

九州大学情報基盤研究開発センター  
民間利用成果報告書

提出日： 2021年 4月 12日

利用課題名	大規模計算方法の開発と、セラミック材料への応用展開					
課題責任者	企業名	京セラ株式会社				
	フリガナ氏名	ナカタ ヒロヤ 中田 浩弥	部署名	基盤技術研究部	職位	研究員
	連絡先	住所：〒619-0237 京都府相楽郡精華町光台3丁目5-3 E-mail：hiroya.nakata.gt@kyocera.jp		TEL 0774-95-2121 FAX		
利用期間	2020年 4月 1日 ～ 2021年 3月 31日					
利用成果公開延期希望の有無	<input checked="" type="checkbox"/> 即時公開 ・ <input type="checkbox"/> 公開延期 (成果公開予定： 年 月)					

※利用成果報告書は原則公開ですが、課題終了後最大2年間公開を延期することが可能です。

- 本様式の変更はできません。
- 補足資料を付加することは可能です。

受付番号	4	受付日 2021年5月14日 年 月 日	受付印
------	---	-------------------------	-----

## ■利用計画全体の概略（申込書と同じ内容を記述してください）

### 1) 利用目的

セラミックスの焼成前工程は、セラミックス原料粉末に、バインダー（ポリマー）、溶媒、塩(NaCl, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)、そして分散剤を混ぜ合わせ成形する。焼成前工程では、各種溶媒および塩濃度等に依存して凝集構造や粘性が変わる。凝集構造の変化は、最終製品の緻密性と均一性に、粘性は材料成型にそれぞれ重要な影響を持つキーパラメータである。実験による凝集構造の予想は困難であり、数値計算に基づくメカニズムの理解が重要である。

本研究では、粗視化パラメータを全原子分子動力学から算出し、粗視化分子動力学計算を実行することで、マクロスケールの粘性および凝集構造を予測する。原子スケールのシミュレーションからのボトムアップ方式でポリマーのマクロな物性を予測し、材料計算による高機能材料設計方法の確立とその実証利用を本研究課題の目的とする。

また開発した計算で得られた分散構造を実験と比較するために赤外分光測定結果と計算結果の比較も今後実施する予定である。そのためには、高分子や生体分子などの大規模系について分光スペクトルの解析が実施可能な計算方法が必要である。我々は分子分割軌道法(FMO法)を開発して、プログラムを公開している。プログラムの精度検証のためにも計算機を利用する。

### 2) 利用意義

我々はミクロスケールのポリマーの凝集挙動を、マクロスケールの粘弾性へと拡張し、実際利用されるバインダーの材料設計および、製造プロセスの最適化に役立てる方法を確立する。こうした成功事例を積み重ねることは、企業でのスパコンの本格利用を推進していくことに繋がる。また新しい計算方法の確立という学術的な価値も高く、利用意義がある研究である。

### 3) 必要性

本研究では複数のバインダーと金属粒子が混在した大きいスケールの分子動力学を実施するため、著しい計算コストがかかる。また分子動力学計算は並列化可能で、スパコンを利用することで、従来2~3ヶ月かかる計算が1週間程度に短縮可能である。また我々が開発しているFMO法は並列化によって計算時間を大幅に短縮できるため、スパコンを用いることで真価を発揮する計算方法である。並列化効率の検証のためには最低限40ノード程度まで並列化効率を検証しておくことが必要である。ソフト開発の進捗を加速させるためにはスパコンを用いて、計算実行と結果の検証のサイクルを短縮していくことが重要でスパコンを用いた研究開発が必須である。

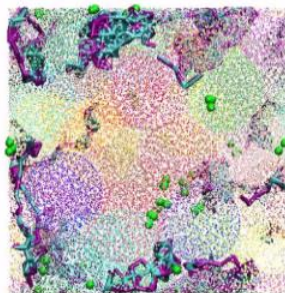
## ■成果の概要

### 1) 本課題で得られた具体的な成果

#### (a) コンポジット材料の粗視化計算

誘電体材料であるBaTiO<sub>3</sub>のスラリーについて、粗視化MD計算を実施するために力場パラメータを作成した。BaTiO<sub>3</sub>のスラリーは、ブチラール（ブチル基と水酸基）、エタノール、トルエン、分散剤（リン酸基、アルキル基）、そしてBTO粒子の計7種ビーズがあるため、必要な力場パラメータ数は28種類ある。全ての力場パラメータを作成し、BaTiO<sub>3</sub>スラリーについてコンポジット材料の計算を実施可能になった。小規模で実施したテスト計算結果を図2に示す。

