

令和 4 年 6 月 28 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H01858

研究課題名(和文) 高分子/界面活性剤系の複雑流動の大規模マルチスケールシミュレーション

研究課題名(英文) Multiscale Simulations on Complex Flows in Polymer/Surfactant Systems

研究代表者

川勝 年洋 (Kawakatsu, Toshihiro)

東北大学・理学研究科・教授

研究者番号：20214596

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：血流に代表される界面活性剤膜から構成されるベシクルを分散した液体の流動は、典型的なマルチスケールの現象であり、異なる方法論の融合によるマルチスケールシミュレーションの格好のターゲットとなる。本研究では、マクロな流動には流体粒子法(SPH法)を用い、各流体粒子にミクロな分子モデルを内包させることで、膜面上での界面活性剤分子の流動と拡散によって引き起こされるマランゴニ流動と、それに伴うベシクルの変形をシミュレートした。我々の方法では、界面の追跡、流体-弾性体膜の複合計算、拡散現象と流動のマルチスケール計算のそれぞれを組み合わせることで、境界面の変形を伴う複雑な流動を再現することに成功している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題で開発した方法論は、粒子法を用いたマクロな流体力学とミクロな分子の拡散現象を同時並列に扱うマルチスケールシミュレーションである。このような方法論の開発は、アприオリにマクロな力学特性が与えられていない複雑流動を解析する際の有力な方法論となりえる。また、本研究では特に膜面上で界面活性剤のような物質が拡散・流動を行う現象を解析しており、内部に微細構造を持つ構造体の変形と流動の定量的な予測に役立つ方法論を与える。

研究成果の概要(英文)：Complex flows in a fluid with dispersed amphiphilic membranes (such as vesicles) are typical examples of target phenomena of multiscale simulations. We developed a multiscale simulation method, where the macroscopic flow is described by smoothed particle hydrodynamics (SPH) method, while the migration and diffusion of amphiphilic molecules on the vesicle membrane are simulated by microscopic molecular models embedded in each of the SPH particles. With this formulation, we could simulate Marangoni flows coupled with the deformation of the vesicle. In this methodology, we succeeded in reproducing complex flow and deformation of vesicle by a combination of 3 techniques, i.e. tracing the membrane surface, parallel computation of flow and elastic deformation of the membrane, and the diffusion of amphiphilic molecules on the membrane surface.

研究分野：計算物理学

キーワード：マルチスケールシミュレーション 粘弾性流動 ベシクル 流体粒子法

## 1. 研究開始当初の背景

血流のような界面活性剤膜の作る小胞(ベシクル)の集団を含む細孔(血管)内での流動やファイラー等の多数の分散粒子を含む高分子流体のようなソフトマター系の混相流動は、非線形の粘弾性特性や弾塑性特性を示す典型的な複雑流体である。このような流体の特徴は、マクロな流動のスケールと、分散粒子の持つメソスケールの構造と運動が共存するというマルチスケールの物理が重要となる点にあり、種々のモデル化が試されてきた。本課題では、このマルチスケールの物理の考察をさらに進めて、マルチスケールの各階層での機能性が互いに協奏することで、全体の機能を如何に発現するのかという点を、大規模計算機シミュレーションを用いた複雑流動解析の観点から明らかにする。

## 2. 研究の目的

本研究課題では、高分子と界面活性剤の関与するソフトマター流体系の持つメソスコピック構造とその動力学が作り出す階層的なスケールでの機能の協奏現象を対象として、大規模シミュレーションによってマクロ機能の発現機構をミクロなスケールから解明することを目的とする。対象とする系は、狭窄空間中(血管)を流動するベシクル(赤血球)の集団などである。

ベシクルを分散させた溶媒の流動をシミュレートする場合には、流動場を流体力学を用いてシミュレートするのみならず、ベシクルの大変形とベシクル膜上での物質拡散、多数のベシクルの凝集状態の変化、流体を内包する容器(血管に相当)の脈動変形など、数多くのスケールでの変形と流動が同時にカップルする現象をマルチスケールのモデルを用いて考慮する。このような現象においては、流動とともに変形が生じることから、空間に固定された座標系で系を記述するオイラー描像よりも、流体の流れに乗った座標系で系を記述するラグランジュ描像の方が適している。そのようなラグランジュ描像に基づくマルチスケールのシミュレーションの場を与える枠組みとして、代表者らが開発してきたマルチスケール流動シミュレーション用プラットフォーム(Multi-Scale Simulation Platform for complex flows: MSSP)を用いる。このプラットフォームでは、マクロな流体の流動をラグランジュ描像に基づく粒子シミュレーション(Smoothed Particle Hydrodynamics; 以下 SPH と略す)を用いてシミュレートし、各粒子にミクロなシミュレータ(例えば分子動力学シミュレータ)を接続することで、マクロとミクロを同時に解いてゆく。

