

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：33924

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K21485

研究課題名(和文)欠陥を有するナノ炭素材料の構造最適化に関する理論的研究

研究課題名(英文)Structural design optimization of carbon nanomaterials with defects

研究代表者

史 金星 (SHI, JINXING)

豊田工業大学・工学(系)研究科(研究院)・ポスドクトラル研究員

研究者番号：30744669

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ナノ炭素材料に格子欠陥を導入することにより形状を変動させ、剛性問題および振動問題における構造最適設計手法の開発を目的とした。まず、分子力学法に基づいてナノ炭素材料の骨組モデルを構築した。次に、この骨組モデルに対してラグランジュ乗数法と随伴変数法を利用し、剛性最大化問題と最小固有値最大化問題を対象に関数空間での定式化を行った。感度関数を理論的に導出し、ナノ炭素材料の分布系形状最適設計を行った。最後に、密度波を活用した手法であるフェーズフィールドクリスタル法と分子動力学法を利用して最適形状上の炭素原子の位置を再配置することにより、格子欠陥があるナノ炭素材料の構造最適設計手法を開発した。

研究成果の概要(英文)：In this study, we carried out structural design optimization of graphene sheets (GSs) in terms of stiffness maximization and fundamental frequency maximization problems considering topological defects. We constructed continuum frame models of GSs based on the molecular mechanics method at first. Then, we performed shape design optimization of GSs based on a developed free-form optimization method for frame structures. In the shape design optimization, we used the compliance or fundamental frequency as objective function, and theoretically derived shape gradient function for maximizing the objective function to obtain the optimal shapes of GSs. However, the obtained optimal shapes only consist of hexagonal carbon rings, which do not satisfy the principle of minimum energy. Hence, by introducing topological defects, we carried out structural optimization of GSs to generate their stable structures using a combination of the Phase-Field-Crystal method and molecular dynamics simulation.

研究分野：設計工学 計算力学

キーワード：ナノ炭素材料 形状最適設計 構造最適設計 数値解析

1. 研究開始当初の背景

(1) 材料の背景：理想的なグラフェンシート (Graphene Sheets; GSs) [1] は炭素原子の六員環が二次元的に平面に規則的に並んだ1原子分の厚さのシートであり、カーボンナノチューブ (Carbon Nanotubes; CNTs) [2] は GSs を円筒状に丸めた構造である。この二つのナノ炭素材料 (Carbon Nanomaterials; CNs) は既存の材料よりも格段に優れた電気伝導性、熱伝導性を示すとともに、軽くて優れた力学特性を有する。格子欠陥はナノ炭素材料に必然的に存在するため、力学特性及び電気特性などに大きい影響を与える。発生しやすい五員環と七員環からなる Pentagon-heptagon (5-7) 格子欠陥を巡り、Arizaら [3] 及び Yakobsonら [4] による欠陥を有する GSs 及び CNTs の先駆的な基礎研究がある。特に、図1に示す Stone-Wales (SW) 欠陥は、ナノ炭素材料の非弾性変形の機構に密接に関わっていることが分かっており、国内外で活発に研究が行われている。ナノ炭素材料の中に、格子欠陥を導入し、ナノ炭素材料の形状をコントロールできれば、所望の力学特性或いは電気特性の実現が期待できる。例えば、格子欠陥の位置或いは形状を調節し、ナノ炭素材料の形状を変化させることにより、力学特性 (剛性、振動) を最適化することは可能となる。そこで、本研究課題では、格子欠陥を有するナノ炭素材料の剛性或いは固有周波数を構造最適化手法により理論解析し、これらを最大化することを目標とする。

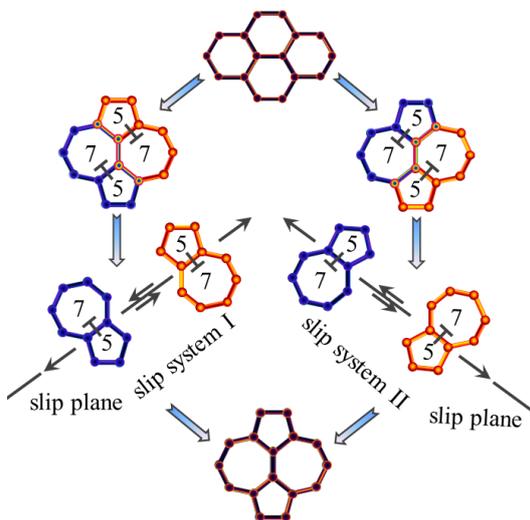


図1 Stone-Wales 欠陥から生成する Pentagon-heptagon 欠陥

(2) モデリングと最適化の背景：実験的にナノ炭素材料の力学特性を評価することが困難な場合、連続体力学によるシミュレーションが有効な手段となる [5, 6]。我々はこれまで無欠陥 GSs 及び CNTs 構造に対する連続体モデルを構築し、剛性、座屈、振動及び波の

