

超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト

中間評価) 分科会 資料 7

「超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト」

事業原簿

【公開】

担当部	国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 材料・ナノテクノロジー部
-----	---

# 目次

## 概要

### プロジェクト用語集

#### 1. 事業の位置付け・必要性について

- 1.1 事業の背景・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1-1
- 1.2 政策上の位置づけ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1-2
- 1.3 NEDO が関与することの意義・・・・・・・・・・・・・・・・ 1-3
- 1.4 実施の効果（費用対効果）・・・・・・・・・・・・・・・・ 1-4
- 1.5 国内外の状況・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 1-4

#### 2. 研究開発マネジメントについて

- 2.1 事業の目標・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-1
- 2.2 事業の内容・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-3
- 2.3 事業の計画・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-4
- 2.4 事業の実施体制・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-5
- 2.5 研究開発の運営管理・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-6
- 2.6 研究開発成果の実用化に向けたマネジメントの妥当性 2-7
- 2.7 情勢変化への対応・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-8
- 2.8 中間評価結果への対応・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-9
- 2.9 評価に関する事項・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 2-9

#### 3. 研究開発成果について

- 3.1 事業全体の成果・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・ 3-1
- 3.2 研究項目毎の成果（担当：AIST、ADMAT）
  - 研究開発項目[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術・・・・・・・・ 3-8
  - ① キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発
    - ① -1 電気・熱等のマルチスケール伝導シミュレータの構築・・・・・・・・ 3-11
    - ① -2 分子、イオン・界面原子ダイナミクスに関するマルチスケール計算シミュレータの開発・・・・・・・・・・・・・・・・ 3-13
  - ② 外場応答材料と複雑組織材料の大規模計算シミュレータの開発
    - ② -1 第一原理多体計算に基づく外場応答の大規模計算シミュレータの構築・・・・・・・・・・・・・・・・ 3-15
    - ② -2 材料組織とマイクロ構造に関する計算シミュレータの構築・・・・・・・・ 3-18
  - ③ 機能性ナノ高分子のマルチスケール計算プロセスシミュレータの開発
    - ③ -1 ソフトマテリアル統合シミュレーションプラットフォーム OCTA の拡張・・・・・・・・・・・・・・・・ 3-22
    - ③ -2 機能性ナノ高分子材料のための粗視化シミュレーション機能強化・・・・ 3-28
  - ④ キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発・・・・・・・・・・・・ 3-33
  - ⑤ 深層学習・機械学習、離散幾何解析を用いた材料データの解析技術の開発

.....	3-36
研究開発項目[2] 高速試作・革新プロセス技術開発	3-40
⑥ 様々な界面制御技術による自在なヘテロ接合技術の開発	3-42
⑦ ポリマーブレンド・発泡プロセスに関する基盤技術	3-47
⑧ 自在合成を可能にするフローリアクターに関する基盤技術	3-52
⑨ ナノカーボンプロセスに関する基盤技術	
⑨ -1 CNT 線材作製プロセスに関する基盤開発	3-57
⑨ -2 大面積グラフェン高速合成および積層技術の基盤開発	3-59
⑨ -3.CNT 複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発	3-63
研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発	3-66
⑩ 表面・界面の構造計測とナノ領域の多物性同時評価-和周波分光とナノプローブ分光	3-69
⑪ 有機（無機）コンポジット材料の3次元マルチスケール構造評価：電子分光型電子顕微鏡、陽電子消滅およびX線CT	
⑪ -1 電子分光型電子顕微鏡	3-73
⑪ -2 陽電子消滅法とX線CT	3-78
⑫ フロープロセスの高感度 in-suit 計測：フロー型 XAFS および NMR	3-81
⑬ ナノカーボン材料の構造特性評価技術開発	
⑬ -1 CNT 電線の導電障害部を可視化する計測技術基盤開発	3-83
⑬ -2 積層グラフェンの局所電気特性計測に関する基盤開発	3-85
⑬ -3 CNT 複合材料評価に関する基盤技術開発	3-89

### 3.3 研究項目毎の成果（担当：AIST、EIDEC）

#### 研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発

3.3.1 全体の目標、計画、および成果	3-91
3.3.2 ナノ物質計測技術の構築	3-92
3.3.3 ナノ欠陥検査用計測標準技術の開発	3-97

## 4. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて

4.1 本プロジェクトにおける「実用化」の考え方	4-1
4.2 成果の実用化に向けた戦略	4-1
4.3 成果の実用化に向けた具体的取組	4-2
4.4 成果の実用化の見通し	4-3

（添付資料 1）プロジェクト基本計画

（添付資料 2）事前評価書

（添付資料 3）NEDO POST 結果

（添付資料 4）TSC Foresight 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

（添付資料 5）TSC Foresight ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

# 概要

		最終更新日	平成 30 年 8 月 3 日					
プロジェクト名	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト			プロジェクト番号	P16010			
担当推進部/ PMまたは担当者	材料・ナノテクノロジー部 PM 國谷 昌浩 (平成 28 年 4 月～現在)							
0. 事業の概要	<p>日本の産業競争力の源泉である素材産業を支援するに当たり、国内外の材料開発プロジェクトの動向を踏まえて、素材産業全体に共通する基盤性の高い技術として近年技術進展が目覚ましい計算科学・人工知能（以下「AI」という。）技術を材料開発に適用することで材料開発の試作期間・試作回数短縮を図る。</p> <p>研究開発項目[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術、[2]高速試作・革新プロセス技術開発、[3]先端ナノ計測評価技術開の項目を三位一体で研究開発する拠点を形成し、研究自体が萌芽的なマテリアルズインフォマティクスへの産業界の挑戦を産学一体になって取り組む。</p>							
1. 事業の位置 付け・必要性 について	<p>我が国の機能性材料の開発・製造を担う部材産業は、機能性化学分野を中心に、市場規模が相対的に小さいながらも高いシェアを確保しており、これらをまとめると大きな市場を獲得している。つまり日本企業の世界シェアが低い最終製品分野においても、それらを構成する部材・素材においては、我が国が中核的な地位を占めている状況である。他方、材料分野の論文・特許を分析すると新興国の追い上げが激しく、産業面で日本企業のシェアが高い機能性材料分野でも将来的な新興国における躍進が想定される。このような中、当該分野が将来にわたって日本の産業競争力の源泉であり今後も世界トップを走り続けていくために、第 5 期科学技術基本計画においても経済・社会課題への対応、(1)持続的な成長と地域社会の自律的な発展、③ものづくり・コトづくりの競争力向上の中で重要な事業として位置付けられている。</p>							
2. 研究開発マネジメントについて								
事業の目標	<p>【中間目標】（平成 30 年度末） 高機能材料・部材の研究開発支援を可能とする高度な計算科学、高速試作・革新プロセス技術、先端ナノ計測評価技術を駆使して革新的な材料開発基盤の構築を目指す。</p> <p>【最終目標】（平成 33 年度末） 従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮を目指す。</p>							
事業の計画内容	主な実施事項	H28fy	H29fy	H30fy	H31fy	H32fy	H33fy	
	[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術							→
	[2] 高速試作・革新プロセス技術開発							→
	[3] 先端ナノ計測評価技術開							→
事業費推移 (単位:百万円)	会計・勘定	H28fy	H29fy	H30fy	H31fy	H32fy	H33fy	総額
	一般会計	-	-	-				
	特別会計（需給）	1,197	2,561	2,423				
	総 NEDO 負担額	1,197	2,561	2,423				
	（委託）	1,197	2,561	2,423				
開発体制	経産省担当原課	産業技術環境局 研究開発課(平成 27 年～平成 29 年) 製造産業局 素材産業課(平成 30 年～現在)						
	プロジェクト リーダー	PL: 国立研究開発法人 産業技術総合研究所 理事 村山 宣光						

	委託先	<p><u>平成 28 年度</u>  ・研究開発項目 [1] [2] [3]  先端素材高速開発技術研究組合 (16 社)  (組合員: コニカミノルタ(株)、東ソー(株)、(株)村田製作所、パナソニック(株)、新日鉄住金化学(株)、日立化成(株)、DIC(株)、カネカ(株)、東レ(株)、積水化成品工業(株)、出光興産(株)、JSR(株)、昭和電工(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(株)、宇部興産(株))  (国研)産業技術総合研究所  【再委託先】(9 機関): (国研)物質材料研究機構、東北大学、名古屋大学、京都大学、筑波大学、東京大学、名古屋工業大学、大阪大学、公益財団法人高輝度光科学研究センター  ・研究開発項目 [3]  (株)先端ナノプロセス基盤開発センター、(国研)産業技術総合研究所  【再委託先】(4 機関): (国研)物質材料研究機構、大阪大学、京都大学、東京工業大学</p> <p><u>平成 29 年度</u>  ・研究開発項目 [1] [2] [3]  先端素材高速開発技術研究組合 (18 社)  (組合員: コニカミノルタ(株)、東ソー(株)、(株)村田製作所、パナソニック(株)、新日鉄住金化学(株)、日立化成(株)、DIC(株)、カネカ(株)、東レ(株)、積水化成品工業(株)、出光興産(株)、JSR(株)、昭和電工(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(株)、宇部興産(株)、古河電気工業(株)、日本ゼオン(株))  (国研)産業技術総合研究所  【再委託先】(11 機関): (国研)物質材料研究機構、東北大学、名古屋大学、京都大学、筑波大学、東京大学、名古屋工業大学、大阪大学、九州大学、奈良先端科学技術大学院大学、公益財団法人高輝度光科学研究センター  ・研究開発項目 [3]  (株)先端ナノプロセス基盤開発センター、(国研)産業技術総合研究所  【再委託先】(4 機関): (国研)物質材料研究機構、大阪大学、京都大学、東京工業大学</p> <p><u>平成 30 年度</u>  ・研究開発項目 [1] [2] [3]  先端素材高速開発技術研究組合 (18 社)  (組合員: コニカミノルタ(株)、東ソー(株)、(株)村田製作所、パナソニック(株)、新日鉄住金化学(株)、日立化成(株)、DIC(株)、カネカ(株)、東レ(株)、積水化成品工業(株)、出光興産(株)、JSR(株)、昭和電工(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(株)、宇部興産(株)、古河電気工業(株)、日本ゼオン(株))  (国研)産業技術総合研究所  【再委託先】(13 機関): (国研)物質材料研究機構、東北大学、名古屋大学、京都大学、筑波大学、東京大学、名古屋工業大学、大阪大学、九州大学、奈良先端科学技術大学院大学、豊橋技術科学大学、九州工業大学、公益財団法人高輝度光科学研究センター  ・研究開発項目 [3]  (株)先端ナノプロセス基盤開発センター、(国研)産業技術総合研究所  【再委託先】(4 機関): (国研)物質材料研究機構、大阪大学、京都大学、東京工業大学</p>
情勢変化への対応	<ul style="list-style-type: none"> <li>・PJ 開始当初 (2016 年度) から基盤技術の適用範囲拡大を目指すため、モデル材料の拡大を検討していたところ、NEDO の技術戦略研究センターの「ナノカーボン戦略」において、CNT やグラフェン等の応用製品開発が、従来の試行錯誤的な開発手法では開発スピードに限界があり、新手法であるマテリアルインフォマティクスを活用すること推奨されていたと共に、有識者ヒアリングを通じて、ナノカーボン応用製品開発が本PJで開発中の拡張 OCTA などと相性が良いことが判明。このため 2017 年度に本PJのモデル材料として「ナノカーボン材料」を追加して公募を行い、古河電気工業株式会社と日本ゼオン株式会社を実施者として採択し、先端素材高速開発技術研究組合の構成員に追加して研究を開始した。</li> <li>・2018 年 5 月に経済産業省が推進している Connected Industries 施策に対応して素材検討WGが大臣に答申した素材開発強化に向けた対応策として「A I 活用型素材開発のための標準データフォーマットの整備」が今後、国で対応すべき課題として提言された。これを踏まえ有機機能性材料の「データ創出」を指向している本PJにおいて、公知の「データ収集」を新軸輪として加え、2019 年度より本PJの両輪として実施することを経済産業省と確認。実施内容を具体化する為に、2018 年度 6 月より「今後の材料開発に必要な共通データプラットフォームに関する調査」を開始した。</li> </ul>	
中間評価結果への対応	本プロジェクトは 2018 年度に中間評価の実施を予定しており、現時点において未実施のため記載するべき事項は無い。	
	事前評価	平成 27 年度実施

評価に関する事項	中間評価	平成 30 年度実施		
	事後評価	平成 34 年度実施		
3. 研究開発成果について	研究開発項目	目標	成果	達成度
	[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術 (計算科学・AI)	対象となる機能を構造、組成等から導き出せる新規なマルチスケール計算シミュレータを構築する	・9種の(機能別)順方向予測マルチスケールシミュレータの公開 ・AI環境の整備 ・触媒インフォマティクスによる逆予測実現に向けて先駆的な成果	◎ (計画を前倒しでAI活用を実施)
	[2] 高速試作・革新プロセス技術開発 (プロセス)	研究成果項目[1]で開発するシミュレータの高精度化に貢献するために、シミュレータ結果に対するサンプルを精密に作製可能なプロセス手法を開発する	・粒径制御したナノ粒子の短時間合成に成功 ・ポリマーナノコンポジット/微細発泡体の連続製造試作装置の開発 ・反応機構と触媒活性種の解明	○
	[3] 先端ナノ計測評価技術開発 (先端計測)	研究成果項目[1]で開発するシミュレータの高精度化に必要な計算法として、研究成果項目[2]で試作されるサンプル等を“非破壊”又は“in suit”で評価を可能とする計測手法を確立する	・ナノ粒子の個々の相変化の測定に成功 ・難計測材料(ポリイミド)の空孔評価に成功 ・微細発泡体構造のマルチスケール解析を実現	○
	投稿論文	「査読付き」23件		
	特許	「出願済」5件		
	その他の外部発表 (プレス発表等)	研究発表・講演：98件、プレス発表：1件		
4. 成果の実用化・事業化に向けた取組及び見通しについて	本プロジェクトにおける実用化とは、開発したマルチスケールシミュレータやAI等の共通基盤技術が適切な管理の下、プロジェクト終了後も持続的にブラッシュアップ出来る運営体制を構築し、国内素材企業の材料開発支援に資することを言う。プロジェクト期間中より、研究成果届により報告書、プログラム、データ、ノウハウなどは知財の取り扱いと共に拠点に集約している。それら技術の蓄積を拠点においてオンデマンドで活用できるような体制を常に整えていく。現在産総研の提供する、コンソーシアム、共同研究、コンサルティング、共用設備等フレキシブルなシステムを駆使した柔軟な運用により、真の意味で産業界の求めるオンデマンドデータの創出と新規材料開発への適用が図られると期待される。			
5. 基本計画に関する事項	作成時期	平成 28 年 3 月 制定		
	変更履歴	平成 29 年 3 月、「非連続ナショナルプロジェクト」の選定を受け、文言を追記等		

## プロジェクト用語集

用語(日本語)	English	用語の説明
ABI	Actinic Blank Inspection	露光光と同じ波長による EUV 基板検査。
BC-PTA	Broadening Correction PTA	ブラウン運動のランダムさを補正した PTA による粒子径計測法。
bmp/png/jpg	bmp/png/jpg	画像ファイルの形式のこと。前から順に、ビットマップ、ポータブルネットワークグラフィックス、Joint Photographic Experts Group の略で、圧縮方法やデータのファイルへの格納方法等が異なる。
CAD	Computer Aided Design	コンピュータ支援設計(Computer Aided Design)のこと。主に、部品から自動車などのマクロな構造に対して、計算機の上で設計を行うことを指す。
CNT	Carbon nanotube	カーボンナノチューブ。炭素の同素体の 1 種。炭素の同素体で最も身近なものはグラファイト(炭)であるが、グラファイト中では、炭素のシートが無数に積み重なっている。CNT は炭素のシート(グラフェンシート)が丸まって円筒状になっており、円筒の直径は数 nm である一方、長さは数百 um に達する事もあり非常にアスペクト比の高い物質である。又銅の 100 倍以上の導電率、鋼の 100 倍以上の強度を持つとされ実用化が期待されている。
CT データ可視化解析	CT data visualization analysis	CT 測定からの三次元化された材料科学データを 2D/3D イメージとして可視化表示するとともに、マルチマテリアルや多孔質素材などの材質特性解析に基づく画像処理ならびに数値化によって、3D 構造での材質特徴の詳細を知るための解析技術である。
DLVO 理論	Derjaguin-Landau-Verwey-Overbeek theory	二つの界面が近づくときの電気二重層間の相互作用に基づいた疎水コロイド溶液の安定性に関する理論。
DNP-NMR	Dynamic Nuclear Polarization-Nuclear Magnetic Resonance	電子と原子核の相互作用を利用し測定感度を向上させた NMR 分光法(動的核偏極核磁気共鳴)。

DSA	Directed Self-Assembly	誘導自己組織化。
ECFP 法	ECFP method	Extended-Connectivity FingerPrints。有機分子中の部分構造の種類を特徴量として抽出する手法。
EDX(エネルギー分散型 X 線分光法)	Energy Dispersive X-ray spectrometry	電子線照射により発生する特性 X 線を検出し、エネルギーで分光することによって、元素分析を行う手法である。多くの場合、SEM、TEM や STEM と組み合わせて使用する。EDS とも呼ぶ。
EDX マッピング	Energy Dispersive X-ray spectrometry mapping	EDX 分析において、各点からの X 線放出量の違いを画像化したもの。
EELS		→ 電子線エネルギー損失分光。
FEM		→ 有限要素法。
FPT	Flow Particle Tracking	流れ場の中で粒子を追跡し PTA 原理により粒子径を算出する方法。
GI-SAXS	Grazing Incidence-Small Angle X-ray Scattering	微小角入射 小角 X 線散乱検出。
GPGPU	General-Purpose computing on Graphics Processing Units	元々の画像処理用途に限らず、数値計算や深層学習などに用いられる。
GUI	Graphical User Interface	コンピュータのポインティングデバイス(マウスやタッチ패드など)を用いて、情報の操作や表示を可能にする手順や規則を処理するプログラム群(インターフェイス)。
GW 近似	GW approximation	量子多体論における近似の一つ。遮蔽されたクーロン相互作用に関する摂動展開の最低次の近似。
h-BN	Hexagonal Boron Nitride	六方晶窒化ホウ素。
HS-AFM	High Speed Atomic Force Microscope	高速液中原子間力顕微鏡。
in-situ		→ その場観察。
In-situ AFM	In-situ Atomic Force Microscope	過渡変化計測可能な原子間力顕微鏡。
IPA	Isopropyl Alcohol	アルコールの一種。(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> CHOH。
Ir(イリジウム)	Iridium	原子番号 77 の元素。

KAPSEL	KAPSEL	コロイド・微粒子分散系シミュレータ。京都大学山本量一グループにより開発、公開されている。(http://www-tph.cheme.kyoto-u.ac.jp/kapsel)
Kohn-Sham 方程式	Kohn-Sham equation	密度汎関数法により定義される全エネルギーを最小化するために満たすべき方程式。波動方程式となっており、繰り返し計算によって解かれる。
LPC	Liquid Particle Counter	液中粒子計数器。
LWR	Line Width Roughness	ライン線幅ラフネス。
MPI	Message Passing Interface	並列計算のために CPU 間でデータを受け渡すインターフェース。
NMR	Nuclear Magnetic Resonance	磁場中に置かれた原子核が特定の周波数の電磁波と共鳴する現象。
NPTV	Nanoparticle Tracking Velocimetry	ナノ粒子を追尾し流速を評価する手法。
OCTA	OCTA	2002年に土井正男らによって開発されたソフトマテリアルの粗視化シミュレーションを行うための統合ソフトウェア。
On-line 分析	On-line analysis	フロー合成プロセスの流路から試料を自動的にサンプリングして連続的あるいは間欠的に分析を行うこと。
openCV	OpenCV	Python ライブラリの1つ。このライブラリを用いると、画像に関係する様々な解析などを行うことができる。
Os(オスミウム)	Osmium	原子番号 76 の元素。
pandas	Pandas	Python ライブラリの1つ。このライブラリは、python でデータを扱うための様々なインターフェースを備えている。
Pd(パラジウム)	Palladium	原子番号 46 の元素。白金族元素の一つで触媒や装飾品に使用される。
PDM	Programmed Defect Mask	作り込み欠陥マスク。
Pt(白金)	Platinum	原子番号 78 の元素。白金族元素の一つで触媒や装飾品に使用される。
PTA	Particle Tracking Analysis	粒子を追尾し、そのブラウン運動から粒子径を算出する方法。

PTFE	Polytetrafluoroethylene	テトラフルオロエチレンの重合体。フッ素原子と炭素原子からなるフッ素樹脂。テフロンの商品名で知られる。
Python	Python	Python(パイソン)は、高い汎用性を持ったオブジェクト指向型のスクリプト言語であり、様々な分野のアプリケーション開発において、簡易なコードでかつ高機能なシステムを構築することを可能にする高レベル言語である。人工知能関連解析の実装においては、事実上pythonを用いた開発が不可欠であり、AIデータ解析のための標準ライブラリ(scikit-learn、numpy、scipy、matplotlibなど)は、pythonの使用を前提に書かれている。
QM/MM 計算	QM/MM calculations	酵素中や溶媒中で起こる化学反応の計算をするとき、実際に化学反応が起こる部分を高精度な量子化学(QM)で扱い、反応に直接かわらない部分は計算コストが低い力場(MM)計算で取り扱う手法。
Rh(ロジウム)	Rhodium	原子番号 45 の元素。
Ru(ルテニウム)	Ruthenium	原子番号 44 の元素。
SCF		→ 自己無撞着場。
SNOM		→ 走査型近接場光学顕微鏡。
SQL	SQL	関係データベース管理システムにおいて、データの操作や定義を行うためのデータベース言語。
STEM		→ 走査透過型電子顕微鏡。
STL	STL	3次元の形状を、三角形を敷き詰めて、その三角形の形状情報をもとに面として表す標準的なフォーマット。
TCAD	TCAD	半導体デバイスの材質形状やドーパント不純物分布を予測する半導体製造プロセスシミュレーターと、デバイスの電気的特性を予測する半導体デバイスシミュレータからなる、半導体デバイス開発用のCADシステムをTCAD(Technology CAD)と呼ぶ。
TEKPol	TEKPol	DNP-NMR分光法における代表的な分極剤の一つ。
TG-MS	Thermogravimetry Mass-spectroscopy	試料を加熱により熱分解させながら、同時に発生ガスの種別を大まかに測定する手法。

UDF	UDF	OCTA のプラットフォームで扱うことができるファイル形式。
Web UI	Web User Interface	Web ブラウザからアプリケーションやサーバの設定を行うための GUI インターフェース。
XAFS(放射線吸収微細構造解析)	X-ray Absorption Fine Structure	X 線吸収スペクトル上で X 線の吸収端付近に見られる原子固有の構造である。XAFS の解析によって X 線吸収原子の電子状態やその周辺構造(隣接原子までの距離やその個数)などの情報を得ることができる。
XPS	X-ray Photoelectron Spectroscopy	試料表面に X 線を照射し、放出させる光電子の運動エネルギーを計測することで、構成元素の同定と化学結合状態を分析する手法。
XRD(X 線回折)	X-ray Diffraction	X 線が結晶格子で回折を示す現象。この現象を利用し、物質の結晶構造の同定や構造の決定を行う。
X 線 CT 計測技術	X-ray Computed Tomography measurement technology	X 線を全方位から照射することで得られた物体の断層像から、コンピュータによる画像再構成処理によって物体の表面や内部画像を三次元的に構成するための計測技術。材料科学分野では、集光径1ミクロン以下のコーンビーム型ナノフォーカス管 X 線源や二次元アレー検出器を用いることで、画像マイクロ分解能の向上や測定時間の短縮を図っている。CT データ可視化解析と組み合わせることで、材料の3D 精密解析が可能となる。
X 線エネルギー検出器	X-ray energy detector	X 線の強度や波長分布などのエネルギースペクトルを測定する検出器。近年、液体窒素を用いた冷却が不要である小型簡便な半導体検出器が開発され、時間応答性が早く、優れたエネルギー分解能などの特長を生かしてエネルギースペクトルの精密分析に用いられる。
圧電	Piezoelectric effect	物質に力(圧力)を与えると圧力に比例する電位(電荷)が現れる現象。
アウトガス	OutGas	材料から気体中に放出されるガス成分を意味する。
アッベ数	Abbe's number	屈折率の波長依存性を表す指標。

アニュラー型 EDS	Annular-type SEM-EDS	電子ビームを取り囲むように円形に配置されたシリコン検出素子(SDD)を用いたEDS装置。従来型と比較して著しく大きな立体角を有し、立体構造に影響されずに高感度測定が可能である。
アルドール縮合反応	Aldol condensation reaction	カルボニル基(C=O)をもつ化合物がアルデヒドやケトンと反応しβ-ヒドロキシカルボニル化合物が生成する反応。
液相還元法	Liquid-phase reduction method	微粒子の調整方法としては、物理的方法や化学的方法があるが、溶液とした原料に対し還元剤を用いて化学的に還元させる手法のこと。他の手法に対し、一般的には粒子径の制御が容易であること、生産性、コスト面において優位性があるといわれている。
エンブラ	Engineering plastic	強度と耐熱性に優れたプラスチック分類上の総称。
応力-歪特性	Stress-strain property	物質を変形(ひずみ)させた際に発生する力(応力)の変化、あるいは応力を加えた際に観察されるひずみの変化に関する特性。
オーダーN法	Order-N method	計算量が原子数(N)の数に比例して増加する計算手法。通常は $N^3$ に比例することからオーダーN法を用いることにより、大幅に計算量を減らすことが可能となる。
押出成形	Extrusion	プラスチック材料を押出機で加熱溶融後、ダイから押し出し、連続的に一定形状の成形品をつくる方法。
オルトポジトロニウム(o-Ps)	Ortho-positronium (o-Ps)	ポジトロニウムは、陽電子と電子がペアを組み、互いに束縛された状態。パラポジトロニウムとオルトポジトロニウムという2種類が存在し、真空中では、オルトポジトロニウムは140ナノ秒の寿命で消滅する。物質中では、オルトポジトロニウムは空隙の壁と相互作用をして140ナノ秒より短い寿命で消滅する。空隙のサイズが小さくなれば相互作用の頻度も高くなることから、オルトポジトロニウムの寿命を測定することにより、サブナノメートルからナノメートルの空隙サイズを見積もることができる。
オレフィン	Olefin	炭素-炭素二重結合を有する化合物。

