

第 1 回ソフトマテリアル工学 シミュレーション討論会

2023 年 3 月 9 日(木)-10 日(金)

兵庫県立大学 神戸情報科学キャンパス

ソフトマテリアル工学
シミュレーション研究会

第1回ソフトマテリアル工学シミュレーション討論会 @ 兵庫県立大学 神戸情報科学キャンパス

1日目 (3/9)	時間	名前	所属	タイトル	座長
	12:30			(開場)	
	13:00	荒井規允	慶應義塾大学	(開会)	
特別講演A	13:05	伊藤省吾	兵庫県立大学大学院	非真空・印刷プロセスによるペロブスカイト太陽電池	山口 哲生
1	14:00	杉澤宏樹	三菱ケミカル株式会社	分子動力学法による高分子のガラス転移点に関する研究	荒井規允
2	14:20	左藤碧海	慶應義塾大学大学院	架橋点間分子量に着目した半経験的パラメータに依存しない架橋ゴム構造の分子シミュレーション	
3	14:40	山口晃寛	(株)日立製作所, 慶應義塾大学	分子動力学シミュレーションを用いた生分解性ポリエステル/TPSブレンドの界面密着性に関する検討	
	15:00			(休憩)	
4	15:10	小林祐生	慶應義塾大学	両親媒性バッチ粒子の自己集合と粘性挙動	牧野真人
5	15:30	Kosar Khajeh	University of Hyogo	A digit hydraulic fluid: from field challenges to a multiscale simulation	
6	15:50	古市謙次	東洋紡株式会社	積層型繊維強化プラスチックのレオロジー	
	16:10			(ポスター)	
	17:00			(閉場)	
2日目 (3/10)	時間	名前	所属	タイトル	座長
	8:30			(開場)	
特別講演B	9:05	瀬戸亮平	中国科学院大学温州研究院	濃厚懸濁液の非一様流動	鷺津仁志
7	10:00	岡本隆一	兵庫県立大学	電解質溶液の粗視化理論	杉澤宏樹
8	10:20	尹 廣洲	神戸大学 大学院	Effects of scission of flexible polymers on elastic instability in multiple planar contraction-expansion channels	
9	10:40	木友涼子	関西大学	疎密のある粒子層中を移動するマイクロ微粒子挙動のシミュレーション	
	11:00				
10	11:10	牧野真人	三菱ケミカル株式会社	カニ穴のシミュレーション	小林祐生
11	11:30	山口哲生	東京大学大学院	樹皮のパターン形成メカニズム	
12	11:50	荒井規允	慶應義塾大学	“機械学習”×“分子シミュレーション”～実験不要な製品開発に向けて～	
	12:10	鷺津仁志	兵庫県立大学大学院	(閉会)	
	12:15			(閉場)	

非真空・印刷プロセスによるペロブスカイト太陽電池

兵庫県立大学 大学院工学研究科 材料・放射光工学専攻 伊藤 省吾

2009 年に日本人（桐蔭横浜大学・宮坂力教授の研究グループ）により開発された有機鉛ヨウ素（ $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ ）ペロブスカイト太陽電池は、変換効率が 25%を超え、印刷プロセスで安価に製造できるという事で非常に注目を浴びている。ペロブスカイトは立方晶を基準とした 3 元系材料結晶構造の名前であり、有名なものは CaTiO_3 や BaTiO_3 のような酸化物であり、それらは一つの +2 価イオン（ Ca^{2+} , Ba^{2+} ）と一つの +4 価イオン（ Ti^{4+} ）と三つの -2 価イオン（ O^{2-} ）でチャージバランスを取った結晶である。それに対し、太陽電池の光吸収材料と使用される $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ ペロブスカイト結晶は、一つの +1 価イオン（ CH_3NH_3^+ ）と一つの +2 価鉛イオン（ Pb^{2+} ）と三つの -1 価ハロゲンイオン（ I^- ）でチャージバランスをとっている。それぞれのイオンを少しずつ他の材料に入れ替えていく事で、非常に多くのバリエーションが可能であり、最高効率のペロブスカイト結晶は、formamidinium（ $\text{NH}_2\text{CHNH}_2^+$; FA^+ ）を使用した FAPbI_3 に methylenediamine（ $\text{CH}_2(\text{NH}_3)^{+2}$ ）と K^+ （カリウム）を加えたものが使用されている。上記の有機鉛ヨウ素ペロブスカイト太陽電池の問題点の一つとしては、大気中の水分に対して非常に弱く、 PbI_2 を中心とした黄色の結晶に変化してしまう事に有る。その為に、高性能ペロブスカイト太陽電池の作製にはグローブボックスやドライルームを使用した作製環境が必要である。また作製された太陽電池の環境耐久性も非常に低く、パッケージをすることで耐久性を向上させることが非常に重要な研究開発のポイントになっている。もう一つの問題点としては、太陽電池を構成する為に光吸収層である有機鉛ヨウ素ペロブスカイト結晶層を電子と正孔を引き抜くための電子輸送層と正孔輸送層でサンドイッチする必要があるが、電子輸送層に使われるフラーレンや PCBM、および正孔輸送層に使用される SpiroOME-TAD などが非常に高額であることがあり、さらに背面電極には真空蒸着による金や銀の貴金属電極が使用されている。それぞれが高額な材料であると共に、その有機半導体キャリア移動材料が酸素や水と反応し、背面電極の金や銀がペロブスカイト結晶材料のヨウ素と反応する為に、さらに耐久性が下がる原因となっている。これらの問題を解決する為に、有機半導体キャリア移動材料と背面電極の機能を兼ねそろえたカーボン材料を基盤とした、完全非真空・印刷プロセスによる「多孔質多孔質電極型ペロブスカイト太陽電池（multi-porous-layered-electrode perovskite solar cell: MPLE-PSC）」が開発され、兵庫県立大学では、企業との共同研究により、屋外 20 年保証と言われる高温高湿試験（85°C-85%RH）で 3000 時間の耐久性を確認し、現在では実用化に向けた研究開発に邁進している。本発表では、ペロブスカイト太陽電池作製にまつわる種々薄膜作製プロセス（スプレー熱分解積層 [spray-pyrolysis deposition], 化学液相堆積法 [chemical-bath deposition], スクリーン印刷 [screen printing], スピンコーティング [spin coating] など）を紹介し、高効率太陽電池作製の為の議論をすすめたい。