伝播特性の理論解析を行い、連続体モデルの有効性を明らかにしている。特に、分子力学法 (Molecular Mechanics; MM) と連続体力学を組み合わせることにより、ナノ炭素材料の連続体骨組構造を構築し、有限要素法を利用し、ナノ炭素材料の力学特性を解明した [7, 8]。本研究課題では、これらの研究成果を踏まえ、分子力学法及び有限要素法による格子欠陥を有するナノ炭素材料の構造最適化へ発展させる。一方、大規模となるナノ炭素材料の骨組モデルの形状最適設計問題に対し、従来の離散系の解法の適用は難しい。そのため、変分法に基づいた分布系 (関数空間) で定式化を行い、関数空間の勾配法 [9] を用い、最適骨組形状を求める。ここでは、有限要素法、感度解析及び関数空間勾配法を組み合わせることにより、設定した制約条件の下で力学特性を最大化する。これまでの研究では、ナノ材料構造への形状最適化問題を解いた研究が見当たらず、欠陥を導入することにより構造最適設計手法は初めての試みである。

2. 研究の目的

GSs や CNTs などのナノ炭素材料には正六角形格子構造から外れた格子欠陥が必然的に存在する。本研究では格子欠陥を導入することにより、ナノ炭素材料の形状を変動させ、剛性最大化或いは固有周波数最大化を実現することを狙い、そのための形状・構造最適化手法を開発することを目的とする。具体的には、ナノ炭素材料の連続体骨組構造モデルを構築し、その形状を変動させ、剛性問題或いは振動問題を目的に対する最適骨組形状を求める。本問題は大規模自由度の最適化問題となるため、古典的な変分法と最新の数値解析を組み合わせられた解法を開発する。最後に、格子欠陥を導入することにより、ナノ炭素材料の最適構造を求める。

3. 研究の方法

(1) 分子力学法と連続体力学を組み合わせることにより、図2に示すように、ナノ炭素材料の連続体骨組モデルを構築する。具体的に、C-C 結合と円断面の等価はり仮定を仮定するために C-C 結合の伸び、曲げ及びびねじりのエネルギーを考慮し、C-C 等価はりにおけるヤング率、せん断率及び直径を求め、ナノ炭素材料の連続体骨組モデルを構築する。

(2) ナノ炭素材料の連続体骨組モデルに対する形状最適設計問題は図3に示すような骨組構造用の分布系形状最適設計問題として単純化され、剛性問題及び振動問題を対象に、関数空間での定式化と感度関数の理論的な導出を基に分布系形状最適化手法を構築する。具体的には、ナノ炭素材料の骨組モデルに対してラグランジュ乗数法と随伴変数法を利用し、その剛性最大化問題及び固有周波数最大化問題を対象に関数空間での定式化を行う。固有周波数最大化問題には最小固有

値の増加に伴う重根問題が発生するが、重なった全モードの固有値の感度関数を利用して形状最適設計手法を提示する。そして、最適性条件と感度関数の理論的な導出によって、効率的なアルゴリズムと数値解法を開発する。そこでは標準的な商用有限要素法ソフトウェアと組み合わせた汎用システムを開発し、ナノ炭素材料の欠陥なしの最適形状を設計する。

(3) 設計した最適形状は炭素原子の六員環構造のみから構築される一つの平面上にない構造体であり、原子間力が不整合なため、ナノ炭素材料としては実際には実現できない構造である。このため、Phase-Field-Crystal (PFC) 法と Voronoi 分割法を用い、ナノ炭素材料に欠陥を導入することにより、実現できる最適構造を再構築する。更に、各原子の厳密な位置を決定するため、分子動力学 (Molecular Dynamics; MD) シミュレーションを用いて C-C 結合におけるポテンシャルエネルギー最小化に対する緩和計算を行い、最終的なナノ炭素材料に対する最適構造を設計する。