(a)



(b)

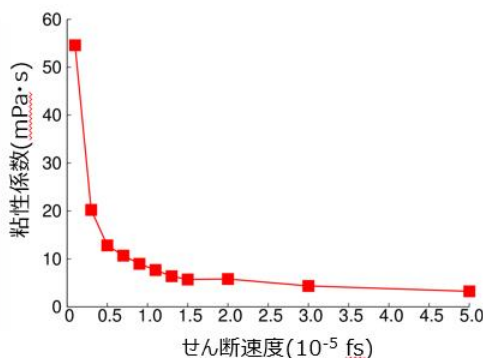


図1 (a) 粗視化MDの計算モデル（色は溶媒や分散剤など異なる分子種を示す）  
(b) 粘性のせん断速度依存性の計算

図2-(a)で示したコンポジット材料モデルにおいて、せん断速度の増加ともなう粘性係数が低減する一般的なスラリーの性質を再現することが可能になった。今後は粒径やバインダー分子量が大きい大規模モデルを作成して、スラリー中の分散構造について解析し、実験結果との整合性を検証していく。

(b) ポリマーの凝集計算

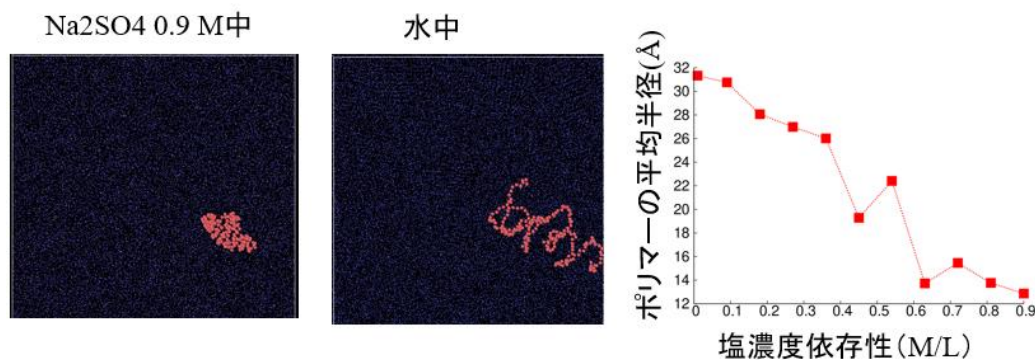


図2) ポリマーの塩濃度に依存した凝集構造の予測

溶媒種類が異なる場合のポリマー凝集性について、我々は自由エネルギーサンプリングを用いたアプローチ[1]や粗視化モデルによって凝集構造を予測する研究をこれまで実施している。(a)と同様にポリマーの粗視化パラメータを構築後、溶媒濃度に依存したポリエチレングリコール1本鎖の凝集構造を予測した。Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>の塩添加によりポリマーが凝集する実験結果を再現することができて、本計算方法が今回の目的に適用可能であることが確かめられた。今後は複数種類のポリマーが混在するより複雑なモデルについて、多数のポリマー鎖がミセルなどの会合体を作る大規模モデルの解析を進める。

(c) 分子分割法(FMO)と分子動力学を組み合わせた基準振動解析

我々は溶液中の赤外吸収スペクトルを解析するために分子分割軌道法(FMO)を用いた大規模基準振動解析方法を開発している[1]。今年度は、大規模溶液系で分子分割軌道法を利用するためにFMO法と古典力場(MM)を組み合わせたFMO/MM(図1)を開発し、計算精度の評価を実施した[2]。