カーン-ヒリアード 方程式	Cahn-Hilliard equation	2相流体の相分離のプロセスを扱う方程式。
ガウス曲率	Gaussian curvature	曲面の点を通る2つの軸における主曲率の平均値。
化学シフト(の異方 性)	Chemical shift (Anisotropy)	NMR分光法にて観測される共鳴シグナルの各原子核が持つ固有値。(原子核の空間的な配向の違いによって化学シフトに分布が現れる)
過学習	Over-fitting	機械学習において、訓練データに対して過度に適合するよう学習すること。 過学習は未学習のデータに対して正しい答えを出力できなくなるため、正則化等の手法を用いて過学習を防ぎながら学習を行うのが一般的。
架橋型ポリスチレン	Cross-linked polystyrene	ポリマー鎖同士が部分的に架橋された構造を持つポリスチレン。
核スピン	Nuclear spin	原子核の自転運動。これにより原子核は磁石に似た性質を示す。
荷重たわみ温度	Deflection temperature under load	プラスチックにおける高温剛性の評価指標。試験片に規定の3点曲げ応力を加え、一定速度で昇温し、規定たわみに達した温度で表される。
乾式紡糸	Dry spinning	基板に垂直配向したCNTから紡糸する方法。
記述子	Descriptor	AIに与える入力情報に当たる変数のこと。説明変数ともいう。
気相法	Gas phase method	CNTを気化させたドーパントに暴露させる方法。
逆ガスクロマトグラ フィー	Inverse gas- chromatography	一般的なガスクロマトグラフィーと異なり、測定対象を詰め込んだカラムに既知のプローブガスを複数種流すことにより、プローブガスと測定対象との親和性を評価することが出来る。また、モデル式を用いることで、測定対象の表面エネルギーを推定することが可能である。
逆ミセル	Reverse micelle	界面活性剤を非水溶媒に溶かすと、親油基を外に親水基を内に向けて会合したもの。
吸収端	Absorption edge	内殻の電子が励起されるときにX線吸収スペクトルが急峻に変化するところ。

教師なし学習	Unsupervised learning	事前にラベルのついていないデータに対して、その特徴を自動的に捉えてラベルを付与しデータを分類する技術。すでにラベルのついたデータを元に分類するものを教師あり学習と呼ぶ。
近接場光	Optical near-field	プリズムの全反射面や微細構造に光を照射した際に生じる非伝搬光。微細構造の周りに発生する際にはほぼその構造のサイズと同程度の範囲にのみに生じる。
空隙率(発泡ポリマーの)	Porosity	発泡ポリマーの体積に占める空気(空隙)の割合を示す値。断熱材では90%以上のものが大部分。また、元のポリマーに対して体積が何倍に増えたかという指標(発泡倍率)もよく使われる。
グラフェン	Graphene	黒鉛の一層
グリーンケミストリー	Green chemistry	化学製品の生産から廃棄までの全工程において生態系に与える影響を最小限にし、かつ経済性を向上させようとする次世代の化学工業。
グリーン関数	Green's function	微分方程式において境界条件、初期条件を含んだ解。その微分方程式が物理系を記述する場合、位置や時間が指定されたある状態が他の状態へ伝播する過程を表す関数であり、状態間の相関を与える。1電子のグリーン関数が得られれば、電圧を与えた時の電流などの1電子物性の応答が計算できることになる。
グローバル反応経路マップ	Global Reaction Route Mapping (GRRM)	量子科学計算に基づき、化学反応経路を自動的に探索するプログラム。 <a href="http://iqce.jp/GRRM/">http://iqce.jp/GRRM/</a>
ゲイバーンポテンシャル	Gay-Berne potential	楕円体形状をした粒子間の相互作用を扱うためのポテンシャル関数。液晶のシミュレーションによく用いられる。
ケルビンプローブフォース顕微鏡(KPFM)	Kelvin probe force microscopy	AFMをベースとして、プローブに交流電圧を印加し、試料電位との相互作用をプローブの振動として取り出し、これをもとに試料電位を測定できるようにしたプローブ顕微鏡の一種。

コア-シェル	Core-shell	コアは核、シェルは殻を意味し、一つの粒子で核と殻の素材が異なる構造をもつものをこのように呼ぶ。コアシェル構造などともいわれる。
コアシェル触媒	Core-shell catalyst	触媒活性の高い原子を外側(シェル)にし活性の低い原子で粒子の内部(コア)を置き換えた触媒。
光学伝導率	Optical conductivity	周波数に依存した外部電場と電流密度の関係式において、前者の係数を光学伝導率と呼ぶ。
固定化触媒	Immobilized catalyst	不均一系触媒の1種。分子触媒を、反応液に不溶な固体物質(担体と呼ばれる)表面に結び付けた固体状態の触媒。触媒機能を果たすのは分子触媒部分だが、形状は固体のため、触媒と生成物の分離が容易。
古典溶液理論	Classical liquid theory	溶液分子を古典的に扱う手法。溶媒分子の分布関数を計算することが可能。
混合自由エネルギー	Mixing free energy	2種以上の物質を混合させた場合の自由エネルギー変化。この値が負の場合、混合した方が自由エネルギー的に安定となり、物質は自発的に混合する。
混合モデル	Mixture model	入力情報の特徴に応じて使用する関数を切り替えるタイプのAI設計のためのモデル。混合ガウス分布や混合線形モデルなどが一般的。
サーモクロミック	Thermochromic	物質の光学特性(透過、反射、吸収等)が温度に依存して可逆的に変化すること。
散逸粒子動力学	Dissipative Particle Dynamics (DPD)	粗視化シミュレーションの一種。元々流体力学に基づいたモデルであるが、粒子間をばねで結合し高分子鎖として扱い、相分離等をシミュレーションするために用いられている。
参照相互作用点モデル	Reference Interaction Site Model (RISM)	溶質分子周りの溶媒の分布関数を記述する統計力学理論の一つである。第一原理計算と連成させることにより溶媒の効果を取り入れながら、分子、固体、さらに表面・界面の電子状態計算が可能。
自己無撞着場	Self-Consistent Field (SCF)	高分子シミュレーションにおいては、高分子鎖の分布により生じるポテンシャル場。高分子の分布に影響を及ぼすと同時に、高分子の分布により変化もするため、直接解くことができず、繰り返し計算により求める。

自然軌道	Natural orbital	電子の波動関数の表現方法の一つ。電子密度行列の固有関数を自然軌道と呼ぶ。
湿式ジェットミル	Wet-type jet mill	液体の媒体に最大 200MPa 程度の高圧を加え、数 100 $\mu\text{m}$ 程度の太さの流路からなる特殊構造ノズルを通過させることを特徴とする処理装置。本 PJ では、無機ナノ粒子の解砕処理に用いている。
湿式紡糸	Wet spinning	CNT 分散液を凝集液に押し出し、線材化する方法。
周期境界	Periodic boundary	シミュレーションにおいて、取り扱う系の境界面をつなぎ合わせて、周期的に繰り返される構造として計算する境界条件。
消光係数	Extinction coefficient	複素屈折率 $m$ を実部と虚部に分解して $m=n-ik$ と表記したとき、実部 $n$ は通常の屈折率を表し、虚部 $k$ は消光係数と呼ばれ、光吸収の度合いを表す。
触媒塊	Bulk catalyst	固体状の触媒の塊。
人工力誘起反応法	Artificial Force Induced Reaction (AFIR)	GRRM プログラムに含まれる量子科学計算に基づく、化学反応経路の自動探索法の 1 つ。反応物同士の間には適当な人工的な力をかけることで、それらが結合していく反応過程を効率的に計算する方法。 <a href="http://iqce.jp/category/GRRM_T10.shtml">http://iqce.jp/category/GRRM_T10.shtml</a>
水熱合成法	Hydrothermal synthesis	水溶液中の化学反応を用いたナノ粒子合成法の一つであり、高温高圧の熱水の存在下で行われる。本研究では特に、マイクロ波加熱を用いたバッチ式合成法と超臨界水を用いた連続式合成法を採用している。
スーパーグロース法	Super-Growth method	2004 年に産総研で見出された単層 CNT の合成手法で、化学気相成長 (CVD) 法を用いた単層 CNT 合成法であり、高温に加熱した加熱炉内で単層 CNT を合成する際に、水分を極微量添加することにより、触媒の活性時間および活性度を大幅に改善した方法。
ストークス近似	Stokes approximation	ナビエ-ストークス方程式の対流項を無視した近似。遅い流れを取り扱う場合に成り立つ。

走査型近接場光学顕微鏡 (SNOM)	Scanning near-field optical microscopy	AFM をベースとして、プローブ先端に生じる近接場光を用いて試料の光学特性を評価するプローブ顕微鏡。近接場光がプローブ先端の曲率半径程度に集中するため、光の回折限界を超えたナノ領域の空間分解能を有する光学測定が可能となる。
走査型原子間力顕微鏡 (AFM)	Atomic force microscopy	先鋭なプローブの先端を試料表面に近づけた際に働く原子間力を検知して、プローブと試料間の原子間力を一定に保つように制御しながらプローブを走査することで試料表面上の凹凸構造をナノレベルで計測できるプローブ顕微鏡。
走査透過型電子顕微鏡	Scanning transmission electron microscope	0.1 nm 以下程度まで細く絞った電子線を試料面上で走査させ、透過した電子を検出して、走査像を得る電子顕微鏡である。
相変化	Phase transitions	温度など外部刺激や組成の変化で物質の構造が異なる状態(相)に移る現象。
相容化(剤)	Compatibility (compatibilizer)	非相溶ポリマーブレンドでは、多くの場合単純に混ぜただけでは性能が悪い。機械的特性を上げるために、分散性や界面強度を上げること、また、このために添加する化合物を相容化剤と呼ぶ。
粗視化	Coarse-graining	物事を粗く見るアプローチ。分子シミュレーションの場合、複数の原子を一つの単位(粗視化単位)として扱うこと。
その場観察	In-situ	反応が触媒表面で起こるため、反応中の触媒表面を観測する手法。
素反応	Elementary reaction	反応物が1段階で遷移状態を通して生成物に至る化学反応。
ソフトウェアプラットフォーム	Software platform	シミュレーション結果などを統合的に扱うための共通基盤ソフトウェア。
第一原理計算	First-principles calculation	計算対象となる系の各構成元素の原子番号と構造のみを入力パラメータとし、調整パラメータや実験結果を用いることなく、シュレディンガー方程式等に基づく基礎方程式を数値的に解いて、その系の電子状態を求める計算方法。一度に計算可能な原子数の限界は千個程度。

耐衝撃性(シャルピー衝撃強さ)	Charpy impact strength	衝撃特性及び靱性の評価指標。試験片にハンマーで衝撃を加え、破壊時に吸収される単位断面積当たりの衝撃エネルギーで表される。
タイトバインディング法	Tight-binding method	強結合近似ともいわれ、電子の原子間の飛び移りと電子上でのエネルギーのみを考慮し電子状態を計算する手法。
多体電子論	Many-body electron theory	電子間相互作用を考慮した量子力学の理論。
弾性率	Elastic constant	応力とひずみの関係を現わす係数。応力とひずみが比例する線形弾性体の場合 弾性率 = 応力 / ひずみ で定義される。
単層 CNT	Single-walled carbon nanotube	炭素原子だけで構成される直径が 0.4~50 nm の一次元性のナノ炭素材料。その化学構造は、グラファイト層を丸めてつなぎ合わせたもので表され、層の数が 1 枚だけのものを単層 CNT と呼ぶ。
単層、多層	Single layer, multi layer	CNT のグラフェンシートの層数を指す。CNT は何層かによって大きく物性が左右され、一般には単層が優れた物性を示すことが多い。
チャネル材料	Channel material	デバイスにおいて配線電極間に配置され、電子等のキャリアが流れる部分の材料。
中空糸膜	Hollow fiber membrane	マカロニのように孔の開いた繊維形状をした分離膜。繊維中にも内側と外側を貫通する微小な孔が存在し、ろ過、透析などに用いられる。
直接紡糸	Direct spinning	CNT を合成炉から直接防止する方法。
ディラック点	Dirac point	グラフェンのエネルギーバンドは、2 つの円錐がそれぞれの頂点で接しているような形をしている。この上下 2 つの円錐が接する点をディラック点と呼ぶ。

電界誘起効果	Electric-field induced effect	<p>和周波(SFG)分光では、対象となる試料に電場が加わっている場合、その電場強度に応じて信号強度が変化する現象がみられる。この時 SFG の信号強度は、系に働く電場強度 <math>E_0</math> の二乗で変化する。</p> <p>この電界誘起効果はバルクに蓄積した内部電荷に起因するために、界面からの微弱な SFG 信号は圧倒的に強いバルク信号に消えてしまうことになる。一方で、この電界誘起効果を利用すれば、有機デバイス内部に蓄積された内部電荷により発生する電界強度に比例するため、得られる SFG は素子内部の電荷および電荷によって作り出された電場の様子を強く反映したものとなり素子の駆動状況をその場計測することが可能となる。</p>
電子線エネルギー損失分光	Electron energy loss spectroscopy	電子エネルギー損失分光。試料を透過した電子線がエネルギーを失うことにより発生する非弾性散乱電子の分光法。
電子相関効果	Electron correlation effect	一つの電子の存在により、別の電子の振る舞いが影響を受けることを電子間相互作用と呼ぶ。このうち、ハートレー・フォック近似で考慮される交換効果以外のものを相関効果と呼ぶ。
電子分光型電子顕微鏡	Energy Filtering Transmission Electron Microscopy (EFTEM)	試料を電子線が透過する際にエネルギーを損失した電子(非弾性散乱電子)を分光し、任意の損失エネルギーの電子で結像する機能を有する透過型電子顕微鏡。
テンソルフロー	Tensorflow	Tensorflow は Google 社が提供しているデータフローグラフを用いた数値計算用のオープンソースソフトウェアライブラリである。Caffe、chainer などと並ぶニューラルネットワーク開発のための標準ライブラリで、python、C 言語、Java などに対応している。
電歪挙動	Electrostrictive behavior	電場を印加した際に、応力あるいはひずみを発生現象。
動的核分極	Dynamic nuclear polarization	電子スピンと原子核スピンの相互作用を利用して、原子核スピンの分極を増大させる方法。

動的光散乱法	Dynamic light scattering method	液体中の粒子がブラウン運動により拡散する速度を計測することで分散状態（粒子径、分布）を調べる測定方法のこと。
動的平均場	Dynamic mean field	自己無撞着場（平均場）の計算において、物質の拡散による経時変化を扱う手法。
ドーパント	Dopant	ドーピングのため CNT に導入する物質。
ドーピング	Doping	CNT の導電率を向上させるために電子供与性又は吸引性の物質を CNT に付着させる処理を指す。
ナノコンポジット	Nanocomposite	ナノメートルスケールで異種物質を混合、分散した複合材料。
ナノプローブ分光	Nano probe spectroscopy	原子間力顕微鏡 (AFM) と近接場顕微鏡 (SNOM) を合体させた試料表面の構造と物性（光学特性）を同時に計測する技術。
ナノ粒子	Nanoparticles	一般的に 1~100 nm 程度の粒径(直径)の粒子のこと。ナノ粒子といわれるまで小さくすると、新しい機能や特性が出現することが多く、現在注目されている。
ナビエーストークス方程式	Navier-Stokes equation	粘性流体の運動を記述する方程式。
ニューラルネットワーク法	Neural network method	ニューラルネットワーク法は機械学習分野における非線形モデリング手法の一種である。ネットワークの構成によって複雑な関数であっても高精度にフィッティングすることが可能であり、出力層と入力層の間に多数の中間層を設けたものをディープラーニングと呼ぶ。
パーコレーション（閾）	Percolation threshold	パーコレーション理論に基づく用語であるが、一般的にフィラー充填量を増やしていった際に導電性が急激に上昇する現象、およびその閾値のこと。
パーシステントホモロジー	Persistent homology	異なった解像度を持つ空間の位相幾何的な特徴を計算する手法。
配向	Orientation	結晶や繊維などが一定の方向に配列する事。
バイナリ(ファイル)	Binary (file)	パソコン、計算機のみで読める形式のことで、テキスト形式に対比される形式のこと。
ハイブリッド量子古典法	Hybrid quantum/classical method	(高)分子系で用いられる量子/古典法を、稠密な固体を含む場合にも適用可能となるように改良した手法。

ハマカーポテンシャル	Hamaker potential	コロイド粒子などメソスケールの粒子、あるいは平板間の相互作用を現わすポテンシャル関数。形状により異なる関数形を取る。
バンド(弾道)伝導機構	Band (ballistic) transport	電子等のキャリアが他のキャリア粒子や格子振動(フォノン)、不純物等に散乱されことなく伝導体中を通過する伝導機構をバンド伝導(弾道伝導)機構という。第一伝導計算によって得られるデバイスの抵抗は、伝導体の電子状態(バンド)構造由来のもの、伝導体と電極間の接触抵抗から構成される。
バンドル	Bundle	ある一定の量の繊維状物質が束になってひとまとまりとなったものの事。CNTは繊維状物質なのでバンドルを形成する。
微細藻類	Microalgae	水中に存在する顕微鏡サイズの藻類の総称。その多くは陸上植物と同様に光合成を行うが、脂質生産能力は陸上植物よりも高い種類が多く、種類によっては乾燥重量70%を超えるものも存在する。
引張弾性率	Tensile modulus	引張応力とひずみの比例定数であり、材料の変形のしやすさを表す指標。
非溶媒誘起相分離	Non-solvent Induced Phase Separation (NIPS)	高分子溶液を、相溶性の低い非溶媒に接触させた場合、溶媒と非溶媒が拡散により交換する過程で生じる液液相分離。
表面改質	Surface modification	CNT等の材料の表面を官能基により修飾すること。
フェーズフィールド法	Phase field method	メソスケールの秩序形成をシミュレーションする手法の一つ。秩序変数を導入し不均一な場を扱う連続体モデル。
複素屈折率	Complex refractive index	屈折率は、物質中の光の伝搬を表す物理量であり、複素屈折率は、屈折率の定義を光吸収のある物質に対して拡張するために定義された物理量のこと。
複素誘電率	Complex dielectric constant	物質が電磁波中に置かれた際に生じる交流分極と電磁波との間の比例係数。吸収体や金属においては分極に虚数成分が生じるため、誘電率も複素数となる。
プラズマ CVD	Plasma Chemical Vapor Deposition	プラズマを援用する化学気相合成。

フルバンド半古典ボルツマンシミュレーション(モンテカルロフルバンドデバイスシミュレータ)	Full-band semiclassical Boltzman simulation	第一原理計算等から得られる伝導体材料のバンド構造から、直接電界によるキャリア加速走行を決定し、他粒子でキャリアを代表させて各種散乱因子の乱数で選択を逐次繰り返すことにより、ボルツマン方程式を解いてキャリアの分布関数を求める方法。これを実装したシミュレータをここではモンテカルロシミュレータと呼んでいる。
フローリー-ハギンス理論	Flory-Huggins theory	高分子の混合自由エネルギーを計算する理論。相溶性パラメータと鎖長に基づき混合自由エネルギー変化を求め、相分離挙動を予測する。
フロー合成	Flow synthesis	バッチ反応器を用いた反応プロセスに対し、原料を連続供給し、製品を連続的に生産するための反応プロセスである。
プロモーター	Promoter	反応で使用される主たる触媒本体と組み合わせることで、触媒反応を促進する物質。
分極剤	Polarization agent	マイクロ波照射下で DNP 効果を引き起こす化合物。
分子触媒	Molecular catalyst	均一系触媒の1種で錯体触媒とも呼ばれる。反応液に溶けた状態、すなわち均一系で作用する触媒。化学反応を精密に制御できるメリットがある一方、触媒と生成物の分離が困難というデメリットがある。
分子動力学シミュレーション	Molecular dynamics simulation	分子シミュレーション手法のひとつ。原子に働く力に基づき、運動方程式を解くことにより分子のダイナミクスをシミュレーションする。
平均曲率	Mean curvature	曲面の点を通る2つの軸における主曲率の積。
ヘイズ	Haze	フィルムなどの透明性を表現する指標であり、通常%で表す。曇度ともいう。 ヘイズ(%) = 拡散透過率 / 全光線透過率 × 100 で得られる。数値が小さいほど透明である。
ベイズ最適化	Bayesian optimization	数式が与えられていない関数の最大値(最小値)を求めるための手法で、網羅的な探索やランダムな探索よりも効率よくこれらの値を求めることができる。
ポイントクラウド	Point cloud	点の集合、例: 三次元空間内の質点群。

ホッピング伝導機構	Hopping transport	電子等のキャリアとフォノン等の散乱効果が大きい場合、バンド伝導には寄与しないキャリアがエネルギーを得て伝導体中を流れる。これをホッピング伝導機構という。
マスク 3次元効果	Mask 3D Effects	マスクの 3D 構造により露光光の回折分布に与える影響の事。
マルコフ連鎖	Markov chain	離散的な状態遷移を扱う確率過程の一種。未来の挙動を現在の状態のみに依存するものとして定式化したもの。時間とともに分布が変わらない状態(定常状態)の解析などに用いられる。
マイクロ相分離	Micro phase separation	ブロックコポリマーを構成するブロック間が相溶せずに液液相分離により多相構造を形成すること。
密度汎関数法	Density functional theory	物質の全エネルギーは電子密度の汎関数として定義し、最小化することにより基底状態を求める手法。結晶の格子定数や分子の結合長などの物理量を精度良く計算できる。
モルフォロジー	Morphology	構造。
有機電界効果トランジスタ	Organic field effect transistor	無機のシリコンではなく有機半導体薄膜を用いたトランジスタ。塗布やインクジェット法などによる成膜が可能で、有機材料の特性により P 型、N 型を作り分けることが可能であるなど次世代の半導体として注目される。
有限要素法	Finite element method (FEM)	連続体モデルの数値解析手法の一つ。連続体を小領域(要素)に分割し解く方法。有限差分法に対して要素形状に任意性を持たせることができる。
有効遮蔽媒質法	Effective Screening Medium (ESM) method	Poisson 方程式を Laue 表示し解析的にグリーン関数を解く方法。実空間方向の境界条件を任意に変更することが可能なことから、表面・界面の計算において様々な物理モデルを構築することが可能。
誘電関数	Dielectric function	物質に外部電場を印加すると誘電分極を生ずる。電束密度に対する外部電場の係数を誘電関数と呼ぶ。

誘電正接	Dissipation factor	誘電体での電気エネルギーの損失の強さの指標。複素誘電関数の実部と虚部の比で表されるため、「タンジェント・デルタ」と呼ばれることもある。
溶液法	Solution method	CNTをドーパントの溶液に浸漬させる方法。
陽電子寿命測定	Positron annihilation lifetime spectroscopy	陽電子およびポジトロニウムの物質中での寿命を測定することにより、材料中の極微欠陥や空隙の有無やサイズを評価することができる。
リー-エドワーズ境界条件	Lees-Edwards boundary condition	流体あるいは分子動力学シミュレーションなどにおいて、せん断流動を与えるための境界条件。
力場	Force field	周辺粒子の座標情報から、粒子に働く力を計算するための関数。パラメータを実験結果に合うよう設計されたものをしばしば古典力場と呼ぶ。
臨界過飽和濃度	Critical supersaturation	溶液が溶解度以上の物質を含んでいる状態を過飽和といい、核が生成し成長し新しい相が出現を始める過飽和濃度のこと。
レジスト	Resist	感光性材料。一般的には高分子樹脂。
レナード-ジョーンズポテンシャル	Lennard-Jones potential	原子間あるいは粗視化粒子間の相互作用を現わす最もポピュラーなポテンシャル関数。分散力(引力)項と斥力項からなる。
ロール・ツー・ロール	Roll-to-roll method	ロール状に巻いた基材を送り出して表面に目的物質を成膜・印刷し、再びロールに巻き取る生産性に優れた製造法。
ロックイン式発熱解析法	Lock-in thermography method	従来はS/N比向上に用いられてきたロックイン発熱手法を、幾つかの熱成分の周波数分離に用いて、材料の構造・電流経路情報を可視化する手法。試料準備も簡易で、導電性ナノ材料全般に適用可能な汎用性を有するため、プロセス条件の検証等にも活用可能。
和周波発生分光	Sum-frequency generation	高強度の光電場化で起こる2次の非線形光学効果の一つ。対称中心のある系では起きないため表面・界面選択的な分光法として知られる。

# 1. 事業の位置付け・必要性について

## 1.1 事業の背景

近年の最先端製品では、機能性材料の先進的な機能がもたらす付加価値によって製品全体の差別化が図られている場合が多い。このため社会要請に合致した素材機能についての戦略的ターゲットを絞り込み、素材そのものの機能が最大限発現するプロダクトイノベーションを誘発することが、我が国素材産業の提案力の高度化、ひいては産業全体の競争力強化につながると考えられる。国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（以下「NEDO」という。）技術戦略研究センター（以下「TSC」という。）の「平成 26 年度日本企業の国際競争力ポジションに関する情報収集」によると、我が国の機能性材料の開発・製造を担う部材産業は、機能性化学分野を中心に、市場規模が相対的に小さいながらも高いシェアを確保しており、これらをまとめると大きな市場を獲得していることが分かる。つまり日本企業の世界シェアが低い最終製品分野においても、それらを構成する部材・素材においては、我が国が中核的な地位を占めている状況である。従って本分野は日本の産業競争力の源泉であり、今後も世界トップを走り続けていく必要がある。

