

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： 2022年 4月 20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		TE L0774-95-2121 FAX 0774-95-2121		
利用期間	2021年 4月 1日 ～ 2022年 3月 30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	5	受付日 2022年5月9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（募集要項にある利用条件及び選定基準を満たすことを記述してください。）

セラミックス材料やデバイス開発において、有機無機コンポジット材料の凝集散構造の理解と制御が重要な課題である。例えばセラミックスの焼成前工程では無機材料粉末に、ポリマー、溶媒、塩(NaCl, Na<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>)、などを混ぜ合わせ成形する。無機材料粉末の凝集を抑制し均一な最終製品を製造することが重要である。また、デバイス開発では、水等によるデバイスの劣化を防ぐために有機材料を封止材として利用する。セラミックスの焼成前工程と同様に、ポリマーの凝集を抑制し緻密な有機薄膜を生成することが重要である。実験のみによるこうした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。

具体的に本研究では“有機無機コンポジット材料の粘性予測”に取り組む。シミュレーションはモデルサイズが数10nm ~ 100nmなので、全原子分子動力学法の活用が難しい。そこで本研究では複数の原子を分子単位にまとめて取り扱う粗視化モデルを用いて解析を行う。

有機無機コンポジット材料へ粗視化モデルを応用する第一ステップとして、誘電体や圧電体のスラリーの粘性や分散構造を予測し、NMRや小角X線散乱を用いた実験と比較する事で計算結果の妥当性を検証する。多様なコンポジット材料へ適用できるように、経験的なパラメータを用いず第一原理からパラメータを生成する手順を標準化し、本技術を誰でも利用できるようにすることを目指す。

### 1) 利用意義

最善方法が確立されておらず、また計算コストも高いため企業で活用するにはハードルが高い技術である。スパコンを利用し成功事例を作ること、モデリング技術を標準化し汎用的な技術を確立することは、今後のコンポジット材料の数値シミュレーションの発展につながるためとても高い価値がある。

### 2) 必要性

本研究では粒子数が数100~1000万程度の大規模粗視化モデルの解析を実施するため、著しい計算コストがかかる。小規模クラスターで数百万粒子規模の分子動力学を実施することは難しい。また粗視化分子動力学を実行するための力場パラメータは全原子分子動力学計算を用いて作成するが社内の小規模計算クラスターを利用した単ノード計算では2~3か月の準備期間がかかってしまう。スパコンで並列化計算することでパラメータ準備期間を短縮し、粗視化分子動力学計算実行と結果の検証のサイクルを加速することが実用化のためには重要であり、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

本研究では第一原理と分子動力学を用いて粗視化分子動力学(粗視化MD)に利用するパラメータを生成した。作成したパラメータを用いて粗視化MDを実行し、スラリーの粘性を予測した。図1に詳細を示す。

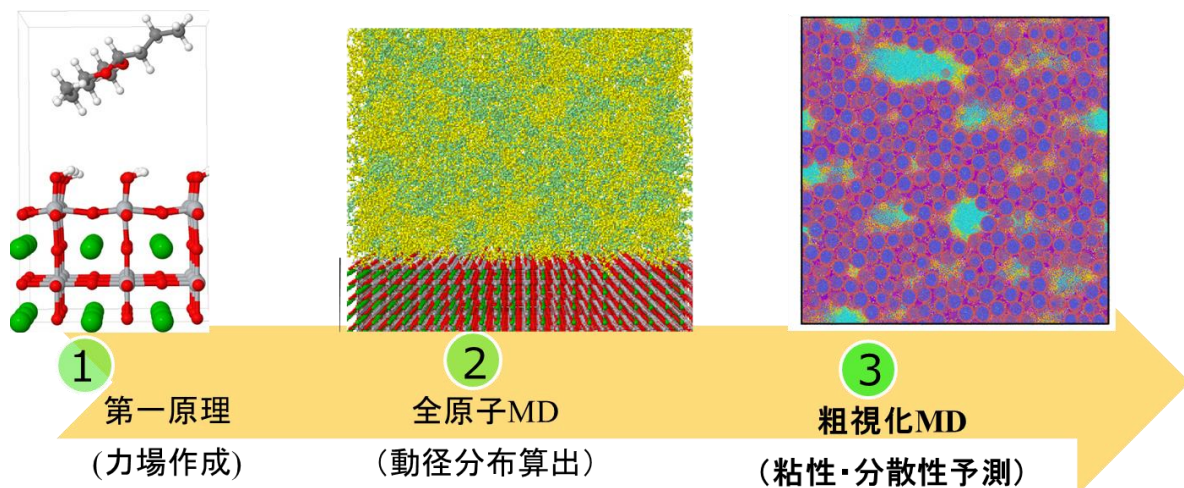


図1) 本研究で利用したパラメータ作成手順

図1に示すように、2段階のスケールアップを経て粗視化MD計算を実行した。まず、第一原理計算で吸着エネルギーを計算し、吸着エネルギーを再現するように全原子分子動力学(全原子MD)のパラメータを作成する。次に全原子MD計算でBTOと溶剤との界面モデルの動径分布を解析する。全原子MDで得られた動径分布を再現するように粗視化MDのパラメータ

