

水・蒸気性質シンポジウム2025 一水と水溶液の物理化学：分子論から水質管理技術まで一
2025年6月2日（月）大阪大学 基礎工学国際棟

水の分子シミュレーション と機械学習

慶應義塾大学 理工学部

泰岡 顕治

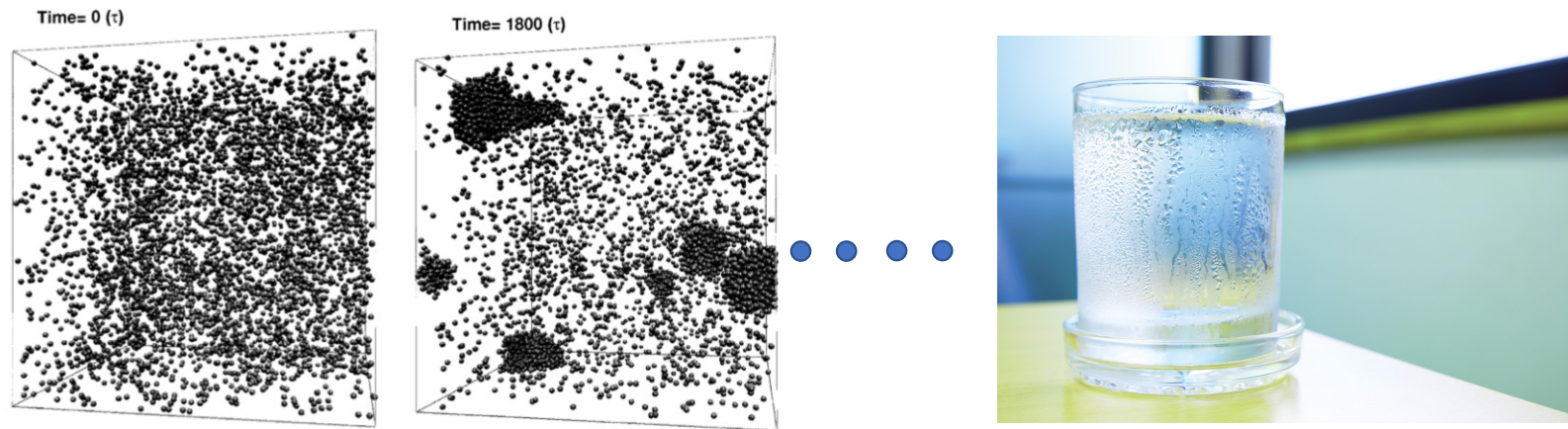
yasuoka@mech.keio.ac.jp

水の分子シミュレーションと機械学習

- 水蒸気の液滴核生成
- 計算の高速化と自動解析の機械学習

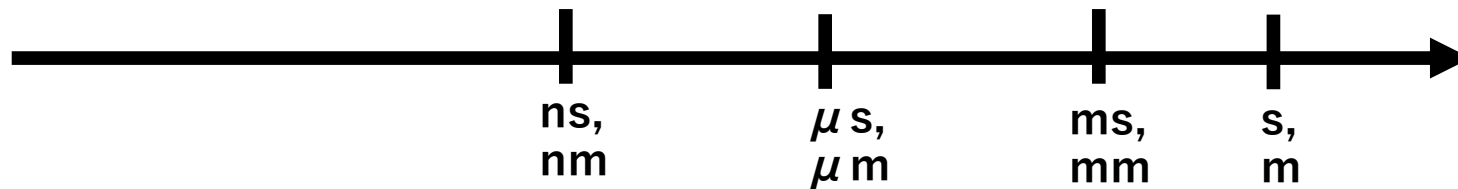
核生成 (Nucleation) とは

一次相転移現象の初期過程。一次相転移は核生成と核成長に大まかに分けられる。
核生成は分子スケールの現象である。



核生成

核成長



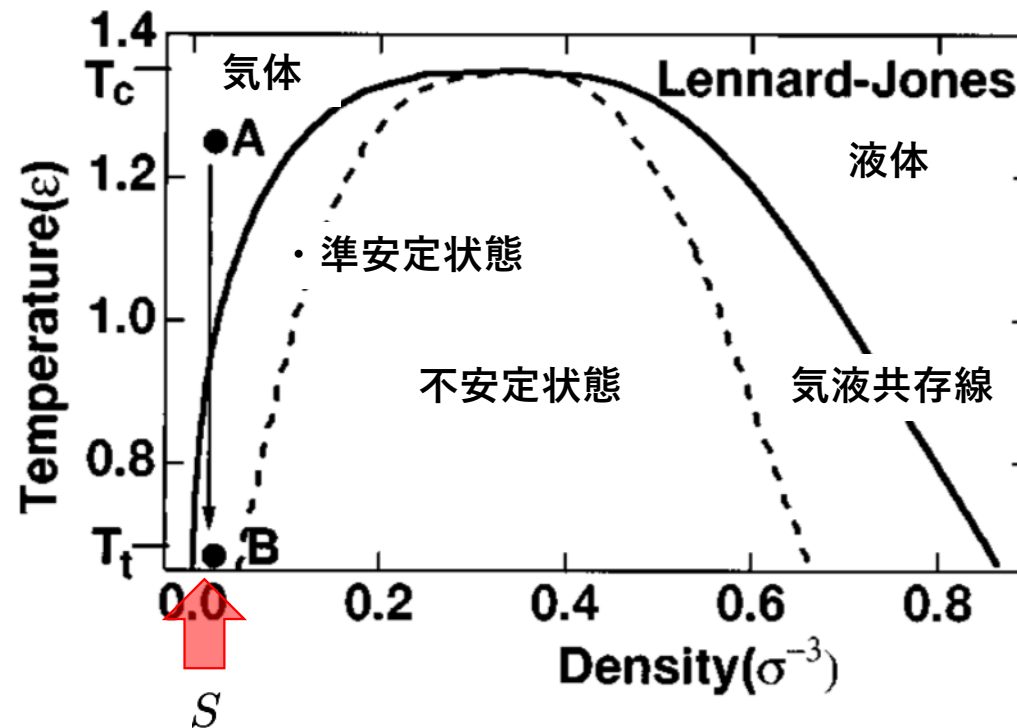
