

jh160010-NAH

計算科学による大規模ナノ粒子創製プラズマ研究の新展開

茂田 正哉（大阪大学 接合科学研究所）

概要 スーパーコンピュータの高い性能を活かし、マイクロ～ミリメートルに渡る空間的マルチスケールの乱流渦に支配される熱プラズマの複雑流動およびナノ～ミリ秒に渡る時間的マルチスケールの形成過程が重畳したナノ粒子の集団的成長を数学表現した方程式系を数値的に解くことで、エネルギー・物質輸送現象のマルチフィジクスを解明するという計算科学に立脚した大規模ナノ粒子創製プラズマ研究の新機軸を打ち出す。512 ノードを使用した MPI 並列により、アルゴンプラズマジェットが非電離状態のアルゴン中へ噴出しながら複雑な熱流動場を形成し、その中で均一核生成・不均一凝縮・粒子間凝集という 3 つの過程を経て単成分のナノ粒子群が生成・輸送される過程の非定常 3 次元数値シミュレーションを実現した。また多成分系ナノ粒子群については粒度分布空間（粒子サイズ・組成・粒子数の 3 軸を持つ陰的な空間）モデルによる数値予測が実現しているが、1 次元計算に留まっているため、今後は 3 次元プラズマ流動計算モジュールとの組み合わせが期待される。

1. 共同研究に関する情報

(1) 共同研究を実施した拠点名

東北大学

(2) 共同研究分野

- 超大規模数値計算系応用分野
- 超大規模データ処理系応用分野
- 超大容量ネットワーク技術分野
- 超大規模情報システム関連研究分野

(3) 参加研究者の役割分担

茂田 正哉（大阪大学）：

数理モデリングとコード開発

江川 隆輔（東北大学）：

コードの並列化および最適化

小松 一彦（東北大学）：

コードの並列化および最適化

2. 研究の目的と意義

ナノ粒子はマクロサイズの方法とは異なる新奇的な物質機能を示すため、高温熱発電用材料・ドラッグデリバリー用材料・DNA 検知プローブ用材料・太陽光パネル材料・排気ガス浄化触媒などへの応用が期待されており、工学・医療（バイオ）・環境科学等の分野の発展のために粒径や組成が制御されたナ

ノ粒子の高速かつ大規模な創製プロセスの開発が急務である。大規模創製の実現に向けて現在最も有力視されているものが熱プラズマという高エンタルピー・化学的高活性を有する特殊な電磁熱流体である。しかしながら、熱プラズマは強い発光を伴う 1 万°C を超える流体であり、その中でのナノ粒子形成は瞬時に完了してしまうため、実測による定量評価は困難で、エンジニアの経験に頼りながら莫大な時間とコストを掛けて研究開発しているのが現状である。

そこで本研究では、スーパーコンピュータの高い性能を活かし、マイクロ～ミリメートルに渡る空間的マルチスケールの乱流渦に支配される熱プラズマの複雑流動およびナノ～ミリ秒に渡る時間的マルチスケールの形成過程が重畳したナノ粒子の集団的成長を数学表現した方程式系を数値的に解くことで、時間・3次元空間・粒子サイズ・組成・粒子数のマルチディメンションのエネルギー・物質輸送現象を解明するという当該分

野において誰も成し得ていない、計算科学に立脚した大規模ナノ粒子創製プラズマ研究の新機軸を打ち出すことを目的とする。

熱プラズマを利用した大規模ナノ粒子創製プロセスに関する研究は世界各地で精力的に行われているが（例えば EU における国際プロジェクト SIMBA (Scaling-up of ICP technology for continuous production of Metallic nanopowders for Battery Applications) 等）、様々な物理が複雑に重畳しているために、ほとんどは実験的な研究を闇雲に行っているのみで、現象の本質的な理解には到底至っていない。そこで理論および数値計算に基づく研究アプローチが有用となるが、モデリングの困難さ故に、過剰に簡略化されたモデルを用いた小規模計算しか行われていないのが現状である。すなわち本研究課題で計画しているような、より正確な数理モデルの構築およびスーパーコンピューターを用いた大規模計算による現象解明と最適化指針の提案は世界初の試みであり、当該分野における研究アプローチの新展

