

セラミックス系材料の知的設計法(1)

—— 概論—定義と要素技術——

Intelligent Methods for Material Design of Ceramics (1)

—— General Discussions, Definition and Fundamental Technologies ——

安井 至*

Itaru YASUI

材料設計は、材料開発を効率的に行うとき非常に重要な概念である。そこで、本稿では、材料設計とはなにか、まずその定義を考察することから始め、次に、材料設計に使われる知的方法論、特に、計算機の支援システムとしてどのようなものが考えられるかを概説する。

1. はじめに

セラミックスの分野で材料設計という言葉が一般化したのは、1983～4年ごろのことと思われる。しかし、厳密な定義が確立する以前にさまざまな意図で使用された結果、かなり手垢のついた言葉になってしまった。しかし、材料開発の効率化のために必要不可欠の概念であることは間違いはなく、今後の材料研究にとって重要な要素でもある。われわれの研究室は、先端素材開発研究センターに所属し、先端素材設計を主に担当してきた。そこで、当研究室が考える材料設計の定義からスタートし、将来の材料設計支援システムの構築を目標とした一連の研究について述べてみたい。全体として、3つの解説からなるが、本稿においては、まず、定義と設計の要素技術について概説したい。また、“知的”とは何かについての考察も行う。

2. 材料設計の定義

材料設計という言葉が使われ始めたころ、他の人々が定義せずに使用していた中で、柳田はこの言葉を次のように定義した¹⁾。

「材料設計とは、有用あるいは必要な材料を科学的手法で製造あるいは選択することによって供給すること。」

この定義は、現在われわれが考えている定義と厳密に言えば若干異なるものであるが、この定義と同時に述べられている材料の発展状況と材料設計との関係に関しては、見るべきものが多い。すなわち、「材料設計には材料の開発段階の程度によって大別して三つのアプローチがある。(1)新しい機能性物質の探索、(2)上記の段階で選択された物質の実用化、(3)材料データベースからの所望のニーズに応える材料の選択。」と述べている。現在、われわれは、新物質の探索は本来の設計の分野ではなく、

派生的に必要となる分野であると考えているが、材料設計のアプローチが材料の発展段階に依存するという指摘はおそらく初めてなされたものと思う。さて、現時点で材料設計という言葉が使われるようになってからすでに10年以上が経過した。そろそろ材料設計という言葉も見直しが必要であると思われる。

さて、材料設計を再度厳密に定義しようとする、設計という言葉からもう一度検討しなおす必要があるだろう。設計という言葉は、当然のことながら、機械設計、建築設計のように、「ある要求仕様に基づいて設計図を描くこと」を意味する。ここで設計図は何を表現しているか、それはその機械なり建築物の構造を表現しているものである。たとえば、航空機であれば、主翼長・全長であり全重量といった数値と、どのような翼を持っているかという形状に関することである。材料設計という言葉に使われている設計も、当然ながら、このような意味からあまりかけ離れたものではないだろう。このように考えると、「材料設計とは、ある要求仕様に基づいて、それを満足する材料の“構造”を示すこと」という定義がもっとも素直なものであると思われる。

それでは、材料の“構造”とは何か。材料の分野で構造というと、結晶構造、原子配置などといったことを意味する。さらには、微細構造といった言葉もある。したがって、材料設計で示すべき構造とは、結晶構造、原子配置、微細構造、電子構造、欠陥構造などに加え、これらの構造を支配している組成を考えればよいことになるだろう。このような構造をここでは「広義の構造」あるいは単に「構造」と呼ぶ。図1に、セラミックスにおいて「広義の構造」と考えられているものを模式的に示す。

