

京都大学	博士 (工学)	氏名	徐 焱
論文題目	Multi-scale simulations for polymer melt spinning processes. (ポリマー溶融紡糸プロセスのマルチスケールシミュレーション)		
<p>所望の特性を持つ高分子製品を、構成する高分子の分子構造に基づいて設計し製造することは、化学工学のみならず、高分子科学や材料工学における大きな目標の一つである。中でも繊維製品は、普段使う衣料品から医療機器のような特殊素材に至るまで、日常生活の中で幅広く使用され必要不可欠な存在となっており、今後、さらに高性能な繊維材料やそれを用いた製品を生産することが期待されている。その実現のためには、繊維材料の生産プロセスを理解し、分子レベルの構造までも制御することが求められている。このような背景から、工業的には精密なプロセス制御が求められ、それを支えるためにシミュレーションの観点からは、紡糸のマクロレベルの流動挙動とミクロレベルの高分子状態という2つの異なるスケールでのダイナミクスを連携して扱う Multi-Scale Simulation (MSS) 法の確立が望まれている。本論文は、定常状態での高分子溶融紡糸プロセスを扱う新奇 MSS 法の開発、そしてその方法を用いてマクロな紡糸プロセスと高分子のミクロな状態との関係の研究を行っている。</p> <p>第1章は序論であり、高分子溶融紡糸プロセスに関する計算流体力学的なアプローチによる研究と実験による紡糸プロセスの研究の歴史を概観し、また、本研究で用いるマルチスケールシミュレーション法の概念、ミクロレベルからマクロレベルに至るまでの各スケールにおける理論、及びシミュレーション法についてまとめている。さらに、近年注目されている機械学習を用いた流動シミュレーション法について現状をまとめ、特に本研究で用いるガウス回帰機械学習法について説明を行っている。そして、研究背景と研究動向を踏まえ、本論文の位置付けとその目的について説明している。</p> <p>第2章は、マクロレベルの情報のみならず、高分子の微視的状态の情報を得ることが可能な高分子溶融体紡糸プロセス MSS 法の開発と、そのシミュレーションの結果について述べている。従来研究されてきた溶融紡糸プロセスの MSS では、高分子の絡み合いに由来する応力を紡糸プロセスシミュレーションに如何に反映させるかに重きが置かれていたため、高分子の絡み合い点間の空間スケールより短い空間スケールの高分子の状態や高分子間の空間的な相関を正確に予測することが出来ないという問題があった。そのため、より詳細な微視的状态の情報を得ることが可能な MSS 法へ発展させるために、高分子モデルを精緻なモデルに置き換え、紡糸プロセスの定常状態を予測する新しい MSS 法の開発に取り組んだ。この新しい MSS 法を実現するためには、3つの問題: (i) 「計算量の問題」、(ii) 「シミュレーションボックスの大変形問題」、(iii) 「ひずみ速度が時間依存する伸長流動を印加する方法の問題」を解決する必要がある、これらの問題を独自のアイデアで解決した。この新奇 MSS 法により、紡糸線上での高分子の状態とマクロな流動との関係を明らかにした。</p> <p>第3章は、機械学習を用いた溶融紡糸 MSS 法の効率化の研究に取り組んでいる。第2章で開発した新奇 MSS 法は、計算量の問題を解決し成功を収めたが、計算負荷は未だ大きく、様々なパラメータ条件下での計算を行うことが困難であった。そこで、高分子の</p>			

微視的狀態によって決まる応力応答を機械学習(ML)法の1つであるガウス過程回帰法により推定し、それをMSS法に用いたML-MSS法を開発することで更なる計算量の低減を行った。この方法では微視的モデル高分子系の平衡状態に対して一定の伸長変形速度の流動を印可し、発現する応力を時間の関数として学習用データとする。このようなデータ取得を様々な伸長速度に対して行い、学習用データとして蓄え、そのデータを用いた応力の方程式(構成方程式)を機械学習する。そして、各ラグランジェ粒子の位置で発現する応力を機械学習から推定することで、高分子モデルに基づく紡糸シミュレーションを可能とした。この方法により、第2章で開発した方法では計算が困難であった様々な計算条件下での系の定常状態の振る舞いの予測を可能にし、得られた定常状態の速度分布を、第2章で開発した熔融紡糸プロセスMSS法の速度分布に用いることで、ミクロレベルの高分子状態の情報を得ることも可能にした。この方法を用いて、特に異なるドロー比、幅広いレイノルズ数領域にわたって計算を行い、系の振る舞いと高分子のミクロな状態との関係を明らかにした。