開として極めて大きな学術的意義を有する。さらに最終目標であるプロセスシミュレーター（仮想実験装置）の実現によってナノ粒子の創製コスト・工程が大幅に低減・短縮し、「ものづくりのブレークスルー」として工学の進展に寄与するだけでなく、医療（バイオ）分野および環境科学分野の発展の一助となることも本研究の意義である。

3. 当拠点公募型共同研究として実施した意義

本研究対象は、マイクロ～ミリメートルの熱プラズマ乱流渦の空間的マルチスケール性とナノ～ミリ秒のナノ粒子集団形成の時間的マルチスケール性に加えて、3次元実空間の各座標点上で個々に粒度分布空間（粒子サイズ・組成・粒子数の3軸を持つ陰的な空間）が定義されるマルチディメンション問題であるため、工学的に意義のある時空間規模のシミュレーションを行うためには、スーパーコンピューターのメモリ性能と演算性能が必要不可欠である。また、特に熱プラズマの流体計算モジュールでは、演算性能とバラ

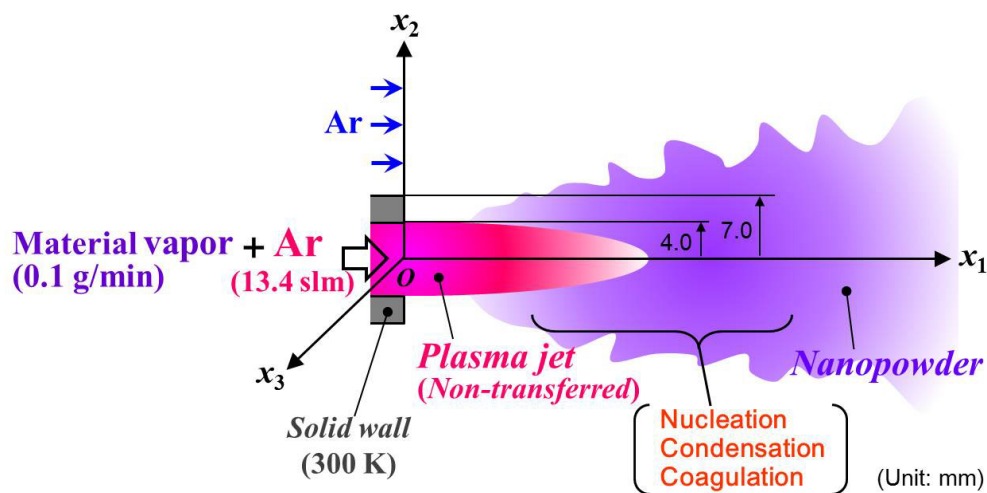


Fig. 1 Schematic illustration of nanopowder fabrication using a thermal plasma jet.

ンスの取れた高いメモリバンド幅を有する SX-ACE を利用することが極めて有効な研究遂行手段となる。以上が当拠点公募型共同研究として実施した意義である。

4. 前年度までに得られた研究成果の概要

該当せず。

5. 今年度の研究成果の詳細

Fig. 1 に本研究対象の系の概略図を示す。内径 4.0 mm, 外径 7.0 mm のノズルから約 12,000 K のアルゴンプラズマジェットが流量 13.4 Sl/min で 300 K・大気圧の非電離アルゴン雰囲気との計算領域へ噴出する。このアルゴン

プラズマ中にはナノ粒子の前駆体となる原料蒸気が混入されており, その供給率は 0.1 g/min とした。原料蒸気は対流および拡散によって輸送されるが, プラズマと非電離気体の境界領域でその温度が低下し, 過飽和状態となる。過飽和状態の原料蒸気は均一核生成・不均一凝縮・粒子間凝集という 3 つの過程を経てナノ粒子の集団へと相を変える。

本計算は共同研究の課題である計算コードの並列化によって, 512 ノードを使用した MPI 並列で実現することができた。また SX-ACE の高いメモリバンド幅を有効活用するために, 指示行の追加による依存関係解消, 作業配列の活用によるロード数の削減, ルー

