

jh140026-MD02

フィラー充填系高分子材料の粗視化分子動力学解析の連携型 HPC 活用研究

森田 裕史 (国立研究開発法人 産業技術総合研究所)

概要 本研究では、フィラー充填高分子複合材料系 (ナノコンポジット) の粗視化分子動力学 (MD) シミュレーションの大規模計算を通じて、近い将来に高分子材料の粗視化 MD シミュレーションを産学官連携プロジェクト研究として行うためのオープンイノベーションのための基盤技術 (関係者が共通で利用できるシミュレーション用データやモデル構築手法、計算技法、アルゴリズム等) を系統的に整備することを主な目的として、後の産学連携に役立てるためのプラットフォームの構築の研究を行う。

1. 共同研究に関する情報

(1) 共同研究を実施した拠点名

- ・北海道大学 情報基盤センター
- ・東京大学 情報基盤センター
- ・名古屋大学 情報基盤センター
- ・東京工業大学 学術国際情報センター
- ・大阪大学 サイバーメディアセンター

(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

JHPCN 拠点情報基盤センターの教員は、●で示す。

森田裕史 (産総研) : 総括、計算と解析の実施、材料実験との比較評価、粗視化 MD 計算技法に関する検討

萩田克美 (防衛大) : 総括補助、計算と解析の実施、計算機的性能評価、粗視化 MD 計算技法に関する検討

棟朝雅晴● (北大) : パラメータスタディ計算の効率的実施に関する検討

大宮学● (北大) : パラメータスタディ計算の効率的実施に関する検討

中島研吾● (東大) : パラメータスタディ計算の効率的実施に関する検討

石井克哉● (名大) : 可視化技法の検討

渡邊寿雄● (東工大) : GPU スパコンを利用した大規模計算の効率化検討

高野宏 (慶応大) : 計算結果の評価検討の助言

柳生裕聖 (関東学院大) : 計算と解析の実施、粗視化 MD 計算技法に関する検討、OCTA/cognac-LAMMPS コンバーターの高度化に関する検討

本田隆 (日本ゼオン) : 計算と解析の実施、粗視化 MD 計算技法に関する検討

青柳岳司 (旭化成) : OCTA/cognac-LAMMPS コンバーターの高度化に関する検討

佐藤正俊 (トヨタテクニカルディベロップメント) : 計算と解析の実施、粗視化 MD 計算技法に関する検討

永冶健太郎 (トヨタテクニカルディベロップメント) : 計算と解析の実施、粗視化 MD 計算技法に関する検討

木村陽介 (トヨタテクニカルディベロップメント) : 計算と解析の実施、粗視化 MD 計算技法に関する検討

2. 研究の目的と意義

高分子材料シミュレーションは、ソフトウェア OCTA の公開を機に、産学官いずれにおいても使われるようになり、ニーズが高くなった。また、北大情報基盤センターのご協力等により、OCTA に含まれる複数のシミュレータが一昨年度ようやく並列化対応し、近年のいわゆる“中規模”シミュレーションへの道が開かれた。OCTA は、企業

の研究者にもよく使われているシミュレーションシステムであり、「ソフトマテリアル統合シミュレータ OCTA」と「大規模計算」の連携／接続により、OCTA 利用の企業の研究開発者、国内の学術研究者の多くが、大規模計算や大規模可視化（可視化ベースの探索的研究）をはじめの敷居を低く、大きな波及効果が期待できる。このような目的のもと、JHPCN の枠組みを利用して本研究をおこなった。

シミュレーションのターゲットとして高機能フィルム材料、高耐久構造材、タイヤゴム材料などが挙げられるが、これらの部材に良く使われるフィラー充填系高分子材料が、近年着目されており、構造材として期待されている CFRP 等もこのような材料の延長にある。フィラー充填系高分子材料は、基本的には、硬いものと柔らかい高分子の混ぜものであり、硬いものとして、カーボン材料・無機材料等が挙げられる。なお、各成分がどのように制御されてどのように混ぜられているのかによって、物性が大きく異なることも知られている。また、サステイナブルな材料設計が望まれている現状も考えて、耐久性を向上させたり、その他高機能化・高性能化を進めたりすることが強く望まれている。このような中、材料全体の設計を考えた上で、主成分である高分子の分子鎖レベルでの材料開発が重要となることは、当然である。しかしながら現実には、分子レベルでのメカニズムの理解を経ずに、開発現場の勘と経験で材料が開発されていることがほとんどである。よって、分子シミュレーションによる予測・設計・メカニズムの解明が、特に産業界から強く期待されている。

