

特集 — 化学工学における流体シミュレーションの実践～2030年に向けた化学工学系流体シミュレーション：part 2～

からみ合い高分子溶融体の流動解析手法の進展
—マルチスケールシミュレーション法と機械学習の融合—

宮本 奏汰・MOLINA John J.・谷口 貴志

1. MSS法を用いた流動解析の概況

高分子材料は現代社会を支えるための最も重要な材料の1つである。その高分子材料を、溶融し鋳型や金型に流し込み所望の形状に成形する工程では、高分子流体の流動予測と制御が不可欠である。現在ではカーボンニュートラルの観点から、高分子材料を無駄なく効率的に製品へと変換する必要があり、その基盤となる知見の蓄積が喫緊の課題である。しかし、高分子流体は粘性だけでなく弾性も示し、その内部構造により流動予測が困難な複雑流体に属する。その流動挙動は分子構造や分子運動と強く相関する。よって流動予測に当たり、分子量や分岐構造といった分子鎖の特徴から統一的に流動特性を解釈することが望ましい。だが現状では、典型的な条件下の実験や現象論的なモデルによる解析に基づく間接的な理解に留まっている。

このような状況から、ミクロスケールの分子情報とマクロスケールの流動現象の関係を統一的に理解し、予測することを目的として、我々の研究グループでは、マルチスケールシミュレーション法(MSS法)と呼ばれる方法論の研究を進めている^{1,7)}。我々の手法では、ミクロな分子シミュレータをマクロスケールの流体要素に割り当て、階層の異なるダイナミクスを同時に解く。このMSS法を用いて、流動下での流体内部の構造を直接観察する。これまでに、からみ合い高分子溶融体の流動解析を、平行な二平板間¹⁾、円柱周り²⁾、溶融紡糸工程内のモデル流路^{3,4)}、急縮小急拡大流路^{5,6)}、および非等温な二重円筒⁷⁾の系へと広げてきた。



Development of the Analytical Methods for Entangled Polymer Melts Under Flows: Combination Between Multi-Scale Simulation and Machine Learning

Souta MIYAMOTO (学生会員)

2022年 京都大学大学院工学研究科化学工学専攻修士課程修了

現在 京都大学大学院工学研究科 D1
連絡先：〒615-8510 京都市西京区京都大学桂

E-mail s.miyamoto@cheme.kyoto-u.ac.jp

2022年11月11日受理

そこでは例えば、超高分子量成分を添加した時の流動挙動の変化や、溶融高分子鎖上に存在するからみ合い数の線密度といった流体を構成する分子の状態と流動挙動との関係を明らかにした。一方で、MSS法による解析には膨大な計算資源が必要であり、最新の計算機に並列計算の技術を組み合わせても、3次元空間のシミュレーションを実行するには数ヶ月を超える期間を要する。この時間的制約から、工業的な問題への適用は未だ進んでいない。

近年、機械学習の方法がMSS法における計算精度の向上および計算資源の節約に有効であることが示唆された。Zhaoらの先行研究では⁸⁾、計算コストの高い分子シミュレータを直接取り扱うのではなく、機械学習モデルにより流動解析に必要な構成関係(応力-ひずみ関係)を抽出して用いることで、必要となる計算資源を大幅に節約する方法を提案した。しかし、この方法は、高分子流体の持つ粘弾性のうち、粘性のみを表現する回帰モデルであった。そこで、我々は弾性も表現できるように回帰モデルを拡張した。これを用いて粘弾性を持つ高分子流体の簡単な系に対して流動予測を試験した。その結果から、流動予測に含まれる統計的誤差を大きく抑えつつ、計算を大幅に高速化できることを報告した⁹⁾。

現在、我々のグループではMSS法の適用系を拡大しつつ、機械学習を用いた計算技術を発展させており、工業的に重要な流路への応用を目指している。次節では、当グルー



John J. MOLINA (正会員)

2011年 パリ第6大学物理化学専攻博士課程修了 Ph.D.