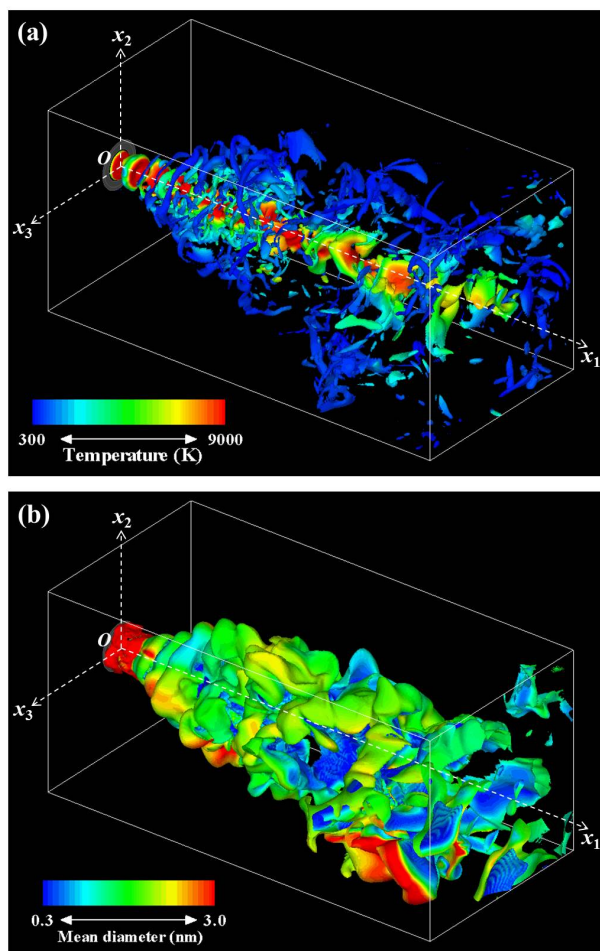


Fig. 2 Snapshots of present computation:
(a) Vortex structure, (b) Si nanopowder distribution.

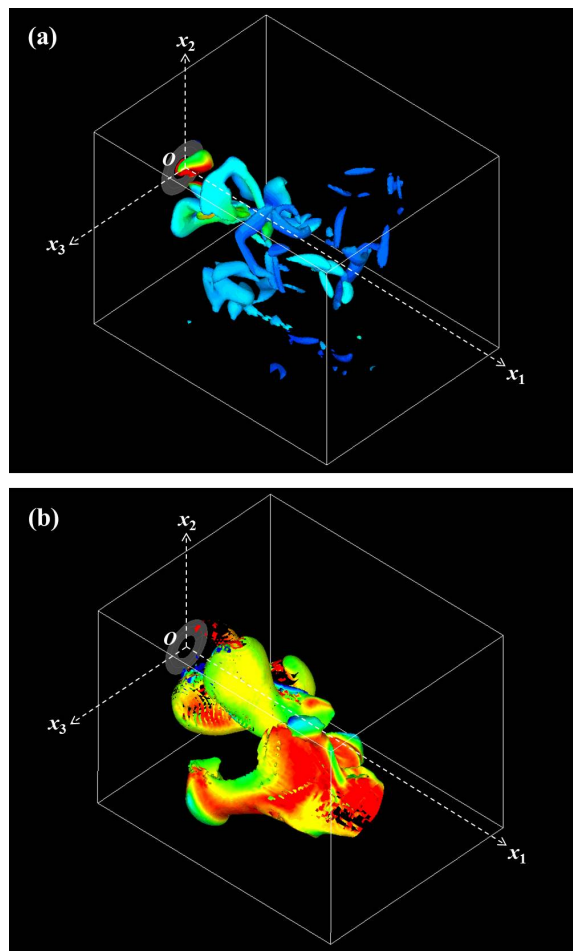


Fig. 3 Snapshots of preliminary computation:
(a) Vortex structure, (b) Si nanopowder distribution.