OCTA 等の道具や、スパコン等があっても、それを適用する際の困難、「死の谷」に遭遇して、研究を進められないことが多々ある。この「死の谷」を超えるための研究として、我々は、従来より JHPCN 課題において進めてきた。そこで、我々は、粗視化 MD を用いた仮想実験技術を確立させ、ソフトマテリアル統合シミュレータ OCTA から、大規模用シミュレータ LAMMPS までを用い、小さな計算から大規模計算までシームレスに移行で

きるコンバータ、円滑なパラメータスタディ、大規模系のスムーズな可視化などが行える研究プラットフォームの開発を目指す技術開発を進めてきた。これらの技術が確立すると、学術的な研究者だけでなく、企業における材料研究者にも役立つツールとなり、「死の谷」を容易に越えられるようになる。近年は産学官共に需要が増えており、将来性も高い。

以上より、本研究課題では、JHPCN 共同研究の枠組みにより、高分子材料シミュレーションとして最もシミュレーションにニーズのある系であるフィラー充填高分子複合材料系（ナノコンポジット）の粗視化分子動力学（MD）シミュレーションの大規模計算を通じて、産学連携によるオープンイノベーション基盤（関係者が共通で利用できるシミュレーション用データやモデル構築手法、計算技法、アルゴリズム等）についての技術的な検討を、計算科学者、計算機科学者、計算機技術者が協働することで、系統的に整備することを主な目的とする。特に本年は、「連携」を強く考え、i) フィラー充填系材料計算における連携、ii) 結果の可視化における連携、iii) シミュレーションの効率的な実施を考えるためのシステム化における連携の 3 つに焦点を当て、研究を進める。

3. 当拠点公募型共同研究として実施した意義

JHPCN では、ネットワーク型拠点であることが 1 つの利点である。このことを利用し、JHPCN に関連した各大学センターの教員と連携することによってはじめて、3 つの連携を進めることができると考えている。具体的には、i) フィラー充填系材料計算における連携では、各大学のスパコンを最大限利用するために、OCTA, LAMMPS 等のソフト等の整備・ベンチマークにおいて、連携する。ii) の結果の可視化における連携においては、OCTA 自体の可視化機能を活かした EasyVR を用いた可視化等について大阪大学、若しくは名古屋大学の装置を用いた検討を進める。iii) のシステム化における連携においては、北大と連携によって、クラウドを利用した効率的な計算実施について、

検討する。これらの連携の検討は、JHPCN における拠点型共同研究として進められる連携研究であり、その意義は大きいと考えられる。

4. 前年度までに得られた研究成果の概要

昨年度は、今後の連携を視野に、フィラー充填系高分子材料の大規模シミュレーションのコモディ化のために、下記の 1)-3)のテーマに取り組み、成果をあげた。

1) 共通で利用できるシミュレータの基盤整備

- ・GPU を活用する LAMMPS の大規模計算の検討
- ・OCTA/SUSHI 並列化版による高分子相分離構造を含む系の超大規模計算の可能性検討
- ・LAMMPS における各種評価、及び、利用パラメータの最適化による高速化チューニング
- ・中規模計算のための COGNAC/OCTA の加速化

2) モデル・計算手法の構築と大規模シミュレーションのベンチマーク

- ・大規模なフィラー充填高分子系の初期配置作成と LAMMPS を用いた効率化の検討
- ・フィラー充填系高分子材料の大規模計算のベンチマーク系の整備

3) シミュレーションデータの解析技術の整備

- ・大規模粒子系の時系列データ記録に関するシステムソフトウェア検討

これらの結果より、高分子系への大規模シミュレーションの一部、コモディ化を進めることができたが、いくつか積み残しがあった。また、更に産業界への適用を考えた際に、大規模シミュレーション結果の解析技術がまだまだ進んでいないことも示されてきた。この 1 つが今年度に進める可視化解析技術の更なる進展の必要性であると考えている