一次相転移の現象スケール

核生成の駆動力 – 準安定状態と過飽和度 –

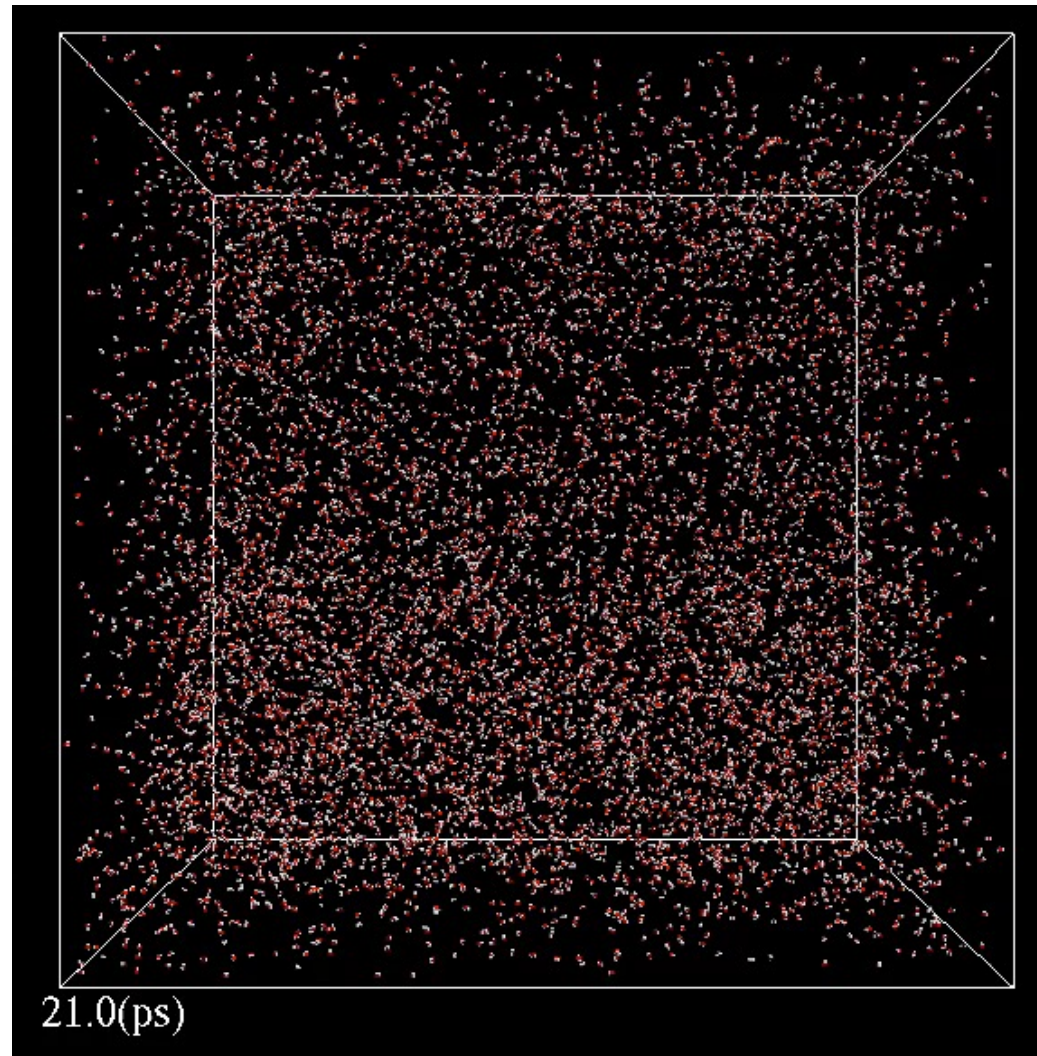
つまりどういうこと？：

気体を急冷した場合を考える．

理想気体の場合，状態方程式により過飽和度は $S = \frac{p^V}{p_{\text{sat}}} = \frac{\rho^V}{\rho_{\text{sat}}}$



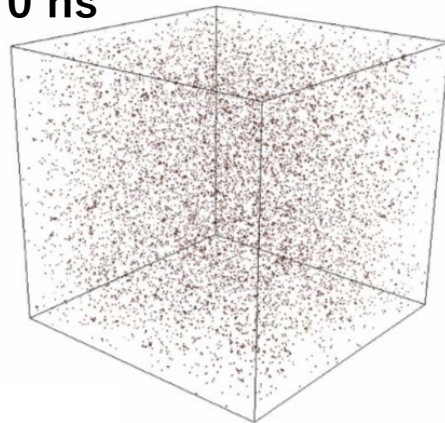
液滴核生成 – Water –



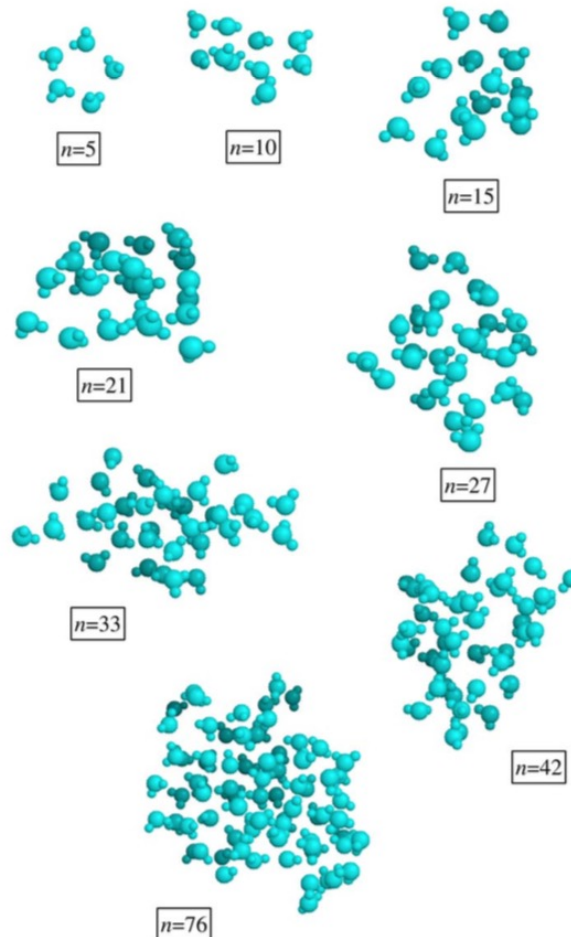
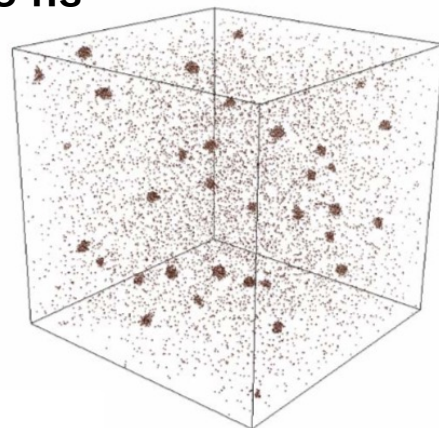
H. Matsubara, *et al.*, *J. Chem Phys.*, 127, 214507, (2007).