分割によるコンパイラ自動最適化の促進、IF 文の括りだし、ループ融合などを実施し、これらの最適化の有効性を確認した。その後供給する原料の種類にシリコン、アルミニウム、タングステンを選び、それぞれについて実現象における 50 ms 分の数値計算を行った。1 ケースあたりの使用メモリは 5,354 GB、演算時間は約 59 時間であった。 Fig. 2(a) および Fig. 2(b) はそれぞれ本計算によって得られた空間内の渦構造およびシリコンナノ粒子群の空間分布の瞬間像を示している。 Fig. 2(a) の渦構造は速度勾配テンソルの第二不変量によって抽出・可視化されたもので、場の温度によって色付けられている。プラズマジ

ェットは噴出孔の近傍で高温の渦輪を形成し、その周囲に低温の渦輪が生じている。これらの渦輪は高温・高速のプラズマの流れと周囲の低温・低速の非電離気体との界面領域における Kelvin-Helmholtz 不安定性によって生じたものと考えられる。生成した渦輪は流下しながらより小さな渦群へと崩壊していく。これは 1991 年に Pfender らが行った実験による渦構造の可視化計測結果[1]と同じ様相を呈しており、本計算はプラズマジェット of 熱流体力学的な特徴を表現できていると言える。またプラズマジェット近傍の高温の領域の渦構造は大きく、その周囲には低温の微細な渦群が広く存在するという結果が得られた。これは Kolmogorov の理論が予測するところでもあり、本計算は渦スケールについても傾向を良く捉えていると言える。

Fig. 2(b) はナノ粒子の数密度が 3.16×10^{18} 個/m³ である等値面に粒子直径で色付けしたものを表している。ナノ粒子群はそれ自身が拡散しながらも、主としてプラズマジェットが成す複雑な流れによって輸送されていることが見て取れる。また噴出孔からの距離に応じて粒子直径が等しくなるということではなく、同程度の距離においても大小様々なナノ粒子が存在することがわかる。

比較のため Fig. 3 に研究代表者が所有する計算機で同様の数値計算を行い得られた結果を示す。使用できるメモリが最大 64 GB であるため、十分な解像度と計算領域を確保できていない計算結果である。例えば Fig. 3(b) に示すナノ粒子数密度の等値面には不連続な箇所が散見され、物理現象を正確に捉えら

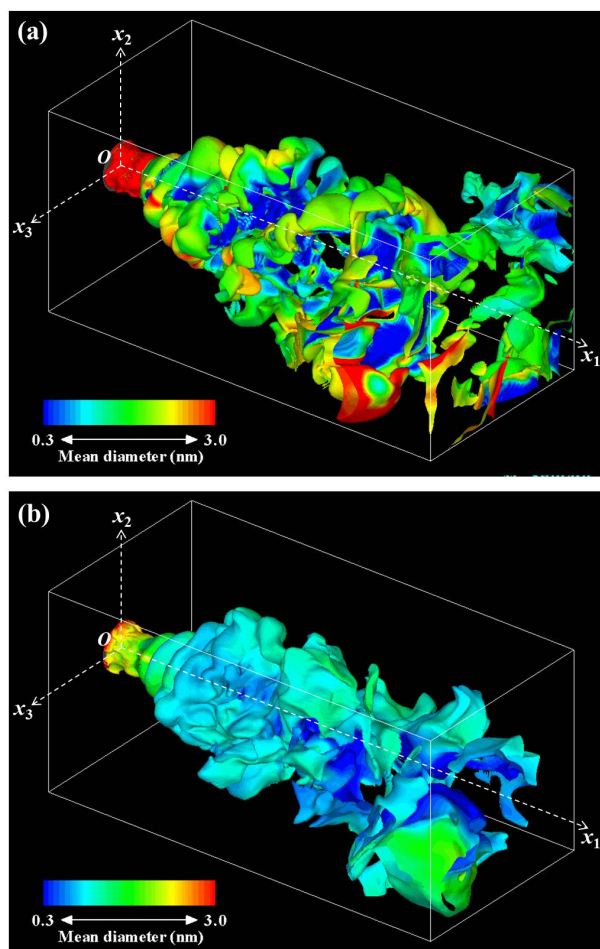


Fig. 4 Snapshots of spatial distributions:
(a) Al nanopowder, (b) W nanopowder.

