

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：24506

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02058

研究課題名(和文) マルチスケール流体シミュレーションによるオイル挙動の学理の構築

研究課題名(英文) Foundation of Oil Behavior analyzed by Multiscale Fluid Simulations

研究代表者

鷲津 仁志 (Washizu, Hitoshi)

兵庫県立大学・情報科学研究科・教授

研究者番号：00394883

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：ブラウン-流体連成(BDLBM)シミュレータの開発と高効率化：新たにBDLBMシミュレータの開発した。さらに、高速化のため並列化を実施した。BDLBMシミュレータにおける官能基のモデリング：より詳細な分子シミュレーション解析により、分子動力学および散逸粒子動力学によるソフトマターの界面および流動下における各種解析を実施した。その上で官能基を双極子能率を持つ球粒子として粗視化する拡張を実施、高分子添加剤および血液中のタンパク質(VWF)への応用解析を実施した。材料探索手法の開発：マテリアルズ・インフォマティクスの評価関数として、パーシステント・ホモロジーが有効であることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

(3) 材料探索手法の開発：マテリアルズ・インフォマティクスについて、昨年まで実施してきたパーシステントホモロジー解析に加えて、機械学習を用いた基油の解析を実施した。はじめに、実験データをもとにトラクション係数を予測する手法を構築し、さらに分子動力学とのカップリングを検討した。このように、材料探索に用いることが可能であることを示した。

研究成果の概要(英文)：Development and efficiency improvement of Brownian-fluid coupled (BDLBM) simulator: A new BDLBM simulator was developed. In addition, we implemented parallelization for speeding up. Modeling of functional groups in the BDLBM simulator: Using more detailed molecular simulation analyses, such as molecular dynamics or dissipative particle dynamics, various analyses of interfaces and flow of soft materials. Then, we extended the functional groups to coarse-grained spherical particles with dipole moment, and analyzed the application to polymer additives (VII) and proteins in blood (VWF). Development of materials informatics method: We showed that persistent homology is effective as an evaluation function for materials informatics.

研究分野：トライボロジー

キーワード：分子シミュレーション 流体力学 ブラウン動力学 格子ボルツマン法 官能基 高分子 オイル

1. 研究開始当初の背景

単純な液体に分子サイズの異なる溶質を添加することにより高機能を発現する材料系(以下,マルチスケール流体)は大変多い.しかし,通常の全原子分子動力学ではスケールギャップのため扱えない.これまで申請者らは,豊田中研フロンティア研究および文科省触媒電池元素戦略プロジェクト(ESICB)を主宰し,高分子を含む電解液のイオン流動に関する粗視化シミュレーション手法を提案し,二次電池電解液添加剤のイオン伝導性向上や軟骨の低摩擦解析に適用可能であることを示した.

一方,オイル中において官能基間の相互作用によって構造転移を生じる高分子や,紐状ミセル形成など,より繊細な構造ダイナミクスを適切に扱う手法は存在しない.従来のコロイド科学は水環境(水圏機能材料)の科学であり,誘電率が水と比較して40-80倍も異なるオイル環境では官能基の扱いが重要になるからである.

これらを応用面からみると,グリースや粘度調整剤(VII)そのものであり,マクロな流体CAEにおいて現状ではレオロジー特性,EHL特性など非線形特性がブラックボックスとして扱われている.たとえば,図2の転動体-保持器間の潤滑状態はHLと記したが,グリースを含むソフトEHL系として扱う場合もありえる.シミュレーション学の立場から,このような複雑流体の原子レベルからの特性予測が可能であるかどうかは,マクロなCAEとの隙間を埋めるミッシングリンクとなっている.

また,グリースや粘度調整剤の物性を予測できる計算手法ができたとして,最適な分設計を行うための方法も存在しない.MIのような材料設計は,微細な結晶構造が巨視的な物性と直接関係する場合には学習サンプル数を沢山取ることができるため有効であるが,本系のようなソフトマターにおいては,分子計算が重いことや,材料自体が階層的な構造を有するため,困難である.

2. 研究の目的

グリースや粘度調整剤などのマルチスケール流体の,流体潤滑(HL)および弾性流体潤滑(EHL)における流動・摩擦特性を予測するシミュレータを開発する.これとMIの活用により,所定の物性を発現するグリース・オイルの分子設計手法を確立する.