液滴核生成 – Water –

(a) **0 ns**

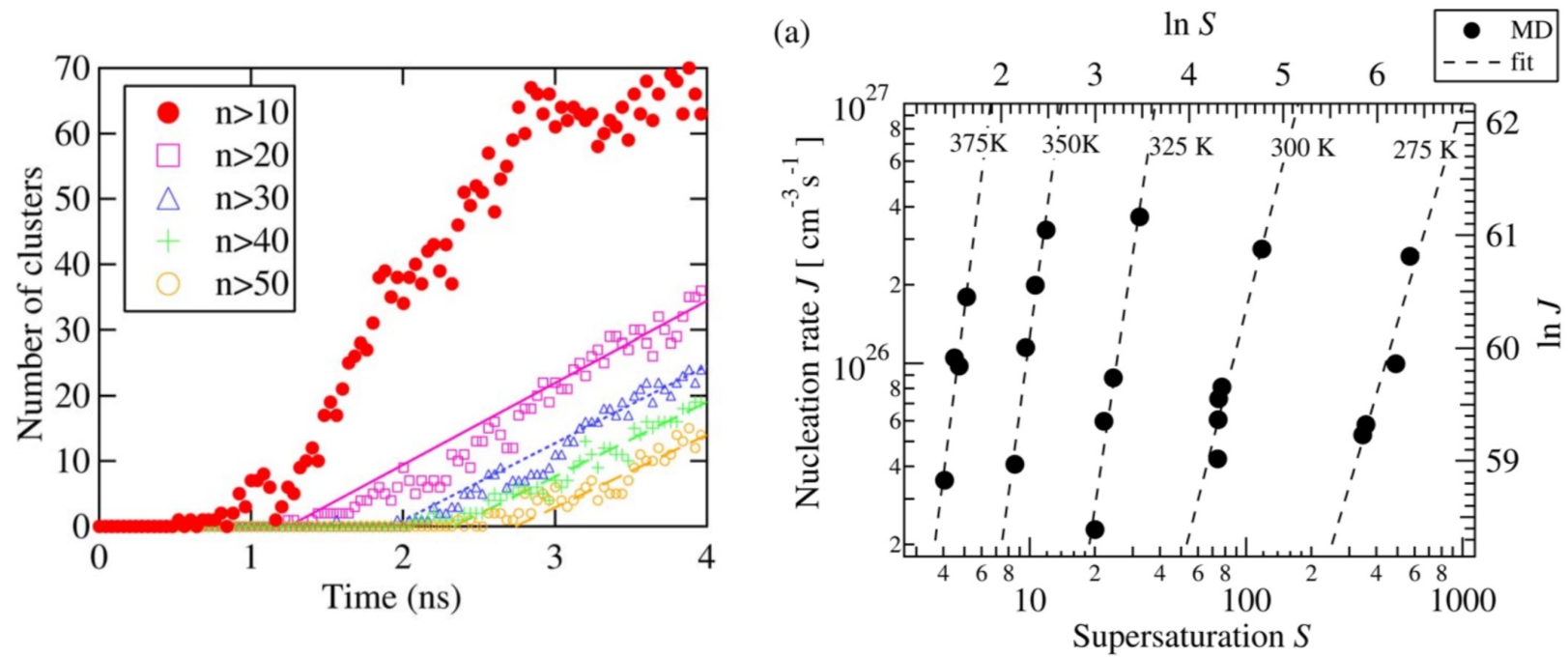


(b) **8 ns**



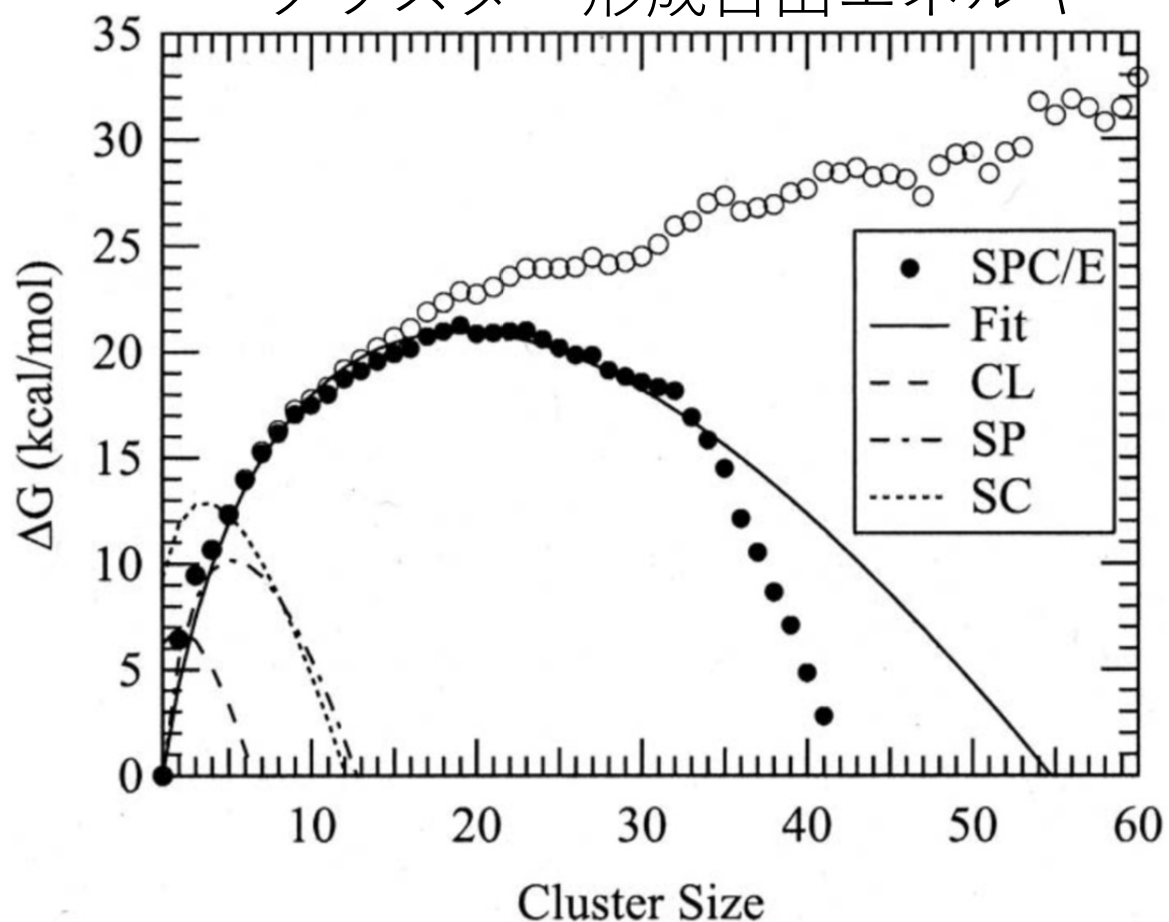
液滴核生成 – Water –

核生成速度：



液滴核生成 – Water –

クラスター形成自由エネルギー：



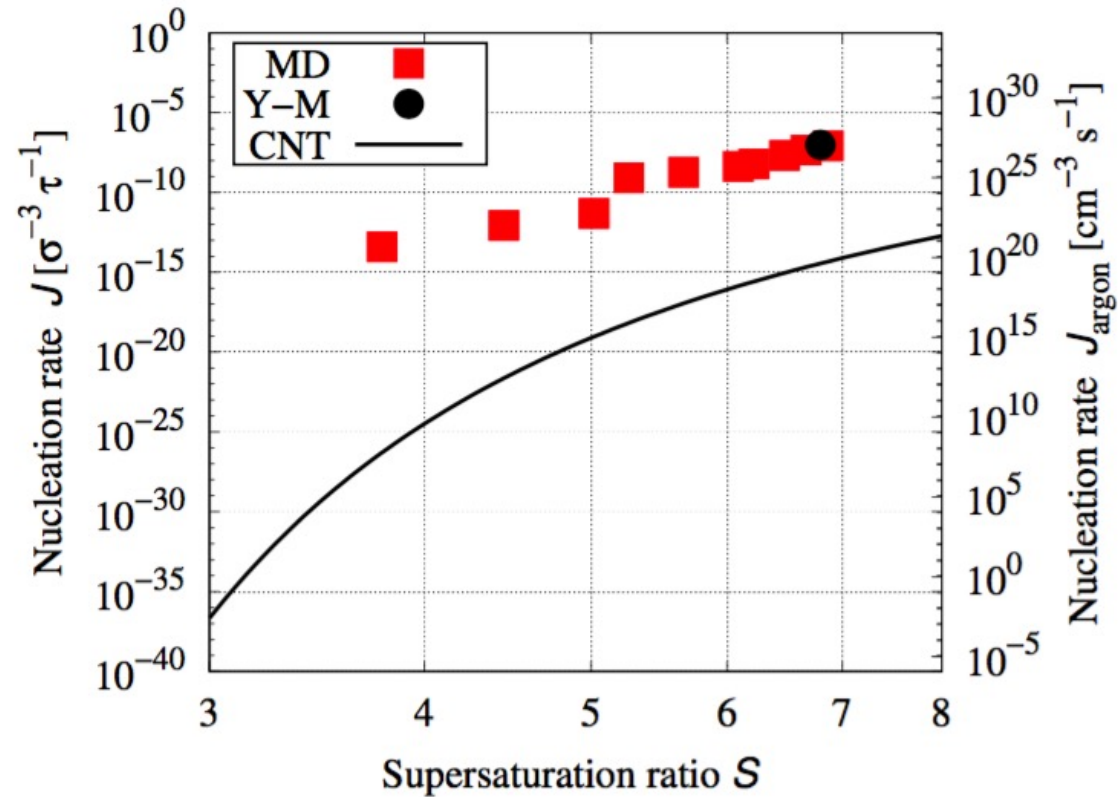
H. Matsubara, *et al.*, *J. Chem Phys.*, 127, 214507, (2007).

$$\Delta G = \underbrace{-n\Delta\mu}_{\text{粒子増加に伴うエネルギー (体積項)}} + \underbrace{\gamma(\infty)A(n)}_{\text{表面エネルギー (表面張力項)}}$$

粒子増加に伴うエネルギー
(体積項)

表面エネルギー
(表面張力項)

大規模MD – 核生成速度の理論との比較 –



MDとCNTの結果を比較すると、8桁から13桁ほどの乖離が存在する。

大規模MD – 理論式の妥当性を示す –

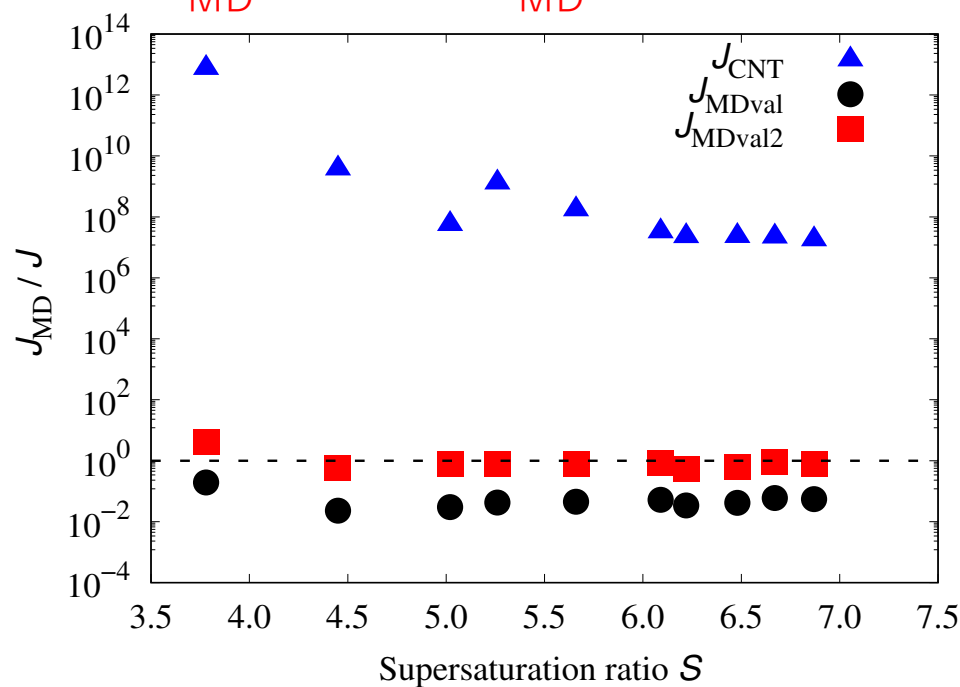
$$J_{\text{CNT}} = \underbrace{\left[-\frac{1}{2\pi k_B T} \frac{\partial^2 \Delta G^*}{\partial n^{*2}} \right]^{1/2}}_{\text{Theoretical}} \underbrace{\sqrt{\frac{k_B T}{2\pi m}} \rho_{\text{st}} A(n^*)}_{\text{Theoretical}} \underbrace{\rho_{\text{st}} \exp \left[-\frac{\Delta G^*}{k_B T} \right]}_{\text{Theoretical}} (= Z \beta(n^*) \rho_{\text{eq}}(n^*))$$



