

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成24年 5月11日現在

機関番号：15301

研究種目：特定領域研究

研究期間：2007～2011

課題番号：19053007

研究課題名（和文） マルチスケール手法によるナノ機能元素材料解析

研究課題名（英文） Nanodopant Analysis via Multiscale Numerical Method

研究代表者

鶴田 健二 (TSURUTA KENJI)

岡山大学・大学院自然科学研究科・教授

研究者番号：00304329

研究成果の概要（和文）：本特定領域研究を通して、複数の空間スケールをつなぐ新しいシミュレーション手法・アルゴリズムを開発・高度化し、機能元素材料科学の学理構築に資する新しい計算科学手法・ツール開発を大きく進展させた。

また、ナノ計測班ならびにプロセス班との連携において、本領域における共通試料であるアルミナの転位・粒界構造の微視的構造と電子状態、元素偏析の安定性と局所電子状態の定量的解明に上記新規手法を適用し、その適用性を実証した。

研究成果の概要（英文）：Novel methodologies/algorithms, which connect two or more physical scales, have been developed for the materials simulation as a tool to extract fundamental principles in materials science of functional elements.

Also, through collaboration with a nanoscale measurement group and a process group in the project, the above-mentioned new techniques have been applied to quantitative elucidation of atomic/electronic structures of a dislocation and electronic states and stability of a segregated atom in alumina ceramic, which is adopted as a common sample in the project, and the effectiveness of the methods has been proved.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	9,000,000	0	9,000,000
2008年度	4,000,000	0	4,000,000
2009年度	4,800,000	0	4,800,000
2010年度	9,000,000	0	9,000,000
2011年度	7,100,000	0	7,100,000
総計	33,900,000	0	33,900,000

研究分野： 計算材料科学

科研費の分科・細目： 材料工学・金属物性／無機材料・物性

キーワード： マルチスケール手法, ナノ材料, 格子欠陥, 機能元素, 構造・機能材料

1. 研究開始当初の背景

本領域課題である「機能元素のナノ材料科学」, すなわち表面や界面のナノ領域に集積・

偏析する異種元素や格子欠陥の役割を定量化しマクロ特性に及ぼす影響を精緻に解明・設計するためには, Åサイズの電子構造～ナノ

サイズの原子配置変位～サブミクロンサイズの組織形成のそれぞれを継ぎ目なく結ぶマルチスケールモデリング手法の構築が重要な鍵を握る。本研究開始前に、原子・電子レベルの量子計算と古典的粒子計算手法を結合する方法は量子化学計算分野では世界的に研究されていたが、本課題のナノ～マイクロ領域の固体物性への適用・活用は行われていなかった。我々は、国内外の研究者グループと共同で高効率のハイブリッド量子/古典計算手法を世界に先駆けて開発し、また、メゾスケールの組織形成過程を記述するPhase-field法を、熱力学データから抽出される状態係数を用いて高精度化し、合金やセラミックスの相変態や析出のダイナミクスを再現することに成功していた。これら異なるスケールの計算手法の動的な協調を試みる研究は例がなく、本特定領域発足時には我々が初めてであった。

2. 研究の目的

本研究課題では、マイクロ～メゾスケールの各階層に対する計算技術のエキスパートである研究者が結集し、特に大規模電子状態計算法、ハイブリッド量子(QM)/古典分子動力学(MD)/粗視化粒子(CG)法、Phase-field法をそれぞれ高度化させ、かつ有機的に統合する計算手法を確立する。図1に本研究内容・推進体制の模式図を示す。

更には、領域内の共通試料に対する適用研究を通してナノ計測班と連携し、信頼性の高い材料計算手法を構築する。また、そこで得られた試料評価の知見を領域内プロセス班へフィードバックすることで、より効果的な実験指針を提案するなど、領域内の理論・実験研究の有機的連携により、的確な高機能材料創出を目指した。

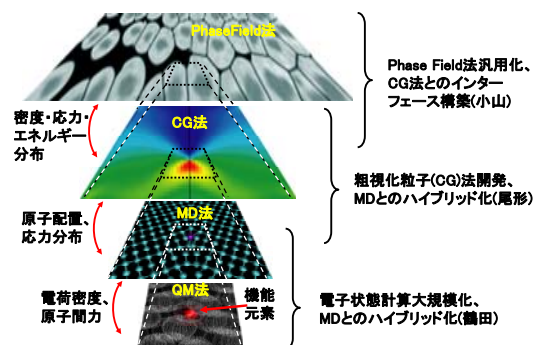


図1：機能元素のマルチスケール計算の模式図

3. 研究の方法

本研究は Phase-field 法、粗視化法、分子動力学法という異なるスケールを持った理論的手法をベースにし、これらをマルチスケール化した計算技法を開発する。研究期間の前半では、各シミュレーション手法の高度化・高精度化と整備、期間中～後半において、上記の各計算技法のハイブリッド化によるマルチスケール技法を開発する。並行して、本特定領域研究内の計測班およびプロセス班との連携により転位・表面・界面などの適用研究を行い、計算手法の確立および材料設計指針の構築を行う。表1は、本研究グループの研究推進体制・担当項目である。

