

機械学習モデルによる高分子溶融体のマルチスケール流動シミュレーション

化学工学専攻 ソフトマター工学研究室
宮本奏汰

高分子溶融体は「複雑流体」に分類され、文字通りの複雑な流動挙動を示す。工業的に用いられる溶融体では、長大な分子鎖がお互いに絡み合った状態にあり、その状態が動的に緩和する時間は長く、その緩和運動は溶融体を成形する工程に伴う流動変形によって大きく影響を受ける。この時、高分子流体は粘性だけでなく弾性的な性質を現し、その流動挙動が高分子の成形加工に問題を引き起こすことが多い。例えば、フィルム成形で、溶融体を金型から望みの厚さで押し出したにも関わらず、押し出し直後に膜厚が大きくなり寸法がズレてしまうダイスウェルという現象が挙げられる。このように、所望の製品形状を得るために高分子溶融体の流動予測技術を構築することは工学的に重要である。

複雑流体の流動予測を行う場合、流体局所での応力とひずみ速度や歪みとの関係を表す構成方程式から応力を算出し、流体が従う運動方程式を解く。すなわち、流動予測を決めているのは、応力、つまりはそれを決める構成方程式であり、それが正しいかということが予測の精度に関わってくる。この応力は流体を構成している分子鎖の配向などの特徴的な構造や状態に相関している。よって水や空気などのニュートン流体とは違い、一般の高分子流体の応力を記述する構成方程式は未だに見つかっていない。これまでの研究により、多くの経験的な構成方程式が提案され、汎用のシミュレータによる流動解析が実践されてきたが、これらの構成方程式は高分子流体を構成する分子の状態をそのまま反映して得られたものでないため、個々の問題に適切な構成方程式を選定する際に経験的方法や試行錯誤的な方法に基づいた判断が必要になってしまう。そこで現在、構成方程式を用いるのではなく、分子シミュレーションにより分子状態から応力を統計的に算出し用いる方法、すなわち マルチスケールシミュレーション法(MSS法)による流動予測が注目されている。

複雑流体の流動予測を統一的に取り扱うため、その技術開発が進められてきたが、一方でMSS法による工業的な流路の解析には、対象となる流路の著しい単純化が避けられない。

これは膨大な計算資源が、各流体要素の分子シミュレータ群の計算に必要なためであり、近年の計算機の目覚ましい発展にも関わらず、その産業利用は現実的でない。そこで、この MSS法を実用化することを目的として、機械学習回帰モデルを分子シミュレータに代用する効率的な計算手法を提案した^[1,2](図1)。

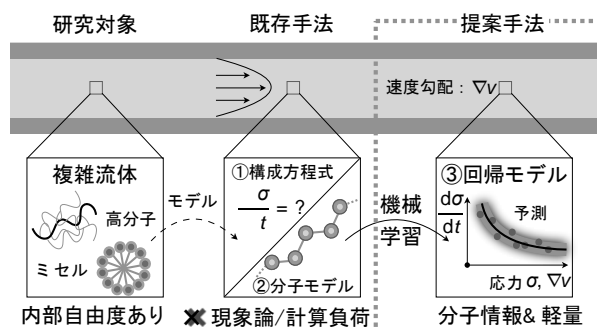


図1 提案手法の概念図

以下に提案手法による流動解析の実例を示す^[1]。およそ 100 kDa のポリスチレン直鎖から成る単分散な分子量の高分子系を想定したモデル高分子*を、単純せん断・振動せん断変形下でシミュレーションした。この時、そのせん断ひずみ速度の大きさを高分子系の緩和時間の逆数程度に調整し、その特徴的な力学的応答をよく観察できるようにした。変形下のシミュレーションによって得た時系列データ(応力、ひずみ速度)から訓練データを作成し、これを用いて構成関係の機械学習回帰モデルを学習させた。ここでは、ノイズに頑健なガウス過程回帰モデルを採用した。構築した回帰モデルを用いて流動解析を行った。ここでは、最も単純な例である「平行平板間で圧力に駆動される高分子流体の二次元流れの解析」を題材として、提案手法の有効性を精度と速度の観点から検証した。

流動条件を、弾性数と呼ばれる無次元数を用いて整理し、流動において典型的な非線形弾性が現れるように弾性数を 1 とし、提案手法による流動予測を行った。結果として、提案手法による予測(図 2)は、定性的に、その流動プロファイルの振動挙動や高ひずみせん断下での粘度低減現象をよく再現し、定量的にも、相対誤差を過渡状態で 10%、定常で 3%未満と高い精度を示した。加えて従来法(直接の MSS 計算)に比べて、10 倍超の高速化を達成した。

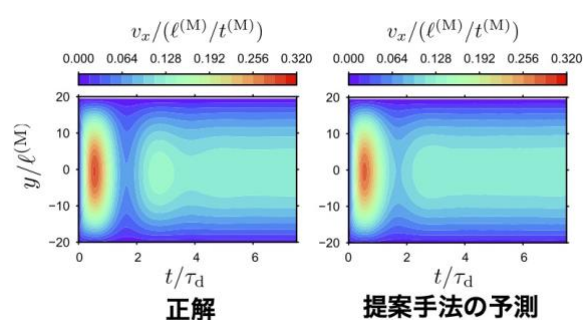


図 2 平行平板間で圧力に駆動されるモデルポリスチレン流体の二次元流れの解析結果^[1]。左は十分な精度で直接 MSS 計算をした場合の結果(正解)での流速プロファイル(縦軸)の経時変化(横軸)を表す。右は提案手法で機械学習モデルを用いた流動予測の結果を表す。

本研究では、高分子溶融体のマルチスケールシミュレーションを背景とし、機械学習の応用により、その高効率化を実現した。既往の研究と比べても、非線形性を考慮しつつ材料の力学的な動特性を注意深くモデルに抽出できたことは重要な成果であると言える^[5]。本研究成果を起点として、溶融紡糸の解析への拡張^[3]などのような工業プロセスの問題だけでなく、構成関係に対する物理的要請を考慮した機械学習モデルの設計^[4]などの技術要素の研究にも取り組みを開始している。著しい計算機技術の発展により、近い将来、本研究成果が成形加工の問題へのアプローチに分子論的知見をより活かしていくための基盤技術となることが期待される。

*採用した高分子マイクロモデルは、高分子溶融体の線形・非線形特性の実験値を再現する。例えば[6]。

[1] S. Miyamoto, J. J. Molina, T. Taniguchi, *Physics of Fluids*, **35**(6) 063113 (2023).

[2] 宮本奏汰, John J. Molina, 谷口貴志, 会誌「化学工学」, **87**(3), 111-113 (2023).

[3] Y. Xu, S. Miyamoto, T. Taniguchi, *Nihon Reoraji Gakkaishi*, **51**(5) 281-294 (2023).

[4] T. Sato, S. Miyamoto, S. Kato, arXiv:2403.14980, (2024).

[5] S. Miyamoto, *Nihon Reoraji Gakkaishi*, **52**(1) 15-19 (2024).

[6] S. Miyamoto, T. Sato, T. Taniguchi, *Rheologica Acta*, **62**(1), 57-70 (2023).