害物の周りの (a) 高分子溶融体 ( $Z_{\text{eq}}=7, \eta_d/\eta_0=0.1$ ) と (b) ニュートン流体 ( $\eta_0=\eta_d$ ) の定常状態での2次元流れ。それぞれ、速度場の大きさ  $|v| [a/t_c]$ 、歪速度の  $xy$  成分の大きさ  $|\dot{\gamma}_{xy}| [1/t_c]$  とゼロ剪断粘度で規格化した剪断応力  $|\sigma_{xy}|/\eta_0 [1/t_c]$  を示す。(c) は (a) 高分子溶融体中での絡み合い数  $Z$  の空間分布である。(a) での黒の実線の内側は  $Wi \geq 1$  を、(c) では  $\tau_R \dot{\gamma} \geq 1$  が成り立つ領域を表している。ここで  $\dot{\gamma} \equiv \sqrt{\text{Tr}(\boldsymbol{\kappa}^T \cdot \boldsymbol{\kappa})}$  である。(EPL の許諾を得て掲載。)

高分子鎖の運動を同時に解くことになる。

この系に体積力  $\mathbf{F}_b/(\eta_0/at_c) = (5 \times 10^{-4}, 0)$  を印加すると、高分子溶融体の流れは約  $500t_c$  後には系は定常状態に達し、系の平均速度は  $(5.5 \times 10^{-2}, 0) [a/t_c]$  ( $\text{Re}=0.2$ ) となる。図4(a) にこの高分子溶融体の定常状態での流れの様子を、また、比較のために (b) に  $\eta_d$  の粘度を持つニュートン流体の場合の結果を示す。この条件下では流れはどちらも層流で円柱の上流と下流側で速度の大きさ  $|v|$  は対称となる。一方、図4から分かるように高分子溶融体の流れでは、応力  $\sigma_{xy}$  は上流と下流側で明らかな非対称性を示す。一般的に、粘弾性応力は、式(3)で示されているように剪断速度  $\dot{\gamma}_{xy}$  の履歴が影響する。また、マクロなスケールの流動場に依存する絡み合い点数  $\langle Z \rangle$  の空間分布を得ることができる。このような高分子の絡み合い量というミクロな詳細と関係した量のマクロスケールでの空間分布は、マルチスケールシミュレーションのみで可能であり、我々のグループで初めて示されたものであることを強調しておきたい。図4(c) から分かるように、絡み合いの数は円柱の周りでは若干減少する。これは、 $\tau_R \dot{\gamma} > 1$  の時(図4(c)の黒い実線の内側、ここで  $\dot{\gamma} \equiv \sqrt{\text{Tr}(\boldsymbol{\kappa}^T \cdot \boldsymbol{\kappa})}$  である)、高分子鎖のプリミティブパスは非常に強く引き伸ばされ、 $\langle Z \rangle_{\text{eq}}$  よりも長く引き伸ばされた高分子は容易に収縮し、それが絡み合いの解消を引き起こすためである。また、円柱のちょうど上流側と下流側でも  $\langle Z \rangle$  の減少が見られるが、これは有限の  $|\dot{\gamma}_{xy}|$  のためである。流体の移流は下流側で  $\langle Z \rangle < \langle Z \rangle_{\text{eq}}$  の領域を広げる働きをする。この下流側の広がりはおおよそ  $\tau_R |v| (\sim r_c)$  程度であると見積もられる。

以上のように、応力の計算に構成方程式を用いることなく、流体粒子に埋め込まれたミクロな高分子モデルのダイナミクスを直接解くことで局所応力を求め、それに従って

マクロな流動をラグランジュ的に時間発展させるマルチスケールシミュレーションが十分実用的であることを今回の結果は示している。この方法は任意の流れについて適応可能であり、現在、工学的に重要な、より複雑な3次元流れに対する応用研究を進めている。

#### 4. まとめと将来展望

本解説で取り上げた高分子液体のマルチスケールシミュレーション法では、高分子鎖のコンフォメーションの詳細情報を流体粒子の中に保持し、それを自然に移流させるラグランジュ粒子法を用いることで、従来のオイラー描像を用いたマルチスケールシミュレーション法で直面していた「相関の強いミクロな自由度の移流の問題」を解決することができた。さらに、ミクロスケールの内部状態が経験する変形速度の履歴に由来するメモリー効果を記述することにも成功した。この方法では、ミクロな高分子モデルとしてスリップリンクモデルが使われているが、他の粗視化モデルに入れ替えることも容易である。例えば、線形あるいは分岐構造を持つ高分子や、そのブレンド、そして、分子量分布を持つ高分子を扱える粗視化されたミクロなモデルに置き換える、もしくは、将来提案される他の有効なモデルに置き換えれば、特に大きな変更なしに、様々な高分子溶融体に应用可能である。大規模数値計算において並列計算が主流になりつつある現在、このマルチスケールシミュレーション法は、材料設計の観点から必要な性質を持つ新しい材料を開発するという逆問題にも有効である。