設計という言葉が、本家本元である機械や建築物などの場合と材料の場合とで、何か異なる部分は無いのだろうか。機械や建築物などの設計では、そこに使用される

*東京大学生産技術研究所 付属先端素材開発研究センター

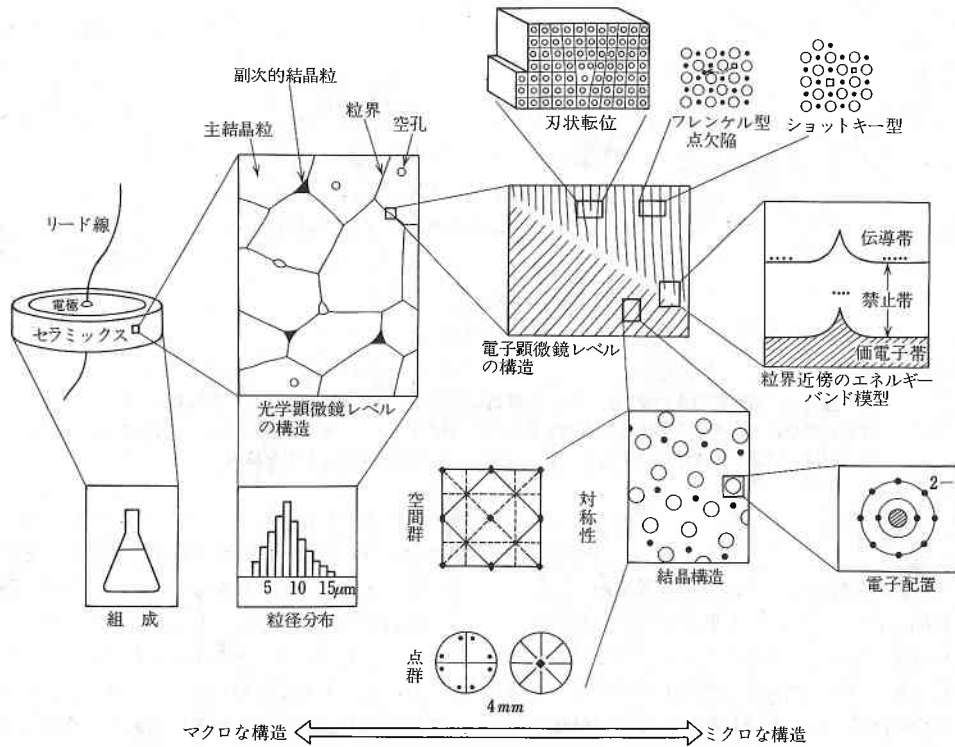


図1 セラミックスにおける広義の「構造」の意味するもの。

材料なども考慮された上で、また、強度計算も同時に行いながら設計されているため、その設計図どおりに実際に製作あるいは建造することができるということが大前提となっているように思える。しかし、材料の場合には、たとえばある原子配置を設計図に描いたところで、そのような原子配置をもつ材料を得る方法があるとは限らない。最近になって、トンネル顕微鏡の技術や MBE 技術を利用して、ある原子をある場所に配置することが試みられてはいるものの、実用的な材料を合成するプロセスからはいまだ程遠い状況である。ある実用的なサイズを有する材料を合成するには、自発的に進行する反応を利用する方法、すなわち、自由エネルギーが減少する方向へ変化が進行することを利用する方法しか無いことが現実であって、そのような合成法を示すことも設計の一部である。言い換えれば、材料の設計には、大きく分けて 2 段階があり、第 1 段階は材料の持つべき物性を記述した仕様を満足する構造を求める作業、第 2 段階はそのような構造を合成する方法論を記述する作業となる。図 2 は、このような状態を表現したものである。

このように考えると、材料設計の定義は次のようになる。材料設計とは、2 段階の知的作業からなる。第 1 段階は、要求された仕様を満足する材料の構造を示す段階であり、これは物性最適化設計とも呼ぶことが適当である。第 2 段階は、第 1 段階で示された構造を実現する

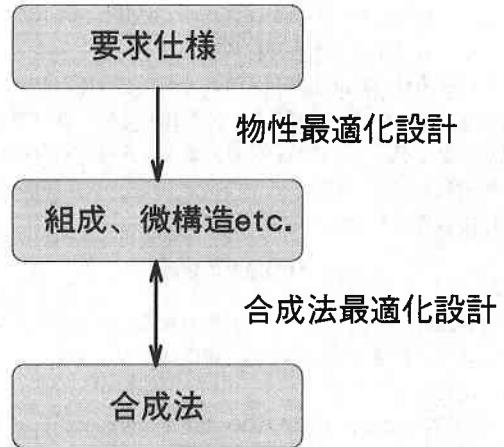


図2 セラミックスにおける材料設計の概念図。要求仕様を満足するセラミックスの広義の構造を設計する物性最適化設計とその構造を合成する方法を設計する合成最適化設計からなる。

