ゴム材料のための 粗視化分子動力学シミュレーションの基礎技術

森 田 裕 史

General Techniques of Coarse-grained Molecular Dynamics Simulation for Rubber Materials

Hiroshi MORITA (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), Central 2-1, 1-1-1, Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305-8568, Japan)

In this manuscript, the generic technology of coarse-grained molecular dynamics (CGMD) simulation method and its applications for rubber materials are reviewed. First, fundamental coarse-grained technique is explained and the limitations of those models are also indicated, which will be much important for the application studies. As a typical example of coarse-grained simulation model, Kremer-Grest model is sometimes used. To perform the simulation using Kremer-Grest model, the construction of the initial structure is one of the most important steps and the fully relaxed structures must be needed to eliminate the local structure having residual stress. As examples of CGMD simulations, uniaxial elongation simulation of pure rubber system, rheological simulation of nano-rubber particle, and the elongation simulation of filler filled materials are explained. In the elongation simulation of pure rubber, the stress-strain curve obtained by CGMD simulation is explained, having entropic and energetic effects of elasticity. From the rheological simulations, G' , G'' , and $\tan\delta$ can be measured. In the elongation simulation of filler filled rubbers, the simulation results using the Poisson's ratio of 0.5 and 0.0 are shown. From these simulations, the applicability of CGMD simulation is explained. The author hopes the increase of the examples of application studies and expects further understanding of rubber materials by CGMD simulations.

(Received on March 25, 2016)

Key Words : OCTA, Coarse-grained Molecular Dynamics Simulation, Uniaxial Elongation Simulation, Rheological Simulation, Filler Filled Rubber

1. は じ め に

近年、分子動力学 (MD) 法¹⁻³⁾等を用いて高分子材料の研究が盛んになってきており³⁻⁶⁾、ゴム材料のシミュレーション研究も多くなされるようになってきている。特にフィラー充填材料に対してシミュレーションを行い、応力-歪曲線等を求めることも多くなされるようになってきている。また、「京」コンピューターなどを用いて、おそらく最大規模の計算として、1.6億粒子を用い、フィラーの分散構造を変えて計算を行った例⁷⁾も報告されている。このように、粗視化分子動力学 (粗視化MD) 法を用いたシミュレーションの必要性が増してきていることは、間違いないと思われる。

このような粗視化MD計算がゴム材料に対して適用されるようになってきた一つの要因として、そのソフトウェアであるOCTA⁸⁾が開発され、使えるようになってきたことも挙げられる。OCTAはもともとパソコンレベルで計算をするためのソフトウェアであったため、規模の大きな計算については、当初のシミュレーターでは考えられてこな

森田 裕史：(国研)産業技術総合研究所 機能材料コンピューショナルデザイン研究センター多階層ソフトマテリアル多階層ソフトマテリアル解析手法開発チーム (〒305-8568 茨城県つくば市梅園1-1-1中央第2-1) 主任研究員、博士 (工学) 平成9年、京都大学大学院工学研究科合成・生物化学専攻博士後期課程修了。平成20年より現職。専門は、高分子表面・界面の物理、量子化学。日本ゴム協会編集委員長他

かった。しかしながら、シミュレーターが並列化されより大きな計算が行えるようになるにつれて、さらに様々な用途に使えるようになり、またソフトウェアのコモディティ化がさらに進めば、使いたいと思う研究者が今後ますます増えるのではないと思われる。一方で、実験の研究者の方が粗視化MD法を用いた結果を目にすることも多くなると思われるが、この粗視化MD法がどのようなもので、どれくらい使えるものかを判断することは、そのベースとなる知識がなくては、なかなか難しいと思われる。

そこで、本稿では、メソスケールにおけるゴム材料のシミュレーション法として用いる際の粗視化MD法における基礎について説明する。具体的にどのようなことを計算で行っていて、どのようなことができるのかという点を重要な点と考え、適用する際の注意や実際に計算できることの内容などについて説明する。