一方、各階層の現象を有効に説明する新しい物理モデルの構築とミニマム化(数値計算的観点での軽量化)は常に重要である。階層間を繋ぐことが本質的に重要でない問題については、このようなヘビーな計算を伴うマルチスケールシミュレーションを使う積極的な動機はない。また、問題によっては(1)パラメータ連結、あるいは(2)領域分割の方法がより有効である場合も多いであろう。いずれにせよ、各階層のモデルを適切に連携/統合するマルチスケールシミュレーションのアプローチは、我々に新しい物理学的洞察をもたらし、学問体系そのものをより富んだものにする確信する。

本研究で開発されたマルチスケールシミュレーション法は、通常の分子動力学法とは異なり、膨大な計算ユニットを持つコンピューターとの相性が極めて高いというユニークな特徴も持っている。これは、計算負荷の最も高い分子動力学法による計算部分が各計算点で独立であるため、計算の並列実行が容易であることに起因する。この方法を「京」のような膨大なCPUを持つコンピューターや、大規模なGPGPU (General-purpose computing on graphics processing units; GPUによる汎目的計算)を用いることにより<sup>29,31)</sup> 数年内に分子数が100億個にも達する世界最大規模の分子動力学シミュレーションを実現することができると思われる。近い将来、これまで有効なシミュレーショ

ンを行うことが難しかった大規模な流動・変形現象を伴う機能性材料の製造プロセスをまるごと解析するといった、理論や実験では全く歯が立たない未開拓の問題へのアプローチが可能となるだろう。

本研究は科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 (JST-CREST)/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領域「ソフトマターの多階層/相互接続シミュレーション」の一環として行われた。本稿で紹介した具体的な例題については、村島隆浩氏と安田修悟氏の貢献が最も大きい。畝山多加志氏、増渕雄一氏、泰岡顕治氏をはじめとするCREST実施メンバーの多大な貢献にも感謝したい。

## 参考文献

- 1) 土井正男: 日本物理学会誌 **50** (1995) 295; 同 **59** (2004) 84; 兵頭志明, 土井正男: 高分子論文集 **67** (2010) 164.
- 2) 第一原理分子動力学法では、与えられた原子配置について電子の波動関数を量子力学によって計算し、原子間に働く力を求め、その力を用いて原子の運動を古典的分子動力学法によって解く。
- 3) M. Laso and H. Öttinger: *J. Non-Newton. Fluid Mech.* **47** (1993) 1.
- 4) M. A. Hulsen, A. P. G. van Heel and B. H. A. A. van den Brule: *J. Non-Newton. Fluid Mech.* **70** (1997) 79.
- 5) P. Halin, *et al.*: *J. Non-Newton. Fluid Mech.* **79** (1998) 387.
- 6) S. Yasuda and R. Yamamoto: *Phys. Fluids* **20** (2008) 113101.
- 7) S. Yasuda and R. Yamamoto: *Europhys. Lett.* **86** (2009) 18002; *Phys. Rev. E* **81** (2010) 036308; *Phys. Rev. E* **84** (2011) 031501; 安田修悟, 山本量一: 分子シミュレーション研究会誌アンサンブル **13** (2011) 105.
- 8) S. F. Edwards: *Proc. Phys. Soc.* **92** (1967) 9.
- 9) P. G. de Gennes: *J. Chem. Phys.* **55** (1971) 572.
- 10) M. Doi and S. F. Edwards: *The Theory of Polymer Dynamics* (Oxford Univ. Press, 1986); 土井正男: 日本物理学会誌 **42** (1987) 333.
- 11) D. W. Mead, R. G. Larson and M. Doi: *Macromolecule* **31** (1998) 7895.
- 12) G. Ianniruberto and G. Marrucci: *J. Rheol.* **45** (2001) 1305; G. Ianniruberto and G. Marrucci: *J. Non-Newton. Fluid Mech.* **102** (2002) 383.
- 13) A. E. Likhtman and R. S. Graham: *J. Non-Newton. Fluid Mech.* **114** (2003) 1.
- 14) Y. Masubuchi, *et al.*: *J. Chem. Phys.* **115** (2001) 4387.
- 15) S. Shanbhag, *et al.*: *Phys. Rev. Lett.* **87** (2001) 195502.
- 16) M. Doi and J. Takimoto: *Phil. Trans. R. Soc. A* **361** (2003) 641.
- 17) A. E. Likhtman: *Macromolecule* **38** (2005) 6128.
- 18) K. Kremer and G. S. Grest: *J. Chem. Phys.* **92** (1990) 5057.
- 19) A. E. Likhtman, S. K. Sukumaran and J. Ramirez: *Macromolecule* **40** (2007) 6748.
- 20) A. P. G. van Heel, M. A. Hulsen and B. H. A. A. van den Brule: *J. Rheol.* **43** (1999) 1239; E. A. J. F. Peters, *et al.*: *J. Rheol.* **44** (2000) 811; M. A. Hulsen, E. A. J. F. Peters and B. H. A. A. van den Brule: *J. Non-Newton. Fluid Mech.* **98** (2001) 201.
- 21) M. Ellero, M. Kröger and S. Hess: *J. Non-Newton. Fluid Mech.* **105** (2002) 35; M. Ellero, P. Español and E. G. Flekkøy: *Phys. Rev. E* **68** (2003) 041504.
- 22) T. Murashima and T. Taniguchi: *J. Polym. Sci. B* **48** (2010) 886.
- 23) M. Grmela and H. C. Öttinger: *Phys. Rev. E* **56** (1997) 6620; H. C. Öttinger and M. Grmela: *ibid.* **56** (1997) 6633.
- 24) 熱揺動の寄与も入れて式(5)を確率微分方程式とした形式が現在は主流であるが、分かりやすくするために熱揺動項の無い初期の形式で説明している。熱揺動を入れた形式については、文献21, 25, 26を参照されたい。
- 25) H. C. Öttinger: *Beyond Equilibrium Thermodynamics* (Wiley-Interscience,