5. 今年度の研究成果の詳細

本年度は、これまでのフィラー充填ゴム材料の基礎的事項の計算をさらに積み増しし、高分子材料の大規模シミュレーションを行う際の基盤技術の確立を目指すために、①共通で利用できるシミュレータ・ベンチマークの整備、②シミュレーシ

ョンデータの解析技術と可視化技術の整備、③シミュレーションの効率的な実施を考えるためのシステム化の整備に取り組み、それぞれ①～③に対して、2 節に述べた i)- iii)の 3 つの連携を通して、問題の解決を図っていくことで進めていく。以下に具体的な成果の一部を示す。

① 共通で利用できるシミュレータ・ベンチマークの整備 (フィラー充填系材料計算における連携)

(1) LAMMPS での GPU の活用についての検討
本年春過ぎに、Kokkos プロジェクトの成果が反映され、GPU や XeonPhi を利用した計算の高速化ができるようになった。経過観察を行い、2014 年 9 月 30 日バージョンのコードで、利用検討および性能評価を行った。

最初に GPU パッケージの改良について確認した。従来の利用法に比べて、シミュレーション条件の入力ファイルの設定は簡単になったことを確認した。従来は、力や積分法等毎に、gpu の利用を指定する記述が必要であったが、不要になり、CPU のみを利用する場合の入力ファイルをそのまま利用すれば良くなった。TSUBAME で 1 ノードあたり 3 枚 GPU を利用する場合、プログラム実行時に、下記のように、-sf と -pk の引数を設定すればよい。

```
mpirun ./lmp -sf gpu -pk gpu 3 < in.file
```

最初のテストとして、442368 atoms の高分子メルトの Kremer-Grest 模型で、2000 MDsteps の経過時間を TSUMABE2.5 で計測した。なお、LJ ポテンシャルのカットオフ長は、 2.5σ とした。

1CPU あたり 1MPIprocs とした。

表 1 GPU 計算のベンチマーク結果

Job class		経過時間
G	16CPU+16GPU	24.7994 sec
G	32CPU+32GPU	17.0893 sec
G	64CPU+64GPU	41.4293 sec
S	96CPU+24GPU	7.63007 sec
S	192CPU+48GPU	5.43058 sec
S	96CPU+GPU なし	22.356 sec
S	384CPU+GPU なし	8.02785 sec

上記の結果から、これまでうまくいかなかった mCores-nGPUs の動作が問題ないことが分かった。1MPIprocs あたり 2000 粒子程度まで高速化が見込めることが分かった。

次に、XeonPhi(offload mode)で計算高速化を行う USER-INTEL パッケージについて、名古屋大学の CX400 環境で、ベンチマーク評価を行った。なお、検証した時点では、MKL の FFT が AO(automatic offload)モードに未対応であるため、LAMMPS 内蔵の FFT を利用する設定での評価を行った。予備的な評価として、8 ノードを利用した場合について調べた。カットオフ長 2.5σ で 1,048,576 粒子の系を 16MPI x 12 OpenMP で計算した場合に、1 割程度の高速化を確認した。また、カットオフ長を $2^{1/6}\sigma$ と斥力的にした場合は、1.5 倍ほど遅くなる結果となった。現状では、XeonPhi の利用は、現時点では、オーバーヘッドが大きいと推察される。

なお、GPU と XeonPhi(native mode)で計算高速化を行う Kokkos パッケージの性能評価を行った。Kokkos の GPU 利用では、OpenMP のスレッド並列と GPU 利用を同時に行う。実際に試してみると、粒子のみが単純に存在する系 (bond が無い系) ではスムーズに動作しているが、bond のある系の場合、計算開始時の bond データのスタートアップの時点で、何らかの不具合がある挙動をしており、動作しなかった。今後の課題である。

(2)大規模計算検証用のベンチマークの整備

フィラー充填高分子材料の粗視化MDモデルのベンチマーク用データの整備として、直径 10nm 程度に対応するナノ粒子 (図中の白い球状フィラー) を 512 個含み、粒子数 $N=1024$ のバネビーズ模型の鎖を 10240 本配置した系を、引き続き、調べている。