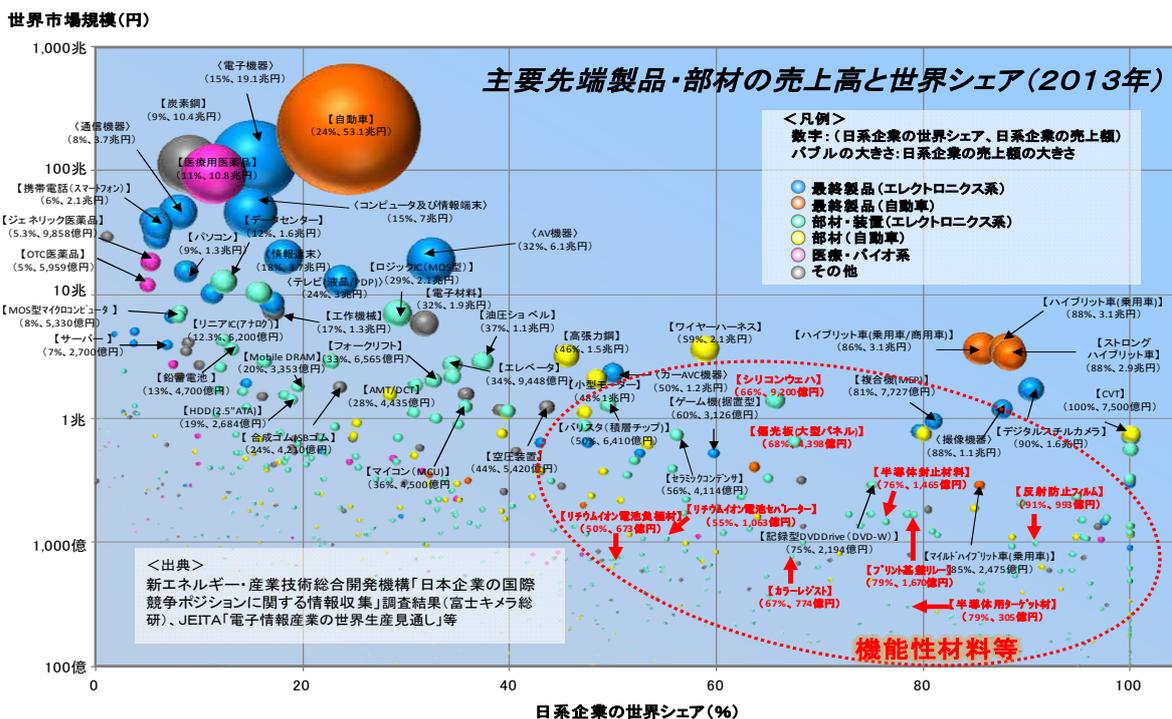


図 1-1 主要製品・部材の市場規模と日本企業の世界シェア (2013年)

TSC が分析した各国の学術論文数の被引用比率(図 1-2)を見ると、物理、材料科学、化学、工学を含む多くの分野で比率が年々低下しているが、中国では逆に大きく比率を伸ばしている。これは現在、産業面でシェアが高い機能性材料分野でも将来的な新興国における躍進が想定される。

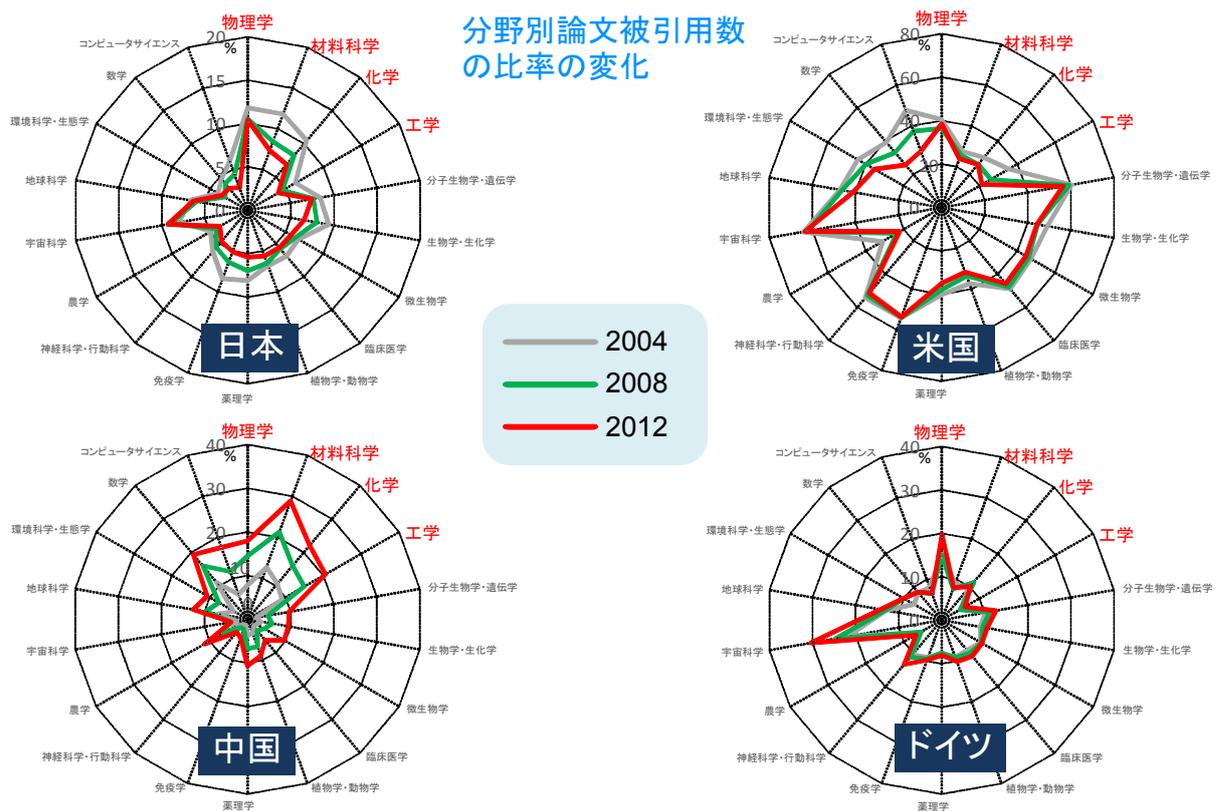


図 1-2 分野別の学術論文被引用数比率の変化（2004-2012 年）

（経産省「我が国の産業技術に関する研究活動の動向」第 14 版（2014）を基に NEDO TSC 作成）

また平成 27 年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集等より METI が分析した結果によると、機能性材料分野（例：電子材料）では以下のような環境変化が挙げられている。

- ユーザー側の製品サイクルの短期化
- 市場規模の拡大に伴う新興国メーカーの参入と積極的な投資
- 多数ある日本企業間の競争激化
- 市場シェアの低下とコモディティ化の加速

特に「市場シェアの低下とコモディティ化の加速」は、ユーザー産業ニーズへの迅速な対応やそれらを取った開発・提案を可能とするイノベーションの質とスピードの高度化が求められる厳しい状況に於かれているものと認識している。

## 1.2 政策上の位置づけ

2016 年 1 月に閣議決定された「第 5 期科学技術基本計画」第 3 章 経済・社会的課題への対応、(1) 持続的な成長と地域社会の自律的な発展、③ ものづくり・コトづくりの競争力向上において、製造業は、我が国の経済を支える基幹産業であるが、安価な生産コストを武器とした新興国の追い上げや、飛躍的發展を遂げている ICT を利用して国家イニシアチブを強力に進める欧米主要国のグローバル戦略などにより、これまでの競争優位性が脅かされているという認識の中、「材料開発は計算科学・デー

タ科学を駆使した革新的な機能性材料、構造材料等の創製を進めるとともに、その開発期間の大幅な短縮を実現する」と明記されている。

上記第5期科学技術基本計画の下、毎年策定される科学技術イノベーション総合戦略において、2015版、2016版では第2章 経済・社会課題への対応、(1) 持続的な成長と地域社会の自律的な発展、III ものづくり・コトづくりの競争力向上、ii) 統合型材料開発システム、2017版では第3章 経済・社会課題への対応、(1) 持続的な成長と地域社会の自律的な発展、③ ものづくり・コトづくりの競争力向上、ii) 統合型材料開発システムの中で、「信頼性の高い材料データベースの構築/高速で高効率な材料試作計測・評価技術の確立」と本プロジェクトに関する記述があり、重きを置かれる取組として位置づけられている。

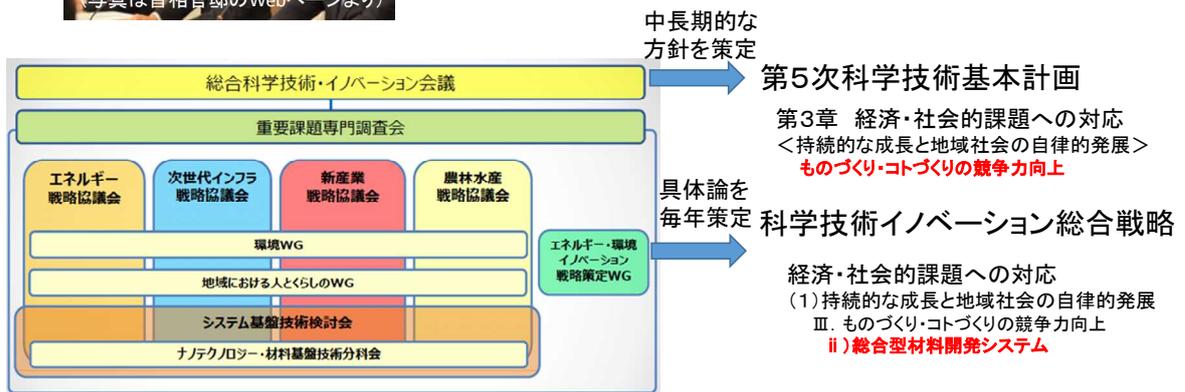
## ◆政策的位置付け



(写真は首相官邸のWebページより)

### ●総合科学技術・イノベーション会議

内閣総理大臣のリーダーシップの下、科学技術・イノベーション政策の推進のための司令塔として、わが国全体の科学技術を俯瞰し、総合的かつ基本的な政策の企画立案及び総合調整を行う。



システム	分類	施策番号	期間	施策名
統合型材料開発システム	マテリアルズイノベーション	材-文01 (継続)	H27~H31	情報統合型物質・材料開発の推進 (マテリアルズ・インフォマティクス)の推進
		材-経02 (新規)	H28~H33	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト
		も-経05 (新規)	H28~H32	CPSによるデータ駆動型社会の実現

「ものづくり・コトづくりの競争力向上」の文脈で**重要施策として位置づけ**

図 1-3 政策的位置づけ

### 1.3 NEDO が関与することの意義

1.1 の背景に記載した状況を踏まえ、本プロジェクトにおいては 1.5 の国内外の材料開発プロジェクトの動向を踏まえて、素材産業全体に共通する基盤性の高い技術として近年技術進展の目覚ましい計算科学・人工知能 (以下「AI」という。) 技術を材料開発に適用し、国内の類似のプロジェクトでは支援ターゲットとしていない有機系の機能性材料を対象として、日本の強みである本分野の更なる産業競争力強化に向けて本プロジェクトを推進するものである。材料開発分野に AI 技術を適用するマテリアルズインフォマティクスの分野は研究自体が萌芽期であるがゆえに、素材産業分野に当該

研究分野の人材が極めて少ないという状況であり、業界側も本研究分野への積極的な投資が難しい。このため、一企業、一大学では出来ない複雑かつリスクの高い技術開発という認識の下、国研、大学、企業を結集させて共通基盤技術の開発を行うため、NEDO の関与が必要不可欠である。

#### 1.4 実施の効果（費用対効果）

本プロジェクトは事業期間 6 年間、事業規模約 140 億円の計画で進められている。本プロジェクトがターゲットとする機能性化学品の世界市場規模は約 50 兆円（化学品全体の 15% 程度）と言われており、TSC の「機能性材料分野の技術戦略」では機能性材料のうち機能性フィルムを対象として試算したところ、市場規模が年平均成長率 2.2% と堅調であり、今後も機能性材料分野の市場は大きくなると見込まれている。本プロジェクトの成果は特定の材料の開発ではなく、材料開発手法の開発であり、現在世界シェアの高い日本企業の新材料開発の試作期間・試作回数の短縮により、引き続き世界シェアをキープするだけでなく、更なる拡大を図ることを目的としている。従って本プロジェクトの研究成果の適用される範囲は広く、試算により 2030 年に約 2 兆円の新規市場の獲得を目指せるものと期待される。また新材料開発の試作期間・試作回数の短縮は省エネルギー効果も期待され 2030 年におけるプロジェクト成果の普及率が 10% と仮定して算出される効果は CO2 約 358 万トンと推測される。

#### 1.5 国内外の状況

##### ①我が国の状況

内閣府が戦略的イノベーション創造プログラム（SIP：Cross-ministerial Strategic Innovation Promotion Program）の中で岸 輝雄氏（東京大学名誉教授、物質・材料研究機構顧問）をプログラムディレクターとして「革新的構造材料」（2014～）を推進しており、研究テーマの「マテリアルズインテグレーション」領域の中で構造材料を対象としてシミュレーションや数学的アプローチを活用しながら材料開発期間の一桁短縮する取り組みが行われている。

科学技術振興機構では「イノベーションハブ構築支援事業」の中で、寺倉 清之氏（物質・材料研究機構）をプロジェクトリーダー（現在は伊藤 聡氏（NIMS））として「情報統合型物質・材料開発イニシアチブ（MI2I：“Materials research by Information Integration” Initiative）」（2015 年～）を推進している。重点分野として電池材料、磁性材料、伝導材料を対象に 2015 年 7 月から物質・材料科学とデータ科学とを融合させた新しい材料開発手法で、膨大なデータ群の蓄積と、ビッグデータ解析の一種である機械学習など、最先端の情報科学を駆使した解析を組み合わせ基盤の構築を図っている。

##### ③世界の取組状況

米国では、2011 年 6 月に新たな素材開発インフラの構築を目指すプロジェクトとしてマテリアル・ゲノム・イニシアチブ(以下、MGI)をオバマ政権が打ち出した。本プロジェクトでは、最先端素材の開発から市場導入までに要する時間を半減さ

せることを目標に掲げ、素材開発に用いられる計算機シミュレーションや実験的手法など、様々なデジタルデータを活用した統合的アプローチにより素材開発基盤の高度化を図ることを目指している。アプリケーションとしては生活向上、クリーンエネルギー、人材育成、国家安全保障の領域を設定している。ChiMaD(Center for Hierarchical Material Design)は2014年からNIST(National Institute of Standards and Technology)が運営するMGIの中核を担うプロジェクトであり、目的は革新的素材を開発設計するための次世代コンピューティングツール、データベース、実験手法の開発と産業界への導入にある。アルゴンヌ研究所、シカゴ大学コンピューティング機関等が参画している。

欧州では、欧州委員会が開始した「Horizon 2020」において、2015年から「Novel Materials Discovery (以下「NoMaD」という。)」プロジェクトがコンピュータ科学分野の「Centers of Excellence」の一つとして推進されることとなった(2016-2018)。NoMaDプロジェクトは、2013年よりドイツの研究機関や大学を中心に第一原理計算による物質材料データの収集を進めてきており、今後、材料科学のためのデータベースとビッグデータ分析ツールを開発していくことを目指している。

韓国では「第3次科学技術基本計画(2013年発表)」の中で、複数の材料技術を重点国家戦略技術に位置付けることにより、ナノテク・材料分野の研究を推進している。2013年12月に策定した「第6次産業技術革新5か年計画(2014-2018年)」において、「素材・部材」を含む4分野の課題を「未来産業エンジン」に指定して支援している。2013年12月の「部品素材専門企業等の育成に関する特別措置法」に基づき、「第3次素材・部品発展基本計画(2013-2016)」を発表した。素材分野のフォロアーから抜け出し市場のリーダーになることを目標としている。

中国では「国家中長期科学技術発展計画(2006-2015)」の重点8分野の一つとして「素材(新材料技術・ナノ研究)」を指定した。現行の「第12次5ヵ年計画要綱(2011-2015年)」で特定されている7つの戦略的振興産業の一つとして「新素材」を指定し、新素材産業の発展のために新材料の研究開発と産業化を推進している。

## ◆ 国外の研究開発の動向と比較

- 米国では2011年、「Materials Genome Initiative (MGI) ~for Global Competitiveness」を発表。材料探索から商品化までの期間半減を目指している。
- 欧州もMARVEL、NOMADなどの計算科学、データベース構築、ビッグデータ分析ツールに関するプロジェクトを開始。中国や韓国も追随。

	特徴	具体的取り組み	代表的期間
米国	<ul style="list-style-type: none"> <li>データ科学の競争力を重視</li> <li>早期に国としての取り組みを開始</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>(2011) Materials Genome Initiative (\$1億/年)</li> <li>(2014) MGI Strategic Plan</li> </ul>	NIST、NSF、DARPA、MIT、デューク大、ノースウエスタン、アルゴン研究所
EU	<ul style="list-style-type: none"> <li>Computational Materials Engineeringに重点</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>(2014) MARVEL</li> <li>(2015) Novel Materials Discovery (6 億円/年)</li> </ul>	ETHZ、EPFL、UNIBAS、UNIBE、UNIFR、UNIGE、USI、UZH、LMU München、UCD、フランクフルト大、ケンブリッジ大、MPCDF
中国	<ul style="list-style-type: none"> <li>新素材は戦略的振興産業との位置付け</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>国家中長期科学技術発展計画 (2006-2020)</li> <li>China MGI (2016年度 約48億円)</li> </ul>	中国科学院、中国工学院
韓国	<ul style="list-style-type: none"> <li>“フォロワーからリーダーへ”が目標</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>(2013) 第3次素材・部品発展基本計画</li> <li>(2015) Creative Materials Discovery Project</li> </ul>	韓国科学技術院

出典：三井物産戦略研究所レポート情報を基にNEDOが改訂

Materials Genome Initiative (米) The Novel Materials Discovery (EU) NOMAD Creative Materials Discovery Project (韓)

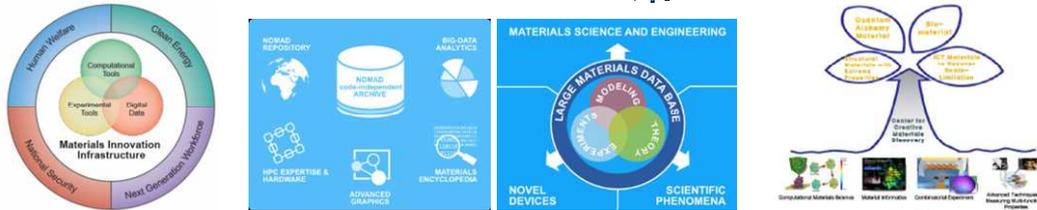


図 1-4 国外の研究開発動向

## 2. 研究開発マネジメントについて

### 2.1 事業の目標

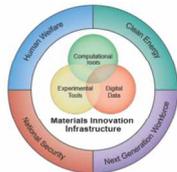
#### アウトプット目標

本プロジェクトは高機能材料・部材の研究開発支援を可能とする高度な計算科学、高速試作・革新プロセス技術、先端ナノ計測評価技術を駆使して革新的な材料開発基盤の構築を目指すものである。これにより従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮を目指す。

プロジェクトの目標設定については国内外のプロジェクトの目標を参考にして設定した。

### ◆研究開発目標と根拠

#### ●Materials Genome Initiative (2011～)



目標: This initiative offers a unique opportunity for the United States to discover, develop, manufacture, and deploy advanced materials **at least twice as fast as possible today**, at a fraction of the cost.

#### ●SIP革新構造材料/MIシステムの開発 (2014～)



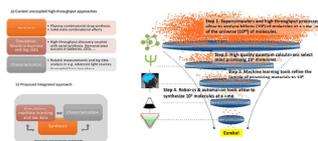
目標: 構造材料を対象としてシミュレーションや数学的アプローチを活用しながら「**構造材料開発の時間を一桁(開発時間を90%短縮)短縮するのに役立つことを証明**」

#### ●情報統合型物質・材料イニシアティブ (2015～)



目標: 産業界の物質・材料研究開発課題に対して、データ駆動型物質・材料科学を用いることにより、有効なソリューションを**短期間**で開発・提供する

#### ●(参考) Mission Innovation Clean Energy Materials Innovation Challenge(2018～)



目標: The Materials Acceleration Platform, or MAP, aims to **reduce the materials development cycle from 10 to 20 years to 1 or 2 years.**

図 2-1 研究開発目標と根拠

研究開発項目毎の目標は以下の通り。

研究開発項目[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術

#### 【中間目標】

対象となる機能を構造、組成等から導き出せる新規のマルチスケール計算シミュレータを構築する。

#### 【最終目標】

構築した新規マルチスケール計算シミュレータを活用する事により、AI（機械学習やデータマイニング等）を活用した材料探索手法を確立する。これにより従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮に貢献する。

また、プロジェクト終了後の開発したマルチスケールシミュレータや AI 等の共通

基盤技術の管理・運営体制の計画を示す。

#### 研究開発項目[2]高速試作・革新プロセス技術開発

##### 【中間目標】

研究開発項目[1]「計算支援次世代ナノ構造設計基盤技術」で開発するシミュレータの高精度化に貢献するために、シミュレーション結果に対応するサンプルを精密に作製可能なプロセス手法を確立する。

##### 【最終目標】

中間目標までに開発したプロセス手法について高速化を図り、従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮に貢献する。

#### 研究開発項目[3]先端ナノ計測評価技術開発

##### 【中間目標】

研究開発項目[3]「計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術」のシミュレーションの高精度化に必要な計測手法としてし、研究開発項目[3]「高速試作・革新プロセス技術開発」で試作されるサンプル等を“非破壊”又は“*In situ*”で評価を可能とする計測手法を確立する。

##### 【最終目標】

中間目標までに開発した計測手法を汎用化するとともに、計測時間の高速化等の手法で従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮に貢献する。

#### ・目標設定の根拠

有機系機能性材料に対して「AIを活用した材料開発手法を確立する」ためには、AIに学習させるための材料の構造や各種パラメータと機能（求める性能）に関するデータが必要となるが、無機系材料の状況とは異なり有効なデータベースが存在しない。このため本プロジェクトでは新規なマルチスケール計算シミュレータでAI学習用のデータ創出を想定している。高速試作・革新プロセス手法、先端ナノ計測評価技術開発は、これらから得られる実験データとシミュレーション結果を比較することでシミュレーションの更なる高精度化に貢献し、更にAI学習用のデータ創出にも活用が可能である。従ってプロジェクト後半でAIを活用した材料開発の本格的な実施を行う為に、プロジェクト前半までに様々なデータ創出が可能となる基盤技術の確立に目途をつける中間目標の設定とした。

プロジェクト後半は前半で確立した基盤技術の高度化を行いながら、それぞれの技術でAI学習用データを創出し、AIを活用した材料開発手法を試行・確立することにより材料開発における試作回数・開発期間 1/20 の短縮を目指す。

また本プロジェクト終了後においても開発した技術（特にシミュレータ、AI活用材料開発手法）が継続的にブラッシュアップされる体制を構築することが重要であることから、得られた成果・技術の管理・運営体制の計画をプロジェクト実施中から検討し、計画そのものの提示を最終成果物として最終目標として設定した。

## 2.2 事業の内容

本プロジェクトでは以下3つの研究開発項目を実施する。

### ・研究開発項目[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術

量子力学、粗視化分子動力学、有限要素法などを活用してナノスケールからマクロスケールまでの以下に示す材料設計を信頼性高く予測可能なマルチスケールシミュレーション手法を開発する。

- 1) 有機系材料の電子デバイス等への応用を想定したヘテロ接合構造と電子・熱・イオン等の挙動の相関をシミュレーションするキャリア輸送設計
- 2) 機能性高分子材料への応用を想定したコンポジット素材の相分離、微粒子分散、ナノ空孔等を最適に制御し、相反する機能（光学特性/断熱特性や力学特性/誘電特性等）の両立をシミュレーションする相反機能両立材料設計
- 3) ハイスループットな有機材料合成への応用を想定した触媒の反応過程の網羅的な探索技術と反応速度計算、触媒-流体界面設計を一連でシミュレーションするリアクター反応設計 等

なお開発するシミュレーション手法は上記1) 2) 3) の課題間の連携を考慮し、材料開発の試作回数・開発期間短縮に資するツールとして統一感のとれたものを開発する。

また、国内の他の研究開発の動き・成果と連携してAI（機械学習やデータマイニング等）を活用した材料探索手法を開発する。

### ・研究開発項目[2] 高速試作・革新プロセス技術開発

研究開発項目[1]「計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術」のシミュレーション手法の高精度化とAIを活用した材料開発のために、組成や反応場等の様々なプロセス条件パラメータを制御して設計通りのサンプルを自在に試作する以下の高精度なサンプル作製技術の開発とその高速化技術を開発する。

- 1) 研究開発項目[1]の1)に対応したサンプル作製のために、接合層の層間距離制御、傾斜機能制御等の技術を確立し、様々な界面を自在に制御して多層ヘテロ界面を作製する精密積層プロセス技術等の基盤を構築する。
- 2) 研究開発項目[1]の2)に対応したサンプル作製のために、原料種、組成比、温度、圧力等の条件を自在に制御して複雑なコンポジット材料の構造と機能発現の相関を評価可能とするサンプルの作製手法等の基盤を構築する。
- 3) 研究開発項目[1]の3)に対応したサンプル作製のために、連続で反応を精密に制御可能なフローリアクタープロセス技術等の基盤を構築する。 等

### ・研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発

研究開発項目[1]「計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術」のシミュレーション手法の高精度化とAIを活用した材料開発に必要な評価データを提供するために、研究開発項目[2]「高速試作・革新プロセス技術開発」で試作したサンプル等を“非破壊”又

は“*In situ*”で構造評価・機能評価を可能とする以下の計測装置・手法の開発を行う。

- 1) 研究開発項目[2]の1)等で作製したサンプルを評価するために、非破壊で特定の界面の分子の化学構造、電子状態等の情報を得る計測技術等を構築する。
- 2) 研究開発項目[2]の2)等で作製したサンプルを評価するために、非破壊でシングル nm レベルの細孔構造の計測技術やサブ  $\mu\text{m}$  レベルで三次元の構造や組成分析を同時に可能とする計測技術等を構築する。
- 3) 研究開発項目[2]の3)等で作製したサンプルを評価するために、反応器内の触媒の固体表面状態を連続、高感度、高速で計測する技術等を構築する。 等

