

セラミックス系材料の知的設計法(3)

—— データベースの構築と高度利用 ——

Intelligent Methods for Material Design of Ceramics (3)

—— Construction of Databases and their Full Utilization ——

宇都野 太*・安井 至**

Futoshi UTSUNO and Itaru YASUI

セラミックスの分野でもデータベース化が行われつつあり、材料設計におけるデータベースの役割が大きくなっている。セラミックス材料の中でも特にガラスに関しては、ニューガラスフォーラムが構築したファクトデータベースにより、材料設計が容易に行えるようになってきた。本稿では、セラミックスにおけるデータベースの構築と、構築されたガラスのファクトデータベースを利用したフッ化物ガラス・カルコゲナイドガラスへの材料設計の応用について報告する。

1. はじめに

コンピュータの発展にともない、コンピュータを利用した材料設計的アプローチが盛んに行われている。また、コンピュータの大量データ処理能力を生かすためには、膨大なデータがデータベース化されていなければならない。文献検索のための情報データベースとしては、ケミカルアブストラクト検索 (CAS) や、アメリカセラミック協会のセラミックアブストラクトが構築され整備されつつあるが、セラミックスの分野におけるファクトデータベースの構築は、まだまだ開発途上である。その根元的な理由は、データベースの構築には膨大な時間と費用がかかるためである。現在、公表されているファクトデータベースとしては、熱力学データベース“MALT”、国際ガラスデータベース“INTERGLAD”や結晶構造などがある。しかし、金属、有機化学、生化学などに比べて遅れており、その整備が待たれる。

セラミックス、ここでは特に焼結体としてのセラミックスにおいて、その特性および物性には、合成・製造プロセスが大きく依存しており、データベースとしては成立しにくい。その存在意義は、材料設計の観点からも非常に大きい。一方、ガラスの場合は、ガラスの組成と物性には非常に高い相関性があり、材料設計のための物性予測は、データベース中のファクトデータより推測できることが多く、豊富なデータを持つデータベースの存在により材料設計が可能であると言われている。その要望に答え、ニューガラスフォーラムでは、ガラスのファクトデータベースを構築した。

本稿では、セラミックスの分野におけるデータベース

の意義と、実際に携わったガラスのファクトデータベースの構築とそれを利用した知的材料設計について記述する。

2. セラミックスとデータベース

2.1 焼結体セラミックス

セラミックスを本稿では、焼結体セラミックスとガラスと2つに分類して議論する。

焼結体セラミックスの特性は、その製造プロセスに依存している¹⁾。たとえば昇温速度や焼結温度やその雰囲気により、焼結体セラミックスは異なる特性が得られる。それは、セラミックスの特性が微細構造に支配されているからである。したがって、焼結体セラミックスの材料設計では、その微細構造からの特性を予測する理論や、ある製造プロセスによる微細構造の生成を予測する理論が必須となる。しかし、このような理論は未だ確立されてなく、製造法と特性を対応させて、最適な製造法を求め、材料設計を行わなければならない。そこで、焼結体セラミックスにおいて、製造プロセスに関するさまざまなデータと、そこから導かれる経験的な法則を充実することが、初期的なデータベースとなるのであろう。

また、データの蓄積を行うに当たっては、そのデータの有為性を考慮するために、現在標準化が検討されている²⁾。その標準化が確立すれば、大量に存在するデータを比較することが可能であり、そこから統計的作業などでデータ集積を行うことにより、データベース化が行われる (図1)。

現在のところ焼結体セラミックスのデータベースの例として熱力学データベース“MALT”を用いた材料設計について説明する³⁾。材料設計におけるこのデータベースの利用法の一例として、選択したセラミックス材

*東京大学生産技術研究所 第4部

**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

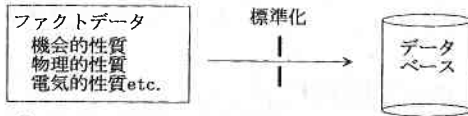


図1 焼結体セラミックスのデータの標準化とデータベースの関係の概念図²⁾

料が最適化どうか、あるいはその製造法による材料の化学的安定性を、熱力学的な推算から判断をすることが挙げられる。実際、燃料電池空気極としてのランタンマンガナイトの開発・最適化に熱力学的知見から実験の指針を見いだしたという例がある^{4),5)}。それは、ランタンマンガナイトと固体電解質 YSZ と熱的な接合において、その界面に第 3 相が生成され、その特性に大きな影響を及ぼしていることが実験的に考察されたが、SEM 観察では見極めが困難であった。そこで、この反応生成物をデータベースから熱力学的に予測して、固体電解質燃料電池の構成とその製造法の最適化の実験を進める指針を得たというものである⁵⁾。