LAMMPS では、RIGID package で、フィラー (ナノ粒子) を剛体として設定した。配置の異なるナノ粒子に対する機械的性質の差異を評価する大規模粗視化 MD 計算を行った。ナノ粒子の凝集構造に応じて、応力-歪み曲線が変わることを確

かめた。図 1 にその結果を示すが、特徴的な点として、フィラー凝集が大きい系では、低歪において、既に降伏応力のようなピークがみられていることが示された。

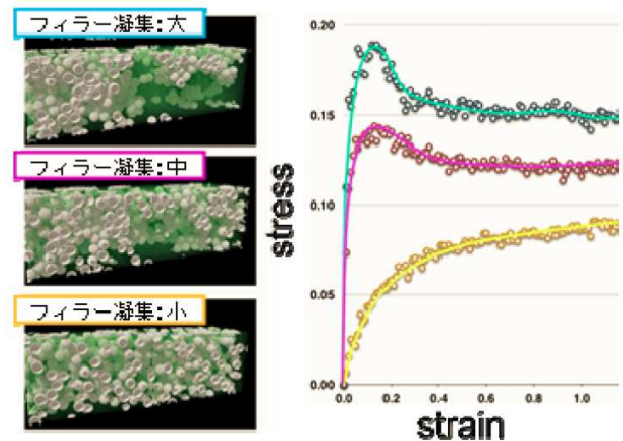


図 1. ナノ粒子充填高分子材料の応力歪み曲線評価

(3)次世代規模のセミオープンデータの作成

次世代の大規模系のベンチマークデータとして、直径 28nm のフィラーの数を 3 万個程度とした系の初期配置モデルの作成について、検討した。この系では、 2^{32} 以上の粒子を扱う事となり、従来のプログラムの修正や高速化が必要である。

SPring-8 で観測した X 線小角散乱データを基に逆モンテカルロ法で、(単一粒径近似の下で) 直径 28nm のフィラーが 25875 個ある系の 3 次元配置モデルを作成した。このナノ粒子の初期配置として作られる空間に、1 本あたり 1024 粒子の鎖を 5,961,438 本入れた系の作成を試みた (粒子数は約 61 億)。初期配置の作成では、多数本の鎖を動かしながら鎖長を成長させ、効率よく詰めていくために、格子模型を用いた。今回は、 4848^3 の格子を用いた。チェックボードとして、各格子点に 64bit 整数を入れると、約 1TB のメモリを利用することになる。MPI 並列の場合、チェックボードの境界領域の通信コストが大きいことから、OpenMP による SMP 並列でプログラムを作成した。現状は、名古屋大学の SGI Altix UV 2000 を用いて、1024Cores の SMP 並列を行い、高 Core

数での動作検証と最適化を行った。実際の初期配置作成の完成は、長時間計算が必要となるため、近い将来の課題である。

(4) フィラー充填系材料の SUSHI を用いた初期構造作成手法の基盤技術開発

SUSHI を用いた初期構造作成手法について、検討した。フィラー充填系材料の初期構造の元となる高分子の密度分布について、SUSHI を用いて作成し、この密度分布を用いて高分子鎖を分布させる Node Density Biased Monte Carlo(NDBMC)法をフィラー系へ最適化して実施するためのソフトウェア等の整備を行った。ここでは、まず、Obstacle 粒子が入ったポリマー1 成分系の平均場シミュレーションを実行する。実行した結果として、ポリマーの各セグメントの密度分布を計算する。得られたセグメント毎の密度分布を用いて、ポリマーにおける各ビーズを、先ほどの密度をウェイトにして配置していく。整備した結果として、いくつかの初期構造の作成ができることが示された。図 2 に SUSHI で用いたフィラー配置の一例を示す。

この作成ができたことで、(3)で示した逆モンテカルロ法による実験から求める構造や、(4)による平均場(SUSHI)シミュレーション結果から求める方法まで、様々な手法を用いて、フィラー充填系構造の作成ができるようになった。特に(4)で作成している手法は、当初から考えていた産総研におけるゴム・エラストマーコンソーシアムにおいても展開して利用していく予定である。