具体的な実施に当たっては公募の結果を踏まえ、表 3-2 の①～⑬に対応する研究項目で推進している。

### 2.3 事業の計画

全体の研究スケジュールについて図 2-2 に示す。具体的な目標毎のスケジュール設定は研究開発成果の項目で成果と併せて示す。

p2-2 目標設定の根拠と考え方は同じであり、プロジェクト前半までにシミュレーションの開発やプロセス技術、計測技術の高度化で「データ創出」を可能とする環境を整備し、プロジェクト後半は前半で確立した基盤技術の高度化を行いながら、それぞれの技術で AI 学習用データを創出し、AI を活用した材料開発手法を試行・確立することにより材料開発における試作回数・開発期間 1/20 の短縮を目指す。

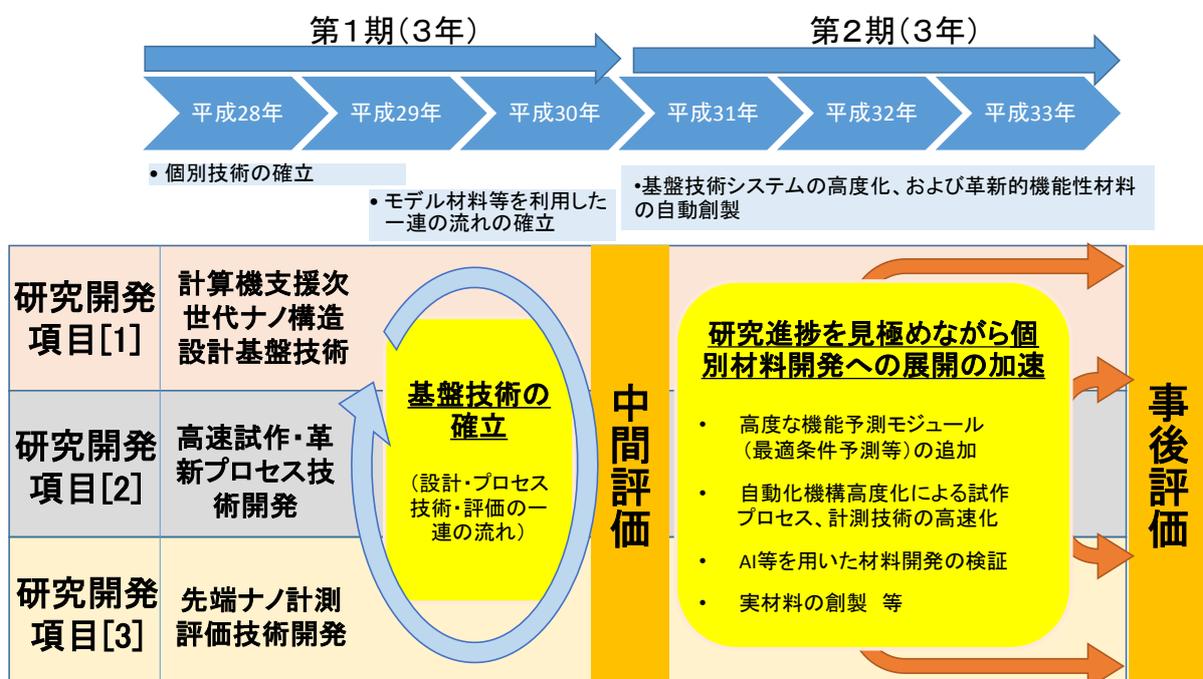


図 2-2 研究開発スケジュール

表 2-1 研究開発予算

研究開発項目	2016 (実績)	2017 (実績)	2018 (契約)	2019	2020	2021	合計
[1] 計算機支援次世代 ナノ構造設計基盤技術	360	1,193	1,101				2,654
[2] 高速試作・革新プ ロセス技術開発	407	535	721				1,663
[3] 先端ナノ計測評価 技術開発	430 (203)	833 (297)	601 (203)				1,864 (703)
合計	1,197	2,561	2,423				6,181

( ) は、つくば集中研以外の研究開発項目③の部分採択に係る予算（うち数）

2018年度は事業原簿作成段階の契約額

## 2.4 事業の実施体制

本プロジェクトは産学官の叡智を集結して実施すべく 1 カ所に集中研拠点を形成して実施することを前提に 2016 年度から事業を開始出来るように公募を行った。公募の結果、研究開発項目 [1] ~[3] を実施する先端素材高速開発技術研究組合 (ADMAT) と国立研究開発法人産業技術総合研究所が茨城県つくば市に集中拠点を形成して実施する研究体制を採択した。また株式会社先端ナノプロセス基盤センター (EIDEC) と国立研究開発法人産業技術総合研究所が 3 年間で有機機能性材料の試作回数・開発期間短縮に貢献出来る可能性の高い計測技術を有していたため、研究開発項目 [3] の部分的採択とした。

2017 年度には追加公募を行い、ナノカーボン材料を対象に研究開発項目 [1] ~ [3] を実施する者として古河電気工業(株)、日本ゼオン(株)、国立研究開発法人産業技術総合研究所を採択し、古河電気工業(株)、日本ゼオン(株)は先端素材高速開発技術研究組合の組合員に追加した。下記に体制図を示す。

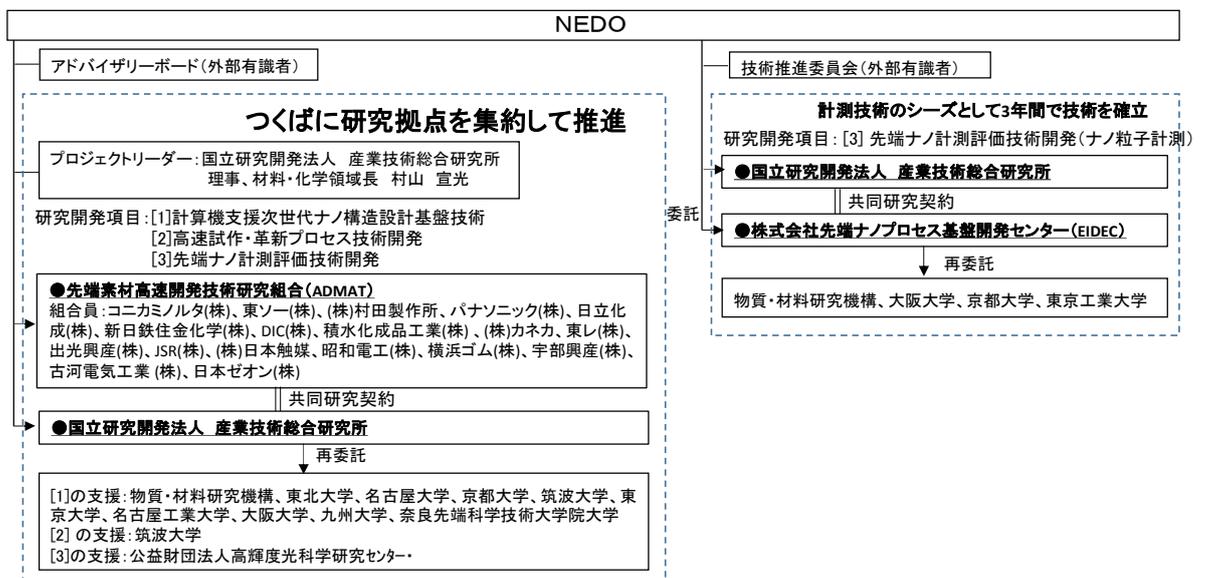


図 2-3 研究開発体制図

## 2.5 研究開発の運営管理

研究開発全体の管理・執行に責任を有する NEDO は経済産業省やプロジェクトリーダー等と密接な関係を維持しつつ、適切な運営管理を実施する。具体的には年2回程度開催する外部有識者の視点を活用した NEDO 主催のアドバイザリーボードのほか、実施者主催の各種会議体への出席を通じ、プロジェクトマネジメントを行った。

表 2-1 研究管理に活用している会議体一覧

会議名	主なメンバー	目的・対象	頻度	主催者
アドバイザリーボード (技術推進委員会)	・外部有識者 ・PL、TL	・プロジェクト全体の方向性、 目標設定の妥当性等を議論 ・全テーマ対象	年2回程度	NEDO
研究進捗報告会	・PL、TL ・AIST、ADMAT研 究者	・全体での成果創出に向け、 全関係者で事業の進捗を共 有し、テーマ間連携を図る ・全テーマ	3か月に1回	実施者
運営企画会議	・PL、TL ・ADMAT事務局	・研究体運営の意思決定 ・進捗報告・確認	1か月に1回	実施者
ワーキンググループ	・TL ・AIST研究者 ・ADMAT技術委員	・技術ディスカッション ・計算、プロセス、計測の単 位でWGを開催	1か月に1回	実施者
知財運営委員会	知財運営委員会規 程メンバー	・特許出願、对外発表に関す る報告、調整、アドバイス	随時	実施者

### ●アドバイザリーボードにおける外部有識者メンバー

物質・材料研究機構 エグゼクティブアドバイザー 寺倉 清之 氏

大阪大学産学共創本部 副本部長・教授 北岡 康夫 氏

東京大学大学院理学研究科 教授 常行 真司 氏

物質・材料研究機構 統合型材料開発・情報基盤部門 副部門長 出村 雅彦 氏

奈良先端科学技術大学院大学 特任教授 村井 眞二 氏

福岡大学工学部 教授 八尾 滋 氏

### ●技術推進委員会委員における外部有識者委員

東京大学 大規模集積システム設計教育研究センター センター長 浅田 邦博 氏

名古屋大学 工学研究科マイクロ・ナノ機械理工学専攻 教授 福澤 健二 氏

セイコーインスツル(株) 技術管理部 部長 古田 一吉 氏

東京電機大学 工学部機械工学科先端機械コース 教授 堀内 敏行 氏

(株)東レリサーチセンター 取締役 フロンティア事業部門長 山根 常幸 氏

また研究開発項目[3]を一部実施するEIDECグループの一部成果をプロジェクト後半でつくば研究拠点の研究に活用するため必要な情報交換を促した。

## 2.6 研究開発成果の実用化に向けたマネジメントの妥当性

本プロジェクトは基盤技術開発に係るプロジェクトであり、プロジェクトにおける「実用化」とは以下としている。

本事業における実用化とは、開発したマルチスケールシミュレータや AI 等の共通基盤技術が適切な管理の下、プロジェクト終了後も持続的にブラッシュアップ出来る運営体制を構築し、国内素材企業の材料開発支援を実施することを言う。

これは、基本計画の最終目標の「プロジェクト終了後の開発したマルチスケールシミュレータや AI 等の共通基盤技術の管理・運営体制の計画を示す。」の記述と関連するものである。

本件に関して NEDO がマネジメントを行ったのは以下の点。

- ・「NEDO プロジェクトにおける知財マネジメント基本方針」に基づき、参画機関において「知財の取扱いに関する合意書」を策定させた。合意書では、知財運営委員会や知財の帰属、秘密の保持等、プロジェクトの出口戦略において、重要となる知財ルールを整備。
- ・プロジェクトで創出されるデータを「特定の研究成果」とし、知財マネジメントの対象とする環境を整備。
- ・更にプロジェクト成果の将来の事業活用を見据えて、計算科学関連知財を集中研拠点に集約することを参画企業に合意を取り付けた（具体的には集中研拠点にサブライセンス許諾権を付与し、知財の一元管理によりスムーズな事業活用を図る）。
- ・また独立行政法人 工業所有権情報・研修館の知財プロデューサ派遣事業を活用して、つくば集中研拠点の知財マネジメント支援を強化しオープンクローズ戦略（図 2-4）を踏まえた知財管理を促した。
- ・具体的な集中研拠点での「実用化」に向けた議論を深めるために、表 2-1 におけるワーキンググループの設置を事業者へ促した。

## ◆知的財産権等に関するマネジメント

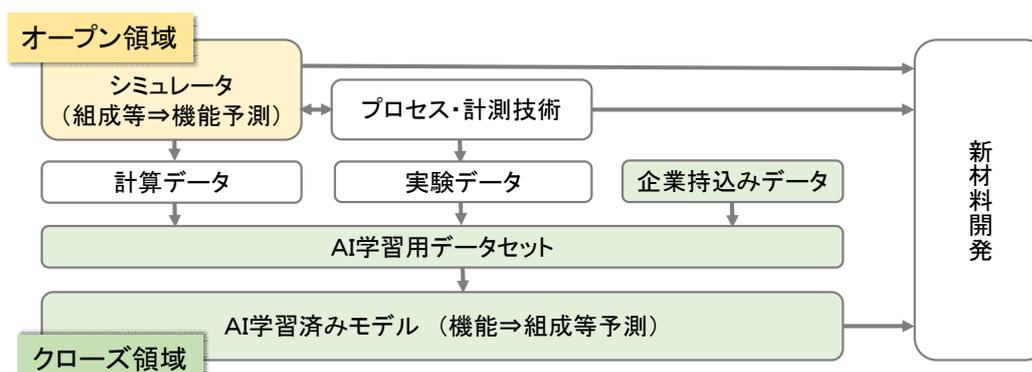
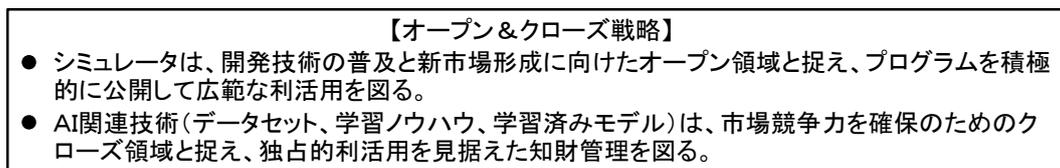


図 2-4 集中研究拠点におけるオープン&クローズ戦略

### 2.7 情勢変化への対応

#### ・基盤技術の適用範囲拡大のための追加公募の実施

プロジェクト開始当初（2016年度）から基盤技術の適用範囲拡大を目指すため、モデル材料の拡大を検討していたところ、NEDOの技術戦略研究センターの「ナノカーボン戦略」において、CNTやグラフェン等の応用製品開発が、従来の試行錯誤的な開発手法では開発スピードに限界があり、新手法であるマテリアルインフォマティクスを活用すること推奨されていたと共に、有識者ヒアリングを通じて、ナノカーボン応用製品開発が本PJで開発中の拡張OCTAなどと相性が良いことが判明した。このため、2017年度に本PJのモデル材料として「ナノカーボン材料」を追加して公募を行い、古河電気工業株式会社と日本ゼオン株式会社を実施者として採択し、先端素材高速開発技術研究組合の構成員に追加して研究を開始した。

#### ・経済産業省のConnected Industries施策への取組み

経済産業省が推進しているConnected Industries施策に対応して素材検討WGが大臣に答申した素材開発強化に向けた対応策として「AI活用型素材開発のための標準データフォーマットの整備」が今後、国で対応すべき課題として提言された(2018年5月)。このため有機機能性材料の「データ創出」を指向している本PJにおいて、公知の「データ収集」を新機軸として加え、2019年度より本PJの両輪として実施することを経済産業省と確認。実施内容を具体化する為に、2018年度6月より「今後の材料開発に必要な共通データプラットフォームに関する調査」を開始した。

## 2.8 中間評価結果への対応

本プロジェクトは2018年度に中間評価の実施を予定しており、現時点において未実施のため記載すべき事項は無い。

## 2.9 評価に関する事項

NEDO は（１）事業の位置付け・必要性、（２）研究開発マネジメント、（３）研究開発成果、（４）実用化、事業化に向けた見通し及び取組の４つの評価項目について、外部有識者によるプロジェクト評価を実施する。評価の時期は、第１期終了時期を目途とした中間評価として平成３０年度、事後評価を第２期終了時期の平成３４年度に実施する。

なお、中間評価結果を踏まえ必要に応じて事業の加速・縮小・中止等の見直しを迅速に行う。評価の時期については、当該研究開発に係る技術動向、政策動向や当該研究開発の進捗状況等に応じて、事業実施を前倒しする等、適宜見直すものとする。

### 3. 研究開発成果について

#### 3.1 事業全体の成果

本プロジェクトでは、「経験と勘」に基づく従来の材料開発手法を刷新し、高度な計算科学、高速試作・革新プロセス技術、及び先端ナノ計測評価技術を駆使する革新的かつ高速な材料開発基盤技術の構築を目指し、以下の3つの研究開発項目を実施した。

#### 【目標】

本プロジェクトの目標は、表 3-1 のように中間目標(平成 30 年度)および最終目標(平成 33 年度)として定めている。

表 3-1 中間及び最終目標

研究開発項目	中間目標(平成30年度末)	最終目標(平成33年度末)
[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術	対象となる機能を構造、組成等から導き出せる新規のマルチスケール計算シミュレータを構築する。	構築した新規マルチスケール計算シミュレータを活用する事により、AI(機械学習やデータマイニング等)を活用した材料探索手法を確立する。これにより従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間1/20の短縮に貢献する。 また、プロジェクト終了後の開発したマルチスケールシミュレータやAI等の共通基盤技術の管理・運営体制の計画を示す。
[2] 高速試作・革新プロセス技術開発	研究開発項目[1]で開発するシミュレータの高精度化に貢献するために、シミュレーション結果に対応するサンプルを精密に作製可能なプロセス手法を確立する。	中間目標までに開発したプロセス手法について高速化を図り、従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間1/20の短縮に貢献する。
[3] 先端ナノ計測評価技術開発	研究開発項目[1]のシミュレーションの高精度化に必要な計測手法として、研究開発項目[2]で試作されるサンプル等を“非破壊”又は“in situ”で評価を可能とする計測手法を確立する。	中間目標までに開発した計測手法を汎用化するとともに、計測時間の高速化等の手法で従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間1/20の短縮に貢献する。

各々の目標を達成するため、図 3-1 に示す研究計画を立て、実施している。

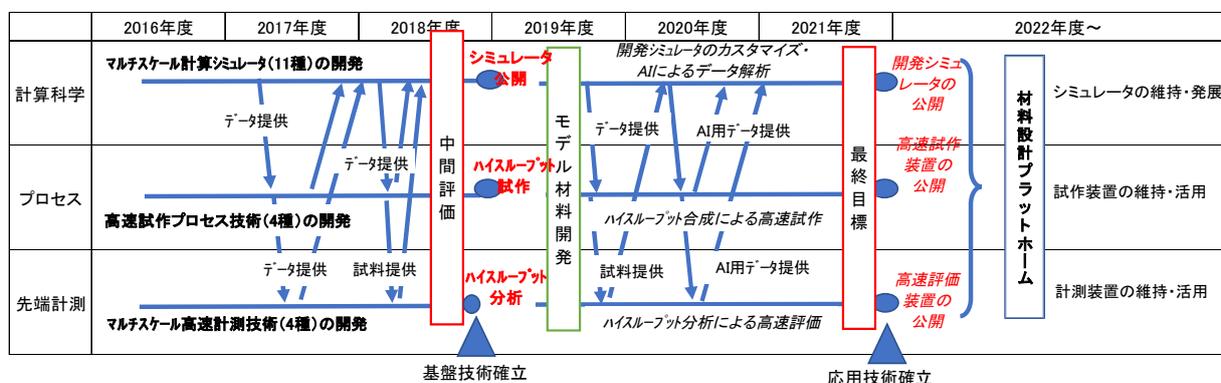


図 3-1 研究計画

研究開発は、表 3-2 に示す事業内容を設定し、効率的に研究開発を行った。

表 3-2 各研究開発項目の事業内容

---

研究開発項目[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術

- ①キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発
  - 1.電気・熱等のマルチスケール伝導計算シミュレータの構築
  - 2.分子、イオン・界面原子ダイナミクスに関するマルチスケール計算シミュレータの開発
- ②外場応答材料と複雑組織材料の大規模計算シミュレータの開発
  - 1.第一原理多体計算に基づく外場応答の大規模計算シミュレータの構築
  - 2.材料組織とマイクロ構造に関する計算シミュレータの構築
- ③機能性ナノ高分子材料のマルチスケール計算プロセスシミュレータの開発
  - 1.ソフトマテリアル統合シミュレーションプラットフォーム OCTA の拡張
  - 2.機能性ナノ高分子材料のための粗視化シミュレーション機能強化
- ④マルチスケール反応流体シミュレータの開発
- ⑤深層学習・機械学習、離散幾何解析を用いた材料データの解析技術の開発

研究開発項目[2] 高速試作・革新プロセス技術開発

- ⑥様々な界面制御技術による自在なヘテロ接合素材の開発
- ⑦ポリマー系コンポジット材料プロセスに関する基盤技術
- ⑧自在合成を可能にするフローリアクターに関する基盤技術
- ⑨ナノカーボン材料プロセスに関する基盤技術開発
  - 1.CNT 線材作製プロセスに関する基盤開発
  - 2.大面積グラフェン高速合成および積層技術の基盤開発
  - 3.CNT 複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発

研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発

- ⑩表面・界面の構造計測とナノ領域の多物性同時評価:和周波分光およびナノプローブ分光
  - ⑪有機(無機)コンポジット材料の3次元マルチスケール構造評価:電子分光型電子顕微鏡、陽電子消滅およびX線CT
    - 1.電子分光型電子顕微鏡
    - 2.陽電子消滅法とX線CT
  - ⑫フロープロセスの高感度・in-situ計測:フロー型XAFS及びNMR
  - ⑬ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発
    - 1.CNT電線の導電障害部を可視化する計測技術基盤開発
    - 2.積層グラフェンの局所電気特性計測に関する基盤開発
    - 3.CNT複合材料評価に関する基盤技術開発
-

事業内容(①~⑬)と出口としての機能性材料の関係を図 3-2 に示す。本プロジェクトにおいては、計算科学・プロセス・先端計測の三位一体の連携により、高速に機能性材料を設計する基盤技術を開発する。

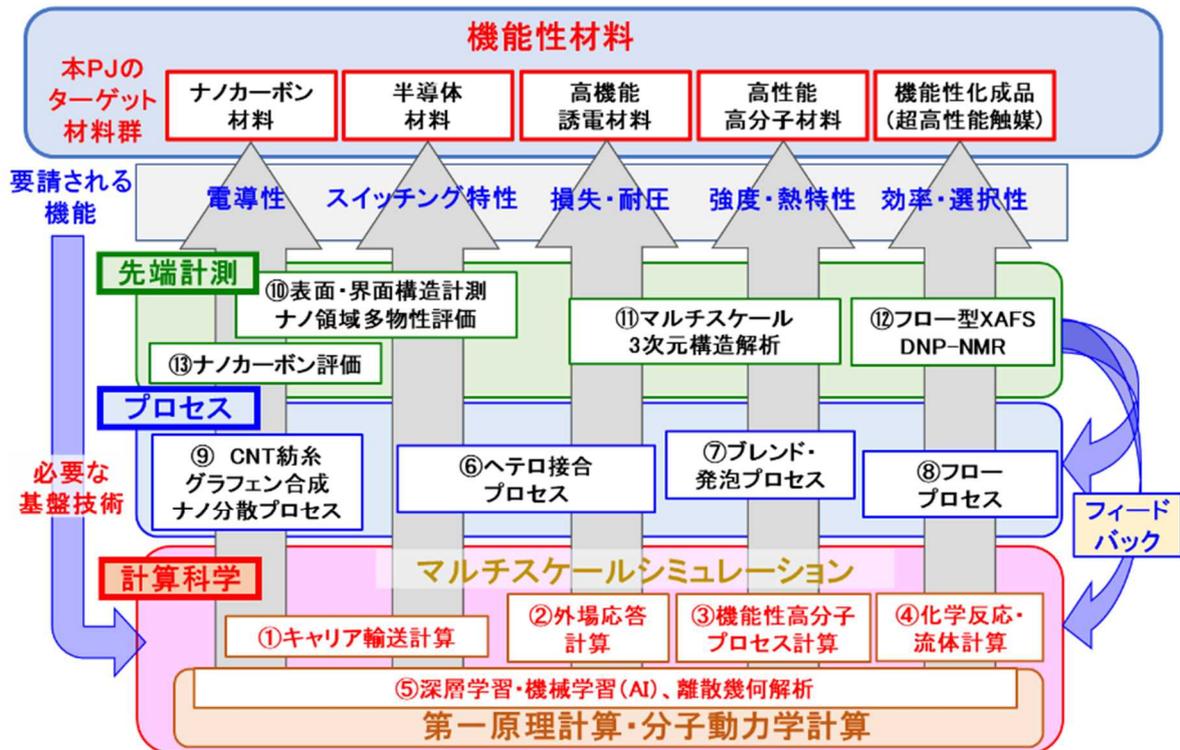


図 3-2 事業内容(①~⑬)と出口としての機能性材料の関係

さらに ADMAT に参画する企業 (18 社) と産総研は、事業内容と関連して、出口としての機能性材料に関して表 3 に示すような個別材料開発課題を実施している。

表 3-3 ADMAT 参画企業および産総研の個別材料開発課題と事業内容との関連

研究開発テーマ名	企業名	担当事業内容番号
(1) 半導体材料		
1 高機能光学材料の研究開発	コニカミノルタ	①、⑥
2 有機半導体材料の研究開発	東ソー	①、⑩
(2) 高機能誘電材料		
3 高周波対応フレキシブル誘電材料の研究開発	新日鉄住金化学	②、⑪
4 電場応答型高分子アクチュエータ材料の開発	パナソニック	②、③
5 有機・無機ハイブリッド誘電材料の研究開発	村田製作所	②
(3) 高性能高分子材料		
6 複合系の反応設計の研究開発	出光興産	①、⑩
7 樹脂／無機フィラー複合材料の研究開発	カネカ	③、⑥
8 機能性合成ゴム材料の研究開発	JSR	③、⑪
9 フレキシブル透明フィルム(熱硬化性樹脂)の研究開発	昭和電工	⑤、⑧
10 ナノ発泡断熱材料の研究開発	積水化成品工業	③、⑦、⑪
11 スーパーナノコンポジット/アロイ材料の開発	DIC	⑦、⑪
12 革新分離材料の研究開発	東レ	③
13 実験データベースを用いた逆問題解決 ～異方導電性フィルムデータベース活用～	日立化成	⑤
(4) 機能性化成品(超高性能触媒)		
14 多次元高度構造制御金属ナノ触媒の研究開発	宇部興産	④、⑧、⑫
15 CO <sub>2</sub> を利用する有用化学品合成技術の研究開発	日本触媒	④、⑧、⑫
16 天然資源からゴム材料の研究開発	横浜ゴム	④、⑧、⑫
(5) ナノカーボン材料		
17 第三成分添加CNT高機能複合材料の開発	日本ゼオン	③、⑨、⑬
18 CNT線材の開発	古河電気工業	①、⑨、⑬
19 大面積グラフェン高速合成および積層技術の基盤開発	産総研	①、⑨、⑬