このように材料設計的なアプローチによる材料の開発にはデータベースは欠かせないものであるから、今後、焼結体セラミックスの特性の標準化を検討するとともに、データベースの構築・整備が期待される。

2.2 ガラス

一般に、ガラスは均一な構造を有していることから、組成と物性の相関性が高く、経験的に類推される物性値と実測値との対応性がよいことが知られている。また、焼結体セラミックスとは異なり、ガラスは製造による物性の変化は小さく、その組成に依存している場合が多い。

ガラスの物性予測は古くから行われており、その組成-物性の相関性、いわゆる加成性を利用した経験則から始まり、ガラスに関する常識・予測式などの知識ベースとして蓄積されている^{6),7)}。その知識ベースを利用して、牧島らはガラス材料設計支援エキスパートシステムを構築している^{8),9)}。

しかし、ガラス本来の加成性を利用できれば、すなわち組成-物性データを大量かつ容易に取り扱うことが可能であれば、加成性からかなりの物性が推測することができる。そのためかガラスのファクトデータのデータベース化がかなり以前から要望されていた。1991年になって、社団法人ニューガラスフォーラムにより、ガラスの組成-物性データベースである国際ガラスデータベース (INTERGLAD) が構築された¹⁰⁾。また、このデータベースの開発には、当研究室のガラスデータベースに関するノウハウがかなり生かされており、リーダーシップを取ってデータベース構築に尽力した。さらに、そのデータベースを利用した材料設計の報告も行った^{11),12)}。

3. ガラスデータベースの構築とその構造

ニューガラスフォーラムが構築した国際ガラスデータベース "INTERGLAD" の構築理念は、「国際的に有用で、ニューガラスの産業の発展のためのデータベース」であるということである¹³⁾。先に述べたとおり、ガラスがアモルファス材料であるということに着目し、ガラスの組成と物性の関係を中心に構築したものである。

このデータベース中のデータソースは、

- 1) 学術雑誌
- 2) データブック
- 3) 特許に記載された実施例
- 4) ガラス各社のカタログ
- 5) 国際会議予稿

の 5 種類を対象とした^{14),15)}。

データベースに記載されている項目は、以下のとおりである。

- 1) ガラスの種類
- 2) ガラス組成
- 3) ガラス物性
- 4) キャラクターゼーションデータの有無
- 5) 特徴・形状
- 6) 用途
- 7) データソース
- 8) ノート

ここで、ガラスの種類とは、一般ガラス、結晶化ガラス、加工ガラス、複合ガラスである。組成は、原典に記述されている組成が、目標値、分析値、バッチ値のいずれかであるかを含め記述した。また、物性は、物理的・機械的物性、熱的物性、光学的物性、電氣的・磁氣的物性、化学的・生物学的物性などほとんどの物性を対象としており、さらに、測定条件による物性の変化などに関しては、たとえば熱膨張係数ではその温度範囲によって分類したり、標準的な温度以外の場合はその測定条件も含めて物性値を記述している。それに加え、分光データなどのキャラクターゼーションデータの有無も記入することとした。特徴・形状の項には、粉末状・棒状等、多孔質ガラス・着色ガラス等、あるいはゾルーゲル法や超急冷法等の製造法を記載した。用途としては、原典に明記されているものについて、エネルギー・光学・電気等に分類することとした。

このデータベースは、総データ数が100,000件を越えるため大容量のメディアが必要であり、また、全世界を対象としたデータベースの構築という考えから、最近一般化された CD-ROM で配布することとした。手軽にパーソナルコンピュータで操作でき、その物性値も容易に他のデータベースシステムへダウンロードできるようにシステムを設計した。

また、このデータベースは、ファクトデータを収録したものであるが、その利用法は各人に委ねられている。各人が自分の必要なガラス系を抽出し、そのデータを解析して材料設計することが必要である。

4. データベースの高度利用と知的材料設計

4.1 ケイ酸塩ガラスとエキスパートシステム

一般の実用ガラスの主成分はケイ酸 (SiO₂) である。この系のガラスに関しては、多くの研究例があり、古くから材料設計が試みられている^{6),7),16)}。Huggins¹⁷⁾はガラス中のケイ素と酸素の比 (Si/O) で分類することにより、さまざまな酸化物の係数を物性値から算出して、密度の予測式を報告している。また、弾性率、剛性率、ポアソン比、熱膨張係数、屈折率などの物性に対しても予測式が提案されている。このような事例に、データベースを用いれば、先人の算出した係数よりさらに精度のよい値が得られているはずである。

