

プログラム名：超薄膜化・強靱化「しなやかなタフポリマー」の実現

PM名：伊藤 耕三

プロジェクト名：破壊機構の分子的解明プロジェクト

委 託 研 究 開 発

実 施 状 況 報 告 書 (成 果)

平 成 2 9 年 度

研究開発課題名：

分子動力学シミュレーションによる高分子材料破壊の分子機構の解明と

破壊シミュレーション手法の確立

研究開発機関名：

国立大学法人名古屋大学

研究開発責任者

岡崎 進

I 当該年度における計画と成果

1. 当該年度の担当研究開発課題の目標と計画

しなやかで強靱な高機能高分子材料の実現に向けて、主として分子動力学シミュレーションに基づいて破壊シミュレーション手法を確立し、破壊の分子機構を解明する。このため、当該年度においては、以下のよう
に共通課題と個別プロジェクト課題を推進する。

[共通課題：G1 破壊機構の分子的解明]

1. 共通モデル樹脂を用いた破壊機構の解明

衝撃破壊の分子機構

化学結合の破断を含む分子モデルを用い、衝撃試験に対して全原子分子動力学計算に基づいた破壊シミュレーションを実施する。これにより、脆性破壊と延性破壊の差異の分子論的起源を明らかにする。

耐衝撃強度と副緩和

耐衝撃強度と副緩和との相関を定量的に明らかにする。特に、局所的な運動の解析を行い、耐衝撃性への寄与について検討を進める。

2. 亀裂進展機構の解明

ゲル、ゴム等の亀裂進展の分子機構の解明における分子動力学計算の役割、可能性について、実験、理論グループと共にさらに議論、検討を進める。

3. フィラー・ポリマー界面における破壊機構の解明

フィラーやコンポジットと樹脂との相互作用を明らかにし、界面における破壊機構を解明していく上で必要な分子動力学計算の果たすべき役割について、実験、理論グループと共に議論、検討を進める。

4. 高分子破壊標準データベースの構築

「超薄膜化・強靱化「しなやかなタフポリマー」の実現」プログラムで得られた高分子の破壊に関わる研究成果をもとに、標準データベースの構築に着手する。この時、人工知能技術を活用した高分子開発の将来基盤となり得よう、他の人工知能プロジェクトと連携したデータ形式を採用する。

[個別プロジェクト課題]

1. 高分子電解質膜

Nafion と Flemion の様々な含水率でのモルフォロジーに対して全原子延伸シミュレーションを実施し、降伏、破断の分子論的描像を得る。また、前年度までに構築した粗視化モデルに基づいて、長分子鎖を持つ現実の電解質膜のモルフォロジーの解明を行う。さらには、これら粗視化モデル構造のリバースマッピングから得られる全原子大規模系に対する延伸シミュレーションについて検討する。一方で、薄膜化に向けた水素透過の制御技術の確立のために、高分子電解質膜の水素透過機構の解明を目指した全原子計算を開始する。

2. タイヤ

硫黄で架橋されたブタジエンゴムを対象に、架橋や主鎖の化学結合の破断を含む分子モデルに基づいた破壊シミュレーションを実施する。

3. 二次電池セパレータ

界面におけるイオン伝導度の評価のための分子動力学計算を、有機電解液中のリチウムイオンに対して開始する。

2. 当該年度の担当研究開発課題の進捗状況と成果

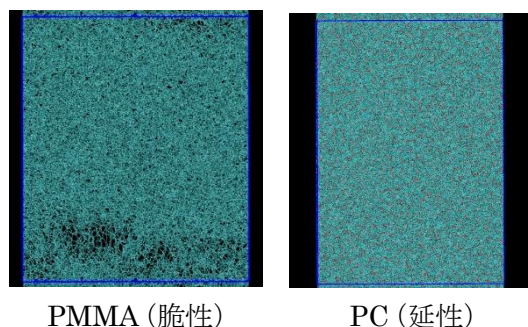
2-1 進捗状況

【共通課題】 破壊シミュレーションについては PMMA、PC に対し、分子量分布、密度、絡み合い点間長、回転半径等、現実の標準サンプルとほぼ同じ全原子モデルを構築することに成功し、これらの延伸シミュレーションを実施した。また、高分子標準破壊データベースプロトタイプ構築に向けて、データ入力項目を策定し、セキュリティの確保などデータベース構造の設計を行った上でデータ入力ソフトを作成し、WG により試験的なデータ入力を行った。

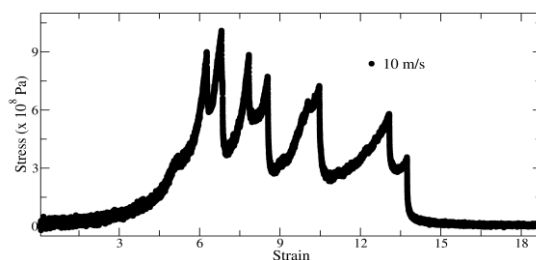
【個別プロジェクト課題】 高分子電解質膜の全原子モデルを用いて破壊シミュレーションを実施し、一方で水素透過の微視的機構について解析を進めた。また、全原子シミュレーションから得られた構造をもとに粗視化モデルを構築し、大規模系に対する粗視化シミュレーションを実施した。タイヤについてもブリヂストンとの共同研究の下、架橋反応シミュレーションに基づいて架橋した純ゴムの構造を構築し、延伸シミュレーションを実施した。セパレータについては、新たな樹脂を研究対象とすることとし、破壊シミュレーションに向けて検討を行った。

2-2 成果

【共通課題】 PMMA、PC に対し、分子量分布、密度、絡み合い点間長、回転半径等、現実の標準サンプルとほぼ同じ全原子モデルを構築し、これらの延伸シミュレーションを実施し、PMMA に対しては降伏点近傍での急速な構造の破壊とその後の主鎖化学結合の破断、クレーズの形成等、実験で示されている脆性破壊の特徴、また PC に対しては延伸方向に直交する方向への大きな収縮を伴う均一な延伸、大きな構造破壊を伴わない降伏とひずみ硬化などの延性の特徴など、ほぼ実験を再現する破壊シミュレーションの構築に成功した。右図は降伏点直後 ($\epsilon=16\%$) での両サンプルのスナップショットである。PMMA では明らかに構造破壊が生じ、この破壊がクレーズの生成へと展開される。延伸に対して直交面は収縮を示さず、応力に対して構造が応答できていない。一方で、PC では延伸した分だけ直交面が収縮し、破壊は生じていない。



【個別プロジェクト課題】 タイヤについて純ブタジエンゴムの延伸シミュレーションを行い、実験を定性的に良く再現する SS 曲線を得た (右図)。得られた分子の軌跡に対する微視的な解析から、延伸開始直後の主鎖コンホメーションの急速な秩序化とその後の異なった速度での秩序化によるエントロピックな緩やかな応力の発生、部分結晶化による急速な大きな応力の発生、ボイドの生成とその成長、そして最終的には $\epsilon \approx 6$ から開始される架橋結合の破断による全体構造の大きな破壊が観察された。



2-3 新たな課題など

特になし。

3. アウトリーチ活動報告

特になし。