【研究成果】

研究開始から平成 30 年までの成果は、表 3-4 のように中間目標を達成している。

表 3-4 研究開発項目毎の達成状況

研究開発項目	中間目標	成果	達成度
[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術 (計算科学)	対象となる機能を構造、組成等から導き出せる新規なマルチスケール計算シミュレータを構築する	・9種の(機能別)順方向予測マルチスケールシミュレータの公開 ・AI環境の整備 ・触媒インフォマティクスによる逆予測実現に向けて先駆的な成果	◎ (計画を前倒してAI活用を実施)
[2] 高速試作・革新プロセス技術開発 (プロセス)	研究開発項目[1]で開発するシミュレータの高精度化に貢献するために、シミュレーション結果に対応するサンプルを精密に作製可能なプロセス手法を確立する	・粒径制御したナノ粒子の短時間合成に成功 ・ポリマーナノコンポジット/微細発泡体の連続製造試作装置の開発 ・反応機構と触媒活性種の解明	○
[3] 先端ナノ計測評価技術開発 (先端計測)	研究開発項目[1]で開発するシミュレーションの高精度化に必要な計測手法として、研究開発項目[2]で試作されるサンプル等を“非破壊”又は“in situ”で評価を可能とする計測手法を確立する	・ナノ粒子の個々の相変化の測定に成功 ・難計測材料(ポリイミド)の空孔評価に成功 ・微細発泡体構造のマルチスケール解析を実現	○

事業内容ごとの研究成果については次節で示すが、ここでは、顕著な研究成果として以下の3点を示す。

1) マルチスケールシミュレータの開発

半導体材料、高機能誘電材料、高性能高分子材料、機能性化成品(超高性能触媒)およびナノカーボン材料におけるスイッチング特性、損失・耐圧、強度・熱特性、効率・選択性および電導性等の材料機能の計算に必要な以下のシミュレータを開発した。

- ・電気・光等のキャリア輸送シミュレータ
- ・界面原子ダイナミクス・反応シミュレータ(I, II)
- ・モンテカルロフルバンドデバイスシミュレータ
- ・誘電率等の外場応答物性シミュレータ
- ・電圧印加粗視化分子動力学シミュレータ(I, II)
- ・汎用インターフェース/粗視化分子動力学シミュレータ
- ・フィルター充填系コンポジットシミュレータ
- ・ナノカーボンコンポジット用シミュレータ
- ・反応性流体シミュレータ

これらの9種のシミュレータを活用し、上記モデル材料(表 3-3)の設計の高速化に供する予定である。9種のシミュレータに加えて種々の計算データおよび実験データを効率よくAIに学

習させるための解析ツール「可視化サービスシステム」をいくつかのモデル材料において検証を行いながら開発した。

## 2) 触媒収率の予測:触媒インフォマティクス

電子材料や樹脂などの原料となるエポキシ化合物を、過酸化水素を使ってオレフィンから製造する触媒反応(図 3-3)において、触媒反応の収率を、インフォマティクスを活用して予測する技術の開発に取り組んだ。

複数の触媒分子の構造や特徴を計算シミュレーションによって数値化したパラメータとその触媒による反応の実験収率とを相関づけて機械学習を行い、収率予測システムを構築した。その際、予測に大きく寄与するパラメータを自動的・客観的に選別し、結果として 30 個のパラメータのうち 11 個が選別された。さらに予測への寄与の大きさを比較して、触媒活性の鍵となる触媒分子の化学構造や特徴を特定した。具体的には配位子であるホスホン酸のリン-酸素二重結合による赤外吸収の強度が最も重要であることが特定できた。

これまでに反応収率が知られていない 8 種類のホスホン酸分子について、実験収率と今回の予測システムによる予測収率を比較した(図 3-4)。これは、収率の予測に寄与するパラメータを自動的・客観的に選別して構築した AI で、収率が予測できることをはじめて示した研究成果である。今後、開発を進め精度の向上を図る。

### ターゲット反応

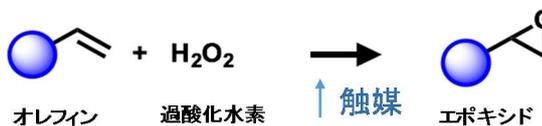


図 3-3 オレフィンと過酸化水素からエポキシドを合成する反応

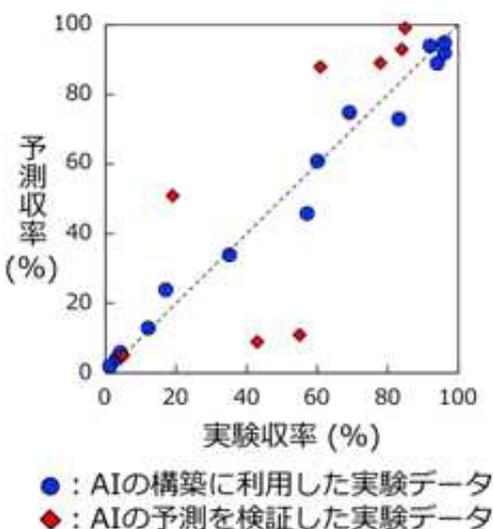


図 3-4 実験の収率と予測収率の相関

## 3) 微細発泡材料の計算・プロセス・計測による開発加速

住宅窓の高断熱化に適用可能な低熱伝導率の発泡ポリマーをターゲットとし、環境調和型の二酸化炭素を発泡ガスに使い、高い空隙率と微細な発泡セルサイズを両立した発泡ポリマーの実現に向けた検討を行った。核材が発泡構造に及ぼす影響について明らかにするために、模擬的に発泡挙動を扱うような粗視化シミュレーションを行った(図 3-5 左)。検討の結果に基づき、圧力、温度の制御性を飛躍的に向上させた小型発泡成型装置を用いて微細発泡を行うための核材種や温度、圧力等プロセスパラメータの最適化を進めた(図 3-5 上)。試作した発泡体の評価のために走査型電子顕微鏡を導入し、気泡径や気泡密度の評価を行った(図 3-5 右上)。また、核材のポリマーへの分散状況や発泡構造の把握のため、サブ μm の分解能の X 線 CT による分散状況の計測や、TEM によるナノメートル(nm)オーダーの核材微粒

子の分布の解析を行った(図 3-5 右下)。これらの連携により、各種プロセスパラメータ条件の最適化を進めた結果、核材なしで平均発泡径 5 $\mu$ m 程度の発泡体を連続的に製造することに成功した。

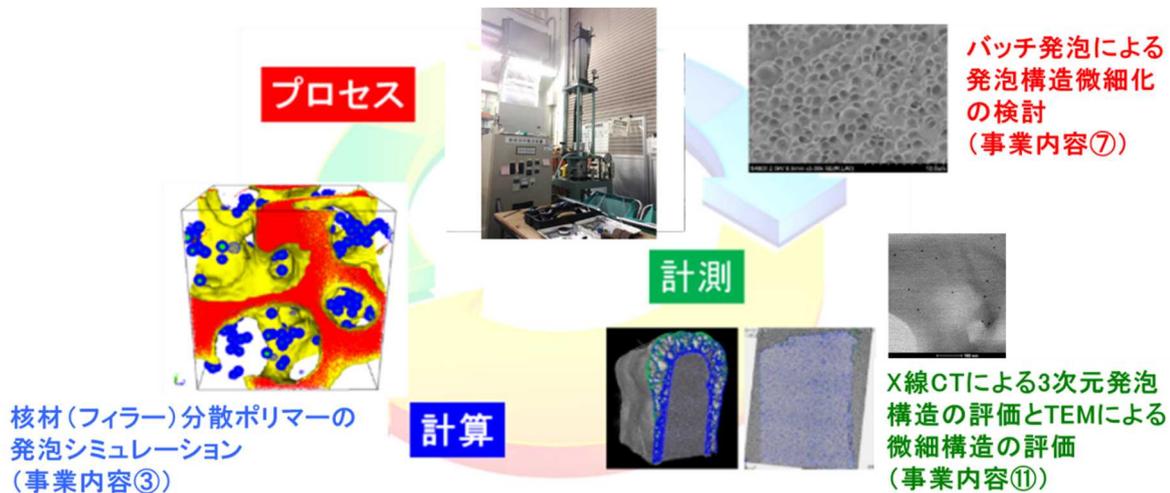


図 3-5 計算・プロセス・計測の連携によるナノ発泡機構の解明

最終目標に向けた研究進捗については、表 3-5 の通り、いずれも達成可能の見通しを得ている。

表 3-5 最終目標の達成可能性

研究開発項目	現状	最終目標 (平成33年度末)	達成見通し
[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術	<ul style="list-style-type: none"> <li>・9種の(機能別)順方向予測シミュレータをH30末より順次公開。公開後の管理・運用体制を計画</li> <li>・シミュレータのインターフェース機能強化とハイスループット実験との連携による材料データ駆動AI予測システムの構築を計画</li> <li>・深層学習などを用いた記述子・特徴量探索を必要としない材料AI技術の開拓を計画</li> </ul>	<p>構築した新規マルチスケール計算シミュレータを活用することにより、AIを活用した材料探索手法を確立する。これにより従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間1/20の短縮に貢献する。</p> <p>また、プロジェクト終了後の開発したマルチスケールシミュレータやAI等の共通基盤技術の管理・運用体制の計画を示す。</p>	<p>○ (シミュレータ開発、運用体制検討は順調。AI活用も前倒しに着手)</p>
[2] 高速試作・革新プロセス技術開発	<ul style="list-style-type: none"> <li>・各種プロセス手法における基盤技術を確立</li> <li>・ハイスループットシステムの導入による、プロセス高速化を計画</li> </ul>	<p>中間目標までに開発したプロセス手法について高速化を図り、従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間1/20の短縮に貢献する。</p>	<p>○ (ハイスループットシステムの導入・運用により加速)</p>
[3] 先端ナノ計測評価技術開発	<ul style="list-style-type: none"> <li>・各種計測手法における基盤技術を確立</li> <li>・ハイスループット計測システムの導入による、さらなる高度化と高速化を計画</li> <li>・汎用化を目指し、モデル素材だけでなく実用材料に対応するための測定系のカスタマイズを計画</li> </ul>	<p>中間目標までに開発した計測手法を汎用化するとともに、計測時間の高速化等の手法で従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間1/20の短縮に貢献する。</p>	<p>○ (ハイスループットシステムの導入・運用により加速)</p>

### 3.2 研究開発項目毎の成果（担当：AIST、ADMAT）

#### [1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術（①～⑤）

##### 【事業内容毎の目標と達成状況】

事業内容	中間目標	成果	達成度	
①キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発	1.電気・光等のマルチスケール伝導計算シミュレータの構築	nmからmmに至る部材の電気伝導・光学特性予測可能なマルチスケール計算シミュレータを開発	有機・カーボン材料等の電気伝導、調光用ナノ粒子の光学応答等の順方向予測が可能な大規模計算シミュレータを構築	○
	2.分子、イオン・界面原子ダイナミクスに関するマルチスケール計算シミュレータの開発	第一原理分子動力学シミュレータとデータ科学的手法を組み合わせる事により、大規模かつ複雑なモデル材料に対する順方向予測手法を確立する	外部環境が与えられた下での分子、イオン、界面原子の挙動を取り扱う大規模第一原理分子動力学シミュレータを構築	○
②外場応答材料と複雑組織材料の大規模計算シミュレータの開発	1.第一原理多体計算に基づく外場応答の大規模計算シミュレータの構築	誘電材料における複素誘電率、光学伝導率等の外場応答機能の第一原理シミュレータを開発	・誘電開数の第一原理電子状態シミュレータを構築 ・有機誘電材料および調光材料のモデル素材への適用に着手	○
	2.材料組織とマイクロ構造に関する計算シミュレータの構築	電歪ソフトマテリアル等を対象としたマルチスケールシミュレータを開発	・液晶エラストマーの粗視化モデルの構築 ・粗視化MD-FEMの連携による電歪挙動検討のスキーム構築	○
③機能性ナノ高分子材料のマルチスケール計算プロセスシミュレータの開発	1.ソフトマテリアル統合シミュレーションプラットフォームOCTAの拡張	画像等の大量データ解析およびAIとの連携が可能なソフトマテリアル統合シミュレータ(OCTA)を開発	・OCTAの大規模データ対応、画像解析プログラムの追加、AIシミュレータとのインターフェースの開発を実施 ・高分子の相分離構造のシミュレータによる計算データおよび実験データ(電子顕微鏡像)を用いた画像解析の実施	○
	2.機能性ナノ高分子材料のための粗視化シミュレーション機能強化	高分子材料を対象とした、原子・分子レベルからの粗視化によるマルチスケール化技術の高度化	・全原子シミュレーションから化学的情報を保持した相分離挙動予測スキームの確立 ・ナノカーボン、無機フィラーを対象としたコンポジットシミュレータの完成	○
④マルチスケール反応流体シミュレータの開発	化学反応を考慮した反応流体シミュレータの開発	素反応過程から反応性流体計算に必要なパラメータ群を特定し量子化学計算等のミクロ計算結果と反応流体シミュレータとの連成スキームを確立し、それに基づいたシミュレータを開発	○	
⑤深層学習・機械学習、離散幾何解析を用いた材料データの解析技術の開発	マルチスケール計算シミュレータにより生成される計算データを深層・機械学習、離散幾何学を用いた解析技術を開発	・大量のデータを圧縮・スパース化するデータ解析・可視化するシステムを構築 ・モデル素材に関する実験データを用い、有効な記述子、回帰アルゴリズム、深層学習の選出により、直鎖ポリマーの屈折率を予測 ・オレフィンからエポキシドを生成する反応において、AIを活用し高収率触媒を予測	○	

【成果の最終目標と達成可能性】

事業内容		現状	最終目標 (平成33年度末)	達成見通し
①キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発	1.電気・光等のマルチスケール伝導計算シミュレータの構築	・大規模化第一原理伝導計算シミュレータの開発 ・マルチスケールデバイスシミュレータを構築	有機半導体材料や酸化物ナノ粒子、CNT線材やヘテロ接合積層原子膜材料の設計のための深層学習や機械学習に向けたAI学習用データをマルチスケール伝導シミュレータにより生成する	○
	2.分子、イオン・界面原子ダイナミクスに関するマルチスケール計算シミュレータの開発	QuantumESPRESSO、Hybrid QMC の拡張による界面原子ダイナミクスシミュレータを構築	高速化・機能強化が図られた第一原理シミュレータとデータ科学的な手法を加え合わせる事により、複雑材料の分子、イオン・界面原子ダイナミクスに対する順方向予測性能を高める。また、得られたデータを解析する事により系の支配因子・記述子を特定し、それらを活用し界面設計を行う	○
②外場応答材料と複雑組織材料の大規模計算シミュレータの開発	1.第一原理多体計算に基づく外場応答の大規模計算シミュレータの構築	OpenMXの拡張による誘電率等の外場応答物性シミュレータを構築	⑤で開発予定の逆問題ソルバが高い信頼性をもち、かつ、時間短縮を可能とする順問題ソルバを構築する。マルチスケール化された外場応答機能に対する大規模第一原理シミュレータにより、複素誘電率や光学伝導率といった外場応答機能に対する順方向予測性能が著しく高まる。その様なシミュレータを活用し、シミュレーションを本プロジェクトで導入予定の計算クラウド上で大量に実施する事で得られるビッグデータを解析する事により、外場応答機能材料に特徴的な支配因子・記述子を特定する。その情報を活用して高耐電圧・高誘電率・低誘電正接等の複合材料に期待される相反機能最適化設計を実施し、その試作を行う	○
	2.材料組織とマイクロ構造に関する計算シミュレータの構築	電歪挙動解析のためのマルチスケールシミュレーションスキームを構築	マルチスケールシミュレーションスキームにより、組織構造から支配因子・記述子を抽出することにより、材料設計を実施する	○
③機能性ナノ高分子材料のマルチスケール計算プロセスシミュレータの開発	1.ソフトマテリアル統合シミュレーションプラットフォームOCTAの拡張	汎用インターフェースの開発とOCTA拡張による大規模粗視化分子動力学シミュレータとの連携	OCTAの大規模化、AI連携による高分子コンポジット材料のプロセスシミュレーションを実施する	○
	2.機能性ナノ高分子材料のための粗視化シミュレーション機能強化	・化学的情報を保持した相分離挙動予測スキームの確立 ・コンポジットシミュレータの完成	シミュレータ、スキームを用いナノ高分子材料に特徴的な支配因子・記述子を特定することにより、ゴム材料、樹脂/無機フィラー複合材料、革新分離膜材料等の材料・プロセス設計を実施する	○
④マルチスケール反応流体シミュレータの開発		化学反応を考慮した反応流体シミュレータとの連成スキームを確立し、それに基づいたシミュレータを開発	反応経路自動探索法を含めた反応流体シミュレーションを実施し触媒・反応設計を行い、そこで得られるデータを解析する事により、反応に対する特徴的な支配因子・記述子を特定する	○
⑤深層学習・機械学習、離散幾何解析を用いた材料データの解析技術の開発		可視化サービスシステムを開発	マルチスケール計算シミュレータにより生成される計算データを深層・機械学習、離散幾何学を用いた解析技術を実施する	○

【研究計画（線表）】

事業内容	平成28年度				平成29年度				平成30年度			
	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期
① キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発												
1. 電気・光等のマルチスケール伝導計算シミュレータの構築	ホッピング伝導機構予測、光学機能予測等を加えた多機能化と階層内大規模化				マルチスケール連成モデリング等による階層間連携手法の開発				古典ボルツマン伝導シミュレータの拡張手法構築・有機材料への適用拡張			
2. 分子、イオン・界面原子ダイナミクスに関するマルチスケール計算シミュレータの開発	第一原理計算・オーダーN法・溶液論による階層内多機能化と大規模化				第一原理/古典分子動力学とデータ科学的手法を併せた順方向ソルバー開発							
② 外場応答材料と複雑組織材料の大規模計算シミュレータの開発												
1. 第一原理多体計算に基づく外場応答の大規模計算シミュレータの構築	第一原理計算シミュレータへの多体理論手法の実装				機能拡張や大規模化・高速化							
2. 材料組織とマイクロ構造に関する計算シミュレータの構築	多階層接続に必要な粗視化シミュレータの開発				第一原理計算・分子動力学計算・連続体シミュレーション多階層接続及び多機能化のスキームの開発							
③ 機能性ナノ高分子材料のマルチスケール計算プロセスシミュレータの開発												
1. ソフトマテリアル統合シミュレーションプラットフォームOCTAの拡張	大規模データ対応、画像入力等のためのソフトウェア設計と試作				ソフトウェアの実装と検証							
2. 機能性ナノ高分子材料のための粗視化シミュレーション機能強化	全原子分子動力学から粗視化分子動力学、平均場シミュレーションまでのシームレスな階層化技術の高度化				高分子溶液相分離、フィラー充填系等に関する機能強化							
④ マルチスケール反応流体シミュレータの開発												
	全素過程反応経路の自動探索計算技術の効率化				反応流路解析と実空間での化学反応シミュレータの融合・階層化							
⑤ 深層学習・機械学習、離散幾何解析を用いた材料データの解析技術の開発												
	深層学習・機械学習法による材料データ次元削減法や因子抽出スキームの構築				AI関連技術による材料解析設計システム・データハンドリングスキーム開発							

## ① キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発

### ①-1 電気・熱等のマルチスケール伝導計算シミュレータの構築

#### ■目標

本項目では、有機・カーボン材料やナノ粒子材料を対象とし、与えられた材料の構造・組成情報からこれらの材料の電気・光等のキャリア輸送特性を予測するといった順方向予測機能を持つマルチスケールキャリア輸送計算シミュレータを開発する。これらの計算シミュレータを用いて得られる構造・組成と機能が良く関連付けられた大量の相関データを事業内容⑤で開発する深層学習・機械学習プログラムに入力する事により、所望の機能から材料の構造・組成を予測する(逆予測)事が本項目の最終目標であるが、その用途に耐えうる質の高い相関データを大量に生成する事ができるマルチスケールキャリア輸送計算シミュレータの構築が中間目標となる。

#### ■研究開発の成果

(概要)電気伝導においては、マイクロ側で有用な第一原理シミュレータの対象規模をこれまでのサブナノメートルからマイクロメートル長程度に引き上げると同時に、バンド伝導機構に加えてホッピング伝導機構による直流電流の計算機能を計算シミュレータに付与すると同時に、交流伝導度に関する計算機能も追加した。マクロ側においては従来シリコン半導体用に開発されていたドリフト・拡散方程式に基づく TCAD デバイスシミュレータを有機材料へ適用拡張した。マイクロマクロ階層連携を強化するために、フルバンド半古典ボルツマンシミュレータ(モンテカルロシミュレータ)を開発した。これらの開発シミュレータによりマイクロな構造・組成情報からモデル素材(有機・カーボン材料)の電気機能を順予測する事が可能になった。光学・色機能に関しては、ホスト材料に分散されるナノ粒子の光学・色特性の計算シミュレータの開発を行い、モデル素材(調光用ナノ粒子材料)の構造、粒径、組成などのマイクロな情報からその光学・色特性を予測する事を可能とする順方向予測計算シミュレータを開発した。

(主な成果・実施内容)マイクロメートル長程度にまで適用可能な大規模第一原理電気伝導計算シミュレータ開発においては、電流計算におけるその計算スピードの律速となっているグリーン関数計算部分への高速計算技法導入、再委託先の物質・材料研究機構(NIMS)が以前から継続的に開発している大規模第一原理電子状態計算シミュレータにおける電子状態計算基幹部分の高速化・高効率化の利活用と、その電流計算へのカスタマイズ等により、以前から実施していた大規模チャンネル材料へ適用可能な計算シミュレータの開発を完了した。ホッピング伝導機構による直流電流と交流伝導度については、上記の大規模計算に適合する大規模アルゴリズムを採用した計算シミュレータを開発した。この大規模第一原理電気伝導シミュレータを活用し、モデル素材であるカーボンナノチューブ導線に関連して、バンドルの電気特性を考える上で最小構成要素となる交差した複数のカーボンナノチューブと単体の電気伝導計算を実施した。これらのマイクロ側の計算シミュレーション結果をベースとして最終ターゲットとなる導線の電気機能予測につなげるマルチスケール・階層連携モデルを提案し、本項目担当者間で

共有した(図 3-①-1-1)。プロジェクト後半に実施予定のプロセス(事業内容⑨)と計測(事業内容⑬)によるマルチスケールモデリング法の検証方法を、その計算へのフィードバック法も含めて考案した。

また、従来シリコン半導体用に開発されていたドリフト・拡散方程式に基づく TCAD デバイスシミュレータを有機材料へ適用拡張した。加えて、マイクロな組成・構造情報とより良く結びつけやすいフルバンド半古典ボルツマンシミュレータ(モンテカルロシミュレータ)に関しては、その開発と並行して、結晶構造予測等の構造探索シミュレーションと第一原理バンド計算を活用した網羅的なマイクロ情報の探索スキームを、再委託先の豊橋技術科学大学と協力する事により開発した。

光学・色機能に関しては、誘電関数を介したマイクロとマクロの階層連携モデルを採用した。マイクロ側からは、組成・構造を入力とする第一原理外場応答シミュレータにより誘電関数の計算結果を供出し、マクロ側においては誘電関数から光学応答を計算する。これらの双方をつなげることにより組成・構造から光学・色機能への順方向予測を実現した(図 3-①-1-2)。前者に関しては事業内容②-1 で開発した第一原理外場応答シミュレータと本項目で開発した大規模第一原理電気伝導計算シミュレータの一部計算機能改変版を用い、後者に関しては新たな計算シミュレータを開発してそれを用いた。これらの開発シミュレータを利用し、事業内容⑥により提供されるナノ粒子系の光学応答の粒径依存性の予測に成功するなど、組成、粒径、形状、分散状態等の制御による自在な光学機能材料開発に向け、計算シミュレータの有効性を確認した。