Theoretical
MD
MD

Theoretical
Theoretical
MD

Theoretical
MD
MD



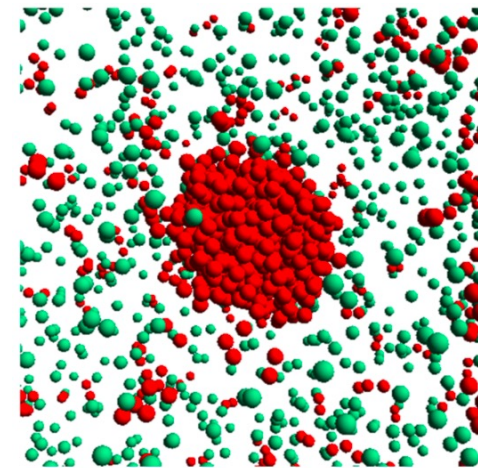
MDによって直接求められた物性値からCNTの理論式の妥当性を示した。

水の分子シミュレーションと機械学習

- 水蒸気の液滴核生成
- 計算の高速化と自動解析の機械学習

MDの計算コストと高速化

- 大規模で長時間のMDシミュレーションは計算コストが膨大
- 大規模なMDシミュレーションの高速化
 - 空間を分割し、超並列で計算[1]
 - 富岳などのスパコンを利用
- 長時間のMDシミュレーションの高速化
 - 並列化が困難
 - 多時間刻み幅法 (Multiple time step method) [2]：依然として高い計算コスト



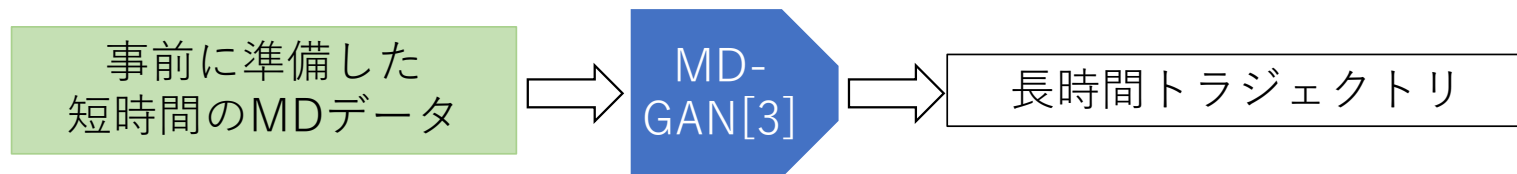
長時間シミュレーションの計算コスト削減が課題

[1] Ayuba, S. *et al.*, *J. Chem. Phys.* 149, 044504 (2018).

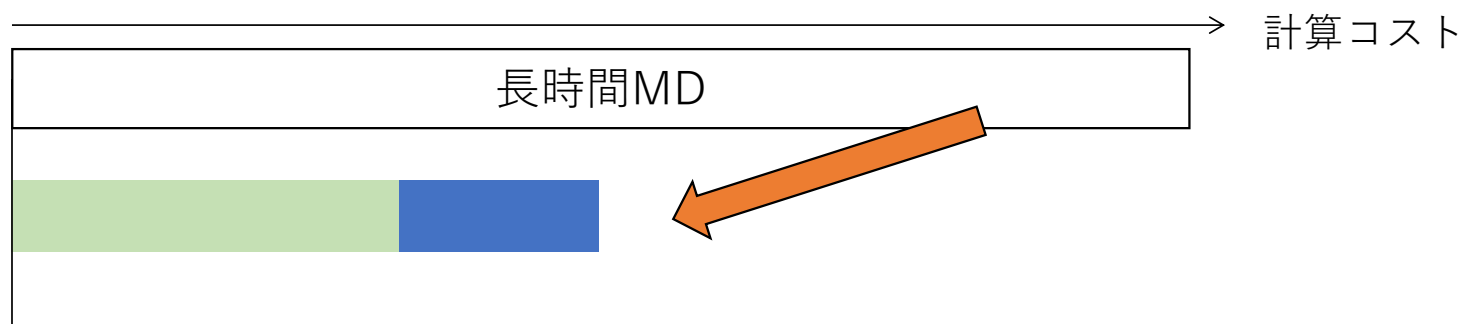
[2] Streett, W. B. *et al.*, *Molecular Physics*, 35, 639–648 (1978).

MD-GAN[3]の概要

- 機械学習を用いたMDシミュレーションの高速化
→ 長時間トラジェクトリを短時間で取得
- 短時間のMDデータから長時間トラジェクトリを生成



- 総計算コスト = 短時間MDの計算コスト + MD-GANの計算コスト



高分子内の水分子拡散

• ホモポリマー

ポリエチレン(PE)	ポリフッ化ビニリデン(PVDF)	ポリ酢酸ビニル(PVAC)	ポリアクリルアミド(PAAM)	
$\text{H}-\left(\text{CH}_2-\text{CH}_2\right)_n-\text{H}$	$\text{H}-\left(\text{CF}_2-\text{CH}_2\right)_n-\text{H}$	$\text{H}-\left(\begin{array}{c} \text{CH}-\text{CH}_2 \\ \\ \text{O} \\ \\ \text{C}=\text{O} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}\right)_n-\text{H}$ $\begin{array}{c} \text{O} \\ \\ \text{C}=\text{O} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$ エステル	$\text{H}-\left(\begin{array}{c} \text{CH}-\text{CH}_2 \\ \\ \text{C}=\text{O} \\ \\ \text{NH}_2 \end{array}\right)_n-\text{H}$ $\begin{array}{c} \text{C}=\text{O} \\ \\ \text{NH}_2 \end{array}$ アミノ基	
(n, N)	(240,8)	(120,16)	(60,16)	(72,16)

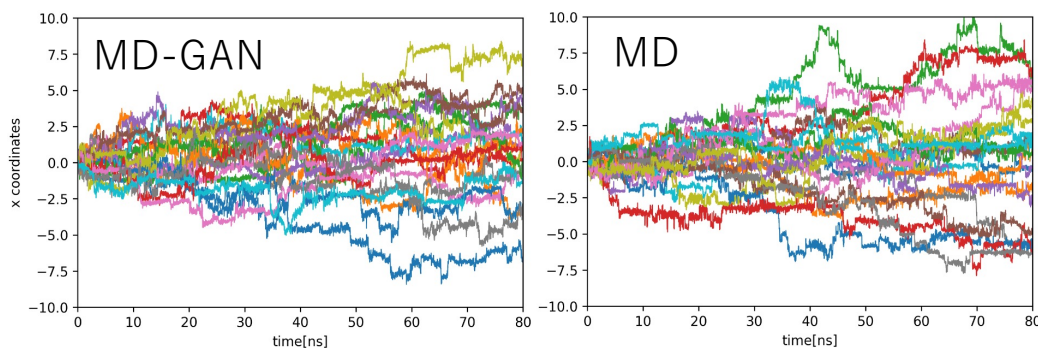
• 共重合ポリマー

	エチレン-フッ化ビニリデン	エチレン-酢酸ビニル	エチレン-アクリルアミド
ブロック体	$\text{H}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2)_l-(\text{CF}_2-\text{CH}_2)_m-\text{H}$	$\text{H}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2)_l-(\text{CH}-\text{CH}_2)_m-\text{H}$ $\begin{array}{c} \text{O} \\ \\ \text{C}=\text{O} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$	$\text{H}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2)_l-(\text{CH}-\text{CH}_2)_m-\text{H}$ $\begin{array}{c} \text{C}=\text{O} \\ \\ \text{NH}_2 \end{array}$
グラフト体	$\text{H}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2)_{l-1}-\text{CH}-\text{CH}_2-\text{H}$ $\begin{array}{c} \text{CH}_2-\text{CH}_2 \\ \\ (\text{CF}_2-\text{CH}_2)_m \end{array}$	$\text{H}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2)_{l-1}-\text{CH}-\text{CH}_2-\text{H}$ $\begin{array}{c} \text{CH}-\text{CH}_2 \\ \\ \text{O} \\ \\ \text{C}=\text{O} \\ \\ \text{CH}_3 \end{array}$	$\text{H}-(\text{CH}_2-\text{CH}_2)_{l-1}-\text{CH}-\text{CH}_2-\text{H}$ $\begin{array}{c} \text{CH}-\text{CH}_2 \\ \\ \text{C}=\text{O} \\ \\ \text{NH}_2 \end{array}$
$(\text{weight}\%, l, m, n)$	(20,18,2,6)	(15,18,1,6)	(12,18,1,6)
$N = 16$	(20,108,12,1)	(15,108,6,1)	(12,108,6,1)
	(77,4,6,12)	(70,4,3,12)	(75,5,6,8)
	(77,48,72,1)	(70,48,36,1)	(75,40,48,1)

[1] Kojima H., *et al.*, *J. Phys. Chem. B* **125**, 9357 – 9371, 2021.