現在 京都大学大学院工学研究科 助教
連絡先：〒615-8510 京都市西京区京都大学桂

E-mail john@cheme.kyoto-u.ac.jp



Takashi TANIGUCHI (正会員)

1994年 九州大学大学院理学研究科物理学専攻修了 博士(理学)

現在 京都大学大学院工学研究科 准教授
連絡先：〒615-8510 京都市西京区京都大学桂

E-mail taniguch@cheme.kyoto-u.ac.jp

プで取り組んできた従来型のMSS法を用いる方法および機械学習を用いる方法による流動解析をそれぞれ紹介する。

2. MSS法によるからみ合い高分子溶融体の流動解析

2.1 急縮小急拡大流路の解析

MSS法を用いた解析事例のうち、急縮小急拡大部を持つ流路におけるからみ合い高分子溶融体の流動に対する研究について紹介する^{5,6)}。これまでMSS法が適用された流路は主に、変形様式が単一のずり変形や伸長変形のみで表すことのできる単純な流路であった。ここで解析した急縮小急拡大流路は、ずり変形と伸長変形の両方が流体要素へと印加される典型的な例であると言える。からみ合い高分子溶融体のように長い緩和時間を持つ流体は流動下で、その流動履歴に依存した非線形な粘弾性応答を示す。単分散の分子量分布を持つ直鎖状高分子系の解析、およびその系に高分子量成分を添加した二峰性の分子量分布を持つ系の流動解析をおこなった。

マクロスケールの計算にはSmoothed Particle Hydrodynamics (SPH) 法と呼ばれるLagrange描像に基づいた数値解法を用いる。そこで離散化された流体要素のそれぞれに、Slip-linkモデルと呼ばれるからみ合い高分子モデルのシミュレータを割り当てる。シミュレーションでは、マクロスケールの計算から流体要素に印加される速度勾配を求め、ミクロスケールの高分子モデルのシミュレータに与えるひずみ速度テンソルを算出する。そして、シミュレータでは統計力学的手法に基づいて分子配置から応力を求める。このように求めた応力には人為的な仮定が無く、印加されたひずみ速度の履歴を自然に反映する。計算された応力テンソルをマクロスケールの流体要素に渡して時間発展させることで、ミクロスケールとマクロスケールの計算を連結する。

図1は xy 平面内の急縮小急拡大流路における二峰性分子量分布を持つからみ合い直鎖高分子系について、有効ひずみ速度の分布と、各位置における高分子モデルの配向を表している。流路には圧力勾配が外力として印加され、左から右に流体が流れている。図から、中央付近の壁面から離れた高分子鎖は、縮小部への流入時には x 軸方向に配向しており、また、縮小部出口では無配向状態であったものが、そのすぐ右位置では y 軸方向に配向していることが分かる。壁面に近い場所では、せん断変形によって対応する向きに大きく配向している。これらの挙動は高分子鎖が異なる方向および異なる様式の変形、すなわち、せん断変形と平面伸長変形のそれぞれを受けた結果である。このような流動変形を受けた時、高分子鎖の緩和が十分でない場合には、シアニングやひずみ硬化などの非線形な粘弾性応答