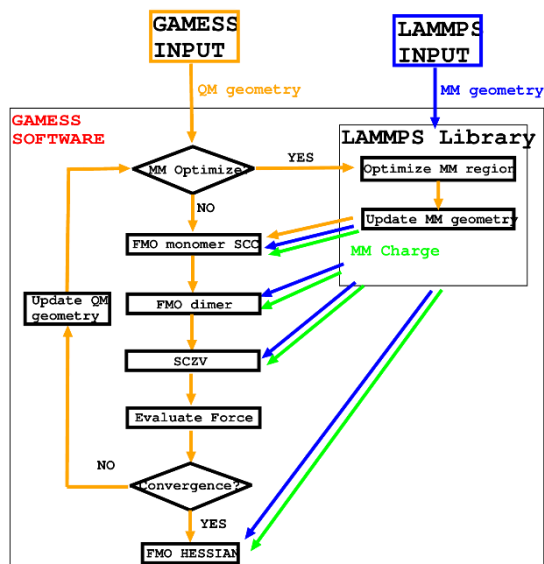


図3) FMO/MMを用いた基準振動解析方法の模式図

図2は一連のFMO計算の手順を示している。FMOはGAMESSを利用しているが、古典力場のパラメータや入力を多様なポリマー鎖やイオン液体で作成することは難しいので古典分子動力学用ソルバーのLammpsと組み合わせることで、大規模モデルの基準振動解析を効率よく行う工夫をしている。本研究ではテストケースとして水中の112yタンパク質の赤外吸収スペクトルを計算し、実験と比較することで計算精度を確かめた。

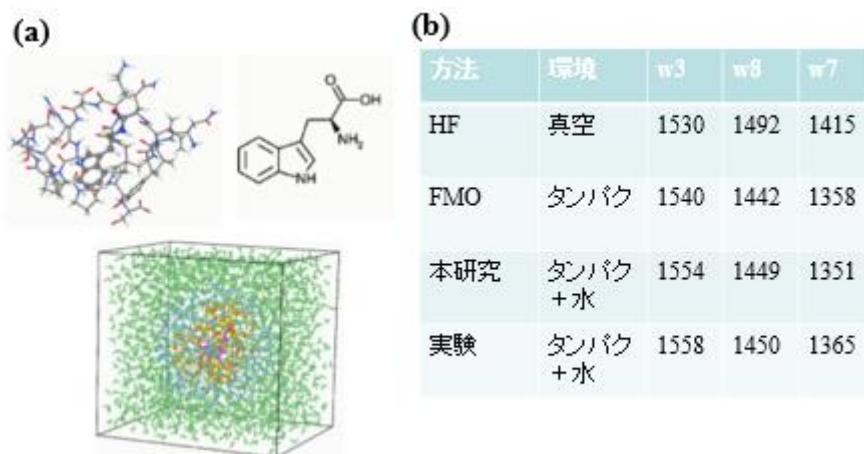


図4) FMO/MM のテスト計算用のモデル

- (a) 112y タンパク質 (上段左) と今回解析したトリプトファン分子構造 (上段右)  
 下段: 複数の計算レベルに分けた模式図 (緑: MM、他: QM)  
 (b) 溶媒効果による振動計算の変化と実験との比較。

本研究の特徴は、QM 計算を複数の領域に分けて計算方法を指定できることである。そのため、計算精度を損なわず効率的に赤外吸収や自由エネルギーなどの物性値を求めることが可能である。図 4-(b) は 112y 中のトリプトファンについて実験値と計算値の比較を示す。図 2-(b) に示したとおり、本研究を利用することで周囲の溶媒が振動スペクトルに与える影響を段階的に評価することが可能になった。

[1] Simulations of infrared and Raman spectra in solution using the fragment molecular orbital method, Nakata, Hiroya and Fedorov, Dmitri G, Physical Chemistry Chemical Physics, 21, 25, 13641—13652, 2019.

[2] Analytic first and second derivatives of the energy in the fragment molecular orbital method combined with molecular mechanics, Nakata, Hiroya and Fedorov, Dmitri G, International Journal of Quantum Chemistry, 120, 24, e26414, 2020.

## 2) 社会・経済への波及効果の見通し

粗視化分子動力学や、FMO/MM をスパコンで利用することで従来よりも高速・高精度で様々な物性値を予測することが可能になった。開発した方法を利用することで材料開発の計算コストを下げ、よりタイムリーに材料計算を実施することが可能になると考えられる。

■利用アンケートにご協力ください

1) 利用に関して有益であった事項

大規模計算機を利用することで社内ではできない大きいモデルサイズの計算を高速で実行することができた。またプログラムコンパイルのサポートなどが充実しており新しい計算ソフトの活用などをスムーズに実施することが可能であった。

2) 利用に関して生じた問題点など

3) ユーザーサポートとして必要と考えられることについて

4) 施設利用に係る感想・改善を希望することについて

5) 本事業で得られた成果や公表する予定の成果があれば以降に記述をお願いします

一部は論文として既に公開済み（参考文献 [1]および[2]）

粗視化MDについては今期より大規模なスラリーの粘性を計算して、結果を論文として報告予定。