2. 粗 視 化 モ デ ル

粗視化MD計算では、高分子の粗視化モデルを用いている。具体的には、図1に示すような高分子鎖に対して、数モノマーを1つの粒子で置き換えたような“粗く見る”ことを行い、計算に用いる最小単位を原子から粗視化粒子に変えることを行う。“粗く見る”ということは、細かいものの情報を隠ぺいし欠落させることも意味している。このような粗視化技術を用いる理由は、高分子鎖に対して各原子を1つの粒子で表すと、系の総粒子数がとんでもなく大きい数字になってしまい、計算サイズがすぐに計算機の限界を超えてしまうためである。また、この粗視化は長さの単位を大きくとる以外に、時間についても長い単位をとることにとも対応する。原子を表す粒子で構成すると、結合間の振動などは、赤外分光で見られる振動を見ていることとなり、時間の単位はフェムト秒程度になる。しかしながら、粗視化を行うと、この振動などは、既に粗く見る際にその情報は欠落していることから、数モノマーが動く時間の単位にまで“時間の粗視化”も同時になされている。よって、粗視化モデルを用いることは、長さも時間も粗く視ていることになっている。

Figure 1 Image of the coarse-grained multi-scale models.

“粗く見る”ということが細かい原子レベルの情報を欠落させることになっていることは、既に説明している。一方、高分子の種類を変えると、構成内部の原子構造を変えることになるが、粗視化モデルではこれらの情報を既に欠落させてしまっているため、粗視化MDでは高分子の種類として何が扱えるのかが気にかかる。粗視化MDにおける高分子種の扱いの詳細については後程説明するが、方法として2つある。一つは、粒子間の粗視化相互作用ポテンシャルを、別途行った原子MDの計算等で求めたポテンシャルと対応させる方法があり、化学的なアプローチである。もう一つの方法として、ポテンシャルは一般的な値を用い、そのシミュレーションにおける長さ、時間等の単位を各高分子種に合わせて、現実系に対応させるという方法で、物理的なアプローチである。後者は、参考文献9)にも説明されている。

3. 粗視化分子動力学法の概要

粗視化MD法は、もちろんMD法の一つである。その基本的な計算部分は、MD法と同じであるため、詳細は成書を参照いただきたい¹⁻⁴⁾。MD法は、簡単に申し上げると「図2(a)に示すように、決まった大きさの箱(系)の中に、構成成分として粒子を分散させ、粒子間の相互作用により、玉突きを繰り返しながらその動的過程、もしくは安定化過程をみることが出来る手法」と言うことができる。一定距離内にある粒子間には、相互作用ポテンシャルを課し、近い距離にきた際には、反発するようなポテンシャルをよく用いる。このようにすることで、上で述べた玉突きを起こすことができる。系の温度は粒子の運動エネルギーに関係し、各粒子は常に動いている状態にある。粒子の密度も当然設定することになるが、密に粒子を詰めると、動くことができる空間が少なくなるため、密度も運動性に関係することになる。

このようなMD法を粗視化MDとしてゴム等の高分子に適用する際には、いくつか工夫が必要となる。高分子は長い分子であることから、図2(b)中に示すように複数の粒子をばねで結合し、連結した分子として表す。また、このような高分子鎖は、分子間で互いに排除し合うことになる。このような排除体積鎖は、先に述べた「近くに来た際に反発するポテンシャル」を導入することで、表すことができる。このようにして、一定の太さを持った高分子鎖をモデル化することができる。一方、先に述べたとおり、周辺にいる粒子とは反発する設定を導入しているが、高速に動いてしまうと、図2(c)に示すように分子鎖間ですり抜けてしまうこともある。これを避けるために、時々刻々計算するための時間発展の時間刻みを短くする必要がある。このような一連の課題をまとめ、高分子の粗視化MD法として提案された手法がKremer-Grestモデル⁹⁾である。

Figure 2 Cartoons of molecular dynamics simulations. Figs. (a), (b), and (c) show the general MD image, MD for polymer, and phantom chain dynamics, respectively.