本研究の学術的独自性と創造性:独自に提案するブラウン-流体連成計算(BDLBM)により,マルチスケール流体の原子レベルからの物性評価を可能とする点にある(図3).本手法では高分子セグメントまたは増稠剤分子をブラウン(ランジュバン)動力学(BD)で扱い,流体を格子ボルツマン法(LBM)で扱うが,流体抗力の計算に際して,(速度差ゼロの)粒子界面でなく遠方からの流体力として速度を計算するため,適切にスケール間の相互作用を計算できる.また,量子化学計算に基づきブラウン粒子上の官能基間の相互作用をモデリングすることにより,原子レベルの情報を取り込める.

この手法により,グリースのレオロジーと,高VI添加剤のバルクおよび界面での潤滑機構をEHL状態を含め解析する.基油に関しては,我々が世界で初めてトラクション転移機構(HLからEHLへの転移)を明らかにしたが(図6),マルチスケール流体に関しては,分子シミュレーションでは未着手の課題であり,トライボロジー分野の取り組みとして初めてである.その上で,マテリアルズインフォマティクスを活用して材料設計ができるかどうかの可能性を探る.

3. 研究の方法

BDLBMシミュレータを作成する.現在のコードをもとに,様々な流体を扱えるシミュレータを作成する.MPI並列化により高速化を行う.また,バルク系のせん断および2面による束縛系について方法論を拡張する.現在,単純液体(レナード・ジョーンズ粒子系)の速度自己相関数の流体効果によるLong-tailの再現は確認しているが,ポリマー化することによる問題(ストークス近似の妥当性)を検討する.その際,大規模分子動力学シミュレーション,散逸粒子動力学等との比較等により検証を行う.せん断下の高分子の挙動について,分子論および流体力学的に機構解明を行う.次に,量子化学計算による官能基のモデリングを行う.以前シラノール基について作成した手法を,アルコール,アミン等他の極性基に対してパラメータ化しブラウン動力学に適用する.直鎖高分子の慣性半径に関して追加検討し,分岐高分子や増稠剤分子に対するモデリングを行う.これを石井の分子動力学計算と比較し,油中における官能基のVI特性,静的なミセル構造を明らかにする.モデルの妥当性検証およびレオロジー特性の解明は,ポリマー鎖の慣性半径や粘性係数の実験データとの比較により行う.グリースに関しては基油および増稠剤のカップリングによるレオロジー曲線の変化,高分子に関しては,分岐および官能基分布によるVI(粘度の温度依存性)の変化を調べる.以上により,様々な材料系における広範なレオロジー特性をシミュレーションにより明らかにする.次に,より詳細な分子モデルへの拡張も行う.直鎖高分子の慣性半径に関して追加検討し,分岐高分子や増稠剤分子に対するモデリングを,さらに複雑

な高分子系に対して適用可能であることを示す。これを拡散プロセスの階層性(異常拡散)との関係などを調べることにより、油中における官能基のVI特性、静的なミセル構造を明らかにする。このモデル化に際して、拡散係数の多様性に着目した統計力学解析理論の援用を検討する。モデルの妥当性検証およびレオロジー特性の解明は、ポリマー鎖の慣性半径や粘性係数の実験データとの比較により行う。グリースに関しては基油および増稠剤のカップリングによるレオロジー曲線の変化、高分子に関しては、分子構造および官能基分布によるVI(粘度の温度依存性)の変化を調べる。以上により、様々な材料系における広範なレオロジー特性をシミュレーションにより明らかにする。

4. 研究成果

(1) ブラウン-流体連成(BDLBM)シミュレータの開発と高効率化:まず、新たにBDLBMシミュレータの開発を開始した。LBM部分に関してシミュレーションのコードを作成した。2次元のコードを作成し、次に3次元化することにより、分子計算部分との連成の準備をした。また、応用課題として、エンジンのピストン-シリンダ間のような高温高圧かつ強い摺動環境下において、VIIの添加による増粘効果を予測する式の確立を目的とし、その前段階として、エンジンオイル中のVIIに作用する流体力学的相互作用の影響の大きさを検証した。その結果、粗視化粒子に作用する流れ方向の抗力はせん断速度に依存せず、経過時間に対する推移にはほぼ差がないことや、エンジンオイルのような温度が高い基油では、主流速より流体力学的相互作用よりもランダム力の方が粗視化粒子に与える影響がかなり大きいことがわかった。