ケイ酸塩ガラスに関しては、牧島らが行った、ガラスについての知識ベースをシステム化した「ガラス材料設計支援のエキスパートシステム」の構築について説明する。牧島のシステム^{8),9)}は、物性予測式やその式に用いる係数などの物性値などの知識ベースを所有し、人工知能ソフトの ESHELL を用いて、ケイ酸塩系ニューガラス開発支援のためのエキスパートシステムである。このシステムは、物性値を指定すると60種類の酸化物の中から可能性がありそうな成分を選択し、ガラス組成を推論することができ、さらに指定した組成から物性値を推論することも可能である。

推論方法は、知識ベースの一つである牧島-Mackenzie の式

$$E = 38.6Vt \sum u_i x_i$$

ただし、 u_i : 単位体積当たりの解離エネルギー

x_i : モル分率

Vt : 原子充填密度

からヤング率 E を求め、指定した各組成を満たす範囲内で、1つの組成の候補で最もヤング率が大きくなる組成比 (ガラスの最適組成比) とその他の物性値を推論する。対象としている物性は、ヤング率、体積弾性率、剛性率、ポアソン比、密度、比弾性率、原子充填度、熱膨張係数、屈折率、平均分散度、誘電率、1g 当たりの価格である。

また、推論機能には、組成による推論、物性による推論があり、前者は、ガラス材料としての組成の条件のみを指定し、目的とするガラスの成分がおおむねわかっている場合、まずガラス組成の最適解を求めた後、組成比の微調整を行いながらその物性の変化を求める (図 2 (A))。後者の物性による推論は、物性条件と組成条件を

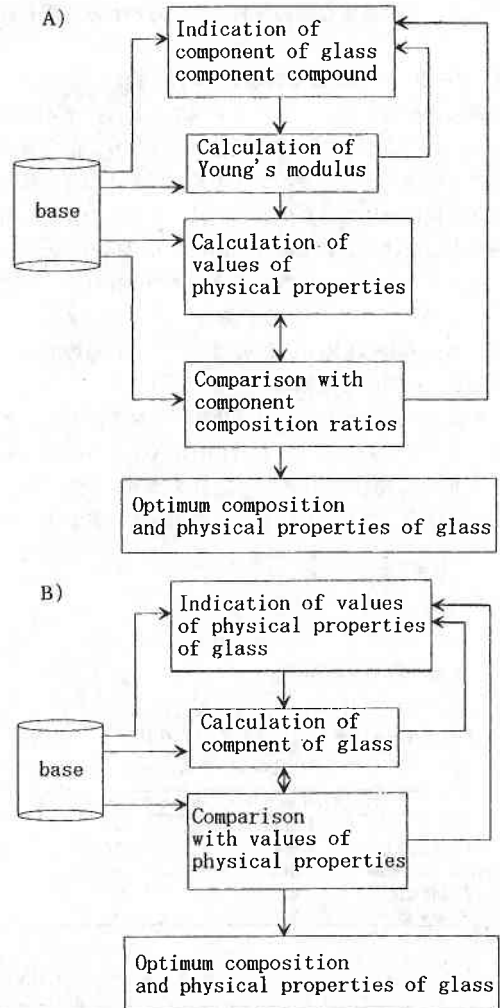


図2 ガラス材料設計エキスパートシステム⁹⁾
 A) 組成による推論機構フローチャート
 B) 物性による推論機構フローチャート

指定し、目的とするガラスの物性条件より目安となる成分・組成比を求めるものである (図 2 (B))。

このシステムの改良型として、1993年に富士通株式会社からガラス材料設計支援システム「VitrES」を発表した。このシステム¹⁸⁾は、牧島らのエキスパートシステムを MS-Windows 上の移植したものであり、内容はほぼ同じであるが、ヤング率が高くなる方向だけの推論ではなく、低くなる方向への推論も行えるようになり、より一般的になった。しかし、ヤング率が関係しない物性を設計するときには、必ずしも実用的でない場合がありうると思われる。