ゴムをこのKremer-Grestモデルで表す際のより具体的な説明を以下に述べる。Kremer-Grestモデルでは、各粒子は下記のランジュバン方程式に従って、粒子を動かす。

$$m \frac{d^2 \mathbf{r}_n}{dt^2} = \mathbf{F}_n - \Gamma \frac{d\mathbf{r}_n}{dt} + \mathbf{W}_n(t)$$

ただし、 m は粒子の重さ、 $\mathbf{r}$ は粒子の位置、 t は時間、 $\mathbf{F}_n$ は n ビーズにかかる力、 Γ は摩擦係数、 $\mathbf{W}_n(t)$ はホワイトノイズを表す。通常の運動方程式では、 $m d^2 \mathbf{r} / dt^2 = \mathbf{F}$ であることから、右辺の第2、3項が通常とは異なっている。第2項は、粒子が動くことによって、摩擦が生じエネルギーをロスする項となっている。第3項の $\mathbf{W}$ は、ガウスホワイトノイズ、

$$\langle \mathbf{W}_n(t) \mathbf{W}_m(t') \rangle = 2k_B T m \Gamma \delta_{nm} \mathbf{I} \delta(t - t')$$

の式に従って得られる。ただし、 $\mathbf{I}$ はユニットベクトルを、 T は温度を表す。ここで、 $\mathbf{W}$ は温度 T の関数になっており、温度が高いと $\mathbf{W}$ も大きくなる。このことから、Kremer-Grestの運動方程式は、熱浴から温度が一定になるように常に粒子を一定程度動くように設定しながら、動く粒子に対しては、摩擦によってエネルギーをロスするように仕掛けがなされている。ただし、箱を伸張・圧縮させるなど変形させる場合は、もちろん系全体にエネルギー収支がある。一方で、この式を覗いていただくとわかるが、あくまで粗視化された粒子にのみかかる式であることから、“粗く見る”ことで欠落された原子レベルの運動（エネルギー）についても、粗視化の際に同時に欠落していることも注意していただきたい。

4. ゴムの粗視化MD計算の手順と注意

ゴムの粗視化MD計算の手順について、説明する。計算順序の詳細は、成書¹⁰⁾にも述べられているが、おおまかには下記の通りである。

- ①高分子メルトの構造を生成し、緩和計算を行う。
- ②緩和計算後分子間に架橋を導入し、緩和計算を行う。
- ③十分な緩和計算によって得られた初期構造に対して、引張等のシミュレーションを行う。

なお、この手順は、基本的にはフィラー充填系も同じで、①からフィラーを充填させておいた上での緩和が必要となる。

粗視化MDを使う際の注意について説明する。ゴム等をはじめとした高分子材料のMD計算において、最も重要な過程が、MDの初期構造を作成する過程①である。通常初期構造においては、各高分子鎖はその分子鎖が置かれた状況において、既に緩和が済んでいる必要がある。よって、初期構造作成の段階で、十分な緩和シミュレーションを行う必要があり、我々も常に苦勞している点である。MD計算を行う際には、分子鎖が緩和した初期構造が得られていれば、おおかた研究が済んでいるのと同じ状態であるとも言われている。もし緩和が十分でない場合は、数本の分子鎖において、変な応力がかかっていることになり、そのことが引張特性などに影響を及ぼすことが多々あり、我々も良く経験している。一方で、分子鎖の初期構造を緩和させる際に、単一の分子鎖の状態の方が早く緩和することから、低密度で緩和させたあと、密度を上げるように圧縮をかけるようなことをする方が時々おられる。これは高分子メルトの計算の初期構造作成時には、絶対にやってはいけないことの1つである。その理由は、単一の分子鎖で緩和させると各分子鎖は糸まり状になってしまうが、それを圧縮すると、相互に絡んでいない糸まりの凝集体ができてしまい、ほとんど絡み合いのない構造を生成してしまうためである。以上より、初期構造は、適度な密度条件で、分子鎖間が相互陥入できるような十分な時間の緩和計算によって得る必要がある。