表1：研究推進体制・担当項目

担当者	主な担当項目
鶴田	<ul style="list-style-type: none"> 電子状態計算手法の高度化・大規模化 ハイブリッド量子/古典分子動力学手法高度化 マルチスケール統合計算システム構築
尾形	<ul style="list-style-type: none"> 粗視化粒子(CG)法高度化・汎用化 MD/CG法ハイブリッド化
小山	<ul style="list-style-type: none"> Phase-Field(PF)法の高度化・汎用化 PF/MD法のハイブリッド化
兵頭	<ul style="list-style-type: none"> スケール統合における理論的検討

4. 研究成果

(1) ハイブリッド密度汎関数法/古典分子動力学計算手法の高度化：

第一原理電子状態計算と経験的分子動力学計算のハイブリッド法の開発・高度化により、無機材料中の欠陥・界面などのナノ領域の局所電子状態解析（図1）ならびに添加元素偏析による機能発現の理論的評価・予測の高い精度での実現が初めて可能となった。

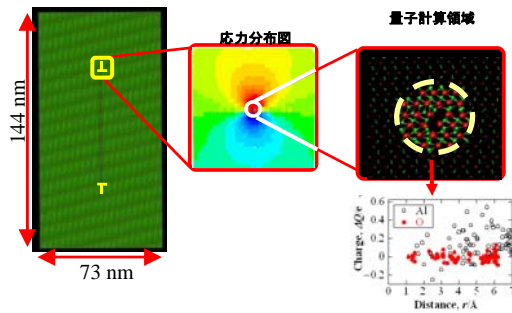


図1：ハイブリッド第一原理計算/古典分子動力学法によるアルミナ中転位芯構造と電子状態解析（雑誌論文⑤）

(2) 粗視化粒子法の高度化・多階層化・古典分子動力学法とのハイブリッド化：

原子レベルからメゾ・マクロレベルまでの粗視化を効率よく行うために、粗視化過程を再帰的に行う方法を開発した。

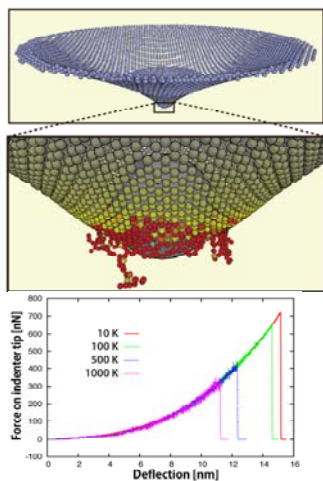


図2：ハイブリッドMD/CGP法によるグラフェン・ナノインデンテーション破壊（雑誌論文①）

また、原子レベルの分子動力学とメゾ・マクロレベルの粗視化粒子法とのハイブリッド化を行った。特に、2手法の接合境界領域での非物理的な弾性振動伝搬を抑制する新しいアルゴリズムの開発に成功した。これらの成果を基に、これまでに行ってきたモデルシステムの粗視化粒子法から、古典的相互作用モデルに基づく半導体やセラミックスへの適用手法の開発し、グラフェンのナノインデンテーション特性に適用した（図2）。

(3) Phase-field 法の拡張・高度化・マルチスケール化：

粒界、相境界および転位を表現する現象論的秩序変数(Phase-field 変数)をもとに、Fe結晶中転位へのCu原子析出ダイナミクスのPhase-field計算に成功し、その精度・汎用性を検討した。秩序変数(Phase-field 変数)として、新たに電磁界の方位成分を現象論的に取り入れる手法により、強誘電体の可逆的ドメインダイナミクスのPhase-field計算を行い、近年実験的に確認された熱処理によるチタン酸バリウムの誘電ヒステリシス制御の理論的再現に成功した（図3）。