本研究計画においては、このような MSSP の手法を用いて、界面活性剤の作るベシクルやファイラーが分散した高分子系の流動をマルチスケール・シミュレーションで解析することで、複数の階層にまたがる機能の相関の効果を見出す。

## 3. 研究の方法

本研究課題では、マクロ流動をシミュレートする MSSP と、界面活性剤膜の内部状態を記述するミクロシミュレータの開発を並行して行う。ここで、従来開発してきた MSSP と、本研究課題の対象とする膜構造とではミクロシミュレータのカバーする長さ領域が異なるために、従来の MSSP を適切に修正し、拡張することが必要である。

界面活性剤が形成するベシクル等の自己組織構造体の流動計算には、構造体のサイズに比べて十分薄い界面を安定に構成し、その表面にはたらく力、具体的には界面張力と界面活性剤の濃度勾配によるマランゴニ力を時々刻々の系の状態に応じてその場で計算する必要がある。この力の計算は、各 SPH 粒子に埋め込まれたマイクロシミュレータが担う。

このような、マルチスケール性をともなった粒子計算をおこなうために、シミュレーション全体を3つのパートに分割し、各々の単独計算をおこない計算スキーム等の確認を行った後に、全体を1つのシミュレーションとして組みあげた。

#### 4. 研究成果

我々は、変形する膜面の境界条件を正しく取り入れる手法の開発のために、まずは気液の自由表面を例にとって、そこにはたらく表面張力の計算をおこなった。この目的のために、SPH法をもちいて自由界面を表現する新規アルゴリズムを作成し、安定性解析をおこなった。図1に示すのは、2つの液滴の衝突による大変形後の自由界面の運動の様子である。正しく自由界面が再現できていることが確認できる。

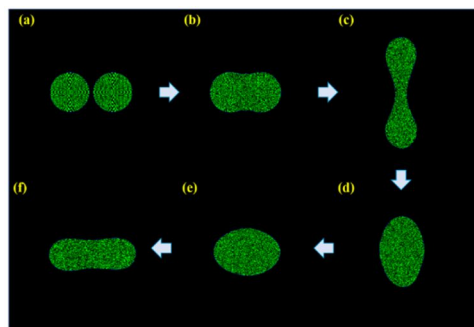


図1 液滴の衝突と振動

次に、血流等の、より複雑な流動を計算するために、チャンネル流におけるベシクル(弾性膜で覆われた液滴)の変形のシミュレーションをおこなった。液滴の表面は、赤血球等の脂質二乗膜構造を想定した流体-薄い弾性体-流体の3層からなる多層構造で表現されている。ここで、薄い弾性体膜の表面に接した流体領域には自由表面に対する表面張力のアルゴリズムを適用し、弾性体膜の弾性力と表面張力の計算をおこなうことでベシクルの変形過程を計算した。図2はチャンネル内部での一様流動中でのベシクルの変形・流動の時間発展である。ベシクルの周りの流体には流れがわかりやすいように色をつけている。ベシクルは流動とともに変形しながら流れ、周りの流体を巻き込み、回転しながら流れていることがみとれる。

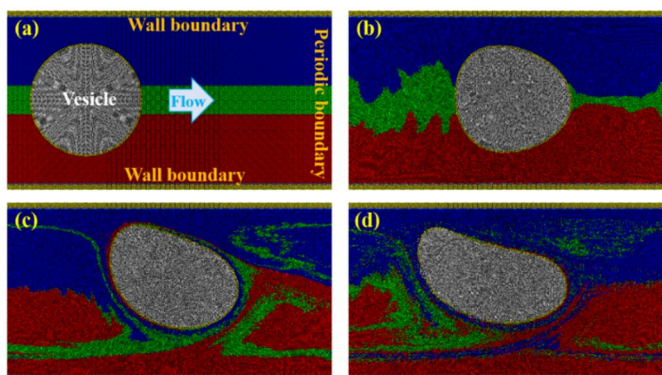


図2 チャンネル流内のベシクルの流れと変形

張力のアルゴリズムを適用し、弾性体膜の弾性力と表面張力の計算をおこなうことでベシクルの変形過程を計算した。図2はチャンネル内部での一様流動中でのベシクルの変形・流動の時間発展である。ベシクルの周りの流体には流れがわかりやすいように色をつけている。ベシクルは流動とともに変形しながら流れ、周りの流体を巻き込み、回転しながら流れていることがみとれる。