分子動力学法による高分子のガラス転移点に関する研究

(三菱ケミカル株式会社 Science & Innovation Center) 杉澤宏樹

データ駆動型材料開発技術において「データの質や量」は極めて重要であり、ハイスループットスクリーニング (HTS) 技術を活用して高品質で大量のデータを自動生成することに注目が集められている。HTS 技術は 1990 年代以降製薬業界を中心に実験自動化の文脈で進められてきたが[1]、近年では、計算機性能の向上に伴う計算データベースの構築も進められるようになり、現在では、バンド計算[2]や量子化学計算[3]、分子動力学計算[4]による様々なデータベースにアクセス可能である。ただし、高分子ガラス材料は低分子や結晶と異なり構造と物性とが一对一对応していないためにデータベース構築が遅れているようである (我々が認識している限りでは、計算データとして密度[5]やガラス転移点[6]、実験データとして PolyInfo、Bicerano[7])。したがって、本講演では人的/時間的コストの大きい実験による HTS ではなく、スーパーコンピュータを活用したシミュレーションによるハイスループットシミュレーション技術構築の可能性について議論する。

高分子ガラスのシミュレーションを困難にしている原因はガラスの特異性にあり、例えば、降温速度依存性、分子量依存性、初期値依存性、力場依存性などがあげられる。特に降温速度は実測と比較しておよそ 10^{13} 倍速くせざるを得ないためその影響を無視することはできない[8]。降温速度 γ に対する経験式[9]

$$T_g(\gamma) = T_0 - A / \ln B\gamma$$

を活用することで実測とシミュレーションを接続する試みもあるが[10]、定数 A と B は高分子固有の値を持つので画一的な補正は難しい。ここで、 T_0 は降温速度無限小におけるガラス転移点である。これらの理由から一般的に高分子の正確なガラス転移点をシミュレーションで求めることはできないと考えられているが、各論的議論にとどまっており、幅広いガラス転移点を持つ高分子について降温速度依存性を広く調べた研究は報告されていない。したがって、本研究では高分子のデータ駆動材料開発を目指し、単独では意味をなさないが大量に収集することで統計的に意味をもつような高分子ガラスデータについて議論する。また、そのようなデータを収集するための効率的なシミュレーションアルゴリズムについて考察する。

[1] R.P. Hertzberg and A.J. Pope, Curr. Opin. Chem. Biol. 4, 445 (2000). [2] W. Setyawan and S. Curtarolo, Comput. Mater. Sci. 49, 299 (2010), pp. 299. [3] A. Jain, G. Hautier, C.J. Moore, S.P. Ong, C.C. Fischer, T. Mueller, K.A. Persson, and G. Ceder, Comput. Mater. Sci. 50, 2295 (2011). [4] M.J. Harvey and G. De Fabritiis, Drug. Discovery Today 17, 1059 (2012). [5] Y. Hayashi, J. Shiomi, J. Morikawa, and R. Yoshida, arXiv:2203.14090 (2022). [6] M.A.F. Afzal, A.R. Browning, A. Goldberg, M.D. Halls, J.L. Gavartin, T. Morisato, T.F. Hughes, D.J. Giesen, and J.E. Goose, ACS Appl. Polym. Mater. 3, 620 (2021). [7] J. Bicerano, Prediction of Polymer Properties (Marcel Dekker Inc., New York, 1996). [8] J. Buchholz, W. Paul, F. Varnik, and K. Binder, J. Chem. Phys. 117, 7364 (2002). [9] L. H. Sperling, Introduction to Physical Polymer Science (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1992). [10] A. Soldera and N. Metatla, Phys. Rev. E, 061803 (2006).

架橋点間分子量に着目した半経験的パラメータに依存しない架橋ゴム構造の分子シミュレーション

(慶應義塾大学大学院) 佐藤碧海*, 安田一希
(慶應義塾大学) 小林祐生、荒井規允、泰岡顕治

ゴムは高い弾性を持つ高分子であり、これまでに材料科学や医療材料等の分野で幅広く利用されている。現在、合成ゴムは架橋構造により弾性、耐熱性、耐摩耗性などの特性を向上・制御しており、その構造や物性を解明することは重要な課題となっている。そのため、近年では全原子分子動力学シミュレーションを用いたゴム物性の解明が行われている。しかし通常のシミュレーションにおいては分子間の結合・解離を考慮せず、相互作用についてのみ計算が行われるため合成ゴムの構造を再現することは困難である。

そこで現在、シミュレーション上でゴムの架橋構造を再現するために様々な架橋プログラムが提案されているが、その多くにおいて分子種毎に半経験的なパラメータを用いる必要がある。このように、ゴムの分子種によって適切なパラメータをその都度変更しなければならず、統一された基準による架橋手法が望まれている。

よって本研究では架橋点間の平均分子量を基準とすることで、半経験的なパラメータに依らない架橋手法の提案を行う(図 1)。架橋点間の平均分子量は、架橋剤の比率とゴムの重合度から算出できるパラメータであり、定量的に架橋構造を作成することが可能である。本研究成果は、材料科学における製品開発のための重要なシミュレーションモデルの確立に貢献すると期待される。