このように、一般の実用ガラスであるケイ酸塩ガラスにはかなり進んだ研究があり、今後、データベースを利用するシステムを構築し、知識ベースの精度を上げるこ

とにより、より高度な知的材料設計が行われると思われる。

4.2 データベースによるガラスの材料設計

牧島らの開発したエキスパートシステムは、ケイ酸塩ガラスに対するもので、ホウ酸塩ガラス、リン酸塩ガラス、フッ化物ガラス、カルコゲナイドガラスなど特殊なガラス系には適用できない。これは、それらのガラス系が特殊な合成法が必要であり、応用例も少ないことから、ケイ酸塩ガラスのように多くのデータが存在せず、予測式が確立されていないためである。そこで、ファクトデータベース INTERGLAD の開発で、それらのガラス系の物性の推測が可能であると考えられる。

この試みの一つとして、フッ化物ガラス系、カルコゲナイドガラス系に対して、INTERGLAD からのデータのみを用いて物性の予測の可能性を調査した^{11), 12)}。データ数は表 1 のとおりであった。加成式を表す式

$$p = \sum a_i x_i$$

ただし、p : 物性 P の値

a_i : 物性 P における成分 i の係数

x_i : 成分 i の組成

表 1 INTERGLAD から抽出されたフッ化物ガラス・カルコゲナイドガラスの各物性のデータ数

	フッ化物ガラス	カルコゲナイドガラス
密度	292	329
ガラス転移点	958	237
屈折率(587.6nm)	312	-
結晶化温度	673	53
アップ数	312	-

から各成分の係数を算出し、それらの係数から実際のデータがどれだけ再現できるかを評価することによって、データベース利用の材料設計の可能性を検討した。

4.2.1 フッ化物ガラス

フッ化物ガラスの場合に関して述べる。フッ化物ガラスは、イオン結合性の強い結合でガラスが構成されており、その性質は構成する陽イオンで支配されると考えられる。したがって、加成性の成立が容易に予想された。

データベースから、フッ素原子を 50atom% 以上含むガラスデータをすべて抽出した。今回は、多くの物性を対照とするため、各物性ごとに分類し、小規模のデータベースを作成した。そのデータベースを検討し、ガラスの主な成分をデータ数から判断し、それら成分のみで 100% 構成されるガラス系を抽出してマトリックステーブルを作成した (表 2)。このテーブルを用いて、重回帰分析法により各フッ化物ごとに係数を算出した。そして、その係数から算出される予測値とデータベースの実測値とを比較し、その妥当性を検討した。この一連の作業は、図 3 のフローチャートにまとめてある。

まず、実例として密度に関して説明する。選定されたガラスの主な成分は、BaF₂, ZrF₄, AlF₃, NaF, ThF₄, YF₃, LaF₃, LiF, CaF₂, BeF₂, ZnF₂, YbF₃, KF であった。この 13 種類のフッ化物のみでガラスとなる系を抽出してテーブルを作成した (表 2)。このテーブルから、重回帰分析法により、各フッ化物の係数および標準誤差、相関係数を算出した。表 3 (A) のとおり、推定値の標準誤差は 0.1809、相関係数 r² = 0.9683 とかなりの精度で再現されていることがわかる。さらに、この推定値

表 2 重回帰分析に用いたマトリックステーブルの一例

BaF2	ZrF4	AlF3	NaF	ThF4	YF3	LaF3	LiF	CaF2	BeF2	ZnF2	YbF3	KF	Density
33	58	4	0	0	0	5	0	0	0	0	0	0	4610
34	57	4	0	0	0	5	0	0	0	0	0	0	4540
20	0	30	0	20	0	0	0	0	0	0	30	0	5740
34.2	58.8	7	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	4480
21	65	4	0	10	0	0	0	0	0	0	0	0	4650
24	62	4	0	10	0	0	0	0	0	0	0	0	4680
25	63	0	0	0	0	12	0	0	0	0	0	0	4340
30	63	0	0	0	0	7	0	0	0	0	0	0	4320
30	62	0	0	0	0	8	0	0	0	0	0	0	4340
30	62	0	0	0	0	8	0	0	0	0	0	0	4580
32	58	0	0	0	0	10	0	0	0	0	0	0	4360
32	60	0	0	0	0	8	0	0	0	0	0	0	4590
33	63	0	0	0	0	4	0	0	0	0	0	0	4310
33	62	0	0	0	0	5	0	0	0	0	0	0	4790
.
.
.
33.5	57.5	0	0	0	0	9	0	0	0	0	0	0	4640
25	60	0	0	8	0	7	0	0	0	0	0	0	4870
20	0	28.7	0	22.6	28.7	0	0	0	0	0	0	0	5100
20	0	30	0	20	30	0	0	0	0	0	0	0	4980
31	60	4	0	0	5	0	0	0	0	0	0	0	4210
33.5	57.5	4	0	0	5	0	0	0	0	0	0	0	4250
35	54	4	0	0	7	0	0	0	0	0	0	0	4520