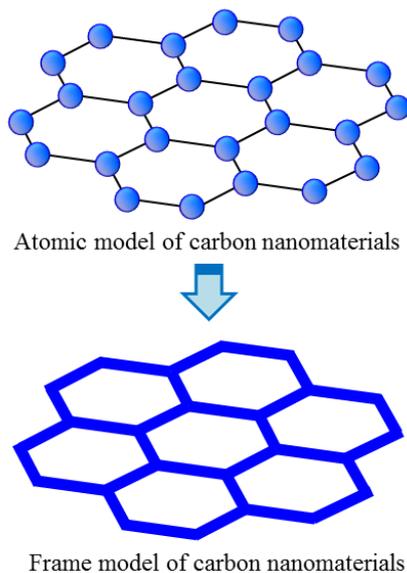


図2 ナノ炭素材料の連続体骨組モデル

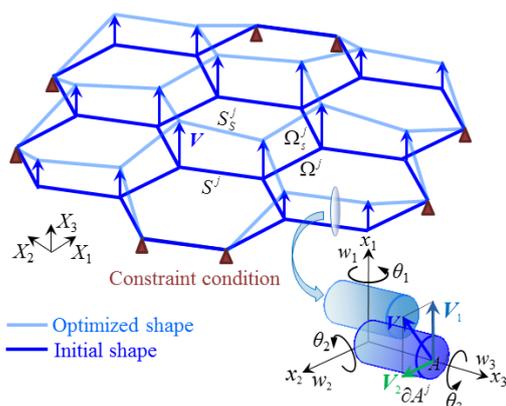


図3 骨組構造に対する形状最適設計

#### 4. 研究成果

本研究では、図4に示すようなナノ炭素材料の形状・構造二段階最適設計システムを開発した。

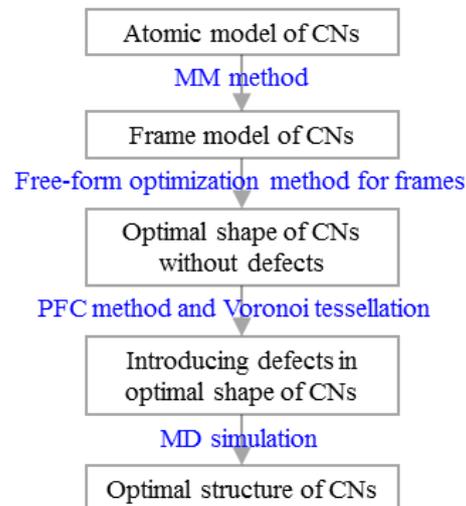


図4 構造最適化システム

(1) 分子力学法と連続体力学を組み合わせることにより、GSs や CNTs などのナノ炭素材料の連続体骨組モデルを構築することができた。ナノ炭素材料の骨組モデルは一般的な骨組構造体と異なり、構造最適化システムを実行する途中で材料定数の変更が必要となる。そこで、構造最適化システムの毎回の繰り返し結果に対して C-C 等価はりの材料定数を原子間のエネルギーとマッチングさせることを試みた。これによりナノ炭素材料の骨組モデルの形状最適設計用のプログラムを完成させた。長方形 GS を例として、構築された連続体骨組モデルを図5に示す。

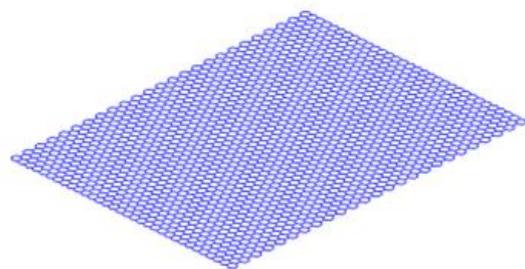


図5 長方形 GS の連続体骨組モデル (例)

(2) ラグランジュ乗数法と随伴変数法を利用し、ナノ炭素材料の剛性最大化問題と固有値最大化問題に対する関数空間の問題定式化を行うことにより、最適性条件と感度関数を理論的に導出した。続いて、変分法に基づく骨組構造の構造最適化手法を基にして、汎用有限要素法ソフトウェアと組み合わせたナノ炭素材料の面外変動に対する形状最適設計プログラムを完成させた。長方形 GS の

固有周波数最大化問題を例として、図6に示す得られた最適形状の最小固有周波数は初期形状の12.7倍になった。

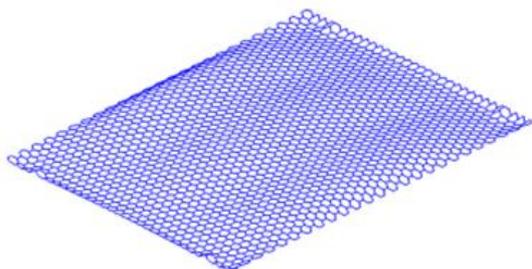


図6 長方形GSの最適形状(例)