■ Cross-linking method

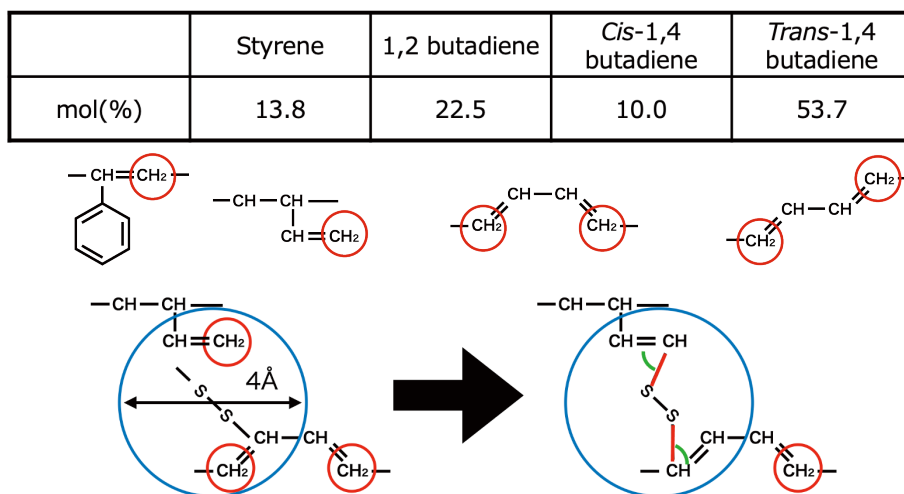


図 1. Cross linking method の概略図

分子動力学シミュレーションを用いた 生分解性ポリエステル/TPS ブレンドの界面密着性に関する検討

山口晃寛((株)日立製作所 研究開発グループ, 慶應義塾大学大学院 理工学研究科)

荒井規允(慶應義塾大学 理工学部)

1. 緒言

海洋プラスチック汚染などの環境問題が深刻化するなか、環境に配慮したバイオプラスチックの利用が拡大している¹⁾。特にポリ乳酸 (PLA) やポリブチレンサクシネート (PBS) などの生分解性ポリエステルは容器包装材や日用品などのシングルユース品に適用が増えている。一方、これらは石油系プラスチックに比べて高価格であるため、低価格な熱可塑性でんぷん (TPS) を添加する方法が検討されている²⁾。ポリエステルと TPS のブレンドでは相分離界面の密着性が機械特性に大きな影響を及ぼすため、本研究では代表的な生分解性ポリエステル (PLA, PBS) と TPS ブレンドの密着状態を分子動力学シミュレーションにより検討した。

2. 方法

PLA-TPS および PLA-PBS-TPS 相分離界面の全原子モデルを作成し、単軸引張シミュレーションにより破壊挙動を調べた。シミュレーションは LAMMPS³⁾により実行した。引張方向の応力とひずみを逐次出力し、応力-ひずみ曲線の面積から破壊エネルギーを計算した。

3. 結果と考察

応力-ひずみ曲線を Figure 1 に、 $\epsilon_{xx} = 2.3$ 時点のスナップショットを Figure 2 に示す。PLA-TPS では $\epsilon_{xx} = 2.3$ にて PLA と TPS の界面が剥離しているが、PLA-PBS-TPS では同じひずみの時点で剥離がなく、PBS がフィブリルを形成していた。また、応力-ひずみ曲線の面積から算出した PLA-PBS-TPS の破壊エネルギーは PLA-TPS の約 1.7 倍となった。PLA-PBS-TPS が高い破壊エネルギーを示したのは、PBS が PLA, TPS 両分子に対して高い親和性を有することが要因であると考えられる。

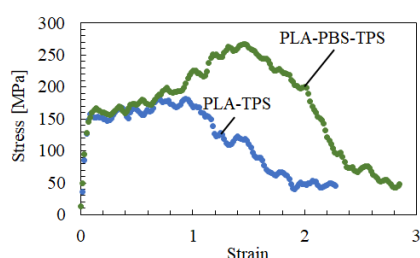


Figure 1. Stress-strain curves and snapshots of tensile simulations.

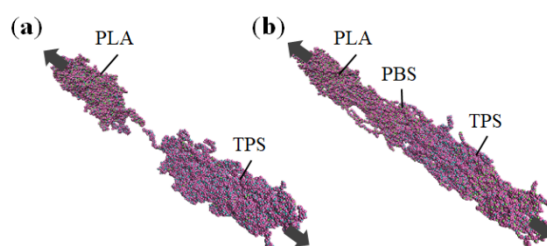


Figure 2. Snapshots of fracture simulations at $\epsilon_{xx} = 2.3$; (a) PLA-TPS and (b) PLA-PBS-TPS interfaces.

4. 結論

PBS が PLA, TPS 両分子と強固に密着することで、PLA-PBS-TPS は高い破壊エネルギーを示した。したがって、各成分間の密着性を考慮して構造を制御することが、生分解性ポリエステル/TPS ブレンドの機械特性を向上するうえで重要と考えられる。

1) Kumar, R.S., et al; Curr. Opin. Green Sustain.Chem. (2020), 21, 75-81. 2) Villadiego, K.M., et al; J. Polym. Environ. (2021), 1-17. 3) Plimpton, S., et al; J. Comput. Phys. (1995), 117, 1-19.