れていないことがわかる。これらの比較からも、当該の工学プロセスをシミュレートするためにはスーパーコンピュータによる大規模計算が必要不可欠であると結論付けられる。

Fig. 4(a)および Fig. 4(b)にそれぞれ原料をアルミニウムおよびタングステンとしたときのナノ粒子群空間分布の瞬間像を示す。どちらもシリコンナノ粒子群と同様に複雑な分布を示しており、この系では対流輸送が支配的であることを示している。しかしながらシリコンの場合と比べて、アルミニウムの場合にはより広がった分布を、タングステンの場合にはより絞られたような分布を示しており、これはそれぞれの拡散性の違いに依るものである。すなわち本系においては拡散輸送もまた重要であることを示唆している。またタングステンナノ粒子群の方が小粒径となる結果が得られた。これは本計算では原料の種類に依らず供給量を 0.1 g/min と固定したため、原子量の大きなタングstenは相対的に少ない分子数で供給されたからである。

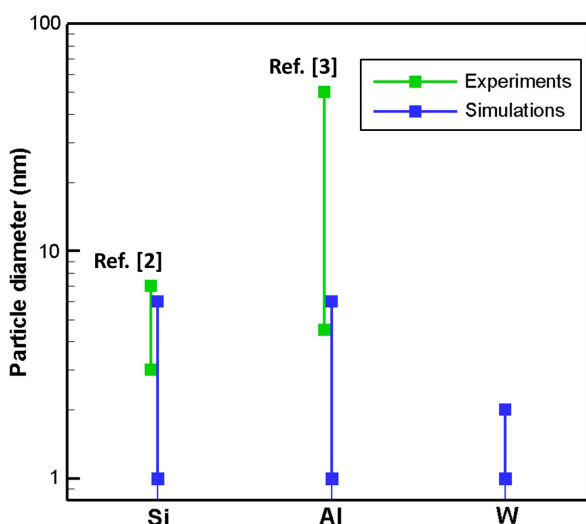


Fig. 5 Diameter ranges of obtained nanoparticles.

Fig. 5 に本計算および熱プラズマによるナノ粒子創製実験[2][3]によって得られた粒子直径の範囲を示す。条件等の差異により厳密な比較ではないが、いずれのナノ粒子も 1~10 nm の粒子直径を有することがわかる。ここで、数値計算は粒子成長が完了する下流の領域まで取り扱えなかったこと（特に融点の低いアルミニウム）と、実験において当時 3 nm 以下の粒子を計測できなかったことを考慮すると、本計算は妥当な結果を与えていると言える。

Fig. 6 に多成分系の一例としてニオブとシリコン蒸気が核生成・共凝縮・粒子間凝集を経て金属間化合物ナノ粒子群を形成する過程の数値計算結果を粒度分布空間（粒子サイズ・組成・粒子数の 3 軸を持つ陰的な空間）によって示す。この計算結果から予測される化合物の種類は実験によって得られたものとおおよそ一致するが、依然として熱プラズマ周囲での代表的な冷却率 10^5 K/s を与えただけの 1 次元モデルに留まっているのが現状である。今後、先述の 3 次元計算と組み合わせることによる計画の完遂が期待される。

引用文献

- [1] E. Pfender, J. Fincke and R. Spores, "Entrainment of cold gas into thermal plasma jets Plasma", Chemistry and Plasma Processing, Vol. 11, (1991), pp. 529-543.
- [2] X. Wang, J. Hafiz, R. Mukherjee, T. Renault, J. Heberlein, S. L. Girshick and P. H. McMurry, "System for In Situ Characterization of Nanoparticles Synthesized in a Thermal Plasma Process", Plasma Chemistry and Plasma

Processing, Vol. 25, (2005), pp. 439–453.

[3] J. Haidar, "Synthesis of Al nanopowders in an anodic Arc", Plasma Chemistry and Plasma Processing, Vol. 29, (2009), pp. 307–319.