つぎに、BDLBMシミュレータの開発のため、格子ボルツマン部分に関しては採用した特任助教の助力によって更に高速化を実施した。並列化については、ノード内並列を実施した。また、ブラウン動力学部分に関しては、コロナ禍のため招聘予定であった特任助教とともにソフトウェアの開発および高精度化を実施した。高分子添加剤(VII)への応用解析を実施した。その結果、剪断場における挙動の分子量や温度の違いによる影響は、弱い剪断場において顕著であることを見いだした。

さらに、格子ボルツマン部分に関しては高速化を実施した。並列化については、ノード内並列を実施した。さらに、MPI並列化の可能性についても検討を行った。また、ブラウン動力学部分に関しては、特任助教とともにソフトウェアの開発および高精度化を実施した。さらに、熱輸送に関する拡張も実施した。

(2) BDLBMシミュレータにおける官能基のモデリング:より詳細な分子シミュレーション解析によるボトムアップのモデリングのため、反応力場を用いたリン系極圧添加剤の界面吸着挙動に関する解析を実施した。真空中および基油中における添加剤の吸着挙動について、電荷移動も含めた解析を実施し、分子構造の違い、また表面の違い(酸化鉄と鉄)によって電荷移動ダイナミクスが異なることを明らかにした。

ブラウン動力学の部分について、官能基を双極子能率を持つ球粒子として粗視化する拡張を実施し、凝集状態がとくに遅い剪断場において顕著であることを見いだした。よりマイクロな解析では、反応力場を用いたリン系極圧添加剤の界面吸着挙動に関する解析を硫黄系添加剤に拡張した。また、油中のリン系極圧添加剤の全原子分子動力学では、逆ミセル構造を形成すること、その集合体の構造はそれぞれの分子によって異なることがわかった。さらに、逆ミセルの粗視化分子シミュレーションとして、散逸粒子動力学を用いた紐状ミセルの解析系を作成し、レオロジー曲線が分子構造の変化と関連づけられることをはじめて明らかにした。

BDLBMシミュレータにおける官能基のモデリング:ブラウン動力学の部分について、官能基を双極子能率を持つ球粒子として粗視化する拡張に加えて、タンパク質をモデルとしてイオン基のモデリングおよびUnited Atomの実装も行った。凝集状態がとくに遅い剪断場において顕著であることを見いだした。

高分子添加剤(VII)および血液中のタンパク質(VWF)への応用解析を実施した。この結果、高分子系では極性高分子は強い分子間相互作用により非極性と大きく異なる構造を取ることや、静脈および動脈のそれぞれにおいてフォールディング機構が異なることと、機能発現との関係づけられた。これは、流動場中におけるフォールディングの問題であり、本シミュレータによって初めて解析可能となったものである。

