

令和 6 年 6 月 6 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2023

課題番号：20K03875

研究課題名（和文）分子動力学計算と連続体計算を接続するマルチスケールシミュレーション

研究課題名（英文）Multiscale simulation hybridizing molecular dynamics and continuum calculations

研究代表者

村島 隆浩（Murashima, Takahiro）

東北大学・理学研究科・助教

研究者番号：50565520

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究は、分子ダイナミクスと巨視的スケールの材料の変形や流動を予測するための新しいマルチスケールシミュレーション手法の開発及び実証研究を行うことを目的とした。その達成のために、任意変形を分子動力学シミュレーションで行うためのアルゴリズムの開発とシミュレーションコードの整備を行った。実施期間中の成果として、大変形の伸長流動シミュレーションがあげられる。環状高分子と線状高分子の混合系において、大変形の伸長流動シミュレーションを実施し、二軸伸長流動下におけるストレスオーバーシュート挙動を発見した。さらに多環状鎖と線状鎖の混合系において、トポロジカルな転移現象を発見した。これらの成果は論文出版された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

微視的な分子スケール(nm)から巨視的なスケール(m)までをシームレスにつなぐマルチスケールシミュレーションが真に実現できれば、新規材料開発・性能予測、材料の疲労破壊の原因究明・寿命予測、などを加速させると期待される。本研究成果によって、分子動力学シミュレーションと連続体シミュレーションを直接接続するマルチスケールシミュレーションの基盤技術の開発に成功した。また、任意変形を扱う際の基盤となる知見を深めるために行った大伸長変形のシミュレーションの実施により、環状高分子と線状高分子の混合系において未知の現象を発見した。この発見は環状高分子を利用した機能性材料開発に貢献する知見となる。

研究成果の概要（英文）：The aim of this study is to develop and demonstrate a new multi-scale simulation method to predict material deformation and flow at molecular dynamics and macroscopic scales. To this end, an algorithm for molecular dynamics simulation of arbitrary deformations was developed and a simulation code was developed. One of the achievements during the project was the elongational flow simulation of large deformations. Large elongational flow simulations in mixtures of cyclic and linear polymers were carried out and stress overshoot behavior under biaxial elongational flow was found. Furthermore, topological transition phenomena were discovered in mixtures of polycyclic and linear chains. These results were published in the papers.

研究分野：統計物理

キーワード：マルチスケールシミュレーション 分子動力学シミュレーション 有限要素法 流体シミュレーション
高分子シミュレーション

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

構成方程式の代わりに分子動力学法を用いることで分子動力学計算と CAE 計算を連携させ、微視的スケール・巨視的スケールを同時にシミュレーションするマルチスケールシミュレーションのアイデアは 1990 年代にすでにあった。スーパーコンピュータ「京」の開発を契機に高分子系材料のマルチスケールシミュレーションの開発機運が高まり、申請者らにより、分子動力学計算と CFD を連成させるマルチスケールシミュレーションの開発が進められてきた。しかしながら、これまでのマルチスケールシミュレーションでは一般の流動や変形を扱うための分子動力学法のフレームワークがなく、分子間の相互作用を平均場で近似した分子シミュレーションのみに適用可能であった。もしくは分子動力学計算と CFD 計算を連携させる場合は、並進対称性を仮定したシンプルな問題に限られていた。この研究を開始する少し前に、申請者は分子動力学法で計算すると破綻する困難があった伸長流動に対し、新しい周期境界条件の方法を開発し、分子動力学法で初めて伸長粘度の測定に成功した。この方法は伸長方向とシミュレーションボックスの向きを予め異なるように設定し、伸長変形がシミュレーションボックス内ではズリ変形になるようにするものである。ズリ変形に対しては Lees-Edwards 境界条件など長時間計算が可能な方法がよく知られている。申請者はさらに、この新しい境界条件の方法にヒントを得て、一般の変形をズリ変形と回転に分解することで、分子動力学計算と FEM を連成させたマルチスケールシミュレーションを開発し、高分子固体材料の伸長変形時のネッキング挙動の再現に成功した。