合成方法を示すことであり、これは、合成法最適化設計とも呼ぶことが適当である。

3. 材料設計を行う方法論の検討

前出の柳田による材料設計の定義のところでも述べたように、材料設計の方法論は、その材料に関して利用で

きる情報の質と量によって大きく異なってくる。知識工学を専門とする方々によると²⁾、まず一般的にどのような知的作業を行うときでも、利用できる情報のレベルがどのようなものであるかによって、表1のような方法論が使用できるとされているようである。これを材料設計という知的作業にあてはめてみたとき、開発に使用できる方法論は、対象とする材料の発展段階に応じて表2のようになるものと思われる。

さて、材料設計を知的な方法論を用いて行おうとするとき、はたして“知的”とは何かがまず問題となる。まず、知的でないケースから検討すると、材料設計に関しと言えば、知的に対極にある言葉は“直感”ではないかと思う。直感を働かせるという作業は実は高級な作業の一つではあると思うものの、“直感”が最も有効に作用する段階はやはり表2の経験的段階止まりで、実験的あるいは理論的段階では恐らく有効性は薄れてくるだろう。実験的段階、理論的段階で有効な方法論は計算機の支援を仰ぐ方法であろうと考え、いささか短絡的ではあるが、知的的方法論⇔計算機支援法と定義することにす。すなわち、計算機材料科学あるいは Computational Material Science と呼ばれる一群の方法論を取ることが知的材料設計の方法論であると考えてのわけである。

それではこのような定義にしたがって、材料設計の知的的方法論、すなわち計算機による材料設計支援法を検討してみよう。試行的段階にある材料に関しては、知的的方法論が存在しないことは明らかである。経験的段階にある材料に関しては、人間の直感を enhance する方法論として、人工知能的アプローチあるいは知識工学的アプローチがあるように思える。実験的段階については、さまざまな方法論があるだろう。特に、データの蓄積が重要な段階であるから、データベースの構築とその有効利用といった方法論がある。具体的な解析法も重回帰分析、

表1 材料の発展段階に応じて、材料設計に利用できる情報が変化することを示す。

段階	情報
試行的段階	なし
経験的段階	経験、秘伝
実験的段階	データの蓄積
理論的段階	理論

表2 材料の発展段階に応じて、利用できる方法論もこの表のように変化する。

段階	方法論
試行的段階	試行錯誤、体力
経験的段階	直感、経験則
実験的段階	データ解析、実験式 シミュレーション
理論的段階	理論式

表3 材料の発展段階と材料設計に利用できる方法論の対応表。

段階	支援方法
試行的段階	なし
経験的段階	人工知能的アプローチ
実験的段階	データベース構築 データ解析 実験式 多変量解析 シミュレーション 分子原子レベル マクロレベル
理論的段階	理論式

分散分析など多変量解析と呼ばれる一群の解析方法があり、その他にも多数あるものと思われる。さらに、各種の方法によって材料を原子レベル・分子レベルからシミュレーションする方法も有効であると思われる。シミュレーション法は、便宜的に実験的段階に入れてあるが、本来は、理論的段階との中間的レベルに位置する方法論であろう。以上のような状況をまとめたものが表3である。

以上の記述あるいは考え方は、合成法の設計に関しても基本的には適用するものであるが、合成法に関する情報のレベルは現時点では充分とは言いがたい。したがって、合成法の設計は、しばらくのあいだ考察の範囲から除外し、合成法設計にも適用できる場合には特に記述するという方針が進みたい。

4. 材料設計のシステム化とフローチャート

材料設計の支援を行うシステムを具体的に考察するために、将来のターゲットを設定することが有効であると考え、図3に示すような概念フローチャートを構築してみた。設計であるからまず、要求仕様の入力からスタートする。設計には、いかなる場合でも何らかのデータベース（個人の知識の中に納められている場合を含む）