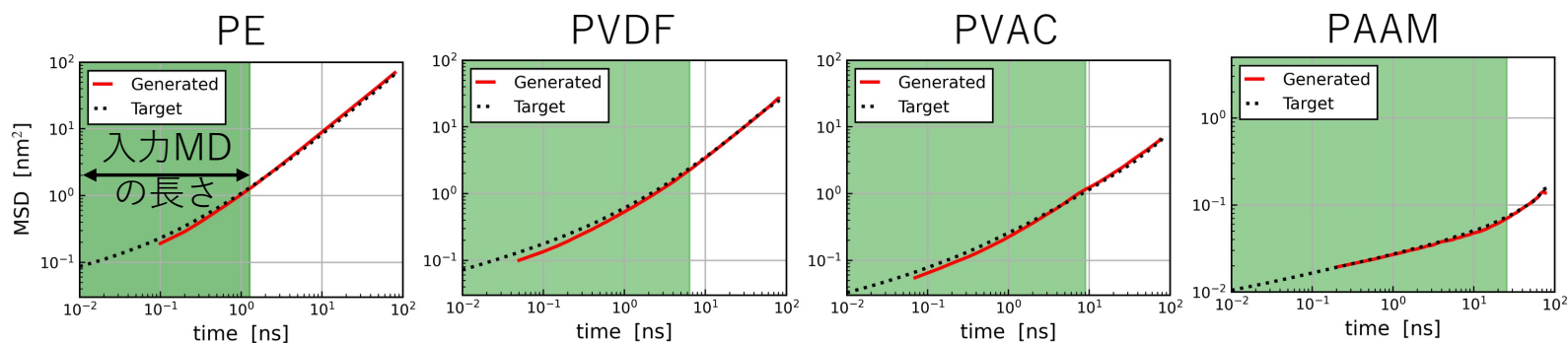
MSDの予測結果

■ PE中の水のMDデータと生成トラジェクトリの比較



トラップと
ジャンプをする挙動
が再現されている

■ ホモポリマー中の水のMSD



ホモポリマーの拡散の早い系から遅い系まで予測可能
拡散が遅いほど、長いMD データを入力する必要がある

拡散係数の予測結果

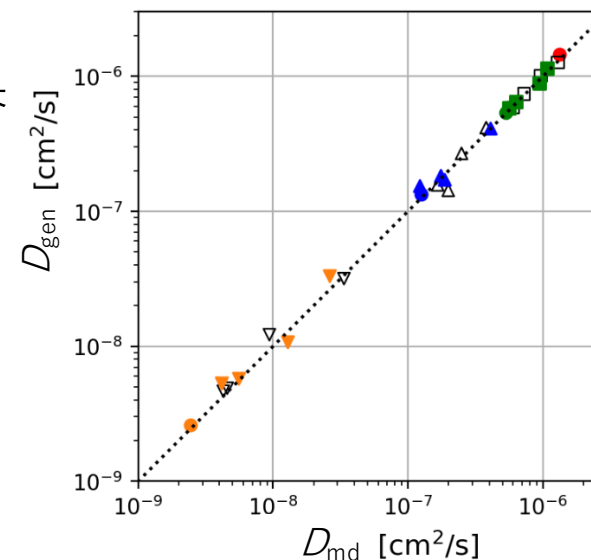
■ 入力したMDデータの長さ

ホモポリマー				共重合ポリマー		
PE	PVDF	PVAC	PAAM	エチレン- フッ化ビニリ デン	エチレン- 酢酸ビニル	エチレン- アクリルアミ ド
1.3 ns	6.4 ns	9.0 ns	25.6 ns	3.8 ns	9.0 ns	25.6 ns