この分子が緩和しているかどうかという判定であるが、通常は、エネルギーもしくは応力、および分子鎖の慣性半径、末端間距離等でみることになる。分子鎖の直接の状態は、慣性半径、末端間距離で判定するのが良いと思われる。当然ながら、長い分子鎖の計算時には、それだけ長い時間の緩和が必要となるため、より注意が必要である。例えば、ビーズ500個の分子鎖の緩和の場合、数百万～一千万ステップ程度の計算は通常必要となり、このステップ数だと、計算を経験されておられる方はすぐに理解され

と思うが、かなりの長い時間の緩和計算が必要となる。実際、我々が行っているようなフィラー充填系の緩和計算では、数か月も緩和計算にけることは、常のことである。このような緩和をより迅速に行うための手法も開発されている。詳細はここでは述べないが、ダブルブリッジ法¹¹⁻¹³⁾等が提案されている。なお、ゴムの計算を行う際には、緩和された分子鎖に対して、さらに架橋が必要となり、さらにその後、緩和計算が必要となることも付け加えておく。以上より、粗視化MDの計算には、かなりの手間と時間がかかることをご理解いただけたのではないと思われる。

次に、③で行う引張計算について述べる。ゴムを引っ張る際には、実験などでは、試験片のダンベルの両端を試験機に装着し、引っ張るように行うと思われる。しかしながら、粗視化MDのナノスケールといった小さなサイズで、しかも通常、周期境界条件のもとで用意した構造に対して端をもって引っ張るようなことは、現実的ではない。そのため、実際の引張計算は、シミュレーション箱自体をアフィン変形させ、疑似的にナノスケールにおけるごく一部の領域の引張を実現するように計算を行う。一定の短い時間間隔毎に箱の変形と共にポリマーの各ビーズ位置を瞬間的に動かし、瞬間変形ステップの後から次の瞬間変形ステップの間は、事実上強制的な瞬間アフィン変形後の緩和を行うような計算となっている。もちろん計算の上では、通常のゴムのポアソン比0.5に限らず、極端な例として0.0でも箱のアフィン変形を行うことができる。

当然ながら、この瞬間的なアフィン変形は、細かく時間を刻みながら、小さい変形を繰り返す方が良いと思われる。変形速度を大きくすると、一度に変形する量が大きくなることから、計算があまり良くないこともあるのではないかと推察されるため、もちろんおすすめできない。そこで、変形速度については、

$$(\text{分子鎖の慣性半径}) / (\text{分子鎖の緩和時間})$$

の値より小さな変形速度による変形を行うようにしている。この式は、1本の分子鎖が変形時に緩和できるぐらいの時間で変形しますということを表し、特にゴムの場合、この速度より速くなると、ゴムでないものを引っ張っているようになっている可能性が高いと考えられる。しかしながら、引張速度を小さくすることは、変形させる計算に対して、ステップ数、言い換えれば、計算時間がそれだけ長くなるということになる。例えば、「京」コンピューター等の外部で借りる大型計算機では、ほぼ一つの計算割り当て時間に最大数日などといった制限がある。このため、どうしても変形速度を大きくして計算しなくてはならないシチュエーションが多々ある。この点は、さらに計算機が発達した将来でも常に付きまとう問題であるが、できる限り変形速度は小さくし、ゴムについては、

「ゴム状態」として引っ張ることができるように設定したいと考えている。なお、学会等で発表されている計算結果では、とんでもなく早い引張速度の計算の結果の報告例もこれまで多々あったことも並べて述べておく。計算サイズを小さくすれば、当然変形計算にかかる時間は短くできることから、引っ張り時間に見合った適切なサイズの計算を行うのが、適切な結果を得るには必要なのではないかと考えている。

5. 粗視化MD法の適用範囲と適用事例

図3 (a) に純ゴムの初期構造を示す。この構造を用いて、一軸伸張計算を実施し、応力-歪曲線を描くことにする。なお、この構造は、ビーズ500の分子鎖40本を系に置き、その構造に対して、架橋を215本程度導入して得られた構造である。なお、架橋は図3 (b) に示す通り、2つの分子鎖間で結合を生成させることで、得られている。2章でも記載したが、この粗視化MD計算では、シミュレーションから得られる結果は、シミュレーションの単位（長さは σ 、時間は τ 、エネルギーは $k_B T$ ）となっているが、これらを現実の単位に変換することで、現実系と対応させることができる。ここでは、ポテンシャルはKremer-Grestの基本パラメータを用いていることから、得られた結果に対

Figure 3 Snapshots of CGMD simulation for pure rubber system. Figs. (a), (b), and (c) show the initial structure for CGMD, cross-linked structure, and expanded structure, respectively.