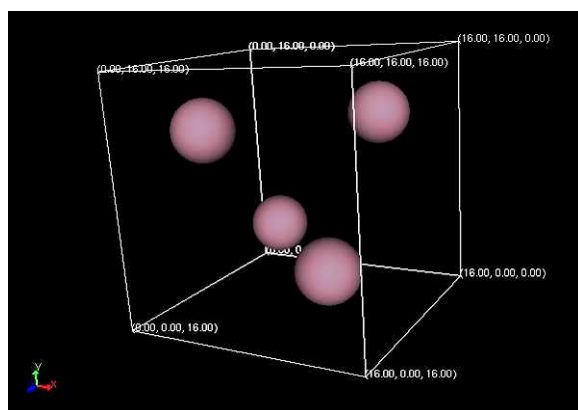


図 2. SUSHI を用いて作成したフィラー構造モデルの一例

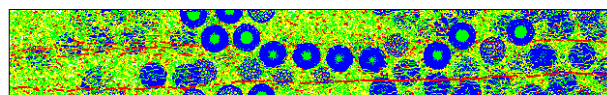
②シミュレーションデータの解析技術と可視化技術の整備 (結果の可視化における連携)

(1)大規模シミュレーション結果の解析技術の開発

シミュレーション結果の意味のある可視化のためには、物性等に準じた解析手法の開発が必要となる。また解析手法によって意味のある解析結果の可視化技術を組み合わせると、材料のより詳細な情報を得ることができるようになる。このことから、まず解析手法の技術開発を行った。MD 等の粒子系のシミュレーションでは、各時間における粒子の位置・力・速度がデータとして保存される。これらを用いると、粒子間結合に働く結合エネルギー、及び各粒子の運動エネルギーを求めることができる。

図 3 には、フィラー充填系材料の伸張時において、ある断面における粒子間結合に働く結合エネルギー、及び各粒子の運動エネルギーについて、色分けして示した結果である。(a)は、エネルギー弾性に関わると思われる伸びた結合について、特に赤で示して可視化をおこなった例である。(b)は、エントロピー弾性に関わると思われる運動エネルギーについて、特に大きな値を持つ粒子を赤で示して可視化した例である。この図は、ある断面のみを示しているが、将来的には、3 次元可視化技術と組み合わせ、系全体のより詳細な結果表示について、検討したい。

(a)



(b)

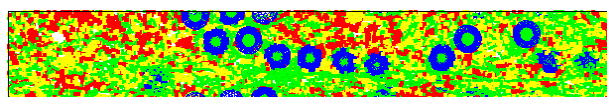
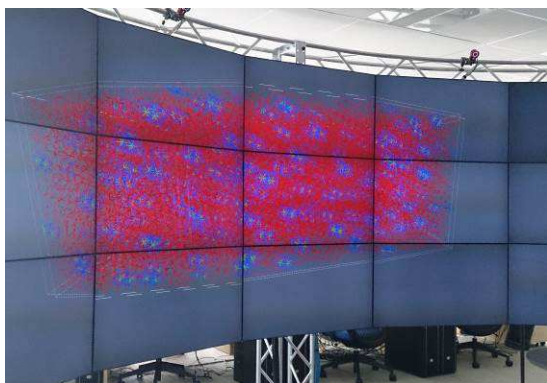


図 3. (a)結合エネルギー、及び(b)運動エネルギーの各マッピングの解析結果。

(2) EasyVR を用いた OCTA の描画システムによる 3 次元立体 VR 可視化

(1)で進めている解析技術の可視化には、3次元で明確に描画させる必要がある。そのため、大阪大学、名古屋大学の可視化装置を利用し、EasyVRを用いたOCTAによる3次元描画について、大阪大学サイバーメディアセンターのご協力のもと、検討を進めた。図5には、大阪大学うめきた拠点における描画システムを用いて検討を行った例を示す。

(a)



(b)