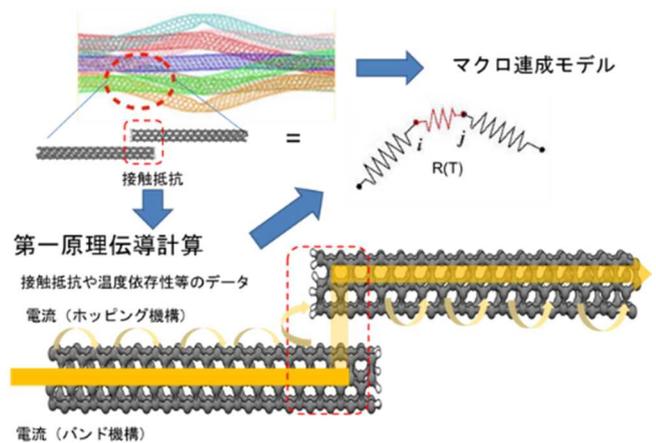


図 3-①-1-1 マルチスケール電気伝導計算の概念

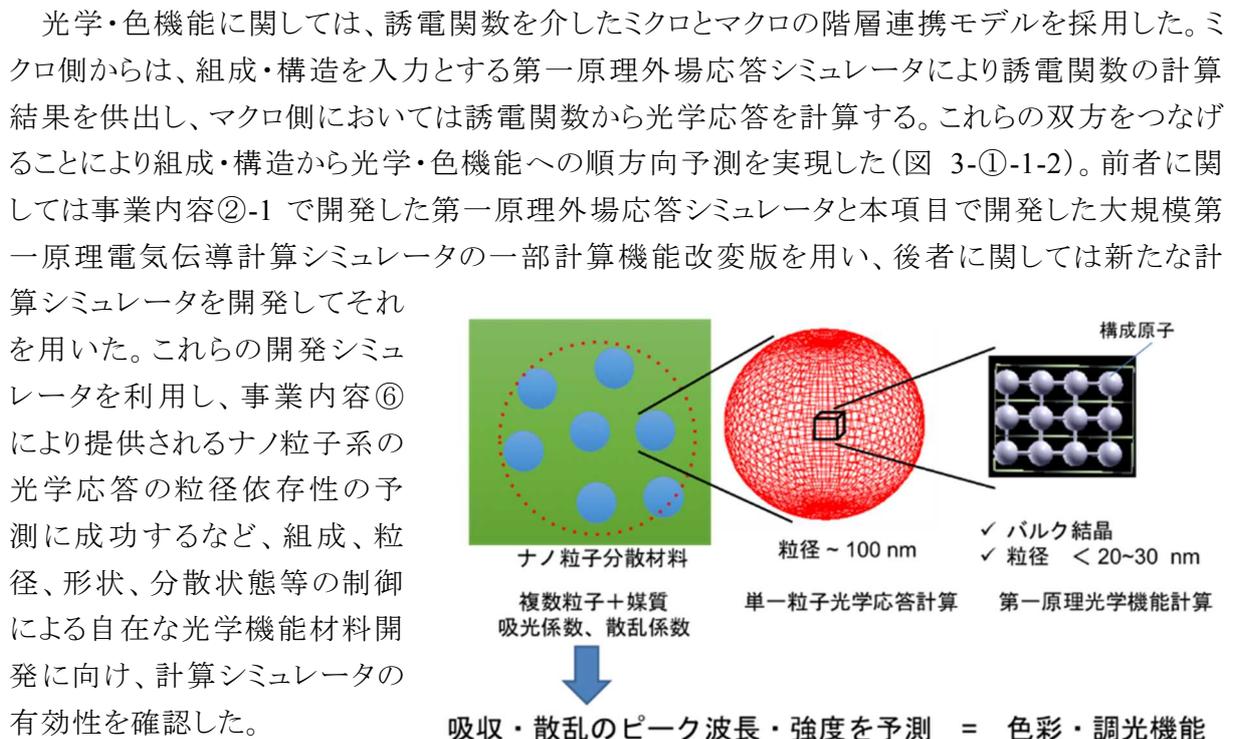


図 3-①-1-2 光学応答計算の概念図

## ①キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発

### ① -2 分子、イオン・界面原子ダイナミクスに関するマルチスケール計算シミュレータの開発

#### ■目標

オーダーN法や古典溶液理論、タイトバインディング法導入等の高速化技法を用いる事により、分子、イオン・界面原子ダイナミクスに関する第一原理分子動力学シミュレーションが計算機上で取り扱う事ができるモデルサイズと、その適用対象を拡大する。データ科学手法の導入により、シミュレーションが生み出す大量データから有為な情報を網羅的に読み取る為の数理技術を確立し、異なった階層に属する計算シミュレーション間のマルチスケール連携にそれを活かす。それを踏まえて、第一原理分子動力学シミュレータ単独では実施が不可能な、大規模かつ複雑な界面近くの分子、イオン、原子ダイナミクスが関わるモデル素材問題に対する順方向予測シミュレータを確立する。これらシミュレータを用いて得られる計算結果データを解析し、素材の機能の支配因子・記述子を特定し、それらを活用した界面設計を行う。

#### ■研究開発の成果

(概要)二つのハイブリッド法の導入により、第一原理シミュレータの高速化を達成した。具体的には、第一原理計算と古典分子動力学法を融合することにより、界面における温度や局所応力など極限環境におけるダイナミクスの高速計算機能を付与したシミュレータを開発し、第一原理計算と古典溶液理論の融合により電場などの外場の影響を取り込みながら反応の詳細を高速計算する機能を付与したシミュレータを開発した。これらの開発シミュレータを用いて、局所応力が存在する界面におけるモデル素材(複合環境下の金属/有機分子界面)の反応の順方向予測を行うことが可能となる。

異なる階層に属する計算シミュレーション間のマルチスケール連携に関しては、データ科学的手法を導入することにより、古典分子動力学シミュレーション結果から、粗視化分子動力学シミュレーションの力場パラメータを効率的に構築することが可能となった。当該手法を用いて、様々な温度・圧力下にあるモデル素材(有機溶剤中の逆ミセル)に対する粗視化分子動力学シミュレーションを化学的な精度を保って行う事が可能となった。

(主な成果・実施内容)本課題では複合環境下の金属/有機分子界面における分子・イオン・界面原子ダイナミクスを扱うシミュレータを開発した。金属と有機分子の界面は、空間及び時間特性長が両系で大きく異なるため、多重にマルチスケール性を持つ。本研究では、この本質的にマルチスケール性を持つ金属-有機分子界面に関して、外部からの応力や変形などの力学的変化に応じて生じる化学反応やイオンダイナミクス、さらに、それらに伴う力学特性の変化を、電子の第一原理計算レベルでの物理精度で、古典分子動力学での場合と同レベルの大規模で扱うことができるマルチスケールシミュレータ(hybridQMCLT)の開発を再委託先の名古屋工業大学で行うとともに、第一原理シミュレータと古典溶液理論を融合させることができるマルチスケールシミュレータ(ESM-RISM)の開発を行った。目標とするマルチスケールシミュレータの実現を目指し、これまでに以下の要素的項目を実現した：[hybridQMCLT(1)(2)、ESM-RISM(3)]

- (1) 電子の量子力学計算に用いる分割統治型の実空間密度汎関数 (DFT) コードを、斜方結晶格子構造を持つ金属系に対しても適用可能とし、その汎用性を高めた。Kohn-Sham 方程式を解く際、実空間グリッドデータの差分による微分演算に際しては、非直交グリッドの場合は、直交グリッドの場合に比べて桁違いに多くの周辺グリッドデータが必要となる。そこで高速化のため、並列計算時の計算ノード間データ転送回数が出来るだけ少なくなるように工夫した。
- (2) 金属-有機分子界面の有機分子系を、個々の有機分子を電荷中性なブロックに仮想分解し、ブロック単位で量子力学領域あるいは古典領域として扱うことで、ハイブリッド量子古典法を適用する際の有機分子系での量子-古典境界設定の自由度を高めた。高分子の有機分子系に対しても約 1,500 原子の量子力学領域に小さくすることでシミュレーションが可能となった。
- (3) 古典領域を溶液理論の一種である reference interaction site model (RISM)を用いて DFT と融合した計算手法を開発した。界面を効率良く扱うために effective screening medium (ESM)法を採用し、溶液側の化学ポテンシャルや電場などの外部環境を効率良く取り込むことが可能となった。

異なる階層に属する計算シミュレーション間のマルチスケール連携に関しては、古典分子動力学及び粗視化分子動力学シミュレーションに注目する。これらのシミュレーションは、第一原理シミュレーションに比べて、計算コストを著しく抑えることが可能である。しかし、力場パラメータの設定には注意が必要であり、様々な環境に適したパラメータを得ることは難しい。この問題を解決するために、機械学習などのデータ科学的手法を用いて環境に依存した力場パラメータを構築するためのツール群の開発を行った。実材料への適用として、炭素系ナノ粒子の有機材料への相溶化技術構築のため、モデル素材として有機溶剤中での逆ミセル構造のシミュレーションを再委託先の名古屋大学で行い、粗視化分子動力学シミュレーションのための力場パラメータの自動生成技術開発を行った。一般的には、温度・圧力を変化させた古典分子動力学シミュレーションのトラジェクトリを再現するように、粗視化分子動力学シミュレーションの力場パラメータを試行錯誤して最適化しているが、このプロセスをベイズ最適化の手法を用いて自動化し、パラメータ生成コストを減らすことに成功した。

## ②外場応答材料と複雑組織材料の大規模計算シミュレータの開発

### ②-1 第一原理多体計算に基づく外場応答の大規模計算シミュレータの構築

#### ■目標

本項目では、高耐電圧・高誘電率・低誘電正接等の機能を有するフレキシブル材料、有機・無機ハイブリッド材料を対象とし、これらの材料が時として示す、相反する機能を組成・構造から予測する計算シミュレータ:外場応答の大規模第一原理計算シミュレータを開発する。これらの計算シミュレータを用いて得られる計算結果データから、これらの機能材料に特徴的な支配因子・記述子を特定する。これらの支配因子・記述子を用いた機械学習の実施により、所望の相反機能を実現する材料の構造・組成候補を予測する事が本項目の最終目標であるが、その用途に耐えうる信頼性の高い計算データを生成する事ができる計算シミュレータの構築が中間目標となる(図3-②-1-1)。

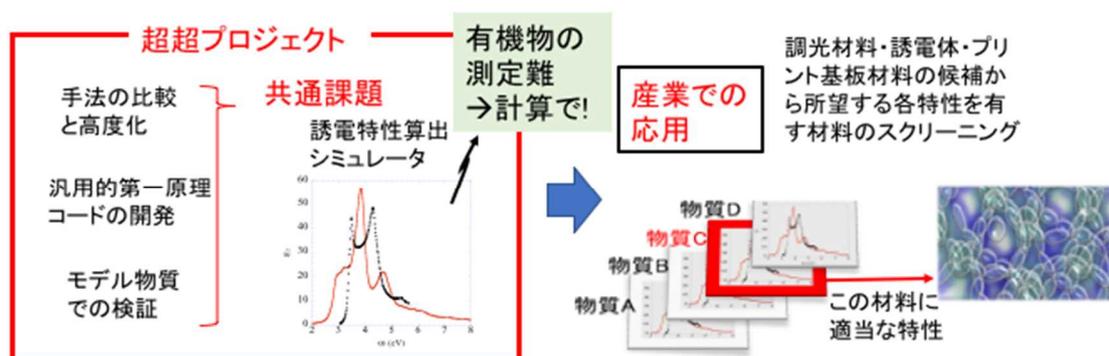


図 3-②-1-1 第一原理計算に基づく外部応答シミュレータ構築の概念図

#### ■研究開発の成果

(概要)以上の最終目標に向けて、複素誘電率や光学伝導率といった外場応答機能に対するシミュレータを構築した。実材料へ向け、外場応答機能に対する大規模第一原理シミュレータの電子状態計算部分の開発を行い、モデル素材への適用に着手した。ターゲット材料において電子相関効果の関与が予見されるため、多体効果を充分に取り込む事ができる理論を実装のベースとした。

(主な成果・実施内容)大規模で複雑な系の誘電関数を第一原理に基づき計算するために久保-Greenwood 公式による計算手法を詳細に導出した。再委託先の東京大学では、導出した OpenMX への実装を行った。典型的な固体の誘電関数(振動数依存)を計算し、従来報告されていた結果をおおよそ再現した(図 3-②-1-3)。また、モデル素材の有機物質や遷移金属化合物に対するテスト計算を行い、プログラムが正常に動作することを確認した。さらに、計算の律速となる遷移行列の計算に自然軌道を用いる定式化を行い、計算量が大幅に低減できる可能性を見出した。

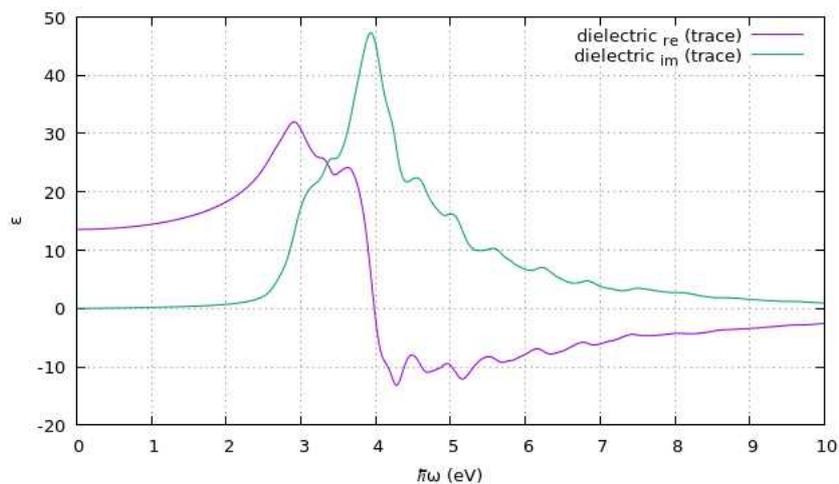


図 3-②-1-2 OpenMX に新たに実装した機能を用いて計算した複素誘電関数の計算例

また、誘電材料、光学材料の第一原理計算電子状態計算の一環として、多体電子論において信頼度が高いとされている GW 近似に基づく複素誘電関数計算を実施した。調光材料のモデル素材に対する電子バンド構造と光吸収スペクトルを計算し、多電子効果(自己エネルギー補正の影響)を調べた。乱雑位相近似(Random Phase Approximation, RPA)の分極関数から光吸収スペクトルを計算した(図 3-②-1-3)。これと合わせて、元素置換系の巨視的誘電関数の計算を開始した。

一方、シミュレータの検証を実施する為に、外場応答パラメータ取得のためソフトウェア環境を整備し、モデル素材に関わる計算シミュレーション入力パラメータを準備し、それを用いて順方向計算シミュレーションを本プロジェクトで導入した計算クラウド上で実施し、準備した物性データとの比較検証を実施した。

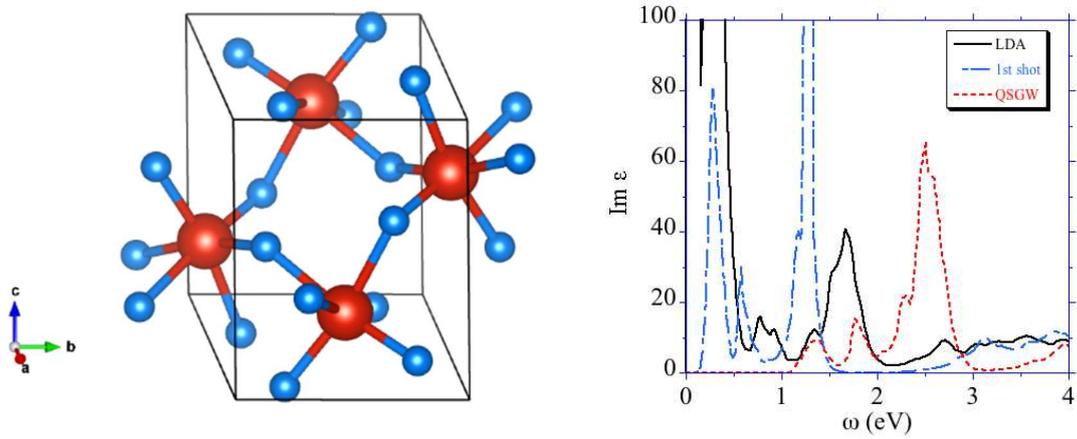


図 3-②-1-3 (左)モデル素材の結晶構造。(右)乱雑位相近似(RPA)による光吸収スペクトルの計算結果:局所密度近似(LDA)の電子構造を用いた結果(実線)、GW 近似による多電子補正を 1 shot で加えたもの(破線)、GW 補正を自己無撞着に考慮した QSGW 法の電子構造を用いたもの(点線)

## ②外場応答材料と複雑組織材料の大規模計算シミュレータの開発

### ② -2 材料組織とマイクロ構造に関する計算シミュレータの構築

#### ■目標

第一原理電子状態計算、分子動力学計算、連続体シミュレーション等の異なった階層の計算シミュレータを多階層接続する事により、化学組成を与えた時に材料がどのような組織構造やマイクロ構造を取るかといった、複雑構造問題に対するシミュレータ予測性能の高精度化を目指す。多階層化の際、空間方向での粗視化と共に、時間方向での粗視化手法も開発し、組織構造の経時変化のシミュレーションも実施する。さらには、開発されるマルチスケールシミュレーションスキームにより、組織構造から支配因子・記述子を抽出し、その情報を活用して高分子アクチュエータ材料設計を実施することを最終目標とする。

具体的には、電歪ソフトマテリアルを想定し、モデル素材として液晶-エラストマー系のポリマーの粗視化モデルを構築、電場応答までの計算を可能にする順方向粗視化分子動力学(MD)シミュレーションスキームを再委託先の九州大学と共に完成させる。また、さらに大きなスケールのシミュレーションに対応させるべく、再委託先の大阪大学ともに有限要素法と粗視化MDシミュレーションとを接続することによって、材料からデバイスまでの特性変化を計算可能にし、想定されるモデル物質に対して比較検証を完了する。同時に、上記目標を達成するために必要になる、粗視化分子動力学シミュレーションに一定の電圧を印加する機能を付加したシミュレータを開発する。

また、将来的な有機材料への展開を想定して、再委託先の東北大学では第一原理計算からフェーズフィールド法、有限要素法までのマイクロマクロ連成に関して、金属材料を対象にして基盤技術開発を行う。

#### ■研究開発の成果

ここでは、モデル素材として取り上げた電歪ソフトマテリアルに関連する検討内容を中心に報告する。

##### (1) 液晶エラストマーの電歪挙動シミュレーション

粗視化 MD により液晶エラストマー(LCE)の電歪挙動をシミュレーションするには、粗視化 MD シミュレータにおいて、以下の項目を実現する必要がある。

- (a) 液晶エラストマーの粗視化モデルへの電荷(静電ポテンシャル)の導入
- (b) 応力-ひずみ特性から弾性率等の機械特性の算出
- (c) 電場印加下における応力-ひずみ特性から圧電特性の算出

現在、粗視化 MD シミュレータである OCTA/COGNAC の機能を拡張することにより、これらの項目に取り組んでおり、以下では(a)と(b)に関する成果について述べる。

##### (a) 液晶エラストマーの粗視化モデルへの電荷(静電ポテンシャル)の導入

本研究では、液晶分子を Gay-Berne (GB) ポテンシャルと呼ばれる、異方的な相互作用を有する粒子(GB 粒子)で粗視化した上で、GB 粒子同士がある程度の重なり合うことを許す「ソフトコア化」という実装を施した。このソフトコア化は、液晶エラストマーのような複雑な構造を有

するモデルでは、計算の安定化や計算コストの抑制のために必要であることが過去の研究から知られている。しかし、ソフトコア化を施したモデルに、粒子間距離がゼロに近づくと発散する静電ポテンシャルを実装すると、GB 粒子同士が重なり合った際に、計算が不安定になるという課題があった。そこで我々は、静電ポテンシャル自体もソフトコア化するため、誤差関数を用いて静電相互作用の近距離力の発散を抑制することができる、新たな静電ポテンシャルを開発し、MD 計算を安定化させることに成功した。また、我々が新たに実装した誤差関数が、物理現象、特に相転移挙動に影響を与えないような誤差関数のパラメータを決定することに成功した。図 3-②-2-1 に新たな実装により求めた相転移挙動の電荷量依存性を示す。電荷量  $q$  が大きくなるにつれ、相転移点が高温度側へシフトしたが、これは静電相互作用により液晶相がより安定的に発現するようになったためであると考えられ、妥当な結果が得られたと言える。

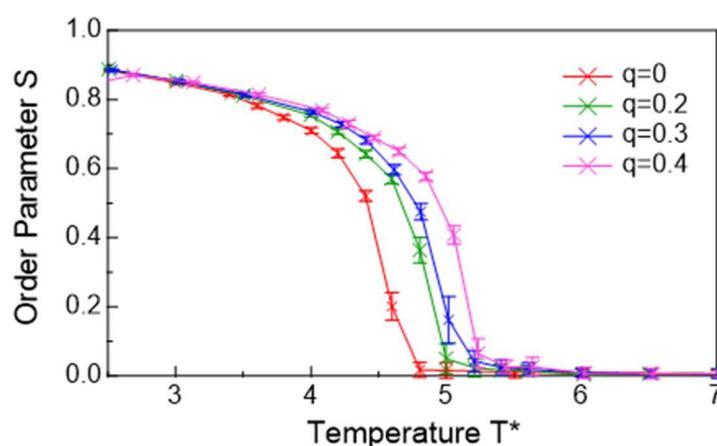


図 3-②-2-1 電荷を導入した液晶エラストマーモデルの相転移挙動

#### (b) 応力-ひずみ特性から弾性率等の機械特性の算出

我々が構築した粗視化液晶エラストマーモデルの機械特性についての妥当性を検証すべく、架橋した液晶エラストマーモデルを作成し、セルを一軸伸長させ、応力-ひずみ特性を解析した。液晶相発現温度において、GB 粒子を図 3-②-2-2 (水色が主鎖、青色が架橋剤、灰色が膨潤用低分子を表す) のように  $x$  軸に一軸配向させ、この状態からセルを  $x$  または  $z$  方向に一軸伸長させた。この時の応力-ひずみ特性を図 3-②-2-3 に示す。 $x$  方向、すなわち GB 粒子の配向方向と同方向に伸長させた場合は、伸長初期から応力の増大しており、一般的なエラストマー材料などで見られる応力-ひずみ特性と同様の特性が得られた。一方で、配向方向に対して垂直である  $z$  方向にセルを伸長させた場合は、ひずみ  $e$  がおよそ 2.3 未満の領域では応力がそれほど増加せず、 $x$  方向の伸長と比べ、非常に柔らかい性質が得られた。この  $e=2.3$  においては、図 3-②-2-4 に示すように大部分の GB 粒子が伸長方向である  $z$  方向に配向しており、伸長により GB 粒子が回転したことがわかる。このことから、 $e < 2.3$  の領域では、セルが変形を受けた際に、GB 粒子が回転することで内部応力を緩和するため、伸長による応力の増大が観測されなかったと考えられる。また、 $e > 2.3$  の領域では GB 粒子がこれ以上回転できないため、 $x$  方向に伸長させた際と同様に、伸長に応じて応力が増大したと考えられる。このような伸張初期において応力が増大しない現象は、soft elasticity と呼ばれ、液晶エラストマーでは実験によ

り観測されている。したがって、我々の LCE モデルは、LCE の力学特性および分子ダイナミクスをシミュレーションする際に有力なモデルであることが明らかとなった。

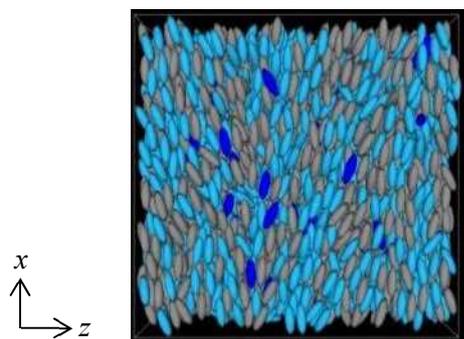


図 3-②-2-2 架橋した液晶エラストマーモデルのスナップショット

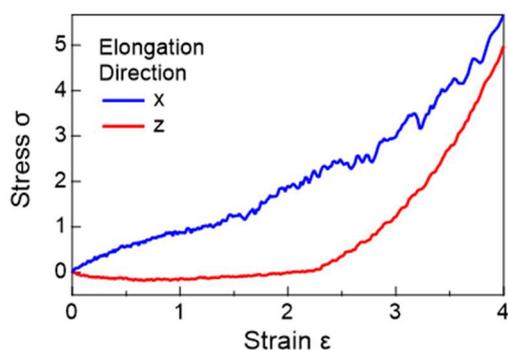


図 3-②-2-3 架橋した液晶エラストマーモデルの応力-ひずみ特性

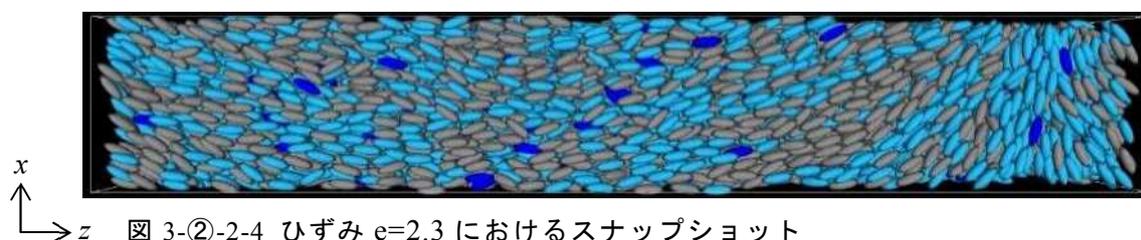


図 3-②-2-4 ひずみ  $\epsilon=2.3$  におけるスナップショット

現在は再委託先の大阪大学と(c)の取り組みを開始しているが、上記(a)と(b)の知見、および下記の(2)の成果を活用することで、取り組みの加速化が期待でき、本年度内には目標とするシミュレータが完成する予定である。さらには、液晶エラストマーの種々の高次構造におけるシミュレーションにより得られる大量のデータに基づき、材料組織に特徴的な支配因子・記述子を特定し、その情報を利用して高分子アクチュエータ材料設計の実施へと発展させていく。

## (2) 定電圧印加粗視化 MD シミュレータ

散逸粒子動力学(DPD)などの粗視化 MD シミュレーションにおいても、静電相互作用を計算する際に、点電荷を平面上に配置することにより電極を模擬することが可能である。今回、電歪挙動の解析への適用を目的とし、定電圧印加粗視化 MD シミュレーションを行うために、周期境界セル上に正負一對の電極を配置し、電極上の総電荷量  $Q$  を変化させることにより電極間の電位差を制御するアルゴリズムを OCTA/ COGNAC に実装した。またそのアルゴリズムの検証として DPD による検討を行った。