して、単位を変換させて求めることとする。参考文献9)のTable IIIによると、ポリイソプレン (PI) については、 $1\sigma = 0.67\text{nm}$, $1\tau = 1.0 \times 10^{-11}\text{sec}$, $1\text{T} = 307\text{K}$ と対応できることが示されている。これを用いて、単位を換算することができる。

図4には、今回得られた結果をPIに合わせて変換して示した応力-歪曲線を示す。なお、伸張した際の構造は、図3(c)に示す。応力の立ち上がりから緩やかに上昇する領域までのエントロピー弾性の領域(歪3程度まで)と、その後急峻にカーブが立ち上がるエネルギー弾性の領域がある。これらのカーブにおいては、カーブの初期の立ち上がりにおいて理論でフィッティングさせることで、弾性率も求めることが可能である。このエントロピー弾性、エネルギー弾性の各領域は、この粗視化MDのモデルでは、それぞれモデルの特性として表されている。エントロピー弾性は、ビーズが揺らいでいる状態におけるエントロピーとして本来表されている。変形等が加えられた中では、ばねで繋がれたネットワーク状分子に対して、変形という外力のもとでのビーズの運動を考えることになる。伸長時には、もちろん鎖の取りうる配置の数が減少することから、エントロピーが減少するように表される。一方、エネルギー弾性は、現実にはゴムの分子鎖等にかかる力として表れていると思われるが、このモデルでは、結合に使われるばねにかかる力として示されている。よって、このエネルギー弾性が明確に表れる領域では、徐々に伸びた結合も現れてくる

Figure 4 Typical stress-strain curve of extensional simulation of pure rubber system obtained by CGMD simulation.

Figure 5 Snapshots of deformation simulation of nano rubber particles.

ことも示されている。この伸びた結合を可視化することも、当然ながら、粗視化MDの結果を用いて見せることが可能である¹⁴⁾。なお、この粗視化MDの計算では通常、現実では起こり得る結合の切断の効果が入っていない。ポテンシャルや分子の側に特別な設定をすれば、伸張された結合の切断も原理的にはモデル化可能であり、その報告例¹⁵⁾もある。

次に、力学的な解析の一つとして、レオロジーの解析について簡単に述べる。レオロジー解析法として、緩和弾性率を用いた報告などもなされているが、ここでは、古典的に明確にわかる方法として、ゴムを周期的に変形させた際に得られる応力の解析による手法¹⁶⁾を述べる。図5に示すようなナノゴム球を反発的な相互作用の板ではさみながら周期的な変形をかけると、その反動として得られる応力を解析することで、貯蔵弾性率 G' 、損失弾性率 G'' を求めることができる。

このようなナノゴム球の計算では、球形を保つために凝集力(表面張力)が必要となる。そのため、通常ビーズ間ポテンシャルとして用いている Lennard-Jones ポテンシャル

$$U^{LJ}(r) = \begin{cases} 4\epsilon \left[\left(\frac{\sigma}{r} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r} \right)^6 \right] - \left[\left(\frac{\sigma}{r_{cut}} \right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{cut}} \right)^6 \right], & (r \leq r_{cut}) \\ 0, & (r > r_{cut}) \end{cases}$$

において、引力部を含めたポテンシャルを用いて計算する。なお、 r はビーズ間の距離、 r_{cut} はポテンシャルを計算する最大距離、 ϵ はポテンシャル強さの係数、 σ はポテンシャルに含まれる単位の長さを表す。引力部を含まない通常の Kremer-Grest モデルを用いて高分子メルトの計算を行う場合、ガラス転移を表すことができていない。その理由は、斥力のみで表すと、低温時でも一定距離を保つようにビーズを凝集することができないためである。そのため、ガラス転移温度を計算したい場合には、引力を含めたポテンシャルを用いて計算する必要がある。この引力を含めるかどうかについては、ガラス転移温度のみにとどまらない。このガラス転移と $\tan\delta$ のピークの間には直接関係が見込まれる。ビーズ間の相互作用によって、ビーズ間を一定距離に保つような構造に落ち着ける状態が必要であり、その安定構造を決めるのがポテンシャルであるためである。