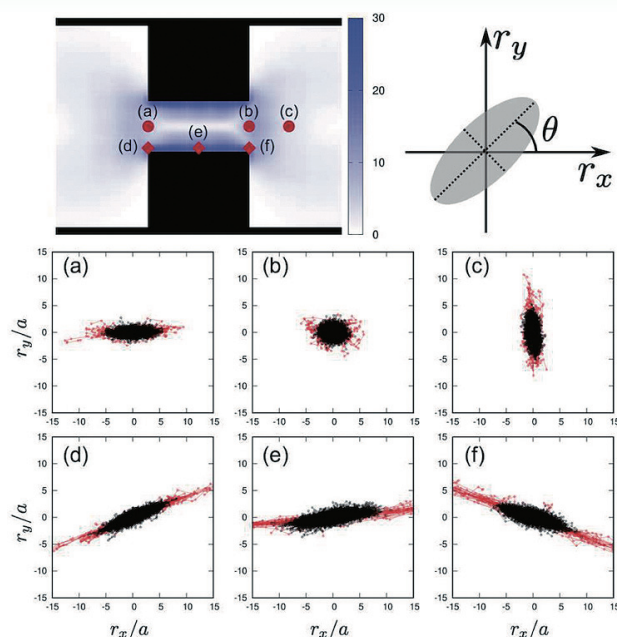


図1 急縮小急拡大流路内の有効ひずみ速度分布 (左上図: 青色の濃淡) と各位置での高分子鎖の配向状態 (黒: 短鎖, 赤: 長鎖)。上図の r_x と r_y は左上図の水平、鉛直方向に対応する向きの位置ベクトルである。(a)~(f)にある流体粒子中の各高分子の分子配置を、重心を原点に固定して下図に重ねて書いている。 θ はモデル高分子の配向テンソルを楕円体として扱う時の水平方向からの射角である。また、 a はからみ合い点間の熱的平衡長である(文献6の図8より転載)

が現れる。この結果では特に、壁面付近の高分子鎖で、短鎖と長鎖が共に配向しており、シアニングによって粘度が著しく低下していることが予想される。MSS法を用いれば、このように分子状態を直接確認しつつ、その流動物性を定量的に予測できることが大きな利点である。だが現在、膨大な計算量を必要とするという課題を抱えている。

2.2 機械学習を用いたMSS法の高速度化

前節で述べたMSS法の実施には、計算量の問題があった。この問題を解決するために、機械学習を用いたMSS法の高速度化に取り組んでいる。我々は、あるミクロな分子からなる流体の流動予測をおこなうために、粘弾性を表す構成関係をミクロモデルから学習し、それを用いる方法を提案している。具体的には、応力の時間微分値が応力と速度勾配から決まると考えて、その応力の時間微分値がガウス過程に従うと見なしてガウス過程回帰法を用いる。この提案手法を検証するため、ダンベルモデルと呼ばれるミクロモデルを用いて流動解析をおこなった⁹⁾。ダンベルモデルから統計的に算出される応力の時間発展ダイナミクスは、統計的な極限においてマクスウェル構成方程式のものと解析的に一致する。よって構成方程式を用いた場合の結果と比較検証できる。

2次元平面内での流動解析をおこなうため、ダンベルモデルの構成関係を再現する機械学習モデルを作成した。静止状態にあるダンベルの系に、一定のひずみ速度でせん断

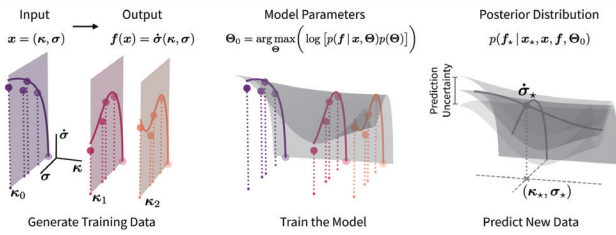


図2 機械学習を用いた構成関係の学習方法の模式図 σ : 応力テンソル, κ : 速度勾配テンソル, $\dot{\sigma}$: 応力テンソルの時間微分, $f(x)$: ガウス過程, θ : ハイパーパラメータ (文献9の図2より転載)

変形および平面伸長変形を印加し、応力の時系列データから訓練データを作成した (図2左)。続いて、その訓練データに対して機械学習モデルのパラメータを最適化した (図2中央)。この機械学習モデルを、MSS法で用いるミクロスケールのシミュレータに代えて、各時刻における応力と速度勾配から、応力の時間変化を予測し (図2右)、流動解析に用いた。