2005).

- 26) A. Vázquez-Quesada, M. Ellero and P. Español: *Phys. Rev. E* **79** (2009) 056707.
- 27) T. Murashima and T. Taniguchi: *Europhys. Lett.* **96** (2011) 18002; 村島隆浩, 谷口貴志: 分子シミュレーション研究会誌アンサンブル **13** (2011) 118.
- 28) 1流体粒子当りの高分子数が $10^3$ 以上であれば、実験的に可能な剪断速度領域での剪断及び伸長レオロジー挙動を再現するのに十分であることを確認している。
- 29) T. Narumi, *et al.*: *Int. J. Comp. Methods* **8** (2011) 561; 坂牧隆司, 成見 哲, 泰岡顕治: 情報処理学会論文誌コンピューティングシステム **2** (2009) 89.
- 30) T. Hamada, *et al.*: *Proc. SC2009* (Portland, USA, 2009).
- 31) T. Uneyama: *Nihon Reoroji Gakkaishi (J. Soc. Rheol. Japan)* **39** (2011) 135; 畝山多加志: 分子シミュレーション研究会誌アンサンブル **13** (2011) 112.

## 著者紹介



谷口貴志氏: ソフトマターの物理, 特に高分子系及び多成分脂質二重膜の物理に興味がある。



山本量一氏: 専門はソフトマターの計算科学, 科学と工学の境界領域など, 人があまり本気でやらないところを突き詰めた。

(2011年11月7日原稿受付)

## Multiscale Simulations for Soft Matters

Takashi Taniguchi and Ryoichi Yamamoto

abstract: Multiscale simulation methods have been developed based on the local stress sampling strategy and applied to three flow problems with different difficulty levels: (a) general flow problems of simple fluids, (b) parallel (one-dimensional) flow problems of polymeric liquids, and (c) general (two- or three-dimensional) flow problems of polymeric liquids. In our multiscale methods, the local stress of each fluid element is calculated directly by performing microscopic or mesoscopic simulations according to the local flow quantities instead of using any constitutive relations. For general (two- or three-dimensional) flow problems of polymeric liquids (c), it is necessary to trace the history of microscopic information such as polymer-chain conformation, which carries the memories of past flow history, along the streamline of each fluid element. A Lagrangian-based CFD is thus implemented to correctly advect the polymer-chain conformation consistently with the flow. On each fluid element, coarse-grained polymer simulations are carried out to consider the dynamics of entangled polymer chains that show extremely slow relaxation compared to microscopic time scales. This method is successfully applied to simulate a flow around a cylindrical obstacle.