図6には図5に示す構造を振動変形させて測定した G' 、 G'' 、 $\tan\delta$ の結果を示す。 $\tan\delta$ のピークが1つある状態として計算で求められており、また G' は周波数と共に上昇、 G'' はピークが存在する結果となっている。 G' 、 G'' の値が一致する位置の話とを別にとすると、大まかには Maxwell モデルで表されるような典型的なカーブとなっていると考えられる。この様に、高分子鎖に引力を加えて計算すると、ここに示すようなレオロジー解析まで持ち込むことが、粗視化MDを用いて可能となる。

最後に、近年様々な研究が報告されているフィラー充填

Figure 6 Rheological properties of nano rubber particles obtained by CGMD simulation.

系について、少し述べる。フィラー系に適用する際には、フィラーモデルをこれまで述べてきた純ゴムに添加し、計算する必要がある。比較的構造等が複雑になるが、純ゴム系と同じ粗視化MD計算が実行可能である。具体的には、伸張変形、破壊、周期的変形、などが挙げられる。大規模系のフィラー充填系材料については、京コンピュータを用いた実例として本特集号の別の総説で説明がなされるので、ここではあえて小規模のフィラー充填系の計算を用いてこれらのシミュレーションを説明する。具体的には、4個のフィラーの計算を用いて、伸張変形、破壊の結果について説明する。

このような計算は、技術的には短い一定時間間隔毎に箱をアフィン変形させ、その時間間隔の間、系を緩和させるという作業を行うことになる。このアフィン変形させる際にポアソン比を設定する必要があるが、このポアソン比を体積が変わらない0.5に設定すると、通常のゴムの変形の計算を行うことができる。一方、このポアソン比を0.5未満にして伸張変形させると、伸張するにつれて全系の体積が増加することになり、結果としてキャビティが内部に生成する。我々の2011年の報告¹⁷⁾では、ポアソン比0.4に設定すると、キャビティが生成することを確認している。ここでは、明確にキャビティを生成させる例として、ポアソン比を0.0に設定し、伸張のシミュレーションを実行した。

図7には、ポアソン比0.5による伸張計算の結果を、図8には、ポアソン比0.0による伸張計算の結果を示す。なお、この計算では、ポリマー-ポリマー間、およびフィラー-ポリマー間で引力が働く設定にしている。結果として、ポアソン比0.5では、伸張方向に対して垂直な圧縮がかかり、フィラーが伸張方向に並ぶような構造になっている。一方、ポアソン比0.0の場合には、伸張とともにキャビティが生成し、そのキャビティおよびその周りの分子鎖が引き伸ばされる様子が示された。

一方で、この計算ではいくつか問題がある。一つ目は、境界条件とフィラーサイズの問題である。ポアソン比0.5の場合、伸張し続けると伸張方向に対して垂直な方向の箱

Figure 7 Snapshots of extensional CGMD simulation of filler filled rubber system with Poisson's ratio of 0.5. Figs. (a), (b), and (c) show the structures at strains of 0.0, 1.0, and 4.2, respectively.

Figure 8 Snapshots of extensional CGMD simulation of filler filled rubber system with Poisson's ratio of 0.0. Figs. (a), (b), and (c) show the structures at strains of 0.0, 1.0, and 4.2, respectively.

