

平成16年3月 15日

氏名 川原 実



21世紀COEプログラム

拠点：大学院工学系研究科
応用化学専攻、化学システム工学専攻、
化学生命工学専攻、マテリアル工学専攻

“化学を基盤とするヒューマンマテリアル創成”

平成15年度リサーチ・アシスタント報告書

ふりがな 氏名	かわはら みのる 川原 実	生 年 月 日
所属機関名	東京大学生産技術研究所	
所在地	153-8505 東京都目黒区駒場 4-6-1	
申請時点での 学 年	博士 2年	
研究題目	分子動力学法の実用材料プロセスへの拡張に適用	
指導教官の所属・氏名	宮山 勝	

氏 名 川原 実

I 研究の成果 (1000字程度)

理論的計算手法は、化学においてすでに欠かせないものとなっている。しかし現実には材料の製造プロセスの現場に計算化学が導入されているかという、否という答えがほとんどのメーカーから返ってくるであろう。その理由の一つは、原子、分子の動力学を扱うことがいまだ難しいことにある。

上記の問題意識の元に、電荷移動法と汎用性の高い反応性力場を構築し、分子動力学法と組み合わせることによって、材料製造の実用プロセスに適用可能な計算手法を開発することが本研究の目的である。

まず成果の一つは、分子動力学法を電荷移動法である fluc-q 法とともに用いて、ガラス中における代表的な微量不純物である Fe の有効電荷が、ガラスの塩基度にどのように依存しているかを調べた結果を報告した。

非架橋酸素の増加、すなわち塩基度の増加は、高電荷側のピークを増大させることがわかった。非架橋酸素上の電荷密度は、架橋酸素よりも大きくなっており、配位した Fe の電気陰性度を下げることがこの原因であると考えられる。もしこれらの高電荷側のピークと低電荷側のピークをそれぞれ酸化状態、還元状態に対応付けることができるならば、塩基度、つまり非架橋酸素の増加は、酸素原子上の電荷密度の増大を促し、配位した Fe を酸化側に平衡移動させるという現象が解明できたと言える。

さらに、fluc-q 法を用い清澄プロセスのモデリングを試みた。清澄プロセスとは、ガラス製造段階で発生する気泡を除去するプロセスであり、透明性が大きな特色であるガラス材料にとっては最重要プロセスである。しかし清澄プロセスには、実験的に信頼のおけるデータは少ない。そこでガラスとしてソーダライムガラス、清澄剤として As を選択し、清澄プロセスを計算機で再現することを目指し、その過程を報告した。

As には二体ポテンシャルとしてクーロン項と共有結合性を表現するモース項を用いた。これにより酸素イオンの解離を表現した。Fluc-q 法を用いると、解離した酸素は原子状になるため、解離を表現できる汎用性の高い反応性の力場を構築することができる。結合距離は As_4O_6 、 As_4O_{10} 分子の構造を再現するように決めた。この分子の温度を上昇させた結果、原子状酸素の解離が観察された。O-O 間の結合にもクーロン項と結合次数により結合を生じることができるモデルを導入し、結合生成を記述した。このモデルは、ガラスや清澄反応のみならず、固相、液相、気相、分子系などあらゆる系に適用できる汎用性の高い力場である。さらに電荷移動法である fluc-q 法を用いることにより結合解離とクーロン項を何の複雑な取り扱いもなく組み合わせることができ、しかも古典 MD と同じくらいの計算コストでシミュレーションを行うことができる方法である。

このように、COE にふさわしい意義と成果を持つ研究を行うことができた。

氏 名

II. (1) 学術雑誌等に発表した論文A (掲載を決定されたものを含む.)

共著の場合、申請者の役割を記載すること.

(著者、題名、掲載誌名、年月、巻号、頁を記入)

氏名 川原実

II (2) 学会において申請者が口頭発表もしくはポスター発表した論文
(共同研究者 (全員の氏名)、題名、発表した学会名、場所、年月を記載)

1. 川原実・宇都野太・安井至
ガラス清澄プロセスの分子動力学シミュレーション
第14回秋期シンポジウム 2001年9月 @東京工業大学
2. 川原実・宇都野太・安井至
ガラス清澄プロセスの分子動力学シミュレーション
第2回 ガラスおよびセラミクス材料討論会
2001年11月 @松山市
3. 川原実・宇都野太・安井至
ガラス清澄プロセスの分子動力学シミュレーション
第16回 分子シミュレーション討論会
2002年12月 @新潟
- f. Kawahara, M., Utsuno, F., and Yasui, I.
Molecular Dynamics Simulations on a glass Refining Process
The 5th International Meeting of Pacific Rim
Ceramic Societies
2003年10月 @名古屋