(3) 得られた最適形状は炭素原子の六員環構造のみから構築される3次元形状になり、最小エネルギー原理を満たさないで、2段階の構造最適設計が必要になった。このため、最適形状を利用して同一曲面プロライルのシェルモデルを作成した(図7)。このシェルモデルに対して、PFC法とVoronoi分割法とを分子動力学シミュレーション組み合わせることにより原子の位置を再配置し、ナノ炭素材料の最適形状に格子欠陥を導入し、最終的なナノ炭素材料に対する最適構造設計手法を開発した。長方形GSの固有周波数最大化問題を例として、格子欠陥を導入することにより、設計した最適構造は図8に示す。



図7 長方形GSのシェルモデル(例)

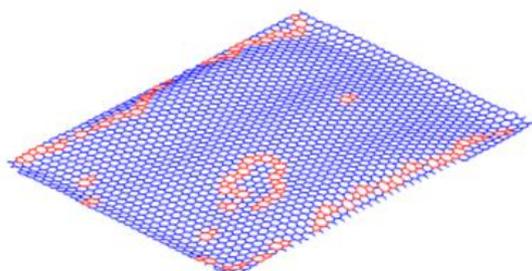


図8 長方形GSの最適構造(例)

#### <引用文献>

- ① K. S. Novoselov, A. K. Geim, S. V. Morozov, D. Jiang, Y. Zhang, S. V.

Dubonos, I. V. Grigorieva, A. A. Firsov, Electric field effect in atomically thin carbon films, Science 306 (2004) 666-669.

- ② S. Iijima, Helical microtubules of graphitic carbon, Nature 354 (1991) 56-58.
- ③ M. P. Ariza, M. Ortiz, Discrete dislocations in graphene, Journal of the mechanics and physics of solids 58 (2010) 710-734.
- ④ B. I. Yakobson, Mechanical relaxation and "intramolecular plasticity" in carbon nanotubes, Applied physics letter 72 (1998) 918-920.
- ⑤ B. I. Yakobson, C. J. Brabec, J. Bernholc, Nanomechanics of carbon tubes: instabilities beyond linear response, Physical review letters 76 (1996) 2511-2514.
- ⑥ C. Li, T. W. Chou, A structural mechanics approach for the analysis of carbon nanotubes, International journal of solids and structures 40 (2003) 2487-2499.
- ⑦ X. W. Lei, T. Natsuki, J. X. Shi, Q. Q. Ni, Analysis of carbon nanotubes on the mechanical properties at atomic scale, Journal of Nanomaterials 2011 (2011) 805313.
- ⑧ J. X. Shi, T. Natsuki, X. W. Lei, Q. Q. Ni, Equivalent Young's modulus and thickness of graphene sheets for the continuum mechanical models, Applied Physics Letters 104 (2014) 223101.
- ⑨ M. Shimoda, Y. Liu, T. Morimoto, Non-parametric free-form optimization method for frame structures, Structural and Multidisciplinary Optimization 50 (2014) 129-146.

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

- ① Jin-Xing Shi, Keiichiro Ohmura, Masatoshi Shimoda, Shape and structural design optimization of graphene sheets in natural vibration problem, Proceedings of WCSMO 12, 査読有, 2017, Paper No. 33.
- ② Jin-Xing Shi, Masatoshi Shimoda, Shape optimization of graphene sheets for maximum fundamental frequency, Proceedings of ECCOMAS 2016, 査読有, 2016, Paper ID:5376. <https://www.eccomas2016.org/proceedings/pdf/5376.pdf>

- ③ Jin-Xing Shi, Keiichiro Ohmura, Masatoshi Shimoda, Free-form optimization design of carbon nanomaterials, Proceedings of ACSMO 2016, 査読有, 2016, Paper No. 2B3-1

[学会発表] (計 3 件)

- ① 史金星、大村 溪一郎、下田 昌利、欠陥を有するナノ炭素材料の構造最適化、日本機械学会第 26 回設計工学・システム部門講演会、2016 年 10 月 8 日～10 日、慶応義塾大学 (神奈川県、横浜市)
- ② 史金星、下田 昌利、グラフェンシート上の固有周波数最大化問題に対する形状最適化、日本機械学会第 25 回設計工学・システム部門講演会、2015 年 9 月 23 日～25 日、信州大学 (長野県、長野市)
- ③ 史金星、大村 溪一郎、下田 昌利、フリーフォーム最適化手法によるグラフェンシートの形状設計、日本機械学会 2015 年度年次大会、2015 年 9 月 13 日～16 日、北海道大学 (北海道、札幌市)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

[その他]

ホームページ等

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

史金星 (SHI Jin-Xing)  
豊田工業大学・工学研究科・研究員  
研究者番号：30744669

(2) 研究分担者 ( )

研究者番号：

(3) 連携研究者 ( )

研究者番号：

(4) 研究協力者 ( )