粒子数  $n = 10$  の粒子上に交互に  $\pm q$  の点電荷を配置した分子鎖からなる DPD モデルにおいて電圧を印加した場合の系の

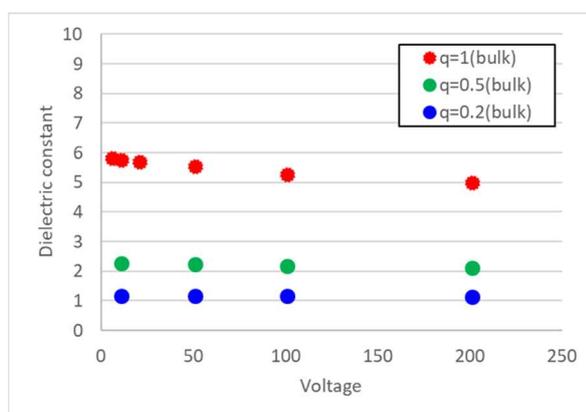


図 3-②-2-5 系の誘電率の印加電圧依存性

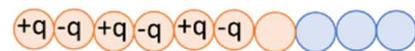
誘電率  $\epsilon$  の印加電圧および電荷量依存性を図 3-②-2-5 に示す。電荷量が大きい場合( $q = 1.0$ )では印加電圧が大きくなるとともに $\epsilon$  はやや低下する。電荷量の小さい場合では、 $\epsilon$  の電位差依存性はほとんど見られない。

さらに、ラメラ、シリンダおよび球状のマイクロ相分離を示すジブロックコポリマーにおいて、一方のブロックにのみ  $\pm q$  の電荷を交互に置き、永久双極子を持たせた分子鎖モデルを用意し、電圧印加シミュレーションを行った。図 3-②-2-6 に各々の分子鎖の構造を示す。また、マイクロ相分離構造に電場を与えた場合の構造変化を図 3-②-2-7 に示す。この結果、電場と垂直方向に配向させたラメラ(A)およびシリンダでは、電場に平行な方向に配向が変化していくことが観察された。また球状ドメイン(B)は電場印加に伴いシリンダに構造を変化することが観察された。これらの構造変化は実測や自己無撞着場(SCF)計算により観察される変化とよく一致しており、今回の電圧印加の手法が妥当であることが示された。

ラメラ: A5B5,  $a_{AB}=40.0$



シリンダ: A7B3,  $a_{AB}=40.0$  (Cylinder)



球状: A8B2/A9B1 1/1blend,  $a_{AB}=57.0$

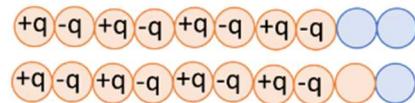


図 3-②-2-6 ブロックコポリマーの構造

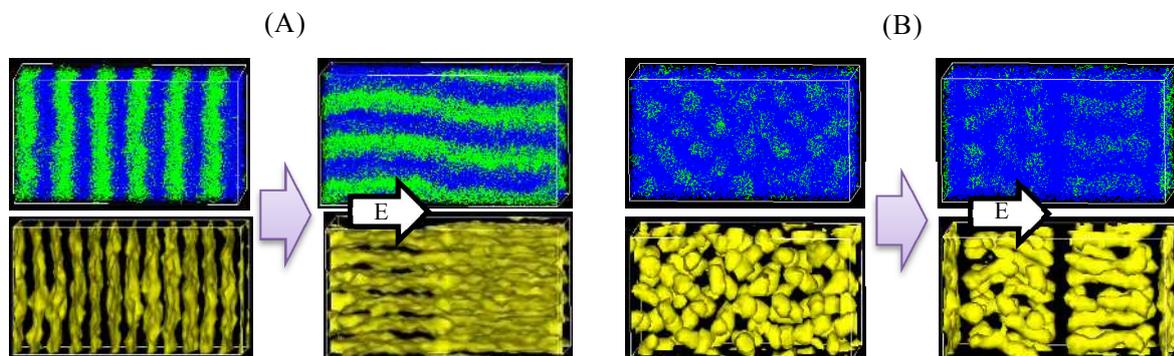


図 3-②-2-7 電圧印加におけるマイクロ相分離構造の変化  
(A)ラメラの配向変化( $V = 30$ )、(B)球からシリンダへの配向変化( $V = 50$ )

### ③機能性ナノ高分子材料のマルチスケール計算プロセスシミュレータの開発

#### ③-1 ソフトマテリアル統合シミュレーションプラットフォーム OCTA の拡張

##### ■目標

ソフトマテリアル材料の計算シミュレーションには独特の手法が必要であり、これまでに OCTA 等のソフトウェアが国内外で開発されている。特に、事業内容⑦で実施しているポリマー系コンポジット材料においては、3-20～3-21 ページに示したように OCTA は極めて有用なシミュレーションプラットフォームである。一方、今後材料開発者が現場でシミュレーションを用いる場合、実験画像との比較検証、計算結果の AI 解析が必要となるケースが多くなることが想定される。これらを円滑に行うためには、計算・実験画像の結果を同等に、かつ容易に扱うためのソフトウェアプラットフォームを整備することが必要である。ここでは、ソフトマテリアルシミュレーション解析に実績のある OCTA を拡張し、ソフトウェアプラットフォームを構築することに取り組んだ。ターゲット材料としては、マイクロメートルスケールのマクロな高次構造を有する系(コンポジット材料等の機能性ナノ高分子材料)を想定した。ソフトウェアプラットフォーム開発に伴い、OCTA に必要とされる主な機能として、

- 1)大規模化に向けたプラットフォームの改修
- 2)高次構造の観測画像の解析ツールの開発
- 3)材料の絞り込みを高精度化するための AI 連携ツールの開発

が必要と考えソフトマテリアル材料開発のための基盤技術として開発することを目標とした。これらのロードマップについて、図 3-③-1-1 に示す。

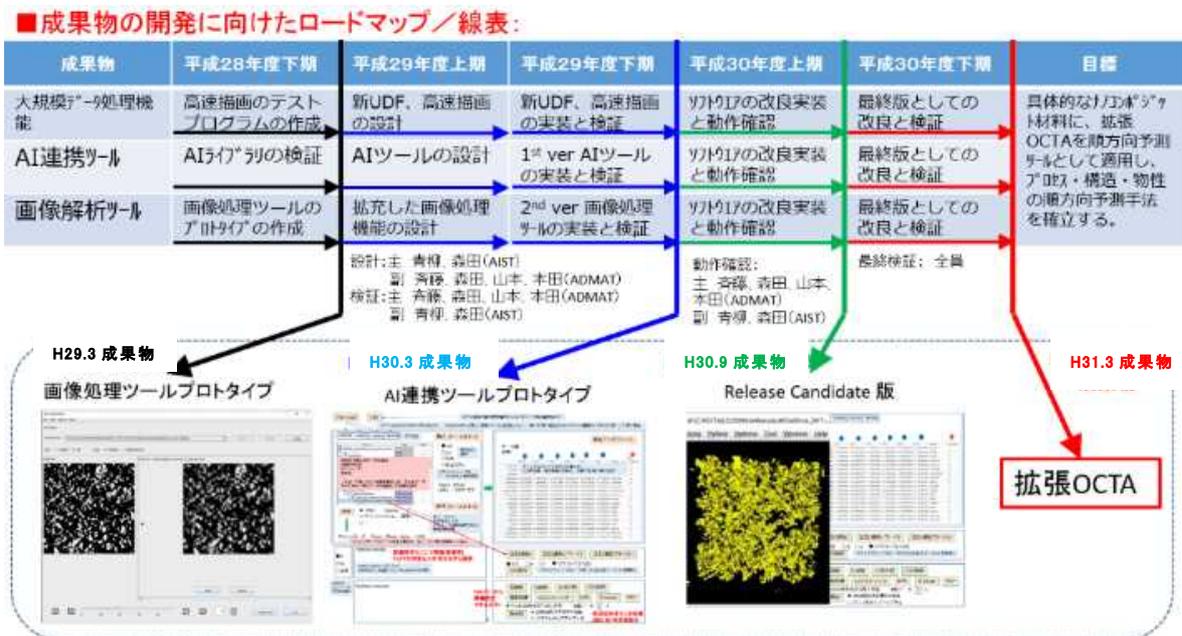


図 3-③-1-1 事業内容③-1 における研究計画

これらは、後半のモデルサンプルデータの利用にあわせて最適なツールとするために、残りの3年間もユーザビリティの向上等の開発を続け、事業内容⑦等のプロセスから得られたモデルサンプルに対する事業内容⑩からの計測結果(特に、3次元で測定された構造データ)を拡

張 OCTA に取り込むツールを用いることにより、計算・プロセス・計測の三位一体の材料開発への適用も行う。

## ■ 研究開発の成果

拡張 OCTA の開発テーマでは、目標に挙げた主な3つの課題について取り組んだ。開発は以下の方法で進めた。実際に解析の対象であるモデルサンプルであるポリマーブレンド/コンポジットの相構造/力学特性シミュレーションをモデルケースとして、最終目標であるモデルサンプルのデータを用いた順問題予測のシステムフロー設計を行った。その中で、共通プラットフォームとして新たに必要と思われる機能について、再委託先の東北大とともに、それぞれの視点からの意見を合わせ、モデルコードによる基礎検討、および開発ソフトウェアの要件定義と基本設計を行った。その後、汎用プログラムとしての詳細設計とコーディングを、外部のソフトウェア開発業者に外注し、納品されたソフトウェアの検証を行った。今回開発した成果物であるソフトウェアの具体的な内容について、以下に述べる。

### 1) 大規模系を高速に扱うためのプラットフォームの拡張

ソフトマテリアルのシミュレーションは近年様々なところで用いられるようになり、企業においても、より実験系に近いサイズ(1000万粒子の系や1000万メッシュレベル)の複合材のシミュレーションを行うケースが珍しくなくなっている。現在の OCTA のプラットフォームは大規模な並列計算が普及する以前の設計で、大規模システムの扱い(データ処理時の I/O、描画等)が最適化されておらず、取り扱いが困難である。さらに、AI によるデータ処理時には、多数のレコードや多数のファイルの中のデータを一気に処理する必要が出てくる。将来(プロジェクト終了~10年以上)に渡って計測・計算連携、計算・AI 連携のプラットフォームとして拡張 OCTA を使えるようにするためには、大規模データを扱えること、大規模系の描画ができることが必須である。そこで本事業内容の 1 テーマとして、OCTA のプラットフォームで大規模系のデータを扱うことができるように、「大規模化対応」として OCTA の基本機能(ファイル形式、描画機能等)の拡張・改良を行った。

具体的に開発した機能は、大規模対応 UDF ファイルの設計と実装、大規模データの高速描画機能、界面の曲率計算・描画、等値面の表面積計算機能等である。図 3-③-1-2 には、大規模系のためのレコード分割 UDF ファイルの設計図を示す。レコード毎に分けられたバイナリーファイルに分けることで、各レコードに対して高速に読み書きし、さらに 1 つのレコードを抽出することが容易になる。結果として、描画の高速化、AI 実行時の必要データの検索・前処理が高速化できた。

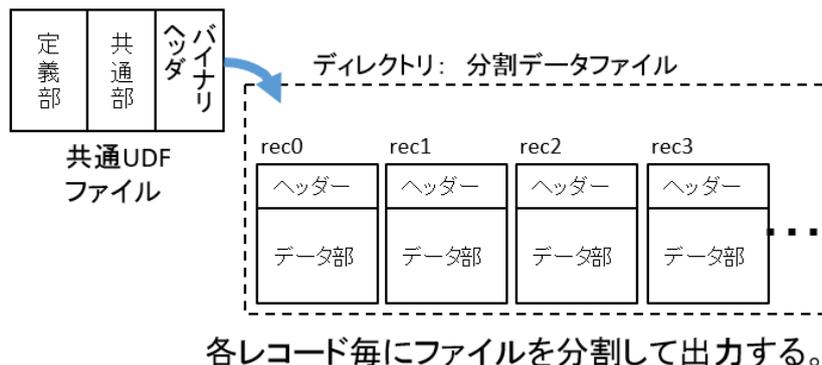


図 3-③-1-2 分割バイナリ UDF ファイルの仕組み

新規に機能追加した例として、図 3-③-1-3 には、界面(曲面)の平均曲率の計算を示す。ガウス曲率も計算可能である。一般的に、ポリマー相構造・ファイラー凝集体等は複雑な曲面構造を示すケースが多い。これらや体積・表面積等の構造特徴量を可視化、定量化することで将来的に高次構造が機能に及ぼす影響を解明できることが期待される。このような構造特徴量の解析機能を有する高分子材料用プラットフォームはこれまでなく、今後の展開が期待される。

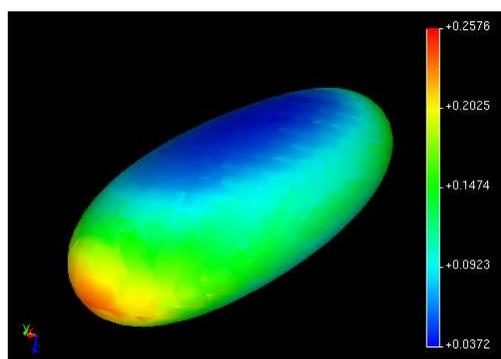


図 3-③-1-3 界面の平均曲率の結果の描画例

また、シミュレーションで得られた相境界を STL データに変換する機能も実装した。3D プリンターに STL データを渡すことで、計算した相構造の材料の模型を試作することが可能となり、材料試作支援につながることを期待される。また CAD や他の市販ソフト(FEM や流体関係等)にデータを渡すことで、OCTA だけにとどまらず、本プラットフォームが他のシミュレーションとの連携基盤(マルチスケールシミュレーション)となることも期待される。

## 2)画像処理ツール(ImageLoader)の開発

現状の OCTA では、公開されている機能として、画像を取り込み処理する機能がない。一方、実験で得られた構造情報としての画像データを用いてシミュレーションと比較・検証することや、AI 計算等では、画像を取り込んで処理することは必須の機能と考えられ、このような機能を開発することによって、計算・プロセス・計測の三位一体の連携も進められると考えられる。そこで、画像処理機能を有するツール(ソフトウェア)を拡張 OCTA に付加し、実験画像と OCTA システムを結びつける手法を開発した。具体的には、Python の画像処理ライブラリである OpenCV に

かぶせるラッパーの GUI を開発し、その画像を加工しながら OCTA のシミュレータで用いる 3 次元構造データとして移行させるためのインターフェース機能を有するソフトウェアを開発した。このソフトウェアでは、3 次元電子顕微鏡によって得られた複数の 2 次元スライス画像を取り込み、ソフトウェア内で再度 3 次元構築することも可能となっている。具体的な機能としては、bmp、png、jpg などの複数スライス画像に対応し、各ピクセル値に対して、2 値化するための閾値を設定したり、画像のノイズ除去のための gaussian/median フィルタリング処理、特定の領域を抽出したりする機能を有する。

このソフトウェアは、構造をシミュレータに取り込むことに加えて、その構造自体の解析を行う機能も付加されている。具体的な画像を処理する機能として、平面内のセグメント画像を解析し、閾値で定義された各領域の塊(フィラーやポリマーセグメントに相当)をピックアップすること、各ピクセル値のヒストグラム解析する機能も有する。このソフトウェア(ツール)を起動させた際のウインドウのスナップショットを図 3-③-1-4 に示す。このソフトウェアを用いることで、3 次元電子顕微鏡像をとりこんで、その構造を用いてシミュレーションするといった、計測-シミュレーション連携も実現可能となる。現状については、ソフトウェアとしてベータ版のレベルまで開発できているが、今後、操作の安定化を図る。

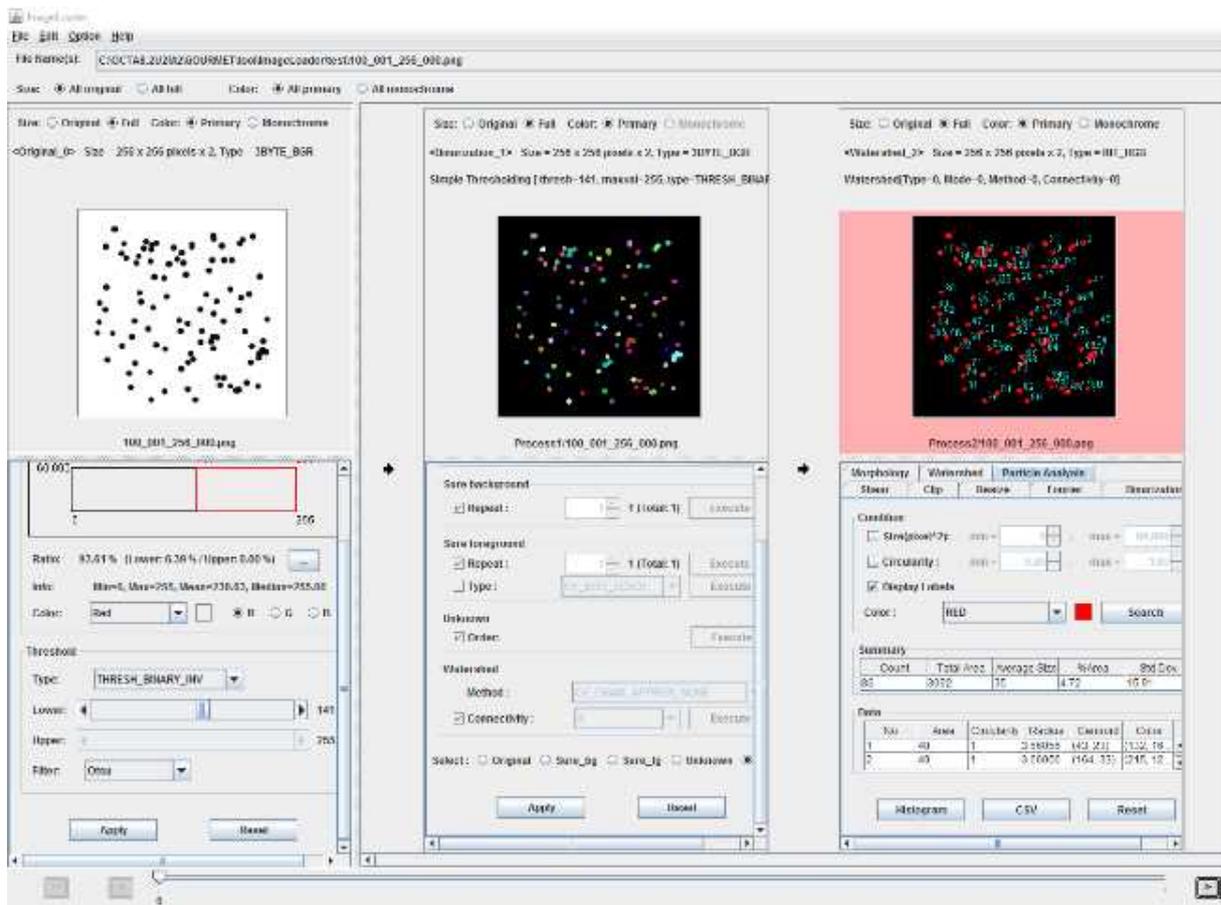


図 3-③-1-4 ImageLoader のキャプチャ画面

### 3)機械/深層学習連携インターフェース(AItool)の開発

近年は、様々な機械学習・深層学習のライブラリが開発されており、利用できるようになってきている。しかしながら、いざ使おうとすると、それぞれのライブラリに合わせたデータフォーマットに

合わせて元々のデータを加工する必要があり、機械学習・深層学習を行う前に、膨大な前処理、プログラミングが必要となる。そのために、コマンドラインを用いたり Python プログラムを書いたりしなければならぬ場合に多く遭遇し、これらの解析において、障害となっている場合も多々ある。一方、OCTA のシミュレーション結果は、UDF ファイルとなっており、複雑な解析を行うためには Python プログラムにより内部のデータを取り扱う必要がある。そこで、我々は、Scikit-learn や Tenorflow といった機械学習・深層学習ライブラリが読み込むことができるデータを簡単に作成できるようなツールとして、Pandas ライブラリの機能を用いた Pandas データフレームとして扱える新規 GUI を開発し、より多くのユーザーに使えるような拡張 OCTA のソフトウェアとして、AItool を開発した。

図 3-③-1-5 に AItool のキャプチャ画面を示す。左上の箇所では画像、csv ファイル、UDF を選択し、データフレームに移行させる元ファイルを選択することが可能となっており、この機能により、OCTA のシミュレーション結果からもデータ解析が行えるように開発した。右上側は移行させたデータを表示させる Pandas データフレームを示す。このデータフレームでは、GUI の上でデータ成形を、表計算ソフトを扱う感覚で行えるように設計・開発した。このデータフレーム上のデータは、Scikit-learn や Tenorflow が読み込める形式にもデータを保存でき、またこのデータを MatPlotLib を用いてプロットすることも GUI で簡単に行えるようにした。さらに、Scikit-learn や Tenorflow のパラメータ設定も GUI で行い、Execute ボタンで Scikit-learn や Tenorflow を動かすところまで行える。なお、学習モデルもそのまま保存することも可能となっている。なお、GUI にない機能に対しても、左下の Python 窓から自作の Python プログラムを書くことで、対応できるようにしている。

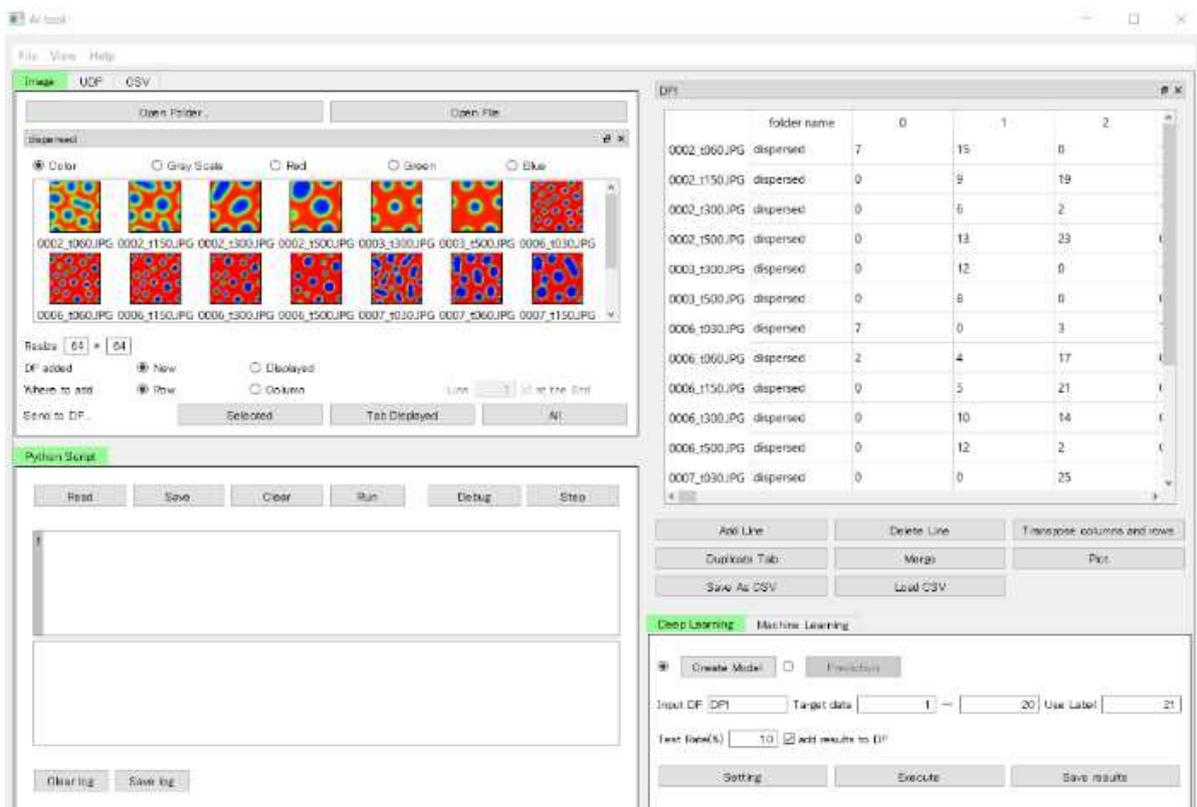


図 3-③-1-5 AItool のキャプチャ画面

このような機械学習・深層学習の Python ライブラリに対する GUI は、従来にないものでありこのインターフェースソフトは全く新規のものとして考えられる。このソフトが完成することで、シミュレーションと AI の融合が進むと考えられる。なお、現状として、ソフトウェアとしてベータ版のレベルまで開発できているが、今後、操作の安定化を図る。

### ③機能性ナノ高分子材料のマルチスケール計算プロセスシミュレータの開発

#### ③ -2 機能性ナノ高分子材料のための粗視化シミュレーション機能強化

##### ■目標

機能性ナノ高分子材料の構造・機能物性やそのプロセスを対象として、マイクロからマクロまでの様々な階層で用いられているシミュレーション技術をうまく連動利用する為に必要な、各階層間での粗視化技術の高度化研究を実施する。

マイクロレベルでの化学結合論的な差異がマクロレベルの構造・機能物性やそのプロセスにまで影響を及ぼし易い例として、高分子-溶媒の相分離、高分子-フィラーの相互作用による分散性の制御などがある。それらの問題に関して、高い順方向予測性能をもった粗視化シミュレーション技術を確立する。

具体的な研究内容として、高分子-溶媒相分離構造予測においては、全原子シミュレーションにより界面張力、混合自由エネルギーを定量的に予測することにより、化学的な詳細情報の劣化を防ぐ粗視化モデルを構築し、非溶媒誘起相分離(NIPS)プロセスにより製造する中空糸膜構造の予測に資することを目標とする。

また、高分子-フィラーの相互作用による分散性の制御に関しては、ポリマーコンポジット材料のフィラー分散状態・凝集フィラーの解砕挙動を予測するシミュレータ(コンポジットシミュレータ)を開発することを目標とする。フィラーのサイズはナノカーボン等のナノメートルスケールものから、サブマイクロメートルスケールまでを想定し、さらにポリマーブレンドおよびブロックコポリマーの相分離も同時に取り扱えるように、複数の理論に基づいた複数のシミュレータを開発する。

さらに予測される分散構造から物性を予測するため、高分子-高分子、高分子-フィラー界面の剥離強度等の予測、分散フィラーの形成するネットワークが発現する電気伝導、熱伝導などの物性を予測するための基盤技術構築も併せて目標とする。

これらの目標で開発されたシミュレータ、スキームを用いて得られる大量のデータを解析する事により、ナノ高分子材料に特徴的な支配因子・記述子を特定し、その情報を活用して機能性ナノ高分子材料設計を実施することを最終目標とする。

