

# 客員所員を経験して

防衛大学校 萩田 克美

2017 年度に、柴山充弘所員のホストで客員准教授として、たいへんお世話になりました。また、客員期間中は、柴山充弘所員をはじめ、李助教や柴山研究室のメンバーと、とても有益な議論をさせていただきました。特に、私自身はシミュレーション(仮想実験)が専門で、実験的研究が不案内なところ、現実世界の実験的研究の詳細について丁寧にご説明いただいたことは、理論・シミュレーションと実験の融合の高みを目指す上では、大変有益でした。厚くお礼申し上げます。

客員所員として、「中性子小角散乱データの計算科学を駆使したシミュレーション解析」の研究課題を進めました。ソフトマテリアルに対する中性子小角散乱実験に関して、柴山所員のグループは世界に先駆けた成果を多く排出しています。高分子複合材料では、同位体の分量を変えることでコントラストを与え、数値的に分解することでポリマーとフィラーのそれぞれの挙動を引き出す解析手法で、様々な系のナノスケールの挙動を明らかにしています。特に、ゲル中に円盤状のクレイ(以下では、NC-clay ゲル)が充填されたナノコンポジットでは、一軸延伸中のクレイの向きを反映した 2 次元小角散乱パターンを観察しています。応力歪み曲線と内部構造を反映した 2 次元散乱パターンについて、シミュレーションで再現したくなる興味深い実験結果です。我々は、粗視化分子動力学 (Molecular Dynamics; MD) シミュレーションの共同研究を進めました。

我々の研究を紹介する前に、ゴムのような物質に関する物性理論的研究の歴史について紹介させていただきたいと思います。久保亮五先生は 1940 年代に「理想ゴムの統計力学的理論」を提案され、架橋点や絡み合いによる結び目の密度として、諸物性を説明することに成功しました。(なお、理想的なゴムでは弾性を結晶と同じくバネ的な力に帰そうとする分子バネの説は成り立ちませんが、現実のゴムでは分子の内部回転などの幾何制約の影響、結晶化やガラス化などの様々な要素が競合する系として巧みな物性が実現されています。) 固定されたネットワーク構造を形成しない高分子溶液体では、物質によらず、高分子鎖が互いに絡み合うことで最長緩和時間  $\tau$  が重合度の 3.4 乗 ( $N^{3.4}$ ) に比例する遅い緩和/粘弾性を示します。1970 年

代に入り、この遅い緩和は、P. G. de Gennes、S. F. Edwards、土井正男によるレプテーション理論で説明されました。それ以降は、コンピュータ・シミュレーションによる分子レベルでの物性解明が強く期待されるようになりました。(2002 年頃、我々は、格子模型の分子シミュレーションで、絡み合いの仮定なしで  $\tau \sim N^{3.4}$  を世界で初めて再現しました。) スーパーコンピュータの性能が 5 年で 10 倍のペースで向上し続けている中でも、ゴムやゲルのような柔らかい高分子材料系では、現実の物性を理解するためのシミュレーションとしては、何らかの時空間スケールの粗視化が欠かせません。なお、原子分子レベルの MD で、柔らかい高分子材料全体を扱うことは、単純には計算量の観点で、本質的には物性を支配する要因の扱い方(特に不純物の影響)と計算の確からしさの観点で、難しさがあります。高分子材料を分子論的に扱う場合、原子分子の相互作用の競合の問題か、高分子の絡み合いによる過渡的な問題か、高分子ネットワーク構造(例えば、架橋の空間分布やプロセス)の問題かによって、必要な計算精度も異なります。また、ゲルの場合は、水という溶媒の中に存在する僅かな高分子のネットワークが物性を生んでおり、メカニズムの理解には、適切な粗視化が望まれます。さらに、ゴムやゲルにおいては、架橋や絡み合いなどの結び目のネットワークトポロジーをどのようにして数学的に特徴づければ、物性を説明できるかも興味深い話題です。久保亮五先生の結び目密度による整理の発展として、数理物理や純粋数学との連携で、トポロジー指標の確率分布による物性理論の構築が期待されます。

ゴムやゲルの高分子複合材料は、フィラーを充填することで機能性が高められています。高分子素材の MD シミュレーションでは、原子一つ一つを扱うものから、複数の原子集団を粗視化して扱うものがあります。近年、原子分子レベルの化学的な詳細を無視し、高分子鎖は互いに交差しないという紐としての性質を保持した粗視化模型で、物性の発現メカニズムを解明するためのシミュレーションが広く行われております。たとえば、ナノ粒子充填ゴム材料の例では、図 1 に示すように、ナノ粒子を直径数十 nm の剛体球としてモデル化し、その周辺に、ビーズがバネにつなが