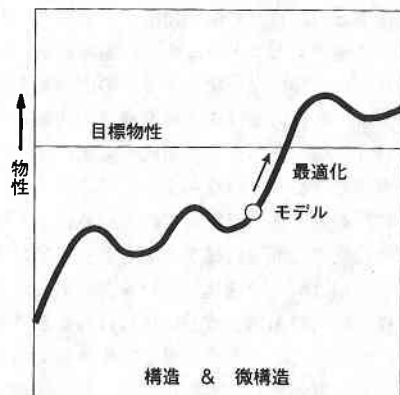


図3 セラミックス系材料設計のための概念フローチャート。

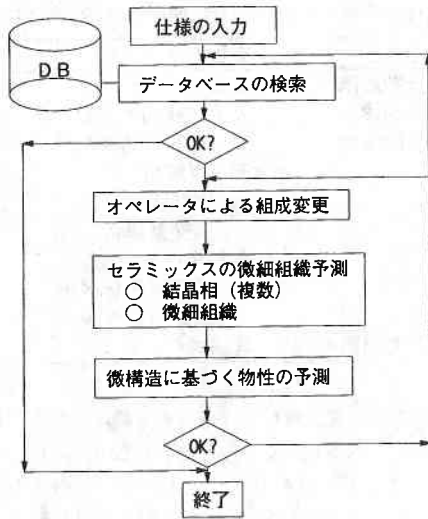


図4 材料設計におけるモデルという概念。モデル材料の構造を改良して要求仕様を満足する材料を得る。

が必要であり、材料設計支援システムの場合でも、まず材料の組成、微構造、物性値などを記述したデータベースが存在していることを前提としている。システムは、入力された要求仕様に近い物性・特性を有するデータを検索し、結果をオペレータに示す。入力された仕様を完全に満足する材料がデータベース中に存在していれば、それで設計完了となる。しかし、一般には仕様とどこかがずれたものが出力されるだろう。オペレータはそれらの詳細を検討し、自らの知識・感性をたよりにもっとも可能性の高い候補、それをここではモデルと呼ぶが、を選択する。すなわち、この要求をかなり満たしているモデルを改良して、最終的な材料の構造を決めようという発想である。この発想を図示したものが、図4である。さてどのようにモデル材料を改良するのか。材料の場合、一般に改良という作業がどのように行われるかを考察すると、(1)組成の変更、(2)処理プロセスの変更、のいずれかである。処理プロセスとはいっても、その変更にしたがって変化するのは材料の微細組織、欠陥構造などの構造である。処理プロセスと生成する構造細組織の関係はあまり明確になっていない場合が多いので、まず、ここでは除外する。材料の物性をその微構造の関数として求めようという立場であるから、組成の変更に伴う微構造の変化を推測できなくてはならない。多くの結晶性の材料のように、ある決まった組成でのみある結晶が析出し、それ以外の組成では混合物になる場合と、多少組成が変わっても結晶相は同一で変化しない場合がある。後者としては、複合酸化物系にしばしば見られることである。たとえば、フェライトとして重要な実用材料であるスピネル構造、強誘電体として実用化されているペロブスカイト構造などが代表例である。

これらの複合酸化物の場合、すなわち、組成を多少変化させても固溶体を生成して主結晶相は変化しない場合には、その材料の物性・特性は組成の変化とともにほぼ線形に変化する場合が多い。このような特性は、材料設計を行う立場から言うときわめて取り扱いやすい場合である。そこでこれを固溶体生成系と命名しておく。ガラスの場合にも、組成の多少の変化でガラスの中の原子配置が大きく変化するという事はないので、やはり固溶体生成系としての取り扱いが可能である。

通常の結晶質セラミックスの場合には、組成が変化するとそれにしたがって結晶相が変化し、2相共存になったり、場合によっては、3相以上の結晶相が出現することがある。物性・特性の変化を広義の構造の変化との関連で求めるのが材料設計の基本的立場である。2相以上の結晶が共存する構造、すなわち、複合構造を持つ場合には、物性の変化を説明する複合則が解明されている必要があるが、セラミックス系の材料では、複合則がわかっている場合はむしろまれである。そこで、固溶体生成系以外の結晶質セラミックスの材料設計には課題が多い。

いずれの場合にも、あるモデルの組成が変更されたときに、どのような微細組織を持ったセラミックスになるかを判定できることが、材料設計システムを構築する場合に必須条件になる。

図4のフローチャートに戻るが、材料の微細組織などが予測可能であったとしても、上述のように、それから物性を予測する方法はそれぞれの場合によって異なっている。最も単純な場合と考えられる固溶体生成系の場合については、物性を組成の一次関数と考え、データベースを用いて重回帰分析の手法を用いることが有効である。このような手法は、ガラスの物性の最適化を行う手法として古くから用いられている。複合組織が生成する場合の複合則については、その一例を図5に示すが、その複合組織を表現する値と物性との関係が整理されている必要がある。この場合には粒界相の結晶化度という複合組織を表現する値と曲げ強度が線形に近いことが示されている³⁾。