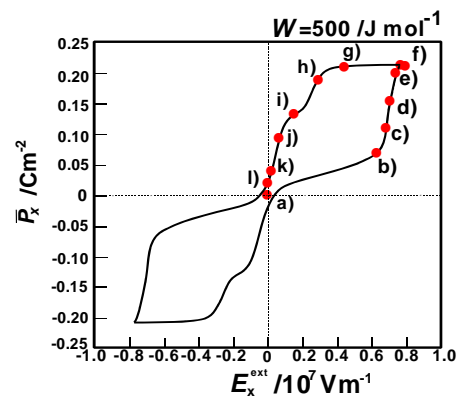


図3：強誘電体の可逆的構造相転移に対するフェーズフィールド解析（雑誌論文⑦）

(4) 新規計算手法への展開

①有限差分時間領域 (FDTD) 計算法の高度化・マルチスケール化とナノ構造への応用：

ナノ構造メタマテリアル設計のための並列 FDTD 計算コードを開発し、前述のプラットフォームへの移植を行った。また、メタマテリアル薄膜の積層構造におけるエバネッセント波増幅効果のシミュレーション (図4)、ならびにフォノン結晶による負の屈折現象の再現に成功した。

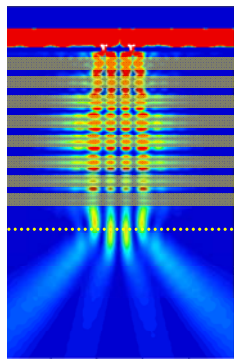


図4：多層メタマテリアル構造によるエバネッセント波増幅効果のFDTDシミュレーション(雑誌論文⑥)

②時間依存密度汎関数法による光吸収特性評価とナノ構造への応用：

材料の光応答特性への機能元素効果の解析・設計にも着手すべく、有機太陽電池用ナノ構造体の光吸収特性ヘドープメント効果を時間依存密度汎関数法により解析し、吸収スペクトルのブロード化による効率向上の可能性を示した。

(5) 領域内連携

領域内共通試料であるアルミナ中の転位芯とその分解過程を含む大規模構造の電子状態解析および、熱的安定性を解析した。また、本領域・ナノ計測班との連携により、電子顕微鏡観測データとの詳細な比較を行い (図5)、その成果についての論文を投稿準備中である。

また、本領域プロセス班との連携により、多結晶アルミナ粒界のイオン拡散に対する偏析元素の微視的効果解明を目指し、第一原理ならびに大規模MD計算を行い、粒界偏析したランタンイオン (Lu, Er など) のエネルギー安定性におけるイオンサイズ効果の支配性を定量的に示した。さらに有限温度における粒界内アニオン振動の拡がりから、酸素透過の温度依存性に関するモデル、それに基づくアニオン挙動の温度依存性について定量的に求める試みを継続中である。

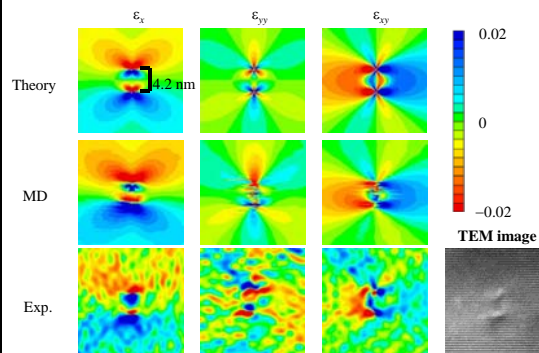


図5：アルミナ結晶中転位に関する原子分解能観察と大規模分子動力学解析との直接比較

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計35件)

① R Kobayashi, T Nakamura, S Ogata, “A Coupled Molecular Dynamics/Coarse-Grained-Particle Method for Dynamic Simulation of Crack Growth at Finite Temperatures”, MATERIALS TRANSACTIONS (査読有) [52] 1603- 1610 (2011).

② F. Hamasaki and K. Tsuruta, “Structures and Local Electronic States of Dislocation Loop in 4H-SiC via a

Linear-Scaling Tight-Binding Study”, MATERIALS TRANSACTIONS (査読有) [52] 672-676 (2011).

③ K. Tsuruta, “Initial stage of consolidation of silicon-carbide nanocrystals under pressure: A tight-binding molecular-dynamics study”, JOURNAL OF NANOMATERIALS (査読有) [2011] 308495 (2011).

④ T. Koyama, “Phase-Field Simulation of γ (A1)+ γ' (L12)+ γ'' (D022) Three-Phase Microstructure Formation in Ni-base Superalloys”, INTERNATIONAL JOURNAL OF MATERIALS RESEARCH (査読有) [101] 527-533 (2010).

⑤ K. Tsuruta, T. Koyama, and S. Ogata, “Classical and Hybrid Density-Functional/Classical Molecular Dynamics Study of Dislocation Core in Alumina Ceramic”, MATERIALS TRANSACTIONS (査読有) [50] 1015-1018 (2009).