図3は、ある時刻における平行な二平板に挟まれた流体の速度分布である。上部平板は周期的に振動している。機械学習を用いた場合の速度分布と、構成方程式を用いた結果は良好に一致する。ダンベルモデルを直接用いてMSS法を実施する場合と比べ、機械学習を用いた場合、1/100程度の極めて短い時間で予測結果を得ることができる。現在、非線形な粘弾性を持つからみ合い高分子系へと本方法の適用系を拡張し、精度と速度の両方の観点で良好な結果を得ている。この内容は既に本学会で発表¹⁰⁾しており、詳しくは、そちらを参照頂きたい。これまでの報告では考慮していないものの、ガウス過程回帰法を用いれば、予測の信頼度を評価してデータを逐次的に継ぎ足す方法 (デマンド・ドリブン法)が原理的に可能である⁸⁾。これにより信頼性を担保した予測がおこなえる。

3. おわりに

我々はマルチスケールシミュレーション法をからみ合い高分子溶融体の流動解析に応用し、分子構造に基づく流動

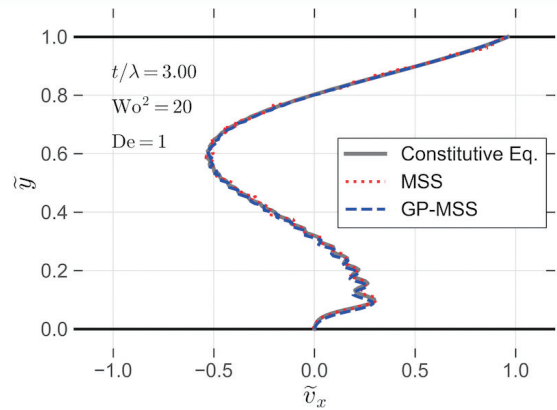


図3 上下の平行な二平板に挟まれたモデル流体の速度分布。ここで t は時刻, λ はモデル高分子鎖の緩和時間であり、無次元数 Wo はウオマズリー数であり、マクロスケールの時間単位 t_0 を基準とした上部振動平板の周波数を表す。また De はデボラ数で、 λ/t_0 の値である。(灰色の実線: 構成方程式による結果, 赤色の点線: 従来のMSS法の結果, 青色の破線: ガウス過程(GP)回帰法を用いたMSS法の結果)

予測のための技術的基盤の開発を進めた。また、機械学習を用いた高速化手法を提案し、その検証をおこなった。現在も、高分子成形工程の諸問題に対する分子論的知見の創出を目指して、提案手法の適用範囲の拡大に取り組んでいる。

今後、物理的知見に機械学習の方法を組み合わせたアプローチがその重要性を増していくだろう。からみ合い高分子溶融体の流動予測に限っても、本稿で紹介した手法のほか、構成方程式モデルの選択¹¹⁾、レオロジー的なモデルとニューラルネットワークを組み合わせる方法¹²⁾などが提案されている。新しい流動予測手法としての更なる進展を期待したい。

参考文献

- 1) Murashima, T. and T. Taniguchi : *J. Polym. Sci., Part B*, **48** (8), 886-893 (2010)
- 2) Murashima, T. and T. Taniguchi : *Euro-phys. Lett.*, **96** (1), 18002 (2011)
- 3) Sato, T. et al. : *Nihon Reoraji Gakkaishi*, **44** (5), 265-280 (2016)
- 4) Sato, T. and T. Taniguchi : *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **241**, 34-42 (2017)
- 5) Sato, T. et al. : *Macromolecules*, **52** (10), 3951-3964 (2019)
- 6) Sato, T. and T. Taniguchi : *Nihon Reoraji Gakkaishi*, **49** (2), 87-95 (2021)
- 7) Hamada, Y. et al. : *Mathematics in Engineering*, **3** (6), 1-23 (2020)
- 8) Zhao, L. et al. : *J. Comput. Phys.*, **363** (15), 116-127 (2018)
- 9) Seryo, N. et al. : *Phys. Rev. Research*, **2** (3), 033107 (2020)
- 10) Miyamoto, S. et al. : SCEJ 52nd Autumn Meeting, SY52 (2021)
- 11) Seryo, N. et al. : *Nihon Reoraji Gakkaishi*, **49** (2), 97-113 (2021)
- 12) Mahmoudabadbozchelou, M. and S. Jamali : *Sci. Rep.*, **11**, 12015 (2021)