6. 今年度の進捗状況と今後の展望

計算手法の高次精度化, 計算コードの並列化

および最適化については概ね順調であったと言えるが, 上述のとおり計画の完遂には至らなかったため, 達成率は 75%程度である。今後, 多成分系ナノ粒子モジュールと 3 次元プラズマ流動計算モジュールを組み合わせ, より高度で汎用性の高いシミュレーターを実現する必要がある。それに伴い, 計算負荷およびリソー

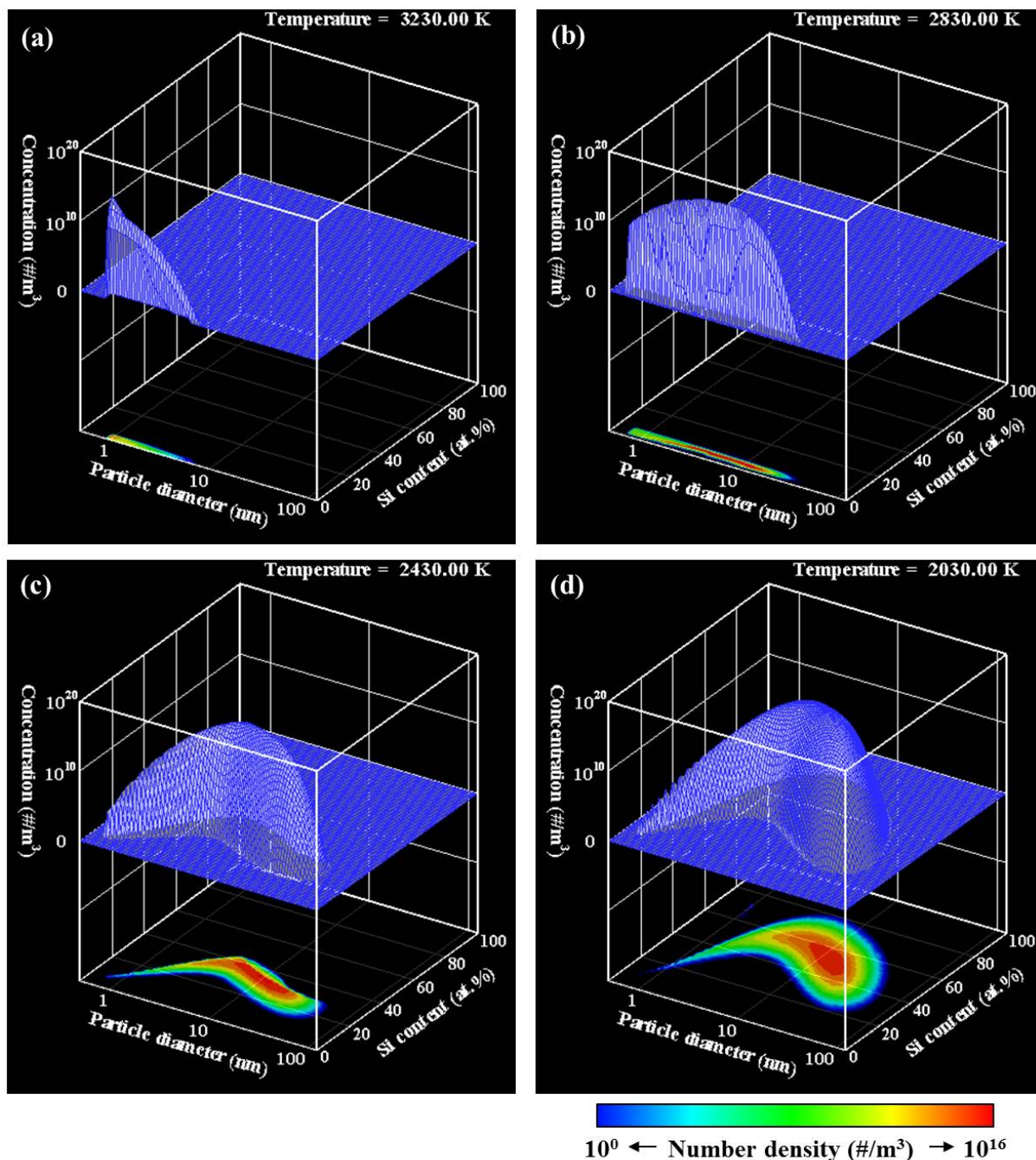


Fig. 6 Collective growth process of Nb-Si nanopowder expressed by an implicit size-composition space.