拡散が遅い系ほど長いMDデータの入力が必要

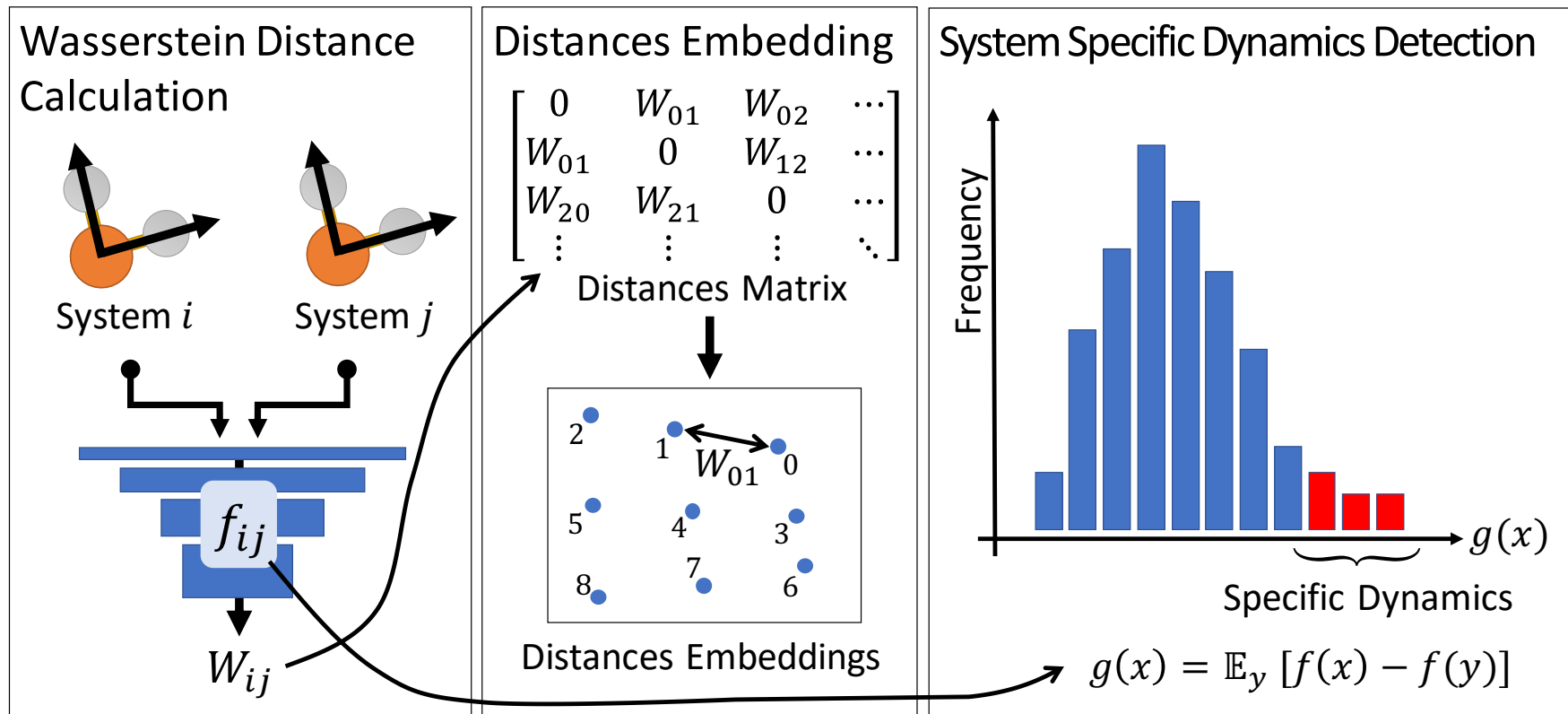
■ すべての系の拡散係数の予測結果

予測した拡散係数が
長時間MDから求めた拡散係数と
よく一致



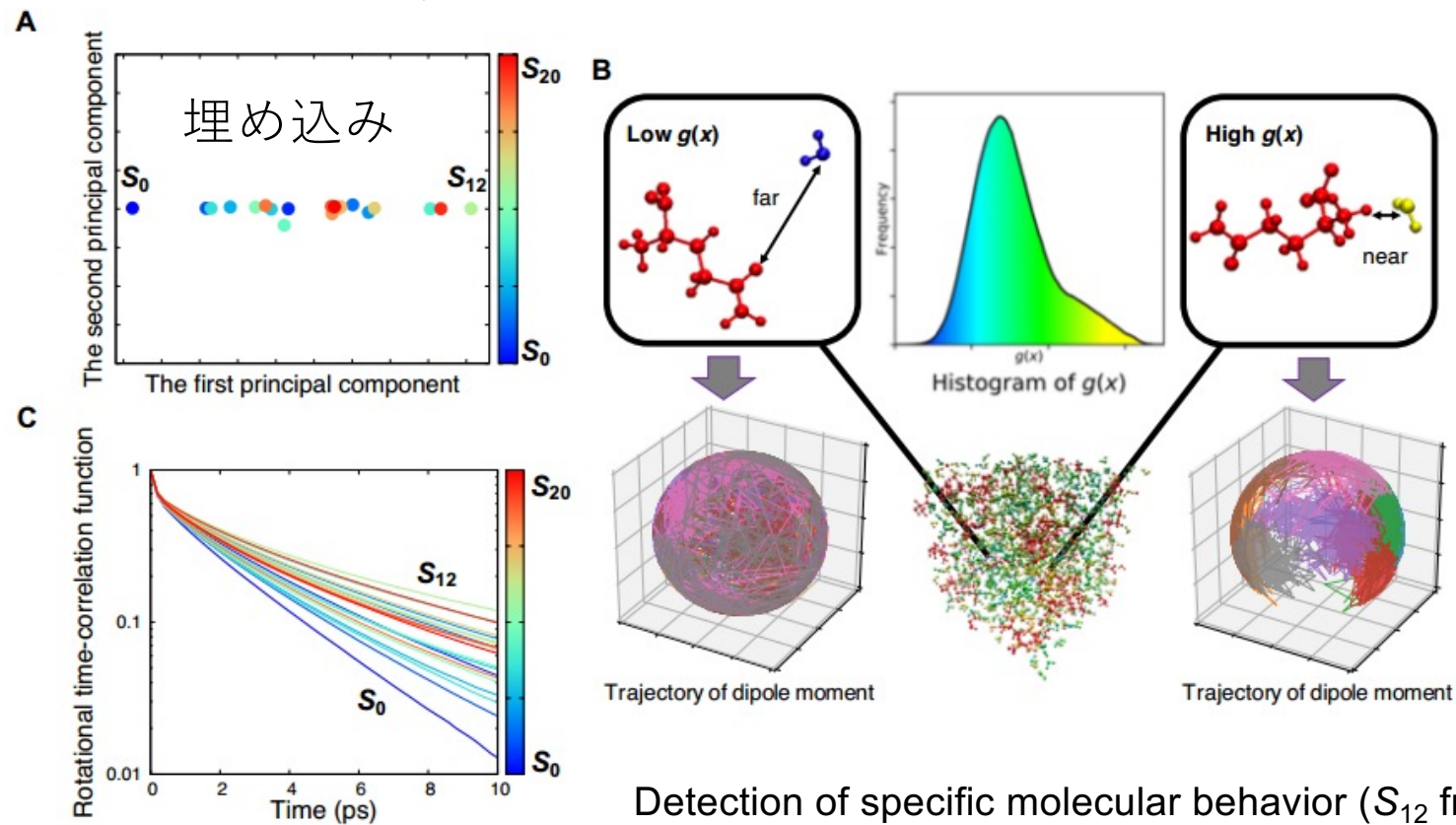
系の違いに寄与する分子運動の探知

- 訓練済みのDNNの出力は，MDと直接的な関係がある
- その出力は分子運動の特徴度を表す



アミノ酸水溶液の予測

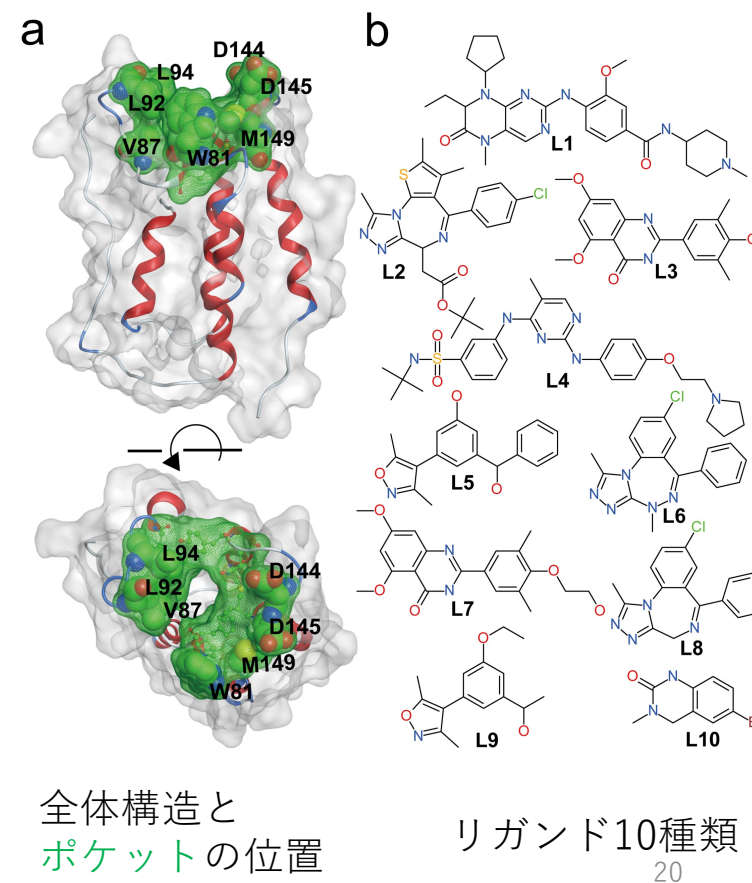
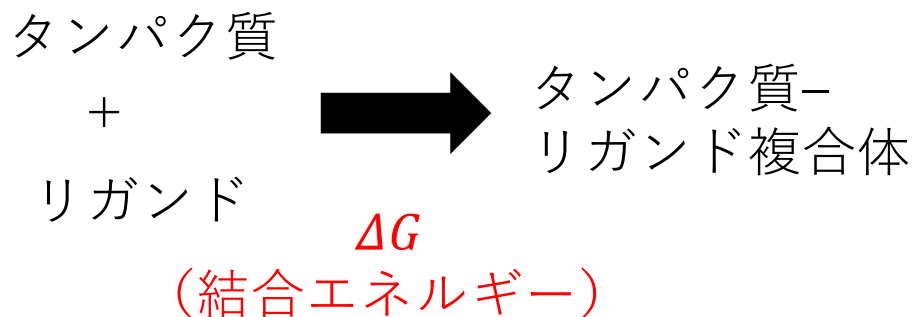
- アミノ酸水溶液 (20種類のアミノ酸溶解液, アミノ酸なしの水)
→ LDEとして64 psの水の双極子モーメントのデータを使用.
- 水分子の回転緩和時間と, アミノ酸の相互作用による運動を探知



Detection of specific molecular behavior (S_{12} from S_0)