最後に、界面活性剤の拡散によるマランゴニ力と表面張力を評価することで、ベシクルの変形の計算をおこなった。ここでは、界面上での界面活性剤の拡散による濃度不均一性による拡散と流体の流動との連成計算をおこなっている。本計算では、界面活性剤の空間分布は、単純なスカラー量で表現している。図3は界面活性剤をもちいた液滴の分裂過程のシミュレーションである。界面活性剤

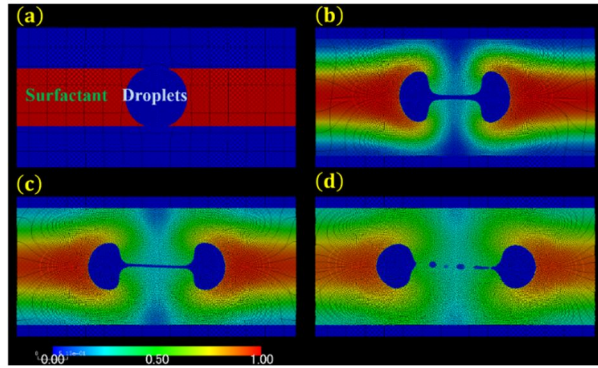


図3 マランゴニ効果によるベシクルの分裂

によるマランゴニ力によって、ベシクルが引き延ばされ切断される状態が見て取れる。ベシクルの形状は、膜面にはたらく表面張力と流動による力のつり合いで定まるため、この計算は流体と界面活性剤の複合的なマルチスケール計算となっている。

以上で述べたように、本研究では、界面の追跡、流体 - 弾性体膜の複合計算、拡散現象と流動のマルチスケール計算のそれぞれをまず単独で実行し、検証したのちに、これらの各スキームを統合し、複合マルチスケール計算を実行することで、マランゴニ力の影響下でのベシクルの変形・融合・分裂の過程をシミュレートできることが示された。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yohei Morii and Toshihiro Kawakatsu	4. 巻 33
2. 論文標題 Lagrangian multiscale simulation of complex flows	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Phys. Fluids	6. 最初と最後の頁 093106-1-16
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0063059	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shun Imamura and Toshihiro Kawakatsu	4. 巻 44
2. 論文標題 Modeling of chemically active particles at an air-liquid interface	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Euro. Phys. J. E	6. 最初と最後の頁 127-1-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1140/epje/s10189-021-00132-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yoshinori Tomiyoshi, Toshihiro Kawakatsu, Takeshi Aoyagi, and Hiroshi Morita	4. 巻 4
2. 論文標題 Rheological Properties of Lamellae-Forming Diblock Copolymers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Adv. Theory Simul.	6. 最初と最後の頁 2100097-1-11
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/adts.202100097	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 7件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 川勝年洋
2. 発表標題 不均質高分子系のマルチスケール流動シミュレーション
3. 学会等名 第49回産協セミナー「マルチスケール・連成解析の技術展望と適用事例」（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yutaka Oya, Yoshinori Tomiyoshi, Toshihiro Kawakatsu, and Tomonaga Okabe
2. 発表標題 Coarse-Grained Simulations on Reaction-Induced Phase Separation
3. 学会等名 SmaSys 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 川勝年洋
2. 発表標題 高分子多相系の構造形成と流動の粗視化シミュレーションの基礎
3. 学会等名 第25 回高分子計算機科学研究会講座「理論・シミュレーションの基礎」(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Youhei Morii and Toshihiro Kawakatsu
2. 発表標題 Multiscale Simulation Methods in Complex Fluids
3. 学会等名 10th International Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science (ACCMS-10) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 森井洋平、川勝年洋
2. 発表標題 高分子を含む複雑流動のマルチスケールシミュレーション
3. 学会等名 第68回高分子討論会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yutaka Oya, Naofumi Umemoto, Tomonaga Okabe, and Toshihiro Kawakatsu
2. 発表標題 Density functional theory for inhomogeneous polymer-composite materials
3. 学会等名 International Workshop on Application of Materials Integration for CFRP (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 森井洋平、川勝年洋
2. 発表標題 複雑流動のマルチスケールシミュレーション
3. 学会等名 セミナーシリーズ「スパコンプロフェッショナルNo.24」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 川勝年洋
2. 発表標題 マルチスケール流動シミュレーション用プラットフォーム(MSSP)の開発、および、複雑流動のシミュレーション
3. 学会等名 第9回材料系ワークショップ ~「富岳」で飛躍へ! 経緯さんデータの価値~
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	今井 正幸  (Imai Masayuki)  (60251485)	東北大学・理学研究科・教授   (11301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------