

分子動力学法によるポリエチレングリコールの高圧下における構造形成と相転移挙動の解析

京都大学 工学研究科 機械理工学専攻 機械機能要素工学研究室 平山朋子

研究成果概要

本研究では、京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステムを利用し、短鎖ポリエチレングリコール(PEG300)の静水圧下における高圧結晶化挙動の解明を目的とした分子動力学シミュレーションを行った。高分子材料の高圧下における結晶化やガラス転移は、材料の物性を制御する上で重要な物理現象である。しかし、ナノ秒スケールでの急激な加圧プロセスにおけるミクロな分子鎖の凝集構造や、液体から固体への相転移メカニズムには未解明な点が多い。本研究では、システムに導入されている汎用分子動力学計算コード LAMMPS を用い、PEG300 融体の加圧シミュレーションを実施した。

計算には、同システムにより提供されている LAMMPS を使用した。力場パラメータには、有機分子の挙動再現に実績のある OPLS-AA および CVFF 力場を適用し、静電相互作用の計算には PPPM 法を用いた。シミュレーションの手順は以下の通りである。

1. 緩和過程: 初期構造に対し、300 K、1 atm の条件下で十分な緩和を行い、平衡状態の液体構造(密度約 1.12 g/cm^3)を得た。
2. 加圧過程: 300 K の等温条件下において、NPT アンサンブルを用い、圧力を大気圧から 5 GPa (50,000 atm) まで段階的に昇圧させた。
3. データ収集: 5 GPa の定圧条件下において構造緩和を行い、密度変化および動径分布関数(RDF)の算出を行った。

5 GPa の高圧条件下における PEG300 の密度経時変化を図 1 に示す。シミュレーションの結果、密度は初期の液体状態から急激に上昇し、約 2 ns の緩和過程を経て 1.485 g/cm^3 付近で推移した。グラフに見られるように、密度は微増を示しているものの、結晶化に伴う劇的な密度の不連続ジャンプ(一次相転移の徴候)は観測されなかった。

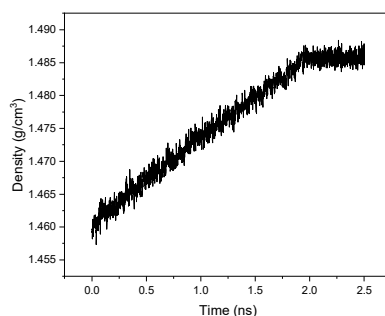


図 1 5 GPa、300 K における PEG300 の密度経時変化。密度は高い値で安定しているが、結晶化特有のステップ状の変化は見られない。