両親媒性パッチ粒子の自己集合と粘性挙動

(慶應義塾大学) 小林祐生、荒井規允

(Johannes Gutenberg University Mainz) Arash Nikoubashman

コロイド分散液とは、コロイド粒子（微粒子）が液体（溶媒）中に分散したものを指し、食品・塗料・化粧品・セメント等、多くの製品に使用されている。製品としての品質はもちろんのこと、製造・加工プロセスおよび製造設備の設計においても流動特性を把握しておくことが必要となる。コロイド分散液の粘度を制御するためには、それら流体の内部構造を予測・制御することが重要である。コロイド粒子の自己集合を制御するための一般的な方法として、粒子の形状や化学的な相互作用デザインすることが挙げられる。そのようにデザインされた異方性粒子の系では、圧力や濃度等の熱力学的状態に依存して規則的な相と不規則な相の相変化が起こり、その集合形態に伴い物性の急激な変化が観察される。

パッチ粒子は1つの粒子の中に2つ以上の異なる表面を有する特殊な粒子を指す。パッチ粒子系では異なる粒子表面によって、等方性粒子では観察されない複雑な構造やその条件が発見されている。この十数年で実験・シミュレーション問わず、パッチ粒子系では、表面異方性に起因する様々な複雑な自己集合過程や構造が確認されているにも関わらず、その複雑な自己集合構造と物性の関係性は明らかになっていない。これは実験の側面からは、サイズ・形状を制御しながらパッチ粒子を量産することや非平衡現象の観察が困難な点、シミュレーションの側面からは空間・時間スケールの制約が課題となっていたためである。

そこで本研究では、粒子間の流体力学的相互作用を取り込むことができる多粒子衝突動力学法(multi-particle collision dynamics, MPCD)と分子動力学法(molecular dynamics, MD)を組み合わせた MPCD-MD ハイブリッドシミュレーションにより、せん断流れ下におけるパッチ粒子分散液の粘度を調べ、自己集合構造との関係性の解明に取り組んだ。

平衡状態において、パッチ粒子の自己集合構造を観察したところ、体積分率やパッチ粒子のデザインに応じて、様々な構造が得られた。例えば親水半球と疎水半球を伏せ持つ球状1パッチ粒子の場合、低体積分率においては棒状のクラスターが現れ、体積分率を増加させるにつれて虫状、それらが複雑に絡み合ったネットワーク構造が形成された。

得られた自己集合構造にせん断流れを与え、構造の変化及びそれに伴う分散液の粘度との関係性を調べた。前述した、ネットワーク構造にせん断流れを与えた場合、小さいせん断速度でネットワーク構造から虫状クラスターへと変形し、その後せん断速度が大きくなるにつれ球状クラスターを経て、最終的にクラスターは完全に破壊された。このとき、クラスターの変形に伴い、二度 Shear-thinning 現象が観察された。さらに興味深いことに、これらの粘性挙動はパッチ粒子同士が形成する平均会合数によって整理できることが分かった。

Hydraulic fluids: From field challenges to multiscale simulation

Kosar Khajeh, Graduate School of Information Science, University of Hyogo

Hitoshi Washizu, Graduate School of Information Science, University of Hyogo

Alternative additives are being used to prepare a new generation of lubricants to reduce frictional and wear-related losses. Viscosity modifiers, high-molecular-weight polymers, change lubricating oil viscosity. Characterizing polymer dynamics in solutions helps make better hydraulic fluids and lubricants. Modern computer methods and processing facilities encourage hybrid models for multiscale simulation of the rheology and tribology phenomena. Because of the considerable time and length scale differences in modeling the continuous phase (solvent) and polymer (solute), the hybrid model using the Lattice-Boltzmann method (LBM) and Langevin dynamic model is introduced in this study as an efficient modeling technique. The former is a straightforward computational method for simulating Navier-Stokes equation-governed fluid motion, while the latter is powerful for modeling semi-flexible chain dynamics. A coarse-grained bead-spring model represents the polymer molecule as a finite chain. In this work, harmonic springs connect identical spherical particles with a particular radius and mass. The Langevin equation represents Brownian particle motion with conservative forces, a stochastic term, and hydrodynamics drag force (Stokes flow over the sphere). The flexible model with bond and dihedral terms in the intramolecular potential and nonbonded Lennard-Jones and Coulomb interactions are considered in the conservative term. Hydrodynamic drag is used as a momentum source throughout the governing equation of the continuous phase. The force convective heat transfer between fluid and particles is employed as a source term in the energy equation for fluid flow.

A cubic simulation box with n chains has been used to perform simulation experiments. For a typical oil like dodecane, density, and viscosity have been considered constant. Conformational data (average radius of gyration and center of mass movement) and flow field velocity and temperature helped explain the hydro-thermal behavior of polymers. The hybrid algorithm has been implemented in Fortran.

This study is the first step in understanding polymer-modified digital hydraulic fluid behavior and can be used in applications where macromolecule additives affect host solvents in natural and artificial processes.

繊維強化樹脂テープ積層体のレオロジーと成形シミュレーション

東洋紡（株）板倉大輔，石原遼一，○古市謙次
東レエンジニアリングDソリューションズ（株） 百濟彰
（国研） 海上・港湾・航空技術研究所 松尾剛

CTT（Chopped fiber Tape layered Thermoplastic CFRP）は、図 1 に示すように熱可塑性樹脂であるポリプロピレンと不連続炭素繊維を複合したテープの積層体である。CTT の成形にはスタンピングなどの圧縮流動が利用されている。一般的に、CFRP の成形性は、繊維含有率が高いと繊維の干渉により著しく損なわれる。しかし、CTT は繊維含有率が 50vol.% と非常に高いにも関わらず、優れた成形性を有する。

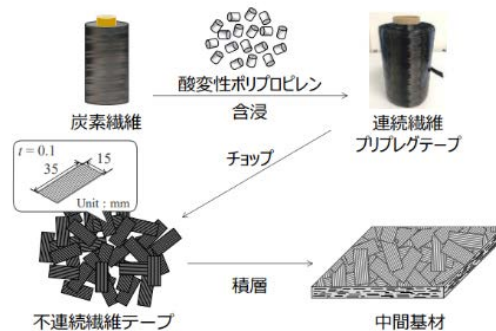


図 1 CTT の概要

CTT は成形時に、構造(積層面内／面外)と流動様式（せん断／伸長）に応じて、異方的な流動挙動を示す。さらに、CTT などの積層体は成形時において、金型壁面近傍で低粘度の潤滑層を形成するとされている。潤滑層の存在により、積層体の流動は壁面で滑りが発生したような状態となる。この潤滑層の形成は、CTT の持つ優れた成形性の要因の一つと考えられている。