のサイズが、結果としてフィラー径に近づいてしまう。そのため、フィラーが境界を通じて自らのフィラーに対して圧縮するということが起こってしまう。これは、明らかに計算上の人工的な要因による問題である。二つ目は、フィラーの数が少なすぎることによって、現実より明らかにフィラーの粗密ができてしまい、フィラーの多いところと全くないところに完全に分離してしまう。現実でもある程度分離すると思われるが、境界で圧縮することによって無理やり分離させていることもあるため、おそらく極端な構造を生成してしまっていると思われる。このように、結果に

については、得られた計算結果について常に精査する必要がある。シミュレーションでは、とりあえず計算ができてしまい、結果が出てしまう。しかしながら、得られた結果がシミュレーションの課題によって現実を再現しないこともあり、常に正しいとはかぎらない。この点をよく留意してシミュレーション結果を理解する必要がある。

6. 結 わ り に

本稿では、粗視化MD法の基礎について述べた。純ゴム系、およびフィラー充填ゴム系に対して、行える計算などについて紹介した。粗視化MDを用いれば、力学的な物性、例えばSSカーブ、レオロジー解析などを行うことができ、適用範囲も広いことが、本稿でも示すことができたのではないと思われる。しかしながら、粗視化MDに限ったことではないが、ユーザーは適用範囲内で正しく使うように注意する必要がある。小規模フィラー充填系の計算例で示したが、問題が生じたにも関わらず、結果が出ているように見えることもある。このようなこともしばしばあることから、粗視化MDを使う方は、この手法について深く理解いただき、是非ともその結果を評価する目も同時に養っていただきたい。おそらく、これからも粗視化MDをゴム材料に適用した研究例が多く報告されるようになると思われる。今後、さらに発展的に粗視化MDが使われることを期待したい。

References

- 1) Ueda, A.: "Computer Simulation Makuro-na Keinonakano Gen-

- siundou", Asakura Syoten, Tokyo (1990)
- 2) Rapaport, D. C.: "The Art of Molecular Dynamics Simulation", Cambridge University Press, Cambridge (1995)
- 3) Frenkel, D.; Smit, B.: "Understanding Molecular Simulation, 2nd Edition", Academic Press, San Diego (2001)
- 4) Binder, K.: "Monte Carlo and Molecular Dynamics Simulations in Polymer Sciences", Oxford University Press, Oxford (1995)
- 5) Theodorou, D. N.: *Chem. Eng. Sci.*, **62**, 5697 (2007)
- 6) Barrat, J.-L.; Baschnagel, J.; Lyulin, A.: *Soft Matter*, **6**, 3430 (2010)
- 7) Tominaga, T.: HPCI User report, hp130050, (2014)
- 8) Doi, M.: <http://octa.jp>, (2002)
- 9) Kremer K.; Grest G. S.; *J. Chem. Phys.*, **92**, 5057 (1990)
- 10) Japan Association of Chemical Innovation Ed.: "Kobunshi Zairyou Shimurashion -OCTA Katsuyou Jireisyu", Chemical Daily Co., Ltd, Tokyo (2014)
- 11) Karayiannis, N. C.; Mavrantzas, V. G.; Theodorou, D. N.: *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 105503 (2002)
- 12) Banaszak, B. J.; de Pablo, J. J.: *J. Chem. Phys.*, **119**, 2456 (2003)
- 13) Auhl, R.; Everaers, R.; Grest, G. S.; Kremer, K.; Plimpton, S. J.: *J. Chem. Phys.*, **119**, 12718 (2003)
- 14) Hayakawa T.; Hashimoto K.; Morita H.; Doi M.; *Proceeding of International Rubber Conference 2005*, 28-G11-11 (2005)
- 15) Sides, S. W.; Grest, G. S.; Stevens, M. J.: *Macromolecules*, **35**, 566 (2002)
- 16) Morita, H.; Doi, M.: *Kautschuk, Gummi, Kunststoffe*, **65**, 55 (2012)
- 17) Hagita, K.; Takano, H.; Doi, M.; Morita, H.: *Polymer Prepr. Jpn.*, **60**, 3602 (2011)

日本語表記参考文献

- 1) 上田 顕：コンピュータシミュレーション－マクロな系の中の原子運動，朝倉書店，東京（1990）
- 7) 富永哲雄：「京」産業利用（実証利用）利用報告書，hp130050（2015）
- 10) 新化学技術推進協会編：高分子材料シミュレーション－OCTA活用事例集－，化学工業日報社，東京（2014）

*

*

*

*

*