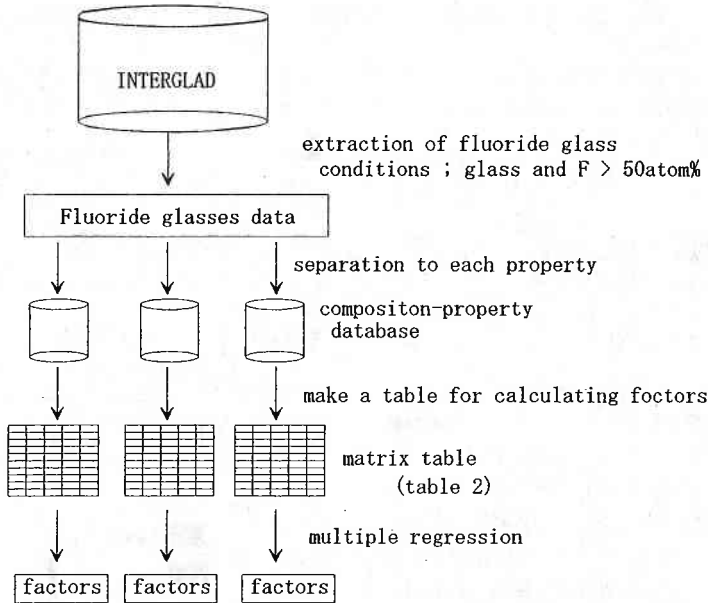


図3 フッ化物ガラスの加成性の係数算出フローチャート

表3 フッ化物ガラスの密度(kg/m³)の重回帰分析による結果

- A) すべてのデータを使用した場合
- B) 誤差10%未満のデータで行った場合

A)

標準誤差 = 0.1809 相関係数r2 = 0.9683 データ数 = 159

	BaF2	ZrF4	AlF3	NaF	ThF4	YF3		
係数	4.915	4.318	3.900	3.396	8.089	4.361		
標準誤差	0.225	0.119	0.343	0.142	0.280	0.423		
	PbF2	LaF3	LiF	CaF2	BeF2	ZnF2	YbF3	KF
	7.619	4.456	4.108	3.120	1.964	4.625	7.383	2.876
	0.415	0.472	0.160	0.503	0.058	0.211	0.326	0.234

B)

標準誤差 = 0.1052 相関係数r2 = 0.9880 データ数 = 152

	BaF2	ZrF4	AlF3	NaF	ThF4	YF3		
係数	5.132	4.190	3.521	3.650	7.768	4.322		
標準誤差	0.133	0.071	0.204	0.097	0.173	0.257		
	PbF2	LaF3	LiF	CaF2	BeF2	ZnF2	YbF3	KF
	7.851	4.456	4.108	3.120	1.964	4.625	7.383	2.876
	0.249	0.276	0.110	0.304	0.036	0.130	0.204	0.138

の分布を観察したところ、かなり実測値とかけ離れたデータが存在しており、これは、作成法による誤差あるいは単位による抽出エラーと考え、推定値と実測値の差が10%あるものをマトリックステーブルから削除し、再び重回帰分析を行うこととした。削除されたデータ数は、総データ数159に対し7件であった。回帰分析の結果が表3(B)、図4である。標準誤差0.1052、 $r^2=0.9880$ とかなりの相関性が観察された。したがって、この方法により、これらの成分からなるフッ化物ガラス系の密度の推測は可能であると考えた。また、フッ化物ガラス系で有用であるZYBLAN系(Zr-Y-Ba-La-Al-Na-F)のみのガラスを密度の再現の実例として示したものが表4で