CTT を用いた製品設計の効率化には、圧縮成形シミュレーションの利用が必須となる。その際には、CTT の異方的な流動挙動と金型壁面における潤滑層の再現が要求される。そこで我々は本研究において、CTT の異方性を考慮した粘度モデルを構築した。この粘度モデルは、圧縮成形シミュレーションにおいて潤滑層の再現に成功したので概要を報告する。

参考文献

- 1) 板倉大輔 他，成形加工'22, F101 (2022)
- 2) 板倉大輔 他，第 70 回レオロジー討論会, 1C02 (2022)
- 3) 特開 WO2022/255380 (PCT/JP2022/022190)

濃厚懸濁液の非一様流動

瀬戸亮平

Wenzhou Institute, University of Chinese Academy of Sciences

懸濁液のレオロジーは非常に古くからある問題である。懸濁液を理想化すると無数の剛体球がニュートン流体に分散しているという極めて単純な系になる。流体力学的な観点から考えると、粒子の表面は流体の境界条件に過ぎない。粒子は変形しないが、自由に浮遊しているので、流体にとっては動く境界条件である。粘弾性流体のように変形してエネルギーを貯める自由度がないので、懸濁液を粘性流体とみなすのが自然である。

しかし、懸濁液の粒子体積分率を上げていくと、粘性流体と思えない複雑な挙動が現れる。粘度は剪断速度に依存するだけでなく、通常は正の値が弾性成分を示唆する第1法線応力差は、基本的に負の値を取るが、体積分率や剪断速度に依存して、正の値を取ることもある。こういった振る舞いを従来の枠組みで説明しようとすることは簡単でなく、多くのレオロジーの研究者を悩ませてきた。

最近の研究は、この粘性流体という常識を破る形で進展し、懸濁液のレオロジーについてのある程度のコンセンサスが得られる状況になってきた。上述のような理想化した流体力学の問題に閉じ籠もらず、接触粒子のメカニクスを考慮することが鍵であった。流体力学観点から構築されたStokesian Dynamicsに、粉粒体の研究で導入されたDiscrete Element Methodを組み合わせたシミュレーションによって懸濁液の複雑な振る舞いが再現されるようになった[1]。

レオロジーは制御された一様な流動と応力の関係から、物質の特徴を見出す研究であるが、それが分かっても直ちに与えられた境界条件についての流動を予言することができない。懸濁液の流体方程式を導入するための構成則モデルについては、まだ試行錯誤が行われている状況である[2, 3]。

そこで我々は非一様な流動条件で懸濁液がどのように流動するかを理解するために、上述のレオロジーのシミュレーションを拡張した。懸濁液が圧力駆動で流路内を流れる様子を再現し、そのような状況で、懸濁液の粘性流体らしくない部分がどのように現れるのかについて分かってきた。一様な懸濁液が、流路内を流れると共に非一様になる様子を見ることができる。外側から内側への粒子が移動し、中央にplugが形成される。このplugはレオロジーでは粘度の発散を意味するジャミング点よりも体積分率が高くなる。また圧力場と法線応力の関係や、非平衡定常状態に到達できない場合に、不安定性が発生するメカニズムについて議論する。

[1] R. Mari, R. Seto, J. F. Morris, and M. M. Denn. Shear thickening, frictionless and frictional rheologies in non-Brownian suspensions. *J. Rheol.*, 58(6):1693–1724, 2014.

[2] C. Ness, R. Seto, and R. Mari. The physics of dense suspensions. *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.*, 13(1):97–117, March 2022.

[3] M. M. Denn and J. F. Morris. Rheology of non-brownian suspensions. *Annu. Rev. Chem. Biomol. Eng.*, 5(1):203–228, 2014.

電解質溶液の粗視化理論

兵庫県立大学 岡本隆一

イオン固有性とは、荷数の等しいイオンが溶液物性に対して異なる影響を与えることを言う。溶液バルク・界面の熱力学から電気伝導・粘性といった動力学にわたり様々な場面で見られ、それらは互いに相関することが長い間指摘されているが、そのメカニズムは現在でも活発な研究対象となっている。講演者らはこれらを出来るだけ統一的に理解することを目標としてシンプルな粗視化理論を発展させてきた。粗視化理論は全原子シミュレーションなどに比べて実験と精緻に一致するものではないが、現象の(もし存在するならば)物理的メカニズムのエッセンスを見通しよく議論できる。また、(特に希薄な)電解質溶液は緩和時間や相関距離が大きいいため全原子シミュレーションが比較的難しいため、良い粗視化モデルを作ることは実用的にも重要である。講演ではこれらの具体的成果である以下の2点を紹介する。

- (1) イオン固有と対照的にイオン非固有な現象として有名なものに、塩活量係数や浸透係数の Debye-Hückel 則がある；これらの係数は塩希薄の漸近則として、塩濃度の平方根に比例し、その prefactor はイオン価数が同じならば同一となる。反面、塩濃度が大きいところ(おおよそ 0.05M 以上)では漸近則から離れイオン固有となる。アルカリ金属-ハロゲン塩の実験結果から見られるイオンサイズ依存性が、水とイオンの排除堆積効果および電縮効果の競合の結果として理解できることがわかった [1]。
- (2) タンパク質の塩析・塩溶効果の強度でイオンを順位付けしたいいわゆる Hofmeister 系列もイオン固有性の一つである。タンパク質は親水基や疎水基を含む複雑な対象であり、それに対する塩効果を理解するためにはまずはより単純な個々の構成要素に対する塩効果を解明することが肝要である。そこで(1)のモデルを発展させて、疎水性溶質(ガス分子)の溶解度に対する塩添加効果について(i)1 溶質の溶解度(溶媒和自由エネルギー)と(ii)2 溶質間相互作用(浸透第2ビリアル係数)を調べた[2]。(i)については実験と半定量的一致をみた。(ii)についてはこれまでに実験は無いため比較はできないが、(i)と(ii)の間の非自明な相関の近似的表式を得た。アルカリ金属ハロゲン塩とメタンガスの溶液の全原子分子動力学も行い、この近似的表式が確かに満たされていることを確認した。

時間が許せば、(2)と関連して枯渇相互作用や共貧溶媒効果の新しい見方や、電解質溶液の動力学に関する取り組み[3]についても紹介したい。

- [1] R. Okamoto, K. Koga, and A. Onuki, J. Chem. Phys. **153**, 074503 (2020).
[2] R. Okamoto and K. Koga, J. Phys. Chem. B **125**, 12820 (2021).
[3] R. Okamoto, J. Stat. Mech., 093203 (2022).