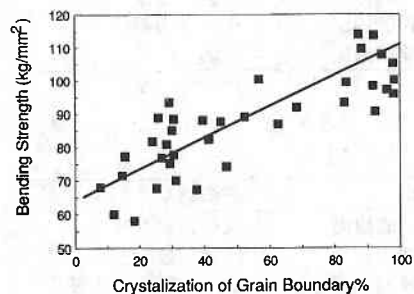


図5 複合組織系セラミックスの構造-物性相関の一例。粒界相の結晶化度と高温強度に正の相関が見られる³⁾。

5. 材料設計に使用する方法論の各論

前節のようなフローチャートを想定したときに、どのような方法論を用いてシステム化を実現するかという検討が必要である。いくつかの方法論について考えてみよう。

5-1. 知識ベースあるいは人工知能類似のアプローチ

人工知能の歴史を振り返ると、まず診断という知的作業への応用から始められている。診断という作業は、目前におかれたある対象物の示している症状の原因を、数が限られた候補から最適な解を選択するという作業であり、いわば、解の存在する範囲が閉じているケースである。このような条件下では、後ろ向き推論、すなわち、結論を先に仮定するタイプのアプローチが有効である。これに対して、設計という作業は解の存在する範囲が開いていないため、基本的には前向き推論を行う必要がある。完全な前向き推論は、材料設計の場合に不可能であるため、前項で述べたように、モデルという概念を導入し設計を進めることが現実的である。また、材料設計の場合では、知識ベース構築用のシェルを用いる完全な人工知能的なアプローチよりは、むしろ、数値処理にも優れたシステムを使用せざるを得ないことが多く、われわれのところでは、教育が容易であることもあり、もっぱら、MS-Quick BASIC を開発ツールとして使用している。

ここで、当研究室で行った一例を示す。先に述べたように、組成を変更したときにはどのような結晶相になるかを判定することは、材料設計のひとつの要素技術である。ある結晶ができるかできないか、これは熱力学的に考えれば、その結晶が生成することによって、自由エネ

ルギーが減少することが条件である。したがって、ある結晶の出現が予測できるためには、自由エネルギー（より正確には標準生成自由エネルギー）の計算ができればよいことになるが、直接的な方法によって、固体の自由エネルギーを算出することは困難である。そこで、予測精度の面からはいささか問題があるが、結晶格子を組むときに得られるエネルギー（凝集エネルギー＝標準生成エンタルピーに相当）を算出し、それを判断の基準にしようと考えた。対象としては、ペロプスカイト^{4),5)}、スピネル^{6),7)}、と2種の代表的な複合酸化物を選択した。凝集エネルギーの算出方法にも2種類の方法を試みた。ペロプスカイトの場合には、直接凝集エネルギーを算出するのではなく、イオン半径からペロプスカイト格子を組んだときの歪みの大きさを評価し、その大小から凝集エネルギーを評価した。スピネルの場合には、イオン半径からスピネル格子を組んだときの格子定数を予測し、これとそれぞれのイオンの電荷から凝集力を評価した。いずれの方法も、それだけの評価基準とするのでは充分ではなく、各種の補正項が必要となった。たとえば、あるイオンの安定度、イオンとイオンが共存するときの安定な電荷、d電子を含むイオンの酸素配位の安定性、などといった諸ファクターを考慮することによって、現在のところ、確度90%程度でこれら両複合酸化物の生成に関しては予測が可能になった。図6にペロプスカイトの出力例を示すが、3種の金属元素を入力すると、可能と思われる組成式を自動的に作成し、それらの相対的に安定度を点数で評価するシステムである。なお、このようなシステムを構築するにあたって、現在知られているペロプスカイト、あるいは、スピネルのデータベースを構築することが第一歩であったことを申し添えたい。

```

===== Results( after thinking about acidbasicity ) =====
Ba(Nb .67Pb .33)O3      75.54 ==> 145.72 in Air
Pb(Nb .67Pb .33)O3      86.11 ==> 110.74 in Air
Ba(Ba .33Nb .67)O3      61.3  ==> 72.78  in Air
Ba(Nb .5Nb .5)O3        24.69 ==> 48.83  in CO
Pb(Nb .5Nb .5)O3        28.15 ==> 39.3   in CO
BaNbO3                   17.04 ==> 33.75  in CO
PbNbO3                    19.42 ==> 27.15  in CO
BaPbO3                    15.91 ==> 26.32  in O2
Ba(Nb .5Pb .5)O3-x      10.26 ==> 18.88  in Air
(Ba .2Pb .8)NbO3         9.86  ==> 16.66  in CO
(Ba .4Pb .6)NbO3         9.81  ==> 16.57  in CO
(Ba .6Pb .4)NbO3         9.57  ==> 16.17  in CO
Ba(Nb .33Nb .67)O3      8.15  ==> 15.42  in CO
Ba(Nb .75Nb .25)O3-x    7.56  ==> 14.52  in CO
(Ba .2Pb .8)PbO3         9.2   ==> 12.71  in O2
(Ba .4Pb .6)PbO3         9.16  ==> 12.65  in O2
(Ba .6Pb .4)PbO3         8.94  ==> 12.35  in O2
Pb(Nb .33Nb .67)O3      9.29  ==> 12.17  in CO
Pb(Nb .5Pb .5)O3-x      8.36  ==> 10.26  in Air
Pb(Ba .33Nb .67)O3      69.88 ==> 6.43   in Air