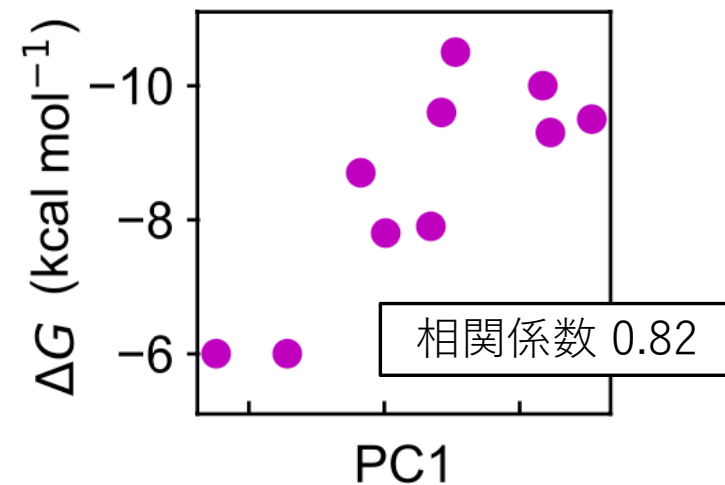
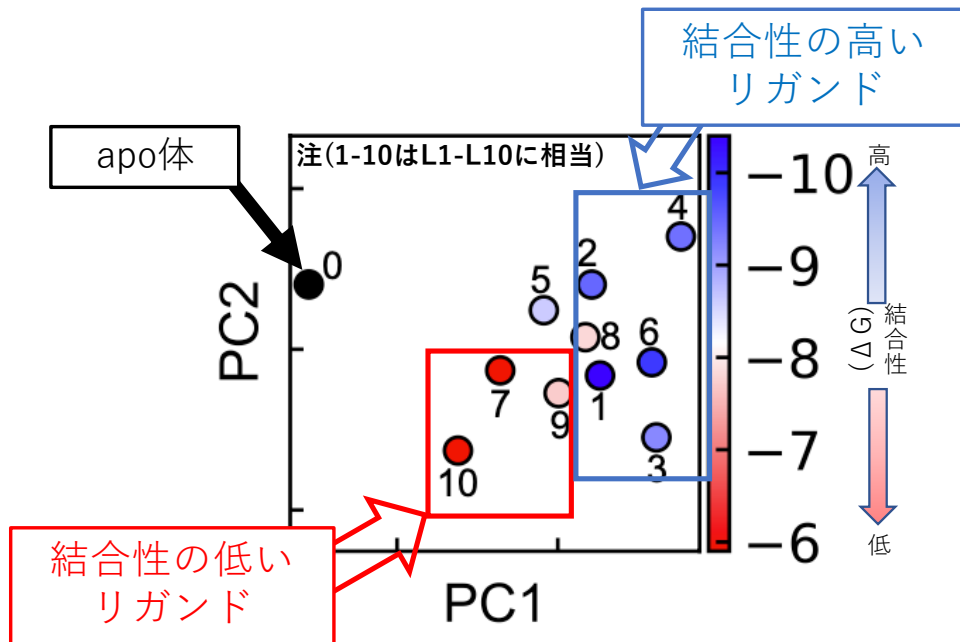
タンパク質と化合物（リガンド）の親和性予測

- タンパク質とリガンドの複合体系（複数）のMD
 - タンパク質の運動を表す座標データを取得
- 化合物が誘起するタンパク質のゆらぎの類似性からタンパク質-リガンドの結合エネルギーを推定



タンパク質と化合物（リガンド）の親和性予測

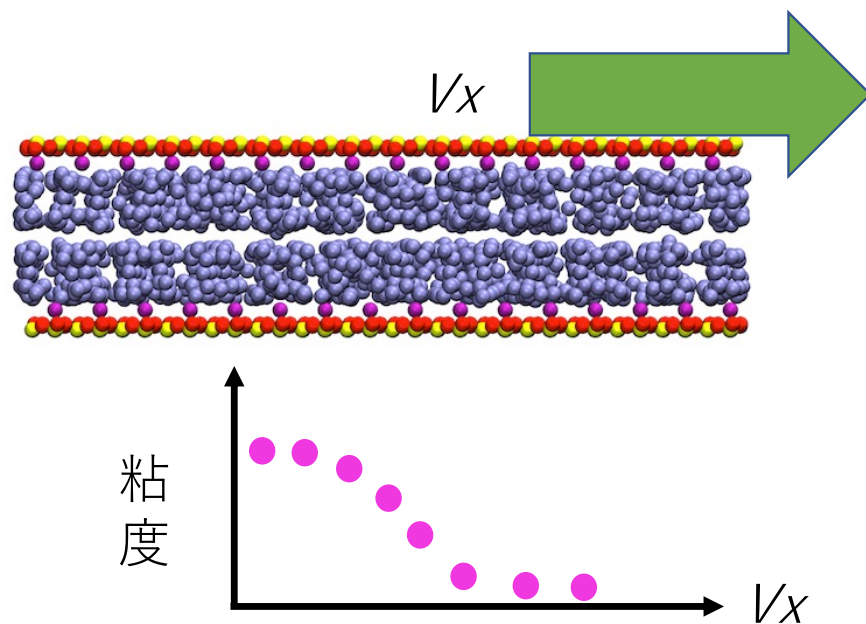
- 系のダイナミクスの違いを2次元マップとして表現
- 第一成分と結合エネルギー（計算値）を定量的に比較



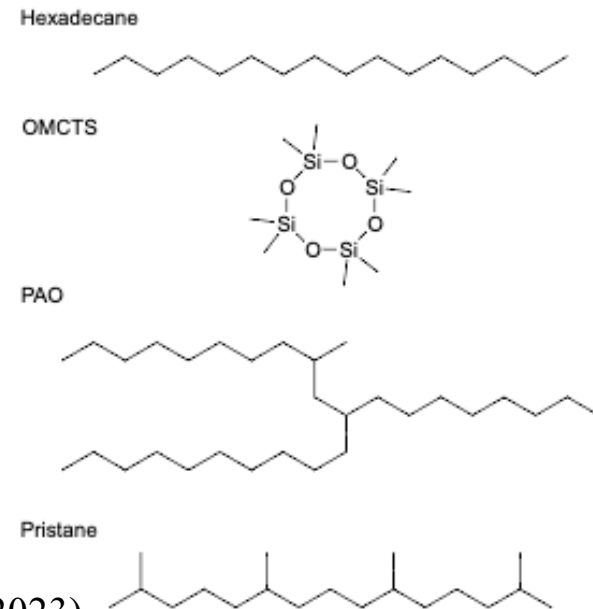
結合エネルギーと第一成分に強い相関
→第一成分を用いて結合エネルギーを予測可能

潤滑油の粘度予測

- 閉じ込め系でのMDシミュレーションから時系列座用データを取得
- 潤滑油分子の運動の違いから粘度を推定する.

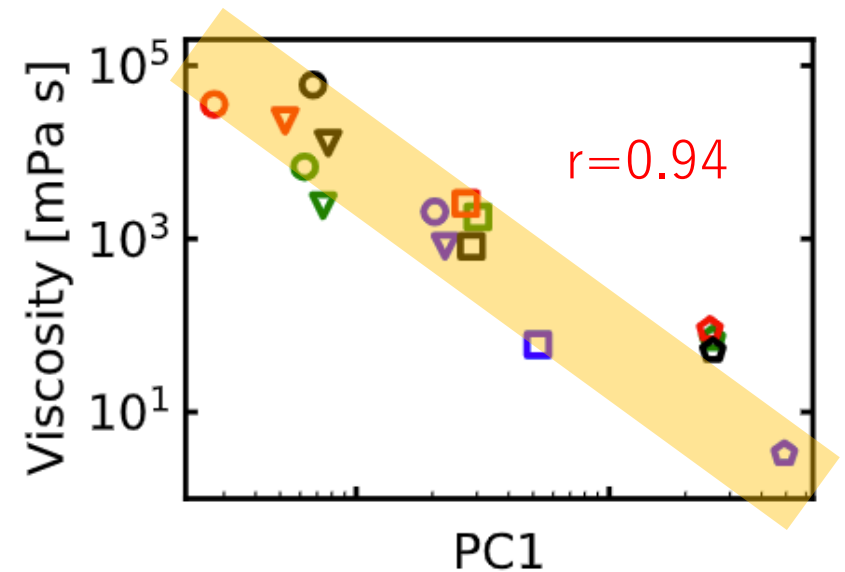
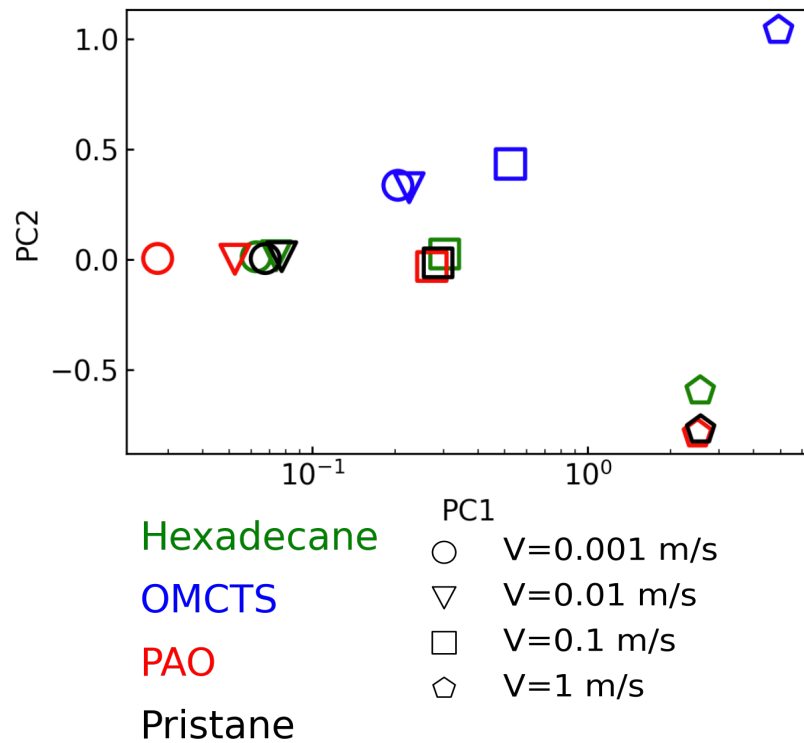