2. 研究の目的

微視的な分子スケール(nm)から巨視的なスケール(m)までをシームレスにつなぐマルチスケールシミュレーションが真に実現できれば、新規材料開発・性能予測、材料の疲労破壊の原因究明・寿命予測、など大幅に加速させると期待される。申請者が近年開発した、分子動力学法における伸長流動変形を扱うための新しい計算法を応用することで、分子動力学シミュレーションにおける任意の非平衡流動計算が可能となることが期待される。この任意の非平衡流動計算手法を用いることで、分子動力学シミュレーションを巨視的スケールのシミュレーションに接続することが可能となる。本研究課題では、微視的な分子スケールのダイナミクスから巨視的スケールの材料の変形や流動を予測することが可能な新しいマルチスケールシミュレーションの開発、及びその実証研究を行う。

3. 研究の方法

ミクロスケールの分子動力学シミュレーションには汎用分子動力学シミュレーションソフトウェアの LAMMPS を使い、マクロスケールの連続体シミュレーションにはインハウスコード(SPHシミュレーション、有限要素法のシミュレーション)を用いた。本研究では、分子動力学シミュレーションにおける任意変形の手法開発を目的とするため、主として LAMMPS の改造を行うことで研究を遂行していく。また、任意変形を扱う際の基盤となる知見を深めるために、大伸長変形のシミュレーションを実施することで成果創出を図る。

4. 研究成果

分子動力学シミュレーションで、一般の変形を扱うためには、直交格子から三斜格子に系を変形させることで、周期境界条件下の変形を扱うことが可能である。LAMMPS においては、計算効率の観点から、任意の三斜格子を扱うことには対応しておらず、右上三角行列の変形のみを扱うことが可能であった。申請者は、大変形伸長流動を扱う UEF 法の手法を応用し、三斜格子の変形を表す形状行列を QR 分解することで、回転行列 Q と右上三角行列 R に分解し、LAMMPS 上で任意の変形を扱う方法を開発した。研究開始当初の村島 - 浦田-Li (2019)の方法は、固体への適用を目的としていたため、Affine 変形のみを扱える方法であった。この方法を SLLD 法に基づく形式へと改良し、流体への応用も可能な手法へと発展させた。具体的にはマクロスケールの変形とミクロスケールのセル変形との間の座標変換を、分子動力学法内部で行えるようにシミュレーションコードを整備し、分子動力学シミュレータ LAMMPS に実装した。これによって、従来の分子動力学法で取り扱いが困難な回転を伴う流れ中の非平衡分子動力学シミュレーションが可能になった。リスタート計算にも対応し、長時間の計算が可能になった。また実験室系と分子シミュレーション系の可視化にも対応し、流動中の分子の動きを調べることが可能になった。

マルチスケールシミュレーションを実施する前の準備検討として、一定のひずみ勾配テンソル中での分子運動の解析を行った。渦流れを想定し、上三角成分と下三角成分の符号が異なるひずみ勾配テンソルを扱った。まず自明な問題として、反対称なひずみ勾配テンソルを課す状況について検討した。この場合はシステム全体が回転するだけで、分子は変形せず応力も平衡状態と同様に熱ゆらぎで振動することを観測した。次に上三角成分と下三角成分の大きさに差をつけたひずみ勾配テンソル下での流れを検討した。この場合では、システム全体は回転しながら分子がひずみを受けて伸長する挙動を観察した。分子の伸長軸の方向は時間経過とともに回転する

ため、マクロな応力値は回転とともに振動することを観測した。

伸長流動計算を環状高分子と線状高分子をブレンドした系において実施したところ、いくつか興味深い現象を発見した。環状高分子は線状高分子と異なり末端を持たないため、流動中のダイナミクスは線状高分子と環状高分子では大きく異なる。この環状高分子を線状高分子とブレンドすることにより、新しい力学特性を付与することができると考えられており、数多くの研究が展開されている。我々は多環の環状鎖と線状鎖の混合系の二軸伸長流動下における粘弾性挙動の予測を、我々がこれまで開発してきた UEFEX 法を用いて行った。その結果、単環鎖と線状鎖の混合系よりもシャープなストレスオーバーシュート挙動が多環鎖と線状鎖の混合系では生じることを発見し、さらにそのオーバーシュート挙動が起きるメカニズムが多環鎖のうち一つの環だけが開いて他の環が閉じるトポロジーの変化を伴う構造転移によって引き起こされていることを突き止めた。この結果は *Macromolecules* 誌に出版され、Supplementary Cover Art に選出された。また、この研究を実施する過程において、GPU 上で高速に分子動力学シミュレーションを実施できる HOOMD-blue を用いて Multiple-tau 法の計算を可能にするためのコード開発を行った。この新しい方法を用いることで従来数カ月かかっていた線形粘弾性の評価(応力の相関関数の計算)を数週間で終えることが可能になるという派生的な成果も得られた。