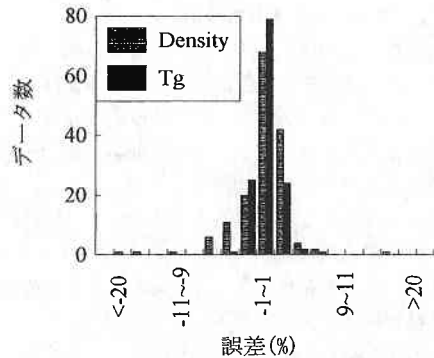


図4 フッ化物ガラスの密度とガラス転移点(Tg)の計算値と実測値の誤差の分布

表4 ZYBLAN系フッ化物ガラスの密度(g/m³)実測値と計算値の比較

組成						実測値	計算値	誤差(%)
BaF2	ZrF4	AlF3	NaF	YF3	LaF3			
26.7	51.7	3.5	13.8	4.3	0	4.13	4.349	-5.31
33	63	0	0	0	4	4.31	4.511	-4.67
30	62	0	0	0	8	4.34	4.494	-3.54
26	58.8	0	8	0	7.2	4.28	4.411	-3.06
25	63	0	0	0	12	4.34	4.457	-2.71
36	45	8	0	11	0	4.4	4.490	-2.05
22.5	56	0	15	0	6.5	4.31	4.338	-0.66
24	50	4	4	0	18	4.398	4.416	-0.40
35	54	4	0	7	0	4.52	4.502	0.40
18.4	58.3	2.9	5.8	0	14.6	4.387	4.351	0.81
37	47	6	0	10	0	4.55	4.511	0.85
37	45	8	0	10	0	4.54	4.498	0.92
37	39	14	0	10	0	4.5	4.458	0.94
34	57	4	0	0	5	4.54	4.497	0.95
36	45	8	0	11	0	4.54	4.490	1.10
15	50	0	30	0	5	4.23	4.183	1.12
27.6	55	4	4	0	9.4	4.481	4.427	1.21
17.5	52	0	25	0	5.5	4.3	4.235	1.52
30	62	0	0	0	8	4.58	4.494	1.88
33	58	4	0	0	5	4.61	4.487	2.66

表5 フッ化物ガラスの587.6nmにおける屈曲率の重回帰分析法による結果

(酸素が含まれているため組成の単位は atom% とした)

標準誤差 = 0.007819 相関係数 $r^2 = 0.9691$ データ数 = 110

	F	Ba	Al	P	
係数 $\times 100$	1.495	1.570	0.967	1.856	
標準誤差 $\times 100$	0.013	0.023	0.074	0.108	
Mg	Ca	Sr	O	Na	Y
1.320	1.402	1.265	1.609	1.201	1.490
0.063	0.041	0.046	0.025	0.041	0.071
K	Zr	La	Si		
1.120	1.649	1.576	1.682		
0.012	0.072	0.059	0.190		

あり、誤差数%で再現されていることが示されている。

他の物性に関して同様に解析したところ、ガラス転移点 (図4)、結晶化温度、軟化点、屈折率 (587.6nm)、アッペ数に関しては、 $r^2=0.95$ 以上の相関係数が得られ、かなりの精度で再現可能であることが示された。しかも、屈折率に関しては、フッ化物ガラスに $AlPO_4$ などからの酸素を含んだ混合アニオン系ガラスで解析したものであるが、表5に見られるようによく再現されることが例証された。

4.2.2 カルコゲナイドガラス

フッ化物ガラスは、イオン性の結合で形成されているためかなりの精度で加成性が成立していると推定された。しかし、このカルコゲナイドガラスは、一般の酸化物ガラスの酸素の代わりに、カルコゲン元素 (S, Se, Te) からなるカルコゲン化合物 (たとえば, As_2S_3 , $GeSe_2$) などで構成されるガラスである。このガラスの特徴は、結合が共有結合性であり、しかも、カルコゲン-カルコゲンという結合も存在することである。そのため加成性の成立は困難と予想された。

INTERGLAD からのデータの抽出は、まず S, Se, Te を含むガラスをすべて抽出することとした。そこから酸素を含んだガラスと、互いに重なり合うデータを削除して、カルコゲナイドガラス系のデータベースを作成した。そして、フッ化物ガラスと同様に、いくつかの物性のデータベースに分類した。

密度に関して選択した元素は、S, Se, Te, Ge, As, Hg, Ag, Tl であった。元素比は atom% とした。重回帰分析法により解析を行ったところ、その結果は表6(A)のとおりであった。標準誤差は0.3388とフッ化物ガラスと比較してやや大きく、相関係数 r^2 も0.8676となった。ここで、カルコゲナイドガラスの一般的な作成方法とは、硫化物やセレン化物、あるいは、金属と硫黄 (S) やセレン (Se) のような試料をガラス管に封入して作成するという特殊な方法が必要であり、また、化学的安定性にも乏しいため、そのデータの信頼性はまちまちである。そのため、比較的大きなばらつきが観察されたが、大多数のものは再現されていた。そこで、誤差10%以上のもの