(3) 材料探索手法の開発:マテリアルズ・インフォマティクスの評価関数として、パーシステント・ホモロジーが有効であることを示した。高分子溶融体において解析を実施し、メソスケールの分子構造が従来の動径分布関数ではなくパーシステント図で良く説明できることを示した。この解析手法を固液界面の代表例として電極近傍のイオン解析に用いた。さらに、パーシステントホモロジー解析に加えて、機械学習を用いた基油の解析を実施した。はじめに、実験データをもとにトラクション係数を予測する手法を構築し、さらに分子動力学とのカップリングを検討した。このように、材料探索に用いることが可能であることを示した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 4件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Le Tue Minh Nhu, Van Sang Le, Washizu Hitoshi	4. 巻 24
2. 論文標題 Structural order of water molecules around polyrotaxane including PEG, -cyclodextrin, and -lipoic acid linker on gold surface by molecular dynamics simulations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 2176 ~ 2184
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CP04487G	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 鷲津仁志	4. 巻 413
2. 論文標題 ナノ表面評価に活用される分子シミュレーション技術	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 月刊トライボロジー	6. 最初と最後の頁 48-51
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 鷲津仁志	4. 巻 23
2. 論文標題 分子シミュレーションによる高分子電解質溶液の構造およびダイナミクス	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 アンサンプル	6. 最初と最後の頁 113-120
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Shimizu Yohei, Kurokawa Takanori, Arai Hirokazu, Washizu Hitoshi	4. 巻 11
2. 論文標題 Higher-order structure of polymer melt described by persistent homology	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-80975-5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yashiro Naoki, Oohira Kouya, Sugimura Natsuko, Washizu Hitoshi	4. 巻 16
2. 論文標題 Improvement of Discrete Element Simulation Accuracy of Steel Powder Filling Behavior by Optimization of Contact and Friction Parameters	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Tribology Online	6. 最初と最後の頁 16~23
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2474/trol.16.16	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 鷲津仁志	4. 巻 28
2. 論文標題 高分子やミセルを扱うためのマルチフィジックスシミュレーション	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 bmt (ベアリング&モーション・テック)	6. 最初と最後の頁 32-35
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 鷲津仁志	4. 巻 56
2. 論文標題 界面の分子シミュレーションの基礎	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 日本接着学会誌,	6. 最初と最後の頁 441-446
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計25件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 鷲津仁志
2. 発表標題 ソフトマター界面の大規模シミュレーション
3. 学会等名 SOL CAEフォーラム 2021 (オンライン開催) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山本周平, 神尾和教, 石井 良樹, 鷲津仁志
2. 発表標題 油中の粘度調整剤ポリマーに関する分子動力学シミュレーション
3. 学会等名 トライボロジー会議 2021 秋 松江, (オンライン), 129
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 長谷川智也, 杉村奈都子, 鷲津仁志
2. 発表標題 散逸粒子動力学による油中のミセル形成シミュレーション
3. 学会等名 トライボロジー会議 2021 秋 松江, (オンライン), 489
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 荒木陸, 甲嶋宏明, 石井良樹, 鷲津仁志
2. 発表標題 金属表面における硫黄系添加剤の挙動解析
3. 学会等名 トライボロジー会議 2021 秋 松江, (オンライン), 484
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 河北恭佑, 石井良樹, 甲嶋宏明, 鷲津仁志
2. 発表標題 分子動力学法による油中リン酸エステル会合体の分子挙動の解析
3. 学会等名 トライボロジー会議 2021 秋 松江, (オンライン), 476
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 澤井源太郎, Deboprasad Talukdar, 鷲津仁志
2. 発表標題 潤滑油中の粘度指数向上剤の動的挙動解析
3. 学会等名 日本機械学会 2021年度年次大会, 千葉大学 (オンライン), S071-01
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 河北恭佑, 石井良樹, 甲嶋宏明, 鷲津仁志
2. 発表標題 リン系極圧剤分子の会合体形成に関する分子動力学シミュレーション
3. 学会等名 関西潤滑懇談会 7月例会ポスター発表会, (オンライン), 3
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 澤井源太郎, Deboprasad Talukdar, 鷲津仁志
2. 発表標題 格子ボルツマン・ブラウン動力学連成法を用いたVIIの挙動特性シミュレーションに関する研究
3. 学会等名 関西潤滑懇談会 7月例会ポスター発表会, (オンライン), 5
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Y. Ishii, Le Nhu Minh Tue, Van Sang Le, H. Washizu
2. 発表標題 Structural Properties of Water Molecules around the PEG and alpha-Cyclodextrin onto Gold Surface by MD Simulation