本研究課題は、分子スケールのダイナミクスと巨視的スケールの材料の変形や流動を予測するための新しいマルチスケールシミュレーション手法の開発及び実証研究を行うことを目的とした。その目的を達成するために、まず任意の変形を分子動力学シミュレーションで行えるためのアルゴリズムの開発とシミュレーションコードの整備を行った。任意変形を汎用分子動力学シミュレーションで行うためには、実験系と分子シミュレーション系の2つの座標系を回転行列でつなぎ、変形を与える際は実験系の座標系で行い、分子シミュレーション内部の計算は分子シミュレーション系で行うことで、任意変形を扱えるように整備した。巨視的系を有限要素法で記述し、微視的系を分子動力学シミュレーションで行うマルチスケールシミュレーションを、ナノ結晶アルミニウムの双晶形成の問題と、ガスハイドレートペレットの構造安定性の問題に応用し、最終年度に、それぞれ論文として出版された。さらに実施期間中の大きな成果として、大変形の伸長流動シミュレーションがあげられる。環状高分子と線状高分子の混合系において、大変形の伸長流動シミュレーションを実施し、二軸伸長流動下におけるストレスオーバーシュート挙動を発見した。さらに複数の環をつなげた多環状高分子を作成し、多環状鎖と線状鎖の混合系において、トポロジカルな転移現象を発見した。これら2つの研究成果はそれぞれ論文として出版された。当初計画には想定していなかった新たな発見があり、この方面の応用展開が見込まれる。しかしながら、当初計画したマルチスケールの流動シミュレーションについては期間内に実施できなかった。引き続きコード開発を進め、その成果を論文として出版し、社会に還元していく。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計6件（うち査読付論文 6件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 4件）

| | |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名 Murashima Takahiro, Hagita Katsumi, Kawakatsu Toshihiro | 4. 巻 55 |
| 2. 論文標題 Topological Transition in Multicyclic Chains with Structural Symmetry Inducing Stress-Overshoot Phenomena in Multicyclic/Linear Blends under Biaxial Elongational Flow | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Macromolecules | 6. 最初と最後の頁 9358 ~ 9372 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.macromol.2c01579 | 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 Murashima Takahiro, Hagita Katsumi, Kawakatsu Toshihiro | 4. 巻 54 |
| 2. 論文標題 Viscosity Overshoot in Biaxial Elongational Flow: Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulation of Ring/Linear Polymer Mixtures | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Macromolecules | 6. 最初と最後の頁 7210 ~ 7225 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.macromol.1c00267 | 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 Hagita Katsumi, Murashima Takahiro | 4. 巻 218 |
| 2. 論文標題 Effect of chain-penetration on ring shape for mixtures of rings and linear polymers | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Polymer | 6. 最初と最後の頁 123493 ~ 123493 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.polymer.2021.123493 | 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 Hagita Katsumi, Murashima Takahiro | 4. 巻 223 |
| 2. 論文標題 Multi-Ring Configurations and Penetration of Linear Chains into Rings on Bonded Ring Systems and Polycatenanes in Linear Chain Matrices | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Polymer | 6. 最初と最後の頁 123705 ~ 123705 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.polymer.2021.123705 | 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 Yamazaki Yusuke, Murashima Takahiro, Kouznetsova Varvara, Muramatsu Mayu | 4. 巻 99 |
| 2. 論文標題 A multiscale FEM-MD coupling method for investigation into atomistic-scale deformation mechanisms of nanocrystalline metals under continuum-scale deformation | 5. 発行年 2024年 |
| 3. 雑誌名 Physica Scripta | 6. 最初と最後の頁 025408 ~ 025408 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1402-4896/ad1c1e | 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 該当する |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Terashima Yuto Lewis, Brumby Paul Edward, Murashima Takahiro, Kouznetsova Varvara, Muramatsu Mayu | 4. 巻 38 |
| 2. 論文標題 Fine-scale structural stability of carbon dioxide hydrate pellets under coarse-scale deformation using multi-scale coupled FEM-MD simulations | 5. 発行年 2024年 |
| 3. 雑誌名 Materials Today Communications | 6. 最初と最後の頁 108322 ~ 108322 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.mtcomm.2024.108322 | 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 該当する |