スが増大するため、より効率的なコーディングが求められる。また現時点で既に、実行するノード数の増加に伴いデータ転送時間が占める割合も増えているため、データ転送時間の削減について更なる検討を進める必要もある。これらの課題を一つ一つ解決していくことで、ナノ粒子創製プロセスにおける諸現象の詳細が解明され、これまで暗中模索に等しかったプロセスの設計に本質的な指針を与えることができるようになることが期待される。

7. 研究成果リスト

(1) 学術論文

1. Masaya Shigeta, "Turbulence modelling of thermal plasma flows", Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 49, No. 49, (2016), pp. 493001 (18 pages). DOI: 10.1088/0022-3727/49/49/493001
2. Ryusuke Egawa, Kazuhiko Komatsu, Shintaro Momose, Yoko Isobe, Akihiro Musa, Hiroyuki Takizawa and Hiroaki Kobayashi, "Potential of a modern vector supercomputer for practical applications: performance evaluation of SX-ACE," The Journal of Supercomputing, (2017), pp 1 - 29. DOI: 10.1007/s11227-017-1993-y.

(2) 国際会議プロシーディングス

1. M. Shigeta, S. Minami, M. Tanaka, "Modelling for collective growth of fume primary particles with charge effect in arc welding", Proceedings of Annual Assembly 2016 of International Institute of Welding (IIW), Study Group 212 "Physics

of Welding", Melbourne, Australia, (July 10-15, 2016), Doc. 212-1432-16 (18 pages).

2. M. Shigeta, "Modelling for fluid-dynamic transport of nanopowder growing around a thermal plasma jet", Proceedings of the 14th High-Tech Plasma Processes Conference (HTPP 14), Munich, Germany, (July 3-7, 2016), p. 7.
3. Takashi Soga, Kenta Yamaguchi, Raghunandan Mathury, Osamu Watanabe, Akihiro Musa, Ryusuke Egawa, and Hiroaki Kobayashi, "Effects of Using a Memory-Stalled Core for Handling MPI Communication Overlapping in the SOR Solver," Proceedings of 29th International Conference on Parallel Computational Fluid Dynamics (Parallel CFD2017), Glasgow, Scotland, UK, (March 16-17, 2017), pp. 1-2(USB).

(3) 会議発表(口頭, ポスター等)

1. M. Shigeta, "Modelling for fluid-dynamic transport of nanopowder growing around a thermal plasma jet", The 14th High-Tech Plasma Processes Conference (HTPP 14), (July 4, 2016), Munich, Germany. (口頭) **(招待講演)**
2. 茂田 正哉, "熱プラズマを利用したナノ粒子創製プロセスにおける諸現象のモデリング", 第23回応用物理学会プラズマエレクトロニクス分科会プラズマ新領域研究会・電気学会プラズマ研究会 共催『高エンタルピープラズマの数値シミュレーション』, (2016年8月8日), 大阪. (口頭) **(招待講演)**

3. 茂田 正哉, “熱プラズマを利用したナノ粒子創製プロセスの諸現象のモデル化と数値計算”, 日本物理学会第 72 回年次大会 領域 2 シンポジウム『高熱流プラズマ・熱プラズマの物理と工学応用への展開』, (2017 年 3 月 18 日), 豊中. (口頭) **(招待講演)**
4. Ryusuke Egawa, “An HPC Refactoring Catalog - Accumulating Know-Hows of Sytem Specific Optimization and its Practical Usage, ” 2017 Conference on Advanced Topics and Auto Tuning in High-Performance Scientific Computing (ATAT in HPSC 2017), March 12, 2017. (口頭) **(招待講演)**
5. Masaya Shigeta, “Modeling and Simulation of Nanopowder Growth Processes around Thermal Plasma Flows”, Symposium Gas-phase Synthesis of Functional Nanomaterials: Fundamental Understanding, Modeling and Simulation, Scale-up, (March 22, 2017), Duisburg, Germany. (口頭) **(招待講演)**

(4) その他 (特許, プレス発表, 著書等)

該当なし