表6 カルコゲナイドガラスの密度 (kg/m^3) の重回帰分析法による結果

- A) すべてのデータを使用した場合
- B) 誤差10%未満のデータで行った場合

A) 標準誤差 = 0.3388 相関係数 $r^2 = 0.8676$ データ数 = 254

	Se	Ge	Te	S	As	Hg
係数	4.412	4.549	5.569	2.173	4.982	12.37
標準誤差	0.845	1.781	1.287	1.042	1.446	4.998
Ag	Tl					
9.325	16.03					
3.141	6.648					

B) 標準誤差 = 0.1375 相関係数 $r^2 = 0.9795$ データ数 = 230

	Se	Ge	Te	S	As	Hg
係数	4.353	4.472	6.004	2.064	4.781	12.7
標準誤差	0.362	0.763	0.591	0.45	0.616	2.123
Ag	Tl					
9.564	21.57					
1.282	4.3					

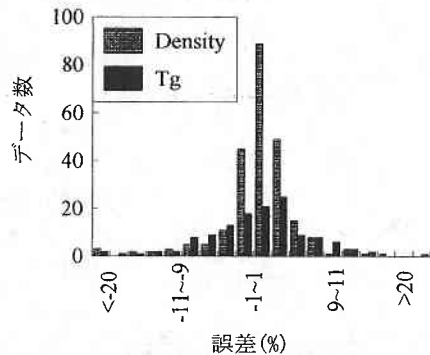


図5 カルコゲナイドガラスの密度とガラス転移点(Tg)の計算値と実測値の誤差の分布

のを削除すると、その解析結果は表6(B)になり、標準誤差0.1375、相関係数0.9795とかなり精度がよく再現されることがわかった (図5)。誤差10%以上のガラス組成を調査したところ、削除された一連のデータには関連性がないことも確認した。カルコゲナイドガラスの密度については、加成性の成立が確認された。

次に、ガラス転移点について検討した。密度と同様にすべてのデータを用いて分析を行ったところ、標準誤差56.783、相関係数0.6559と相関性があまり見られなかった (表7(A))。誤差10%以下のデータで解析したところ、相関係数0.9106という値が得られ、その組成とガラス転移点の関係が見られた (表7(B), 図5)。そこで、2成分系のデータでその相関性の有無を観察することとした。まず、カルコゲナイドガラスで一般的である S-As 系のデータを抽出し、各組成に対するガラス転移点の値を図6(A)にプロットした。このガラス系で最も安定な組成は As_2S_3 であり、図中の縦点線のところである。その線の左右で組成と物性の関係が異なっていることが観察された。この理由は、先に述べたとおりカルコゲン-カルコゲン結合 (この場合は S-S 結合) の有無で物性の変

表7 カルコゲナイドガラスのガラス転移点(K)の重回帰分析法による結果

A) すべてのデータを使用した場合
B) 誤差10%未満のデータで行った場合

A)

標準誤差 = 56.783	相関係数 $r^2 = 0.6569$					データ数 = 138
	Se	Ge	As	S	Te	Sb
係数	3.770	10.33	5.670	3.916	2.714	5.348
標準誤差	0.182	0.451	0.366	0.340	0.240	1.171
	Tl	Te				
	0.147	2.448				
	0.853	0.286				

B)

標準誤差 = 21.801	相関係数 $r^2 = 0.9106$					データ数 = 118
	Se	Ge	As	S	Te	Sb
係数	3.071	11.08	6.492	3.336	2.317	7.283
標準誤差	0.083	0.232	0.177	0.150	0.128	0.466
	Tl	Te				
	1.461	2.384				
	0.343	0.123				

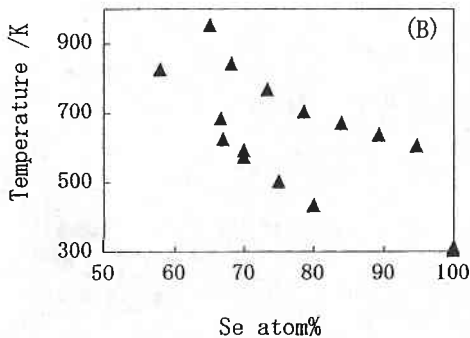
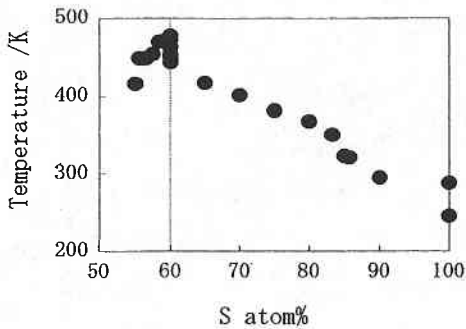