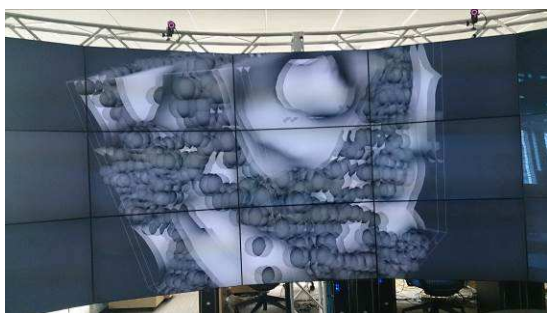


図4. 阪大うめきたにおけるフィラー系の (a)粗視化 MD、及び(b)フィラー分散シミュレーションの各結果の描画例

現時点では、各要素技術については開発を行うことができた。今後は、(1)の解析技術と(2)の可視化技術を合わせて、描画した結果を元に解析を進めていきたいと考えている。

③シミュレーションの効率的な実施を考慮するためのシステム化の整備(システム化における連携)

(1)クラウド対応させたジョブ制御技術開発

産学官や産業界独自でのシミュレーション活用研究においては、超大規模計算よりも、中規模～大規模がターゲットとなる。それらの計算の実施環境としては、HPCクラウドが有望と考えている。アカデミッククラウドや商用クラウドの制御技術や、クラウド上での効率的にパラメータスタディを行う仕組みなどは、最近、様々な分野で試行され事例報告がされている。よく調査し、我々の研究スタイルに適合した技法を取り込むことが望まれる。本年度の検討では、アカデミックでのHPCクラウドの現況や、商用クラウドの現況や利用法を把握する活動を行った。(商用を中心に)クラウド技術の特色としては、最新の計算機(チップ等)を早期に利用できる利点や、大量のデマンドを同時処理できる利点があげられる。特に、中規模計算においては、これらの利点は効果的であると思われる。今後、我々の研究分野での試行事例をオープンに情報交換するなどを経て、ジョブ制御技術の開発につなげたいと考えている。

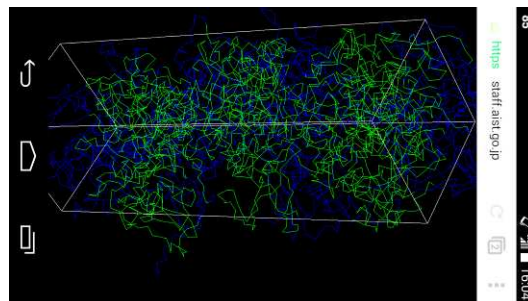


図5. スマホでのシミュレーション結果の描画例

(2)遠隔から制御可能な可視化技術開発

大規模シミュレーション結果について簡便に状況を確認する手法が望まれている。このための手法として、スマホやタブレット等に簡単に描画された結果の表示手法の開発を行った。

具体的には、OCTAで描画させる際に、その描画用の数値データをWebGLに読ませることができるとしてファイルにはきだし、そのファイルを読むことで、描画させる手法である。結果としてブラウザを用いることで、遠隔地にあるコンピュータにあるシミュレーション結果を手元のタ

タブレット等のブラウザで確認することができるようになる。その結果の描画例を図 5 に示す。まだまだスマホやタブレットのスペックの問題もあり、小規模系でしか描画できていないが、大規模計算でもうまく間引きして描画する方法であれば対応できる可能性は示された。なお、本手法は、2015 年 3 月にリリースした OCTA8 にその機能を搭載した。

6. 今年度の進捗状況と今後の展望

今年度は、これまでの技術検討に引き続き、大規模シミュレーション基盤の整備のために、①共通で利用できるシミュレータ・ベンチマークの整備、②シミュレーションデータの解析技術と可視化技術の整備、③シミュレーションの効率的な実施の 3 つの軸について検討した。引き続き注視するものや計算機の進化を待ってから実施すべき項目が残されているが、一定の完成となったと考えている。

まず、①フィルター充填系についてであるが、ベンチマーク等について、約 1000 万粒子系の計算を実施できた。また、大きな規模の初期データ作成のプログラムコード整備等を行った。初期配置作成の長時間計算は、実際の大規模計算実施時期の計算機を利用する課題として残した。さらに、GPU や XeonPhi の活用を念頭に、LAMMPS 本体の改良をモニタリングする手順等を整備した。よって、今後大規模計算機—シミュレータの効率的な利用について、各計算ターゲット系に対して、検討がさらに進められると考えている。特に、今後期待が大きいカーボンナノチューブ系やナノマトリックス構造の計算についても進められると考えている。特に、SUSHI を用いて、任意の位置にフィルターを置いたフィルター充填系の初期構造作成ができるようになったことは、非常に大きな成果であると考えている。②の解析・可視化技術については、解析技術と描画技術について研究を進めた。結果として、個別の技術開発は行えたが、高精細高解像度可視化装置での 3 次元描画した解