⑥ R. Umeda, C. Totsuji, K. Tsuruta, and H. Totsuji, “An FDTD Analysis of Nanostructured Electromagnetic Metamaterials Using Parallel Computer”, MATERIALS TRANSACTIONS (査読有) [50] 994-998 (2009).

⑦ T. Koyama and H. Onodera, “Phase-Field Simulation of Ferroelectric Domain Microstructure Changes in BaTiO_3 ”, MATERIALS TRANSACTIONS (査読有) [50] 970-976 (2009).

⑧ R. Kobayashi, T. Nakamura, and S. Ogata, “Development and Implementation of Recursive Coarse-Grained Particle Method for Meso-Scale Simulation”, MATERIALS TRANSACTIONS (査読有) [49] 2541-3549 (2008).

⑨ T. Koyama, “Phase-field modeling of microstructure evolutions in magnetic materials”, SCIENCE AND TECHNOLOGY OF ADVANCED MATERIALS (査読有) [9] 013006-013014 (2008).

⑩ T. Miyake, C. Totsuji, K. Nakanishi, K. Tsuruta, H. Totsuji, “Spin polarization of two-dimensional electron system in parabolic potential”, PHYSICS LETTERS A (査読有) [372] 6197-6201 (2008).

[学会発表] (計 85 件) (※本研究課題に関する代表的な学会招待・基調講演)

① 鶴田健二, 「マルチスケール手法によるナノ機能元素材料解析」, 日本金属学会 2011年秋期講演大会 S1機能元素のナノ材料科学, 沖縄カルチャーリゾートフェストーネ, 2011.11.9

② K. Tsuruta, “Multiscale Material Simulations for Segregation Dynamics of Nanodopants”, International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (ICCES'11), Nanjing, China, 2011.4.18.

③ T. Koyama, “Microstructure Modeling on the Basis of the Phase-Field Method”, Fifth International Conference on Multiscale Materials Modeling (MMM2010), Freiburg, Germany, 10/4-8, (2010).

④ 兵頭志明, 「材料の自発的構造形成と材料設計」, 日本化学会第 90 春季年会「産学交流シンポジウム 2010」, 2010 年 3 月, 大阪.

⑤ 鶴田健二, 「量子古典ハイブリッド手法によるナノ構造材料の力学物性・電磁応答解析」, 第 18 回日本 MRS 学術シンポジウム・セッションJ「計算機シミュレーションによる格子欠陥やナノ構造の解明:新規材料創製を目指して」, 横浜,

2009.12

⑥ 兵頭志明, 「階層型シミュレーションと粗視化の方法」、第 22 回計算力学講演会, 2009 年 10 月金沢

⑦ T.Koyama and H.Onodera, "Calculation of Stress-Strain Curve of Two-Phase Microstructure on the Basis of the Extended Secant Method", International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials (Thermec'2009), Berlin, Germany, 8/25-29, (2009).

⑧ K. Tsuruta, "Hybrid Quantum/Classical Approaches to Nano- and Meta-Materials", 2009 International Conference on Computational & Experimental Engineering and Sciences (ICES'09), Phuket, Thailand, 2009.4.8.

⑨ 小山敏幸, 「理論計算による材料組織形成ダイナミクスの解析と特性計算」, 日本金属学会 2009 年春期講演大会 S4 機能元素のナノ材料科学(2)(S4・20), 東京工業大学大岡山キャンパス, 2008.3.29

⑩ 鶴田健二「機能元素のナノ材料科学に対するマルチスケール計算科学的アプローチ」, 日本金属学会 2009 年春期講演大会 S4 機能元素のナノ材料科学(2)(S4・20), 東京工業大学大岡山キャンパス, 2009.3.29

[図書] (計 2 件)

① 兵頭志明, シミュレーション学会編, 「シミュレーション辞典」(分担執筆: 「リチウムイオン電池」, 「燃料電池」, および「計算力学(ナノテクノロジー)」担当)

② 小山敏幸, 「材料設計計算工学 計算組織学編—フェーズフィールド法による組織形成解析(材料学シリーズ)」, 内田老鶴圃, (2011)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://nanodopant.com/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

鶴田 健二 (TSURUTA KENJI)

岡山大学・大学院自然科学研究科・教授
研究者番号: 00304329

(2) 研究分担者

小山 敏幸 (KOYAMA TOSHIYUKI)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 80225599

尾形 修司 (OGATA SHUJI)

名古屋工業大学・大学院工学研究科・教授
研究者番号: 90251404

(3) 連携研究者

兵頭 志明 (HYODO SHIAKI)

兵庫県立大学・大学院シミュレーション学
研究科・教授

研究者番号: 20394520