図6 2成分系カルコゲナイドガラスの組成とガラス転移点(Tg)の関係; A) S-As系, B) Se-Ge系

化が起きていると思われる。また、Se-Ge系(図6(B))を見ると2系統のデータであることがわかり、カルコゲナイドガラスのような特殊な方法で作成する、あるいは化学的安定性に問題があるガラスのときには、データの取捨を考慮しなければならない場合があることもわかった。

また、軟化点、結晶化温度などの他の物性についても、相関性が確認された。以上のことから、カルコゲナイドガラスに関しても、カルコゲン-カルコゲン結合を考慮

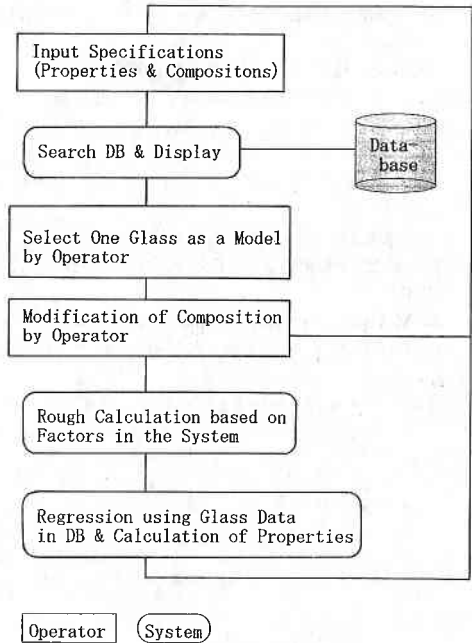


図7 データベースを利用したガラス材料設計システム概念図

する方法で挙げられるように、組成範囲を絞ることによって物性の再現が可能であり、データベースを利用した材料設計の可能性が例証された。

5. ま と め

セラミックス系材料の分野で、データベース化されたものは、未だ少なく、その開発が望まれる。ガラスの分野では、ニューガラスフォーラムの国際ガラスデータベースの構築により、データ数の多いケイ酸塩系の酸化物ガラスは勿論のこと、他のガラス系についても、条件付きではあるがかなりの精度で材料設計が可能となってきた。データベースの拡充とともに、知識ベースを用いたエキスパートシステムへの組み込み等により、ガラスの材料設計はいっそう高いレベルで行われることであろう。このデータベースを用いたガラス材料設計のフローチャートの概念図を図7に提示する。

最後に、セラミックス材料の材料設計を行うためにはデータベースが必須のものであるから、標準化の検討を行うとともに、データベースの開発および整備が一層進むことを期待する。
(1993年7月27日受理)

参 考 文 献

- 1) 窯業協会編集委員会講座小委員会編, "セラミックスのキャラクターゼーション技術", 窯業協会(1987), pp 1-3
- 2) 奥宮正太郎, セラミックス, 26(5), 446-451(1991)

- 3) 日本熱測定学会編, “熱力学データベース”, 化学技術社 (1987)
- 4) 横川晴美, 化学工学, 54, 736-41(1990)
- 5) 横川晴美, セラミックス, 26(5), 433-438(1991)
- 6) M. B. VOLF, “Mathematical Approach to Glass”, Elsevier (1988)
- 7) 山本良一編, マテリアルデザイン, 丸善(1988), pp 135-159
- 8) “化学物質設計等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)
- 9) A. Makishima et al, “Computer Innovation of New Materials”, Elsevier Science Publishers B. V. (1991), pp 891-896
- 10) ニューガラスフォーラム, “国際ガラスデータベース INTERGLAD” (1991)
- 11) I. Yasui and F. Utsuno, Bull. Am. Ceram. Soc. in press
- 12) I. Yasui and F. Utsuno, “Computer Innovation of New Materials 2”, Elsevier Science Publishers B. V. (1992), pp 1539-1544
- 13) 安井至ら, New Glass, 6(1), 4-24(1991)
- 14) 社ニューガラスフォーラム事務局, New Glass, 6(1), 25-32(1991)
- 15) INTERGLAD 取扱い説明書, ニューガラスフォーラム (1988)
- 16) 作花済夫, 境野照雄, 高橋克明編, “ガラスハンドブック”, 朝倉書店(1975), pp 592-593
- 17) M. L. Huggins, J. Opt. Soc. Am., 30, 420(1940)
- 18) VirtES ユーザーズマニュアル, 富士通株式会社(1993)