```

図6 プロプスカイト系結晶生成判定エキスパートシステムの出力例。

5-2. データベースの構築とその高度利用

材料設計を行うとき、なんらかの意味でデータベースが必須である。特に、材料の組成や物性を記述したファクトデータベースの存在なしに、知的方法論を考えることはほとんど意味が無い。そこで、ここではその重要性に考慮し、データベースの構築とその高度利用については稿を改める。ただし、一つ注意を喚起しておきたいことがある。それは、現存する材料のデータベースを利用して行う材料設計法では、これまで知られている材料とまったく異なった新しい材料の発見には結び付く可能性がないことである。すなわち、データベースの利用は、基本的に既知の材料から選択ないし内挿が基本であり、外挿によって新材料が発見されるとしても、既知の材料に近い部分に限られる。このようすを示したものが図7である。

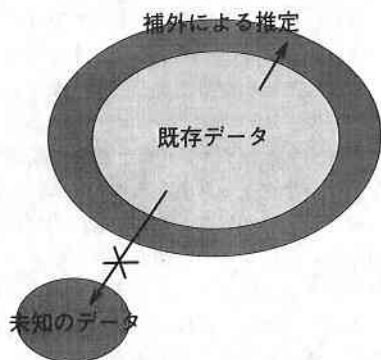


図7 データベース高度利用による材料設計システムが取り扱える範囲を示す概念図。現存するデータの内挿による設計が主たるもので、未知の材料を発見する能力はない。

5-3. シミュレーション法の応用

近年のコンピュータの能力の向上によって、原子レベル・分子レベルでの各種シミュレーション法が比較的容易に行えるようになった結果、シミュレーション法を材料設計の主要な方法論のひとつとして位置付けることができるようになった。シミュレーション法は合成法そのものを含めた設計に使用できる可能性もある。そこで、シミュレーション法についても、稿を改めることとする。

6. ま と め

材料設計という概念を定義し、知的方法論を導入することによって実現されるであろうことを、期待感を含めて書いてみた。しかし、材料設計を実用レベルで行うためには、実際にはなんらかの形でデータベースの構築という地味な作業が必要であり、このような地味な仕事は現在の日本という環境では難しいものと思われる。いずれにしても、さまざまな面からの今後のためまざる努力が必要である。

(1993年7月27日受理)

参 考 文 献

- 1) 柳田博明, セラミックス, 19[5], 417-423(1984)
- 2) “化学物質等設計支援のための知識ベースシステムに関する研究成果報告書”, 科学技術庁科学技術振興局(1987)
- 3) 拓植章彦, セラミックス, 22[6], 479-482(1987)
- 4) 藤原佳子, 安井 至, 日本セラミックス協会学術論文誌, 98[8], 817-23(1990)
- 5) Y. Fujiwara, Itaru Yasui, J. Ceram, Soc, Japan, Int. Edition, Vol 98-1
- 6) Kentaro Matsunaga, Itaru Yasui, 2nd Int. Conf. on CAMSE, OP-P-1, Yokohama (1992)
- 7) K. Matsunaga, I. Yasui, Computer Innovation of Material Science and Engineering II, pp 1549-52, North-Holland (1993)