を作成し、スラリーの粘性や分散性の予測に利用した。

計算方法の妥当性を検証するために、BaTiO<sub>3</sub>(BTO)、バインダー、分散剤を含むBTOスラリーの解析を実施した。実験の傾向と比較するために、濃度が異なる3種類のモデルを作成し、粘弾性の解析を実施した。計算結果を図2に示す。

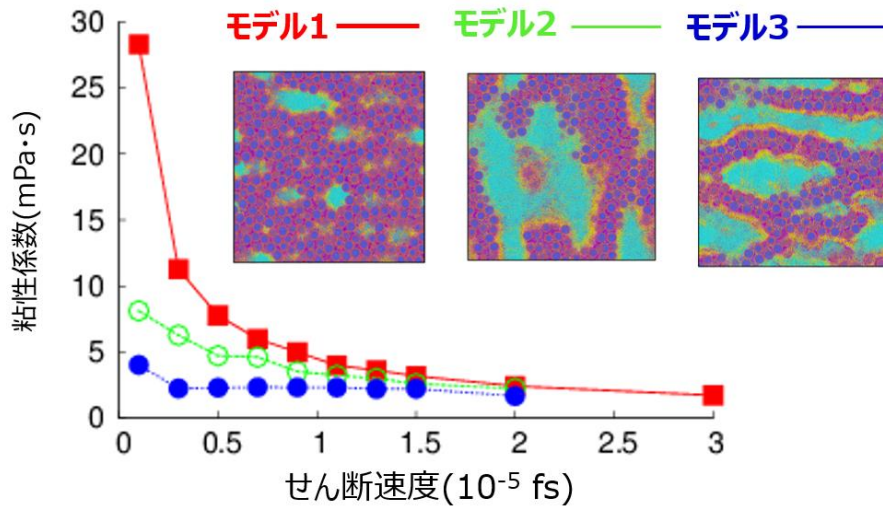


図2) BTO濃度が異なる3種類の粗視化MD計算

図2に示すように、BTO濃度が増加し分散剤濃度が低下するほどスラリーの粘性が増加した。上記結果は実験で観測されたスラリー粘性変化の挙動と定性的に一致している。また粘性変化の原因を調べるために、BTO粒子間および、BTOと分散剤間の動径分布関数を解析した(図3)。

**BTO粒子間の動径分布** ———

**BTOと分散剤の動径分布** ———

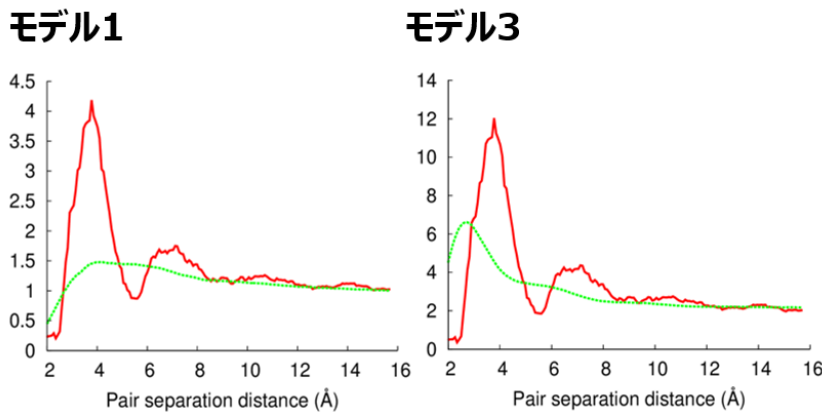


図3) BTO粒子と分散剤の動径分布関数の解析

分散剤が少ないモデル1では粒子間に分散剤が入らず(分散剤が不足しているため)BTO粒子同士の相互作用が強くなり粘度が高くなる。一方で、分散剤濃度が高いモデル3では分散剤がBTO粒子間に入ることによって粒子同士が滑りやすくなり粘性が低減している。上記のようにスラリーの粘性変化と分散構造の関係をシミュレーションによって可視化することが可能となった。

2) 社会・経済への波及効果の見通し

実験による分析手法が限られているスラリーについて分散構造と粘性変化の関係を解析する計算手法を提案した。実験などの事前準備なしに計算を実行可能なため簡便に利用することが可能だと考えられる。膨大な試行錯誤が必要なスラリー材料の開発をするうえで、シミュレーションによって知見が得られれば、製品開発の加速が可能となり、競争力の高い製品開発が可能となる。

3) その他

本研究の詳細は学术论文として公開されているので、以下の URL を参考にしてください。  
( <https://ceramics.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1111/jace.18274> )

Journal of American Ceramic Society, Volume105, Issue4 April 2022 Pages 2791–2803

(無料公開版: <https://arxiv.org/pdf/2111.08876.pdf>)

■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

社内の計算機と比較して、著しい計算速度の向上ができるため、課題を効率よく進めることが可能でした。

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

**論文:** Journal of American Ceramic Society, Volume105, Issue4 April 2022 Pages 2791–2803

学会発表: 分子シミュレーション学会