計算例：潤滑剤 4 分子，異なるずり断速度



潤滑油の粘度予測

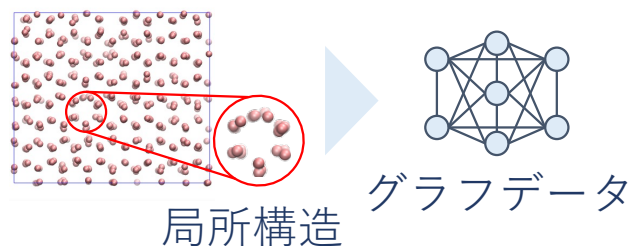
- 系のダイナミクスの違いを2次元マップとして表現
- 第一成分と粘度を定量的に比較



グラフニューラルネットワーク(GNN)による自動設計

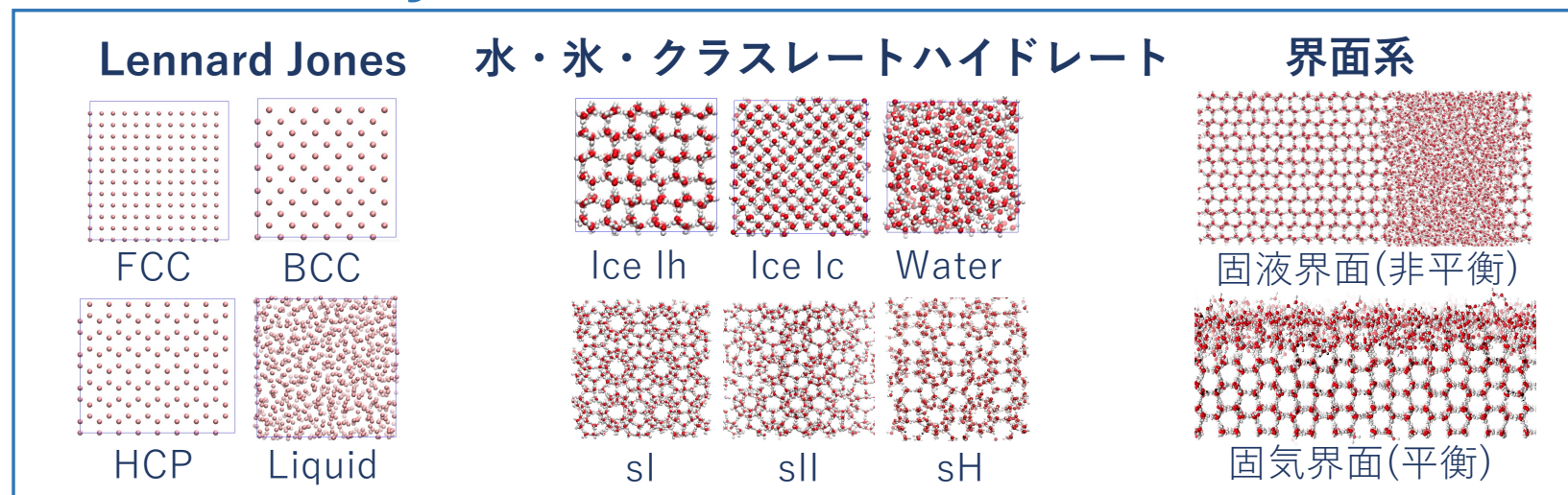
Our Method_[1,2]

事前知識なくパラメータを自動設計



- 局所構造に対するパラメータ
- 構造をグラフとして直接表現

Simulation System

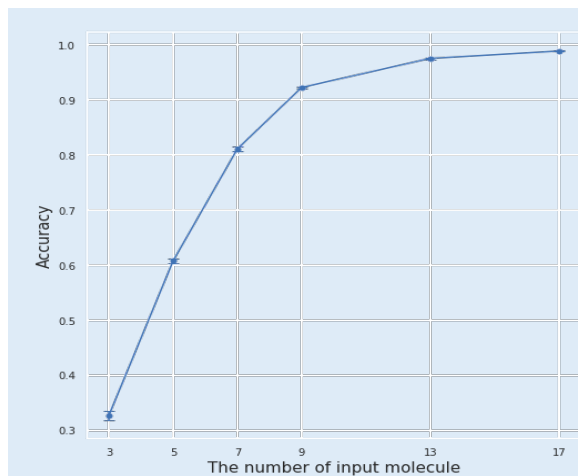


Expertise

Parameter Design

Analysis

教師あり機械学習手法による結果



Lennard-Jones系

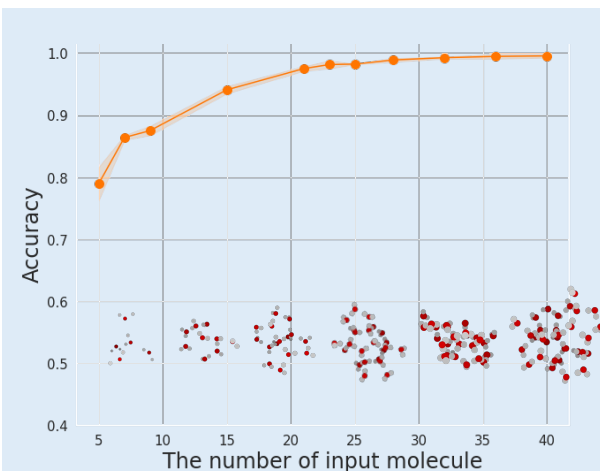
Classification accuracy

Input particle : 17

98.9%

Input particle : 13

97.5%



氷・水・ハイドレート

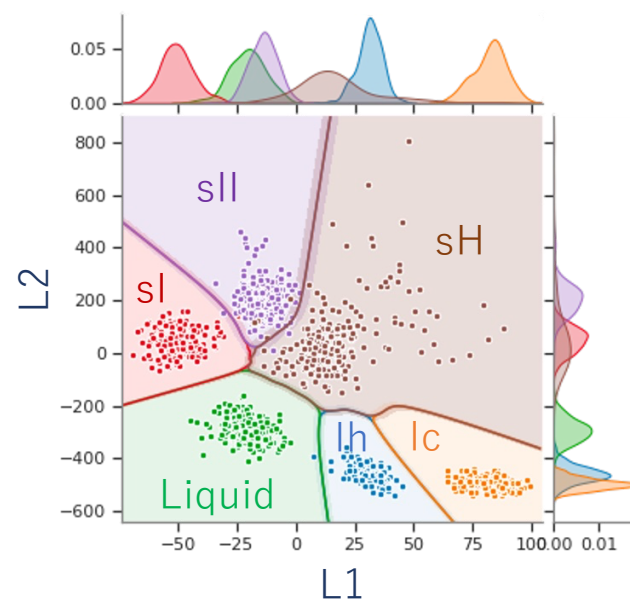
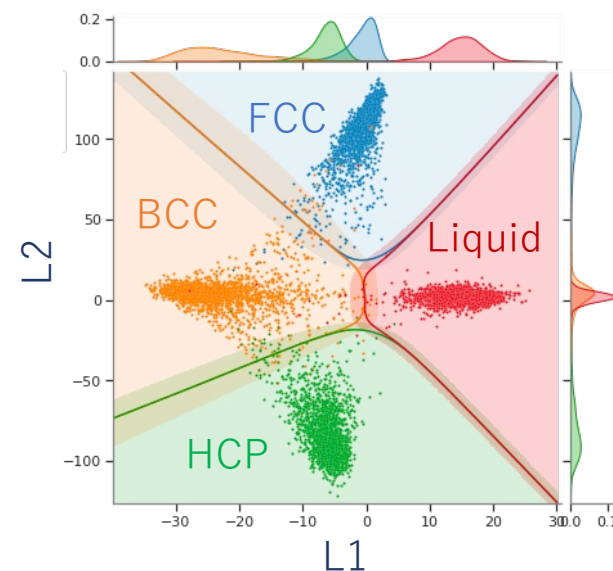
Classification accuracy

Input particle : 40

99.5%

Input particle : 28

98.8%



水の分子シミュレーションと機械学習

- 水蒸気の液滴核生成
 - 大規模MDシミュレーションと理論を比較
- 計算の高速化と自動解析の機械学習
 - MD-GANにより短時間MDから長時間MDを予測
 - 系の違いを自動判定し、物性値と比較
 - グラフニューラルネットワークを用いて、構造判定