析や複数名でのディスカッションでの実活用までは、時間の関係で到達することができなかった。今後は、ゲーム技術を中心とした VR 可視化技術の急速な進展を注視しつつ、シミュレーション結果を効果的に可視化し共有観察し解析議論する方法の検討を進めていく。③のシステム化の整備においては、遠隔から制御可能な可視化技術開発について成果を挙げることができ、2015 年 3 月にリリースした OCTA8 に載せることができた。

上記とともにこれまでの活動と合わせ、JHPCN 拠点の情報基盤センターのスパコンを中心とした大規模シミュレーション実施関連技術の検討は一定の成果を得た。ターゲットである中規模～大規模の計算を効率よく実施し、実際の材料の研究開発に生かしていくことが、本研究課題の大括りの目的である。特に、大規模計算について、産学官共同研究や産業界独自の計算実施に普及展開させることが今後の課題と考えている。将来の超大規模計算につなげるためにも、中規模～大規模での着実な研究成果の創出が必要である。特に、複雑な要素が絡む系であり、科学的な手法で系統的に結果を見出した研究成果を創出していくことが大切であると考えられる。

また、本研究課題では、成果を広めることも重要なミッションであると考えている。そのため、2015 年 1 月に開催を検討している「北大—産総研包括連携等事業ワークショップ」において、一部のメンバーからその成果を発表していただくことができ、成果の公開にもつとめた。また、これ以外の成果についても、今後様々なところで、展開していく予定である。

7. 研究成果リスト

(1) 学術論文

特になし

(2) 国際会議プロシーディングス

特になし

(3) 国際会議発表

・K. Hagita, Toward next stage of design method of polymer nano-composites by X-ray scattering

analysis and large-scale simulations on supercomputers, PRACEdays14, (バルセロナ) (2014.05)

・K. Nagaya, M. Sato, Y. Kimura, K. Hagita, The Microscopic Effect of Filler on Rubber Reinforcement: A Coarse-Grained Molecular Dynamics Study II, MMM2014, (サンフランシスコ) (2014.10)

(4) 国内会議発表

・森田裕史, 萩田克美, フィラー充填系材料の伸張シミュレーションと分子鎖解析, 第 63 回高分子討論会 (長崎大学) (2014.09)

・萩田克美, シミュレーションを組み合わせた高分子材料の物性解析, 第 63 回高分子討論会 (長崎大学) (2014.09)

・萩田克美, 粗視化分子動力学法による高分子材料研究, 高分子計算機科学研究会 (東京工業大学) (2014.10)

・森田裕史, 萩田克美, 粗視化分子動力学法を用いたフィラー充填ゴムにおける高分子鎖の解析, 日本機械学会 第 27 回計算力学講演会 (岩手大学) (2014.11)

・森田裕史, 萩田克美, 梁曉斌, 藤波 想, 中嶋 健, ナノ触診 AFM と粗視化シミュレーションを組み合わせたフィラー充填ゴムの解析研究, 第 26 回エラストマー討論会 (愛知工業大学) (2014.12)

・木村陽介, 計算機×ソフトウェアのコンビネーションを考える: 「東大 FX10×LAMMPS」, 「北大一産総研 包括連携等事業ワークショップ」 (産総研お台場) (2015.2)

・森田裕史, 計算機×ソフトウェアのコンビネーションを考える: 「北大 SR16000×COGNAC」, 「北大一産総研 包括連携等事業ワークショップ」 (産総研お台場) (2015.2)

・萩田克美, 計算機×ソフトウェアのコンビネーションを考える: 「東工大 TSUBAMBE 名大 XeonPhi×COGNAC」, 「北大一産総研 包括連携等事業ワークショップ」 (産総研お台場) (2015.2)

(5) その他 (特許, プレス発表, 著書等)
特になし