Effects of scission of flexible polymers on elastic instability in multiple planar contraction-expansion channels

(Kobe University) Guangzhou Yin, Ruri Hidema, Hiroshi Suzuki

Polymer scission refers to the breaking of polymer chains into smaller fragments, which can lead to a decrease in its molecular weight. In our work, flow regimes of diluted polyethylene oxide solutions pass through 10 interconnected abrupt contraction-expansion channel were investigated. The experimental results show that polymers were gradually degraded along the channel. In order to predict the degree of polymers scission and molecular weight in the channel, we have conducted two dimensional numerical simulations at the same experimental model by using OpenFOAM. By comparing flow regimes of experiments and simulations, we can determine the molecular weight of polymer solution in the channel. The simulation results show that at flow rates of 40, 50, and 60 $\mu\text{m}/\text{min}$ within the channel, Polymer degradation occurs more rapidly in the first few units of the channel, with the first scission being the most significant, accounting for almost 30% of the total polymer scission, and then, the degradation rate of the polymer gradually decreases and tends to ease. Clearly, flow rate has a significant effect on polymer degradation, with faster flow rates resulting in faster and more complete degradation of the polymer in the channel. This study will be useful for some applications where polymers are injected multiple times.

疎密のある粒子層中を移動するマイクロ微粒子挙動の

シミュレーション

(関西大) 大友涼子

液体で満たされた粒子層中におけるマイクロ微粒子の移動特性は、分離・ろ過プロセス⁽¹⁾や生体内での高分子の移動⁽²⁾など、さまざまな場面において必要不可欠である。マイクロスケールの微粒子を含む流動現象では、レイノルズ数およびストークス数が極めて小さい場合も多く、このような条件下では流体を介した粒子間の流体力学的相互作用が重要となる。本研究では、流体力学的相互作用を考慮した流動場解析が可能である Stokesian dynamics 法⁽³⁾を用い、粒子層中の間隙を並進運動するマイクロ微粒子の挙動をシミュレートした。特に層内部で微粒子が流体力学的相互作用により拡がる現象（流体力学的拡散）⁽⁴⁾に着目し、拡がり挙動を定量化した。

粒子層として、一様な体積率を有する粒子層、および、体積率が局所的に異なる（疎密のある）粒子層の 2 種類のモデルを設定した。疎密のある粒子層では、粒子層中央の一部のみ、周囲よりも体積率が低くなっており、微粒子が横方向（並進方向に対して垂直な方向）に移動することで疎密の境界面を跨ぐ構造とした。粒子層体積率は 0.02~0.12 の範囲内でさまざまな条件を設定した。

シミュレーション結果から、微粒子は粒子層を避けながら複雑に運動し、それにより拡がりながら移動する様子が観察された。各微粒子の位置を進行方向およびそれに垂直な横方向の成分で表し、位置の分散の時間変化を算出することで拡がり挙動を定量的に表した。その結果、一様な粒子層中では微粒子は進行方向・横方向のどちらにも拡がった。これに対し、疎密のある粒子層中では横方向（疎密を跨ぐ方向）に微粒子が拡がる場合と集中する場合があるとわかり、特徴的な流体力学的拡散挙動が明らかとなった。粒子層を通り抜けるのに要する時間を考慮して、流体力学的拡散の大きさを D_h という指標を用いて評価した。 D_h は、単位時間あたりの微粒子位置の分散増加量を意味する。特に横方向には、微粒子群は粒子層の疎密に応じて正と負の両方の拡がりを示した。本結果により、疎密構造と指数 D_h の関係が、微粒子の分離・選別など様々な工学的プロセスに応用できることが示唆された。

参考文献

- (1) Skaug, M. J., et al., *ACS Nano*, 9(2), 2148–56, (2015).
- (2) Ando, T., and J. Skolnick, *PNAS*, 107(43), 18457–62 (2010).
- (3) Brady, J. F., et al., *J. Fluid Mech.*, 195(1), 257–80 (1988).
- (4) Guazzelli, E., and J. Hinch, *Ann. Rev. Fluid Mech.*, 43(1), 97–116 (2011).

カニ穴のシミュレーション

(三菱ケミカル株式会社) 牧野真人

炊飯時において、釜の中で水が下から上がっていく際に通路を作ることがある。この通路を「カニ穴」と呼ばれる。炊きあがった米飯では、カニ穴ができたものが、食味が良いという研究結果がある[1]。

ここでは、重力下(重力加速度 g)における2成分流体を考える(図1)。体積分率 ϕ を用いて、2成分を表す。一方の成分の密度 ρ' および粘度 η' は、他方の成分の密度 ρ および粘度 η に比べて大きいとする($\rho' \gg \rho, \eta' \gg \eta$)。システム下方より、速度 V を与えることで、パラメータを調整することで、流体が通過する穴が生じる。シミュレーションは、有限体積法を用いた OpenFOAM[2]に含まれる Volume Of Fluid(VOF)法を用いた interFoam を用いて計算した。