第4章は、第3章で開発したML-MSS法を、末端会合機構を有する高分子熔融体の紡糸に応用した研究である。系を構成する高分子は、両末端が変性しており、低分子の添加物質を介してそれらの末端が会合する。紡糸プロセスでは伸長流動が支配的であり、高分子鎖は応力の緩和時間の逆数よりも速い伸長流動によって流動方向に配向、そして伸長される。変形に対する緩和時間を長くする機構を末端会合の方法で導入すれば遅い変形速度においても高分子の配向と伸長を促進させることができるため、紡糸プロセスによって高強度な繊維の実現につながると考えられる。このような会合機構を取り入れた分子モデルを用い、第3章で開発したML-MSS法を用いて、熔融紡糸プロセスの解析を行った。添加物が有る場合と無い場合に対して、紡糸の速度分布、応力分布、分子状態の違いを調べた。これらの解析により、高分子末端会合が高分子の伸長配向の促進に有効に働くことを明らかにし、高強度繊維を開発するための1つの指針を示した。また、この方法によって、複雑な内部自由度をもつ高分子系の熔融紡糸プロセスに対しても、低計算負荷でミクロとマクロの両面から解析が可能であることを示した。

第5章は、総論であり、第2章から第4章で得られた研究成果を総括すると共に、今後の展望について述べている。

本論文は、高分子熔融体紡糸プロセスでのマクロレベルの紡糸の流動現象とマイクロレベルの高分子鎖ダイナミクスとを同時に扱うマルチスケールシミュレーション法の開発とその応用についての研究をまとめたものである。将来、流動誘起結晶化のような分子レベルの状態の制御への応用を見据え、より詳細な分子モデルを考慮することが可能な新奇な Multi-Scale Simulation (MSS) 法の開発、及びその計算量低減についての研究、そして、構築した方法の応用に関する研究を行っている。得られた主要な成果は以下の通りである。

- (1) 高分子の詳細な微視的状态の情報を得ることが可能な MSS 法へ発展させるために、従来の MSS 法で用いられていた絡み合いの記述に重きを置いた粗視化高分子モデル (Slip-link モデル) を、精緻な高分子モデルに置き換え、紡糸プロセスの定常状態を予測する新奇 MSS 法の開発に取り組んだ。その実現のために、3つの問題: (i) 「計算量の問題」、(ii) 「シミュレーションボックスの大変形問題」、(iii) 「ひずみ速度が時間依存する伸長流動を印加する方法の問題」に取り組み独自のアイデアで解決した。そして、この新奇 MSS 法により、紡糸線に沿った各位置での高分子の状態とマクロな流動との関係を明らかにした。
- (2) 開発した新奇 MSS 法は、計算量の問題を解決し成功を収めたが、計算負荷は未だ大きく、様々なパラメータ条件下での計算を行うことが困難であった。そこで、高分子の微視的状态によって決まる応力応答を機械学習 (ML) 法により推定し、それを MSS 法に用いた ML-MSS 法を開発することで更なる計算量の低減に成功した。この成功によって計算が困難であった様々な計算条件下での系の振る舞いを予測することを可能にしたことは、工学的に意義深いものである。
- (3) 添加物を介して末端が会合する高分子を用いた熔融紡糸プロセスの解析に、(2) で開発した ML-MSS 法を応用し、末端会合の効果によって紡糸プロセスにおける高分子鎖の配向と伸長が促進されることを明らかにし、高強度繊維を開発するための1つの指針を示した。また、この方法によって、複雑な内部自由度をもつ高分子系の熔融紡糸プロセスに対しても、低計算負荷でマイクロとマクロの両面から解析が可能であることを示した。

上述の研究成果は、マクロな流動プロセスと高分子のマイクロな状態との関係を解析することができる新奇の Multi-Scale Simulation 法の提案を含んでいると共に、高分子熔融体の紡糸プロセスの計算に、機械学習の方法を組み合わせることで、計算の高速化を実現し、MSS をより発展させた点で、学術上、實際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士 (工学) の学位論文として価値あるものと認める。また、令和5年12月20日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。