〔学会発表〕 計15件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件)

| |
|---|
| 1. 発表者名 村島隆浩, 萩田克美, 川勝年洋 |
| 2. 発表標題 多環状鎖・線状鎖混合系の二軸伸長流動下のストレスオーバーシュート |
| 3. 学会等名 2022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 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 村島隆浩 |
| 2. 発表標題 二軸伸長流動下における多環状鎖のトポロジカル転移 |
| 3. 学会等名 第36回分子シミュレーション討論会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 村島隆浩 |
| 2. 発表標題 環状鎖/線状鎖混合系の二軸伸長流動シミュレーション |
| 3. 学会等名 第10回ソフトマター研究会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 村島隆浩 |
| 2. 発表標題 多環状鎖/線状鎖混合系の二軸伸長流動下における多環状鎖のトポロジー |
| 3. 学会等名 ソフトバイオ研究会2022 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 村島隆浩, 萩田克美, 川勝年洋 |
| 2. 発表標題 環状鎖(単環、多環)と線状鎖の混合系の二軸伸長流動下におけるストレスオーバーシュートの解析 |
| 3. 学会等名 第71回高分子討論会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 村島隆浩, 萩田克美, 川勝年洋 |
| 2. 発表標題 環状鎖・線状鎖混合系の二軸伸長流動下におけるストレスオーバーシュートの発見 |
| 3. 学会等名 第70回高分子討論会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 村島隆浩, 萩田克美, 川勝年洋 |
| 2. 発表標題 環状鎖・線状鎖混合系の二軸伸長流動下で観察されたストレスオーバーシュートの分析 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 村島隆浩, 萩田克美, 川勝年洋 |
| 2. 発表標題 工学ひずみ速度一定の伸長流動下の高分子ダイナミクス |
| 3. 学会等名 第35回分子シミュレーション討論会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|----------------------------------|
| 1. 発表者名 村島隆浩 |
| 2. 発表標題 伸長流動の粗視化分子動力学シミュレーション |
| 3. 学会等名 プラスチック成形加工学会 第29回秋季大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 村島隆浩, 萩田克美, 川勝年洋 |
| 2. 発表標題 環状鎖・線状鎖混合系の二軸伸長流動シミュレーション |
| 3. 学会等名 2021年度高分子基礎物性研究会・高分子計算機科学研究会 合同討論会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 村島隆浩 |
| 2. 発表標題 粗視化分子動力学法を用いた環状鎖・線状鎖混合系のレオロジー解析 |
| 3. 学会等名 第34回分子シミュレーション討論会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 村島隆浩, 萩田克美, 川勝年洋 |
| 2. 発表標題 一軸伸長流動下における環状鎖/線状鎖混合系のストレスオーバーシュート |
| 3. 学会等名 日本物理学会 第78回年次大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Takahiro Murashima, Katsumi Hagita, Toshihiro Kawakatsu |
| 2. 発表標題 Stress Overshoots of Ring/Linear Blends under Elongational Flows: Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulation |
| 3. 学会等名 The 7th International Soft Matter Conference (国際学会) |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 村島隆浩 |
| 2. 発表標題 粗視化分子動力学シミュレーションによる環状鎖/線状鎖混合系の伸長レオロジー |
| 3. 学会等名 プラスチック成形加工学会 第31回秋季大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 村島隆浩 |
| 2. 発表標題 環状鎖/線状鎖混合系の分子動力学シミュレーション |
| 3. 学会等名 分子シミュレーション学会 第37回分子シミュレーション討論会 |
| 4. 発表年 2023年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

| |
|--|
| researchmap https://researchmap.jp/7000003465 |
|--|

| | | |
|---------------------------|-----------------------|----|
| 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 |

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 |
|---------|---------|