図2は $\rho'/\rho = 10^3$, $\eta'/\eta = 10^5$, $V^2/(Lg) = 1$ および $\sigma/(\rho g L^2) = 10^3$ の計算例である。ここで、 L, σ は、初期の重い流体の厚さ、および2相の間の表面張力である。

このシミュレーションはカニ穴のモデルとは異なるとの指摘もあると思うが、流体が通り抜ける際に、どのような穴を生じるかの問題として考えたい。

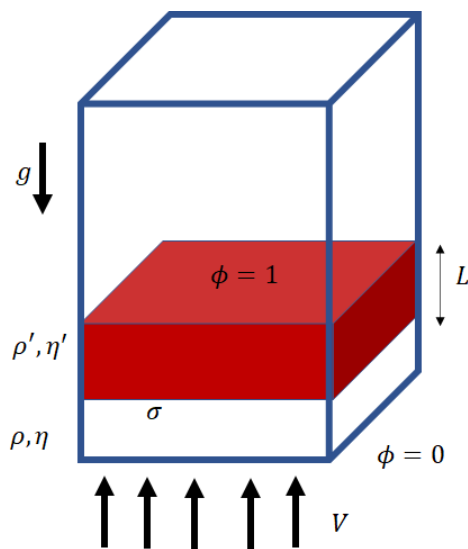


図1 シミュレーションのシステム

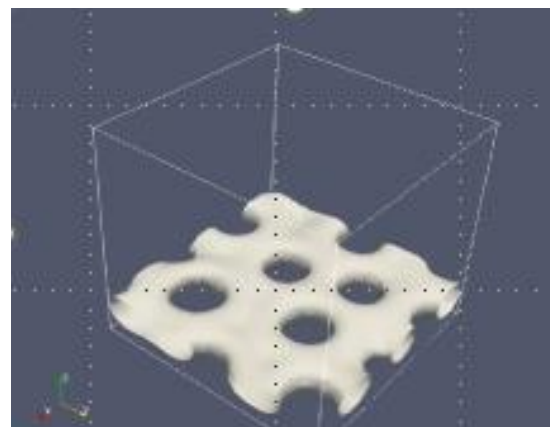


図2 穴ができたシミュレーション

[1] 安松克治、飯田敦 「炊飯について -その1. 水洗から加熱・むらし操作まで-」 調理科学 18,186 (1995)

[2] <https://openfoam.org/>

樹皮のパターン形成メカニズム

(東大院農) 山口哲生、上信陽太郎

(サンチアゴ・デ・チレ大) F. Melo, J. F. Fuentealba

(東大地震研) F. Tapia

樹木の表面に形成される樹皮には、縦割れ（スギ）、横割れ（ソメイヨシノ）、カール（ダケカンバ）のように、樹木ごとにさまざまなパターン（模様）がみられる。縦割れパターンについては、維管束形成層活動による樹幹の肥大成長に対して、死滅した組織である外樹皮が接線方向の引張応力を受け、軸方向に裂けることで形成される、と理解されてきた。しかしながら、樹皮パターンのバイオメカニクスの観点に基づく研究例は極めて少なく、縦割れ以外のパターン形成メカニズムに対する理解はほとんど得られていない。

本研究では、樹皮パターン形成メカニズムを力学的視点から統一的に理解することを目的として、樹皮の引張/曲げ変形、破壊、および、樹幹からの剥離を記述する物理モデルを開発した。変形、破壊、剥離の駆動力となる、樹幹の半径（周）方向の成長と樹皮の自発曲率の変化との競合を考慮することで、Fig.1 の相図に示されるように、縦割れ、はがれ、カールなど、実際の樹木にみられる多様な樹皮パターンを再現することに成功した。また、それぞれのパターンを生じる力学的条件を明らかにすることができた[1]。

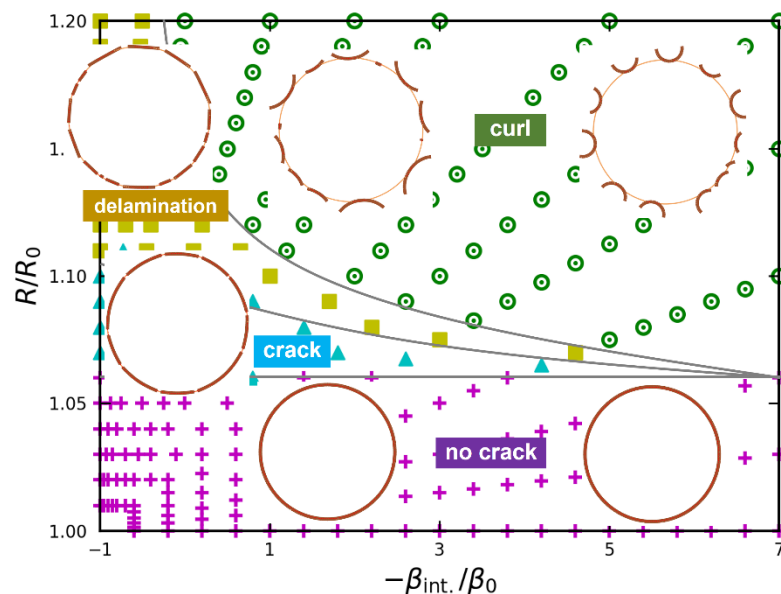


図1：樹幹半径および樹皮自発曲率をパラメータに用いたときの樹皮パターン相図。

参考文献

- [1] Y. Uenobu, F. Melo, J. F. Fuentealba, F. Tapia, T. Yamaguchi, in preparation.