3. 学会等名 第 70 回高分子学会年次大会, (オンライン), 1Pb034
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 河北恭佑, 石井良樹, 甲嶋宏明, 鷲津仁志
2. 発表標題 分子動力学シミュレーションによるリン酸エステル会合体形成に関する基礎検討
3. 学会等名 トライボロジー会議 2021 春 東京, (オンライン), 335
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鷲津仁志, 杉村奈都子, 三原雄司, Le Van Sang, 石井良樹, Deboprasad Talukdar
2. 発表標題 マルチスケール材料シミュレーションによる自動車用パワートレーンの解析
3. 学会等名 トライボロジー会議 2021 春 東京, (オンライン), 14
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H. Washizu
2. 発表標題 Analyses of interfaces of electrolytes and water environments using multi-scale molecular simulations
3. 学会等名 Next generation of dental science from ab initio calculation to medical practice, Kyoto Institute of Technology (online) (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 鷲津仁志
2. 発表標題 分子シミュレーションによる基油・添加剤の解析
3. 学会等名 2020 石油製品討論会, 石油学会 (オンライン開催) (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 清水陽平
2. 発表標題 パーシステントホモロジーとMDの組み合わせによるポリマーメルトの高次構造解明と比誘電率の機械学習予測
3. 学会等名 TDA-MI workshop 2020 (オンライン) (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 河北恭佑, 石井良樹, 甲嶋宏明, 鷲津仁志
2. 発表標題 分子動力学法による分子集団としてのリン酸エステルの特異性の解析
3. 学会等名 トライボロジー会議 2020 秋 別府 (オンライン)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 澤井源太郎, 川手大樹, 臼井颯馬, 鷲津仁志
2. 発表標題 粘度指数向上剤を含む潤滑油の粘度評価
3. 学会等名 トライボロジー会議 2020 秋 別府 (オンライン)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 本間睦己, 甲嶋宏明, 鷲津仁志
2. 発表標題 リン酸エステルの酸化鉄表面への化学吸着過程の分子動力学シミュレーション
3. 学会等名 トライボロジー会議 2020 秋 別府 (オンライン)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Mutsuki Homma, Hiroaki Koshima, Hitoshi Washizu
2. 発表標題 Molecular Dynamics Simulation of the Chemical Adsorption of Phosphate Esters on Metal Surfaces
3. 学会等名 2020 STLE Tribology Frontiers Virtual Conference, USA (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Kyosuke Kawakita, Yoshiki Ishii, Hiroaki Koshima, Hitoshi Washizu
2. 発表標題 Analysis of the Stability of Organophosphate Aggregates in Oil by Molecular Dynamics
3. 学会等名 2020 STLE Tribology Frontiers Virtual Conference, USA (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Gentaro Sawai, Taiki Kawate, Soma Usui, Hitoshi Washizu
2. 発表標題 Evaluation of Viscosity of Oil Solution with Viscosity Index Improver by Hybrid Simulation
3. 学会等名 2020 STLE Tribology Frontiers Virtual Conference, USA (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 H. Washizu, R. Nakae, Y. Iike, H. Koshima
2. 発表標題 Mechanism of Physical Adsorption and Chemical Reactions in Boundary Lubrications
3. 学会等名 2020 International Conference on Engineering Tribology and Applied Technology, Taipei, Taiwan (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 清水陽平, 黒川貴則, 新井大和, 鷲津仁志
2. 発表標題 パーシステントホモロジーを記述子としたポリマー高次構造の解明と電気特性の回帰予測
3. 学会等名 2020年度高分子基礎物性研究会・高分子計算機科学研究会・高分子ナノテクノロジー研究会 合同討論会, オンライン開催
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 澤井源太郎, 川手大樹, 臼井颯馬, 鷲津仁志
2. 発表標題 せん断場における粘度指数向上剤の動的挙動に関する考察
3. 学会等名 2020 年度 日本機械学会年次大会, 名古屋大学 (オンライン開催)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 本間睦己, 鷲津仁志
2. 発表標題 分子動力学法によるリン酸エステル酸化鉄表面への化学吸着過程の解析
3. 学会等名 2020年度 日本機械学会年次大会, 名古屋 (オンライン開催)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Shimizu, T. Kurokawa, H. Arai, H. Washizu
2. 発表標題 Estimation of higher order structure of model polymer using persistent homology and machine learning
3. 学会等名 第 69 回高分子学会年次大会, 福岡, 2K22
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

兵庫県立大学のスパコン紹介と「分子シミュレーションによる摩擦の研究」
<https://www.youtube.com/watch?v=K8zLd1bWk5o>
スパコンで解き明かす摩擦のシミュレーション学
<https://www.youtube.com/watch?v=CeV0bfQ1rP8>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	三好 洋美 (Miyoshi Hiromi) (50455367)	東京都立大学・システムデザイン研究科・准教授 (22604)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------