“機械学習”×“分子シミュレーション”

～実験不要な製品開発に向けて～

(慶應義塾大学) 荒井規允

高分子や液晶，コロイド，生体分子などで構成された材料はソフトマテリアルと呼ばれ，柔らかく外力に対し特異な応答を示す．我々はこの特異な応答を利用することで，さまざまな機能をもった材料を創りだしている．ソフトマテリアルは比較的安価で大量生産が可能であるため，身のまわりの多くの製品に用いられ，現在の豊かな生活に欠かせないものである．代表的なソフトマテリアルとして高分子を例に上げると，重合度や分岐，共重合の有無，混合比などによって得られる物性は劇的に異なる．しかし，化学構造と物性とのあいだをつなぐ処方箋は多くの場合明らかになっておらず，製品開発はこれまで試行錯誤的に行われてきた．

ソフトマテリアルの物性予測を分子スケールから行うことは容易ではない．なぜならば，材料の物性が構成分子の化学構造だけでなく，それらが集まって形成される集合構造にも強く影響されるからである（図 1）．したがって，幅広い時空間スケールの現象を把握しなければ，材料としての特性を理解することができない．本講演では，ソフトマター材料に対し，機械学習と分子シミュレーションを組み合わせ，その物性や機能性の予測に挑戦したいいくつかの研究例を紹介する．

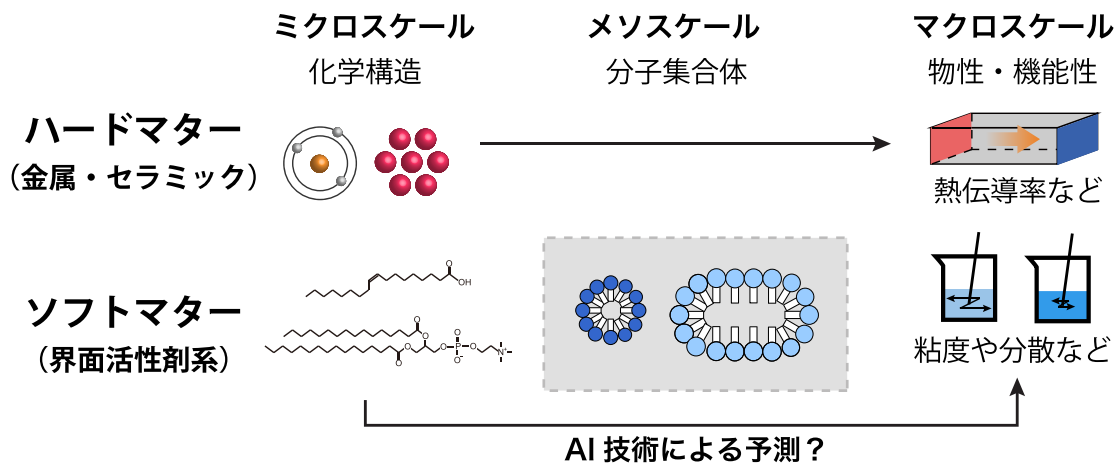


図 1 ソフトマター材料のマルチスケール性

ポスター発表

1. 植物の根の引き抜き・倒伏挙動：実験と理論との比較
○山口哲生，木下茉優（東大院農学生命）
2. 散逸粒子動力学法を用いた Bio-inspired 材料表面における超撥水/親水の遷移機構解明
○孟凡，酒井星河，辻之上弘晃，小林祐生，荒井規允（慶大理工）
3. 定エネルギー散逸粒子動力学法を用いたナノ粒子の自己集合と熱伝導率に関する研究
○鈴木虎次郎，田中昭悟，荒井規允，小林祐生（慶大理工）
4. 多体散逸粒子動力学法を用いた界面活性剤水溶液中における油滴の自己駆動シミュレーション
○佐々木謙，上野和輝，小島知也，伴野太祐，荒井規允（慶大理工）
5. 散逸粒子動力学法と機械学習を用いた両親媒性分子の自己集合形態予測
○石渡悠幹，横山貴洸，伴野太祐，荒井規允
6. Analysis of orientational correlations in organic additive layer using molecular dynamics simulation
○小林健洋，岡本隆一，鷲津仁志（兵庫県大）
7. 散逸粒子動力学によるせん断下におけるセッケン系グリースの繊維構解
○長谷川智也 1，小林健洋 1，杉村奈都子 2, 1，鷲津仁志 1（1. 兵庫県大, 2. 鹿児島高専）
8. Reaction dynamics of ZnDTP lubricants additive using neural network potential
○堀尾巴人 1，名児耶彰洋 2，小野寺拓 2，鷲津仁志 1（1. 兵庫県大, 2. ENEOS）
9. MD 法を使用した硬質材料含有の有無による結晶性高分子の摩擦挙動
○伊藤和輝 1，端山昌樹 1，樋口祐次 2，鷲津仁志 1（1. 兵庫県大, 2.

九大)

10. Physicochemical study of potential of mean force for carbon additive bonding with number of chemical bonds on DLC surfaces.

○鳥本航史朗 1, 秋山博俊 1,2, 岡本隆一 1, 村島基之 3, 鷲津仁志 1
(1. 兵庫県大, 2. 日本グリース, 3. 東北大)

11. Simulation of Coarse-Grained model for micron-scale metal by SPH method

○新田啓人 1, Le Vang Sang^{2,1}, 杉村奈都子 3,1, 鷲津仁志 (1. 兵庫県大, 2. Univ. Information Technology - VNUHCM, 3. 鹿児島高専)

12. *Prediction of traction fluid performance using numerical analysis*

○深谷剛, 清水陽平, 富山栄治, 鷲津仁志 (兵庫県大)

13. Detailed analysis of chemical reactions on the friction between hydrogen-free DLC film and ZrO₂

○田中雄大 1, 秋山博俊 1,2, 岡本隆一 1, 鷲津 仁志 1 (1. 兵庫県大, 2. 日本グリース)

14. Analysis of the effect of friction heat on different surface properties using Smoothed Particle Hydrodynamics method

○江良瑞樹 1, 杉村奈都子 2,1, 鷲津仁志 1 (1. 兵庫県大, 2. 鹿児島高専)