##### ■研究開発の成果

###### (1) ポリマー溶液相分離構造予測

ポリフッ化ビニリデン(PVDF)/N-メチルピロリドン(NMP)/水の NIPS をモデル系とし、ポリマー溶液における相分離構造の予測手法の開発を再委託先の名古屋大学と共に行った。NIPSは分子の相互作用や拡散といったマイクロな現象とポリマーの相分離とそのダイナミクスというメソスケールの現象が複雑に関係する。そのため、化学的な詳細情報の劣化を防ぐ粗視化モデルを構築し、高精度なマルチスケールシミュレーションにより解析する必要がある。

まず、NIPS に深く関連する分子の親和性を表す、高分子/溶液間の界面張力と混合の自由エネルギーを、全原子分子動力学(MD)法により高精度に求める技術を開発した。高分子/溶液間の界面張力は、PVDF 結晶および非晶基板に NMP 水溶液の液滴を接触させた MD を実施することにより求めた。このとき、接触角の液滴サイズ依存性を計算することで、修正 Young の式に基づいてサイズ効果を考慮した接触角を得た。また、結晶及び非晶表面の接触

角計算値と Cassie 方程式から混合表面の接触角を推算したところ、結晶/非晶混合表面である実際の PVDF フィルムにおける接触角の実験値とよく一致した(図 3-③-2-1(a))。以上の検討により、MD 計算から求めた混合表面の接触角と Young の式を用いて、高分子/溶液間の界面張力を求める技術を構築した。さらに、PVDF/NMP、PVDF/水、NMP/水の二成分系について混合比率を変化させて MD 計算を実施し、混合エンタルピーの体積分率依存性を求めた。これに Flory-Huggins 理論の理想エントロピーを加えることにより、MD 計算から体積分率依存の混合自由エネルギーを得る技術を構築した。次に、NIPS におけるポリマーの相分離と孔形成を解析するため、メソスケールの方法論である動的 SCF 法の適用を検討した。動的 SCF シミュレータとして OCTA の SUSHI を採用し、体積分率依存の相互作用( $\chi$ )パラメータに対応するよう機能拡張した。この拡張 SUSHI に対して、全原子 MD で得られた体積分率依存の混合自由エネルギーから求めた  $\chi$  を入力することにより、化学描像を反映した動的 SCF シミュレーションを実現する技術を開発した。ポリマー溶液(PVDF/NMP)と水が接触した状態の動的 SCF シミュレーションを実施し、NIPS における細孔形成を再現することに成功した(図 3-③-2-1(b))。今後は MD で求めた界面張力の変化等を動的 SCF 法に取り込み、化学的情報の取込みをさらに強化した高精度な NIPS シミュレーション手法を構築する。

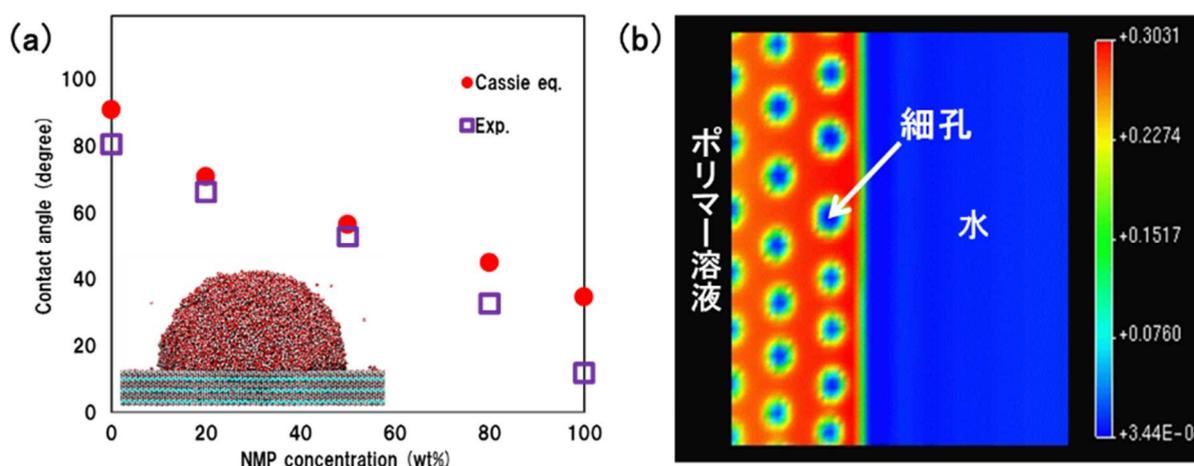


図 3-③-2-1 (a)計算で得られた PVDF 結晶/非晶混合表面の接触角と実験値、  
(b)動的平均場法で得られた細孔構造(カラーバーはポリマーの体積分率)

## (2) コンポジットシミュレータ

ポリマーコンポジット材料のフィラー分散状態・解砕挙動を予測することを目的とし、コロイド・微粒子分散系シミュレータ KAPSEL の拡張を再委託先の京都大学と共に実施した。オリジナルの KAPSEL に対して以下の様な拡張を行い、当初の目的を達することが出来た。このコンポジットシミュレータは(3)で報告するナノカーボンシミュレータより大きなサイズ(サブマイクロメートル)のフィラーを対象とするとともに、せん断流動下のフィラーの挙動などを正しく取り扱える機能を有する。

### a) フィラー間相互作用の拡張

凝集フィラーの解砕挙動を扱うためには、フィラー間の接触時に大きな凝集力を発生する相互作用が必要になる。そこで、既存の Lennard-Jones ポテンシャルに加えて Hamaker ポテンシャルを拡張した新たな粒子間相互作用を導入した。その結果、図 3-③-2-2 に示すようにせん断速度に依存して、凝集粒子の解砕挙動が再現されることが確認された。

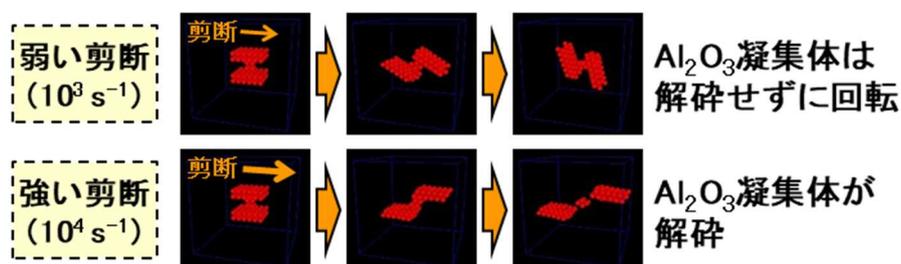


図 3-③-2-2 Hamaker ポテンシャルによる PMMA 中の Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 凝集粒子のせん断流動下における解砕挙動

### b) 高粘性マトリクスへの対応

熔融ポリマー中のような高粘性マトリクスを取り扱うためには、大きな時間刻みでも安定に解くことができる数値計算が必要になる。そこで差分法を用い Stokes 近似により流体を解く機能を KAPSEL に追加した。この機能によりオリジナルの KAPSEL に比較して 2 ケタ程度長い時間刻みでも安定に解くことを可能にした。ただし、現時点では、1 タイムステップ当たりの収束回数が多いので、さらなる効率化が必要である。

### c) ポリマーブレンド相分離への拡張

KAPSEL に Cahn-Hilliard 方程式と Navier-Stokes 方程式を組み合わせた Model H を導入し、フィラー存在下における混合流体の相分離を扱えるように拡張した。さらに Lees-Edwards 境界条件によりせん断流動を与えることを可能にした。図 3-③-2-3 にシミュレーションの例を示す。2 種の液相とフィラーとの親和性に差を与えることにより、せん断流動下でフィラーが片方の相に偏析しながら相分離していく様子が再現される。このようなフィラー存在下での流体力学と相分離を考慮したシミュレーションのモデルは、学術的にはすでに発表されているが、汎用のシミュレータで実行を可能にしたものはこれまでほとんど例がない。

これらの新規機能に加えて MPI 並列化による高速化も実施しており、シミュレーションにより大量のデータを生成し、それらを解析することによりポリマーコンポジット材料設計を実施することが可能になる。

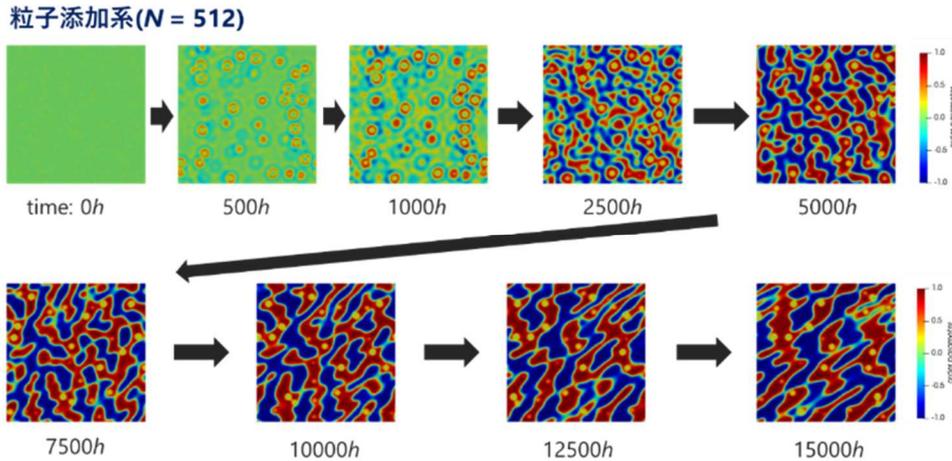


図 3-③-2-3 せん断流動下におけるフィラー充填系混合液体の相分離挙動。  
3次元計算の断面を表示。フィラー(黄)とフィラーと親和性の高い液相の分率を示す。

### (3) ナノカーボンシミュレータ

ナノメートルスケールのフィラーが分散した高分子複合材料の相分離構造を並列計算できるプログラムを実装するため、フィラーの形状を定義する用語“次元”を次のように導入した。

- 0次元: 粒子
- 1次元: ファイバー
- 2次元: 板状フィラー

実装には高分子の SCF 計算を行なえる OCTA/SUSHI を参照し、AI 用アプリケーションとの連携を容易にするため Python 言語でインターフェースがとれる SOBA (Soft Blends Analyzer) が開発された。

SOBA は MPI、MPI+GPGPU、および MPI+Pthread の 3 種類の分散 CPU+メモリ型の並列計算が可能のように C++言語で実装され、本プロジェクトにおいて導入したスーパーコンピュータシステムおよび東工大 TSUBAME3 スーパーコンピュータシステムでの長期に渡る実働テストが行われ、多くのバグがフィックスされた安定したコードとなった。その計算例を図 3-③-2-4 に示す。前述の 3 種類の次元の多数のフィラーが存在した大規模系におけるポリマーマトリックスの相分離構造が計算されている。また、計算性能としては、GPGPU P100 を 64 枚利用した TSUBAME3 でのテストでは、プロジェクト導入のシステム CPU E5-2697A v4 の 2300 コア相当の性能があり、GPGPU1 枚がプロジェクト導入のシステムの 1 ノード(32 コア)を超える並列化効率を出すことが確認された。このように、SOBA は斬新で高速性を実現する先進的なプログラミング技術を利用し、最新のコンピュータ・アーキテクチャも利用でき、ナノカーボンコンポジットをはじめ様々な高分子複合材料相分離構造予測機能を有するシミュレータとして開発された。その高速性能は、これまでの 1 コアを利用したコードと比較すれば、数千倍に達している。また、MPI および GPGPU で高速化された SOBA によるシミュレーションにより大量のデータを生成し、それらを解析することによりナノカーボン材料設計を実施することが可能になる。

また、SOBA は、0次元(粒子)フィラー存在系においては、粒子界面に濃度勾配がある DIP (Diffuse Interface Particle)を導入することにより、ポリマーマトリックス中の粒子の安定位置と高分子の相分離構造を同時に解く手法が大規模並列計算用に実装された。また、この DIP 粒子を粗視化ポテンシャルで結合することにより、カーボンナノチューブ等のフレキシブルなファイバー形状のフィラーの充填系の構造の計算も可能となった。さらに、SOBA には、フィラー充填材料内の温度・電流の拡散方程式を解く機能も持ち、例えば温度分布などの物性を予測する機能も実装された。

### Particles, fibers and hexahedrons

system size  $128^3$ ,  $A_{10}B_{10}$ , Particle:  $r=2$ ,  $nP=10,466$ , Fiber:  $r=2$ ,  $l=100$ ,  $nF=105$ , Hexahedron:  $120 \times 120 \times 2$ ,  $nH=3$ , FlatMPI 512core Parallel calculation

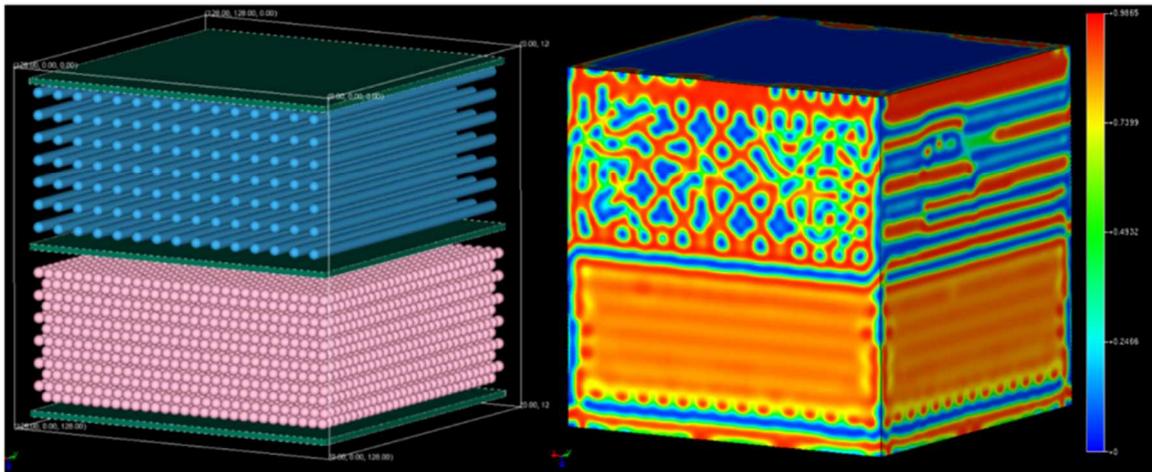


図 3-③-2-4 0～2次元フィラーの充填構造とその周りのジブロックポリマーの相分離構造

#### ④マルチスケール反応流体シミュレータの開発

##### ■目標

素反応過程に関する反応経路自動探索シミュレータ、素反応のみならず拡散等物質移動も含めてシミュレートする実空間反応シミュレータ、触媒塊等のマクロな構造物まわりの流路解析も含めたシミュレータの 3 つの異なる空間階層に位置付けられる反応シミュレータの間に階層連携スキームを導入し、高速なマルチスケール反応流体シミュレータを構築する。このマルチスケール反応流体シミュレータを活用より得られる計算シミュレーションデータを解析する事により、複雑反応に対する特徴的な支配因子・記述子を特定する。その情報を活用して触媒・反応設計を実施する。

##### ■研究開発の成果

(概要) 量子化学計算をもとにした全素過程反応経路の自動探索計算技術を効率化し、触媒反応設計に適した技術へと改修した。触媒塊などの影響も含めた流路解析に資する流体・構造物連成シミュレーション等の開発研究も実施した。触媒反応設計に関しては事業内容⑧「自在合成を可能にするフローリアクターに関する基盤技術」と密に連携を取りながら、全素過程反応経路の自動探索計算技術等を利用し触媒反応メカニズムの解明とそれを基にした触媒反応設計を行った。最終的には以下の項目(1)、(2)、(3)で開発・利用されるシミュレータを用いて得られる大規模なデータを解析する事により、反応に対する特徴的な支配因子・記述子を特定し、その情報を活用して触媒・反応設計が高速に行うことが可能になる。

##### (主な成果・実施内容)

##### (1) 反応経路自動探索法を用いた触媒反応メカニズムの解明

再委託先の奈良先端科学技術大学院大学では文献で報告されているモデル反応をターゲットとし触媒反応素過程の理論的解明と理論化学計算からみた触媒や触媒反応素過程の特徴の解明、それと共に、それらの経験に基づいた全素過程反応経路の自動探索法の触媒反応への適用を行った。モデル反応に適応した結果従来の方法よりはるかに高速で反応経路の解明に成功した。また、下記((4)及び(5))の研究テーマにおいては本プロジェクトで研究課題となっている触媒反応サイクルや複合触媒系の特徴を解明した。また、事業内容⑤との連携でオレフィンのエポキシ化反応に関して用いられる触媒分子の物性(電荷、赤外吸収波数等)と実験収率を相関づけて機械学習させた。今回の反応では、触媒として用いられるホスホン酸のリン-酸素二重結合による赤外吸収の強度が最も重要であることが特定でき、この構築されたAIを用いて収率が未知の系に適応し、予測できることを確認した。

##### (2) 実空間反応シミュレータによる実空間での化学反応シミュレーション

再委託先の名古屋大学では気相中だけでなく、分子集合体あるいは液相中の反応等、実在系でおこる複雑な化学反応系を対象に、QM/MM 計算に基づいた適切なエネルギー評価の仕方について解析を進め、実際の化学反応系を例に、QM/MM 計算に基づく適切なエネルギー評価法を検証した。さらにこの方法を分子集合体中で起こる現実の複合化学反応系の化学反応シミュレーションへ適応した。

### (3) 反応流体シミュレータの開発

触媒塊などのマクロな構造物まわりの流路解析も含めたシミュレータの開発を行った。マイクロ計算からマクロ計算に必要なパラメータを特定し量子化学計算等のマイクロ計算結果と反応流体シミュレータとの連成スキームを確立した。再委託先の筑波大学では、均質化理論等のマルチスケール解法開発と並行しながら、流路解析との接続に向けた機能強化を行った。

### (4) 金属酸化物を触媒に用いたエタノールからブタジエンの変換反応の研究

バイオマスから製造可能なエタノールからのブタジエン合成は近年のブタジエン価格の高騰により注目されている技術である。しかしながら、この反応の研究例はあるものの産業応用に可能な技術は確立しておらず、実用レベルでの反応系開発が求められている。

図 3-④-1 にエタノールからブタジエンの変換過程の詳細を示す。反応は図で示すように 5 段階で進むことが過去の文献から報告されている。上記反応の触媒の候補として ZnO と MgO を考慮し、これらの金属酸化物上で起こるエタノールからブタジエンへの変換反応の詳細を、量子化学計算手法を用いて分子レベルで明らかにした。計算結果から MgO では反応の前半部分が、ZnO では後半部分が反応の律速になることが確認された。とくに ZnO は前半部分である 2 分子のエタノールから脱水素及びアルドール縮合反応に優れた触媒活性を示すことが計算から予測された。これら計算から示された知見を基に、触媒の合成を行い、活性を測定した結果、優れた性能であることが確認された。新規の触媒は特許出願中である。

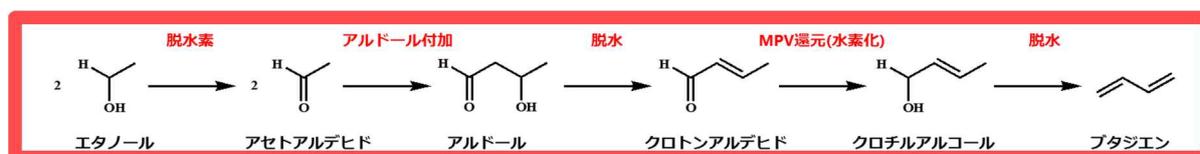


図 3-④-1 エタノールからブタジエンの変換

### (5) 固体高分子燃料電池用酸素還元触媒に用いられるコアシェル金属クラスターの研究

白金は高価な資源であるが、触媒として様々な分野で使用されている。白金触媒で実際に反応が行われるのは外側に露出している白金層だけなので、中心部にある白金を安価な金属に置換することで白金の使用量を減らすことが可能となる(図 3-④-2)。このような構造をもつ触媒をコアシェル触媒と呼ぶ。

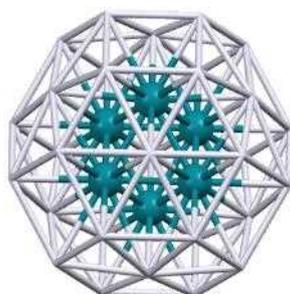


図 3-④-2 Ru<sub>6</sub>@Pt<sub>32</sub> のコアシェル構造。内側のシアン部分が Ru

再委託先の京都大学では白金とその他の金属で構成されるコアシェル構造 Pt<sub>m</sub>M<sub>n</sub> (M = Ru, Rh, Os, Ir; m+n = 38 and 55) に関して電子状態計算を行い、どのような金属と白金の組み合わせ

せがコアシェル構造になるのかを予測した。38 個の原子で構成される粒子では Pt-Ir 及び Pt-Os の組み合わせは安定なコアシェル構造を取ることが分かった。より大きな 55 個の原子で構成されるクラスターは icosahedral 対称性を有する場合、コアが Ru、Rh、Os、Ir の場合に安定なコアシェル構造になることが計算から予測された。またコアになる金属の LUMO (Lowest Unoccupied Molecular Orbital: 最低空軌道) のエネルギーと白金の HOMO (Highest Occupied Molecular Orbital: 最高被占軌道) のエネルギーはコアシェル構造の安定性と強い関連性が見出せた。

## ⑤ 深層学習・機械学習、離散幾何解析を用いた材料データの解析技術の開発

### ■目標

物質・材料データに対して深層学習・機械学習、離散幾何解析を活用し、材料開発・データ解析の効率化・高度化を図るために、AI 関連技術を材料問題に適用するためのシステム・データハンドリングスキームを開発し、高速探索・設計手法を確立する。

### ■研究開発の成果

課題目標を達成するために以下 4 つの技術課題を設定し個別に現状成果を報告する。

#### (1) 機械学習・深層学習を用いた材料データ解析のノウハウの蓄積とシミュレーションデータ AI 解析プラットフォームの構築

(概要) AI 関連技術を用いた高速材料開発を実現するためには、材料データの特徴と課題に合わせた AI 技術の作り込みが必要であるとの観点から、本技術課題では、解析事例を蓄積することで AI 技術によって解決できる問題設定を洗い出し、AI 技術の本格利用に向けた解析スキームを確立する。具体的には、計算シミュレーションや計測等によって得られた材料データに対する、深層学習・機械学習、離散幾何学を用いた解析事例を蓄積し、シミュレータ間連携(順問題型 AI)やモデル記述子の抽出、計測データと計算データの融合利用による候補材料絞り込み(逆問題型 AI)へと繋げる技術を確立し、適用事例を共有化する。

(主な成果・実施内容) AI 関連技術応用事例として数件の研究を実施し、事業内容①、④との連携による適用事例と合わせて、概ね中間目標数を達成した。これらを基にした後半期での適用事例実施見込みから、最終目標達成が十分見込まれる。現状における各適用事例の主な成果内容は以下の通りである。

#### ・ 計算データから触媒収率を予測する AI 技術の開発

事業内容④と連携し、高効率触媒分子設計のための AI 技術を開発した。複数の触媒の収率測定データまたは過去の実験データを参照して得られる計測データを用い、量子化学計算に基づく収率予測システムを作成し、未計測の候補分子絞り込みを行った。このシステムにより、少数の学習データから収率を予測することに成功した。本成果はプロセスと計算の連携による世界でも数少ない成功事例である。

#### ・ 混合モデルを用いた機械学習力場の開発

マルチスケールシミュレータの開発には、AI 技術によるシミュレータ間連結が不可欠との観点から、第一原理計算によるナノスケールシミュレータの結果を基に、大規模計算可能な古典力場を AI 技術によって構築するスキームの開発に成功した。特に、学習用データを教師なし学習によって事前に分類し、分類ごとに異なるモデルを作成する混合モデルによる力場生成が、マルチスケールシミュレータ連携において有効であることを実証した。

#### ・ 機械学習技術による計測スペクトルピークの自動高速解析技術の開発

大量に取得された計測データを AI 技術によって自動高速解析するために、NIMS 情報統合型物質・材料開発イニシアティブと連携してスペクトルのピーク推定 AI システムを開発

した。このシステムにより、従来専門家が行う作業時間が 100 倍以上高速化可能となり、ピーク解析作業の大幅な効率化が期待される。また計測技術との連携等、本成果を基に 2 件の適用事例が進行中である。

・マルコフ連鎖解析による粒子拡散ネットワークの数値解析技術の開発

アモルファス内部の粒子拡散ネットワークを、AI 分野で用いられるネットワーク解析を基にマルコフ連鎖確率論モデルを用いて解析し、拡散を妨げる原因となる構造を同定することに成功した。本成果は数学的なネットワーク理論と物質・材料科学を結びつける重要な事例であり、離散幾何学との連携、また事業内容④で取り扱う化学反応ネットワークに対する解析法としても応用が期待できる。

## (2) 材料データ解析のための可視化支援サービス開発

(概要)材料開発におけるプロセス・計測等の実験またはシミュレーションから得られるデータ量は、一般的な深層学習解析等で用いられるデータ量に比べ格段に少ないため、深層学習等の AI 解析技術を適用し高精度材料開発を行うためには、限られたデータ量を前提とした解析スキームを開発する必要がある。本技術課題では、この解析スキーム確立のための共通基盤として、材料データの構造や精度について網羅的に解析・可視化するためのサービス群(材料データ一般に対する共通処理を行うための共通ライブラリの構築と個々の材料に特化した特徴解析システム)を開発し、同じく開発するデータセキュアプラットフォームと統合し、材料解析データ可視化サービスを提供する。

(主な成果・実施内容)平成 30 年度上期末までに、材料解析データ可視化サービスの共通基盤システムとして、

(1)網羅的なデータ可視化システムとそのサービスインターフェース

(2)高セキュリティを担保した材料データストレージと入出力管理システム

の開発を完了した。

(1)により、データ全体を俯瞰したデータ構造を把握・解析することが容易になり、データ構造に適した機械学習・深層学習を用いた AI 解析が可能となる。特に、物理量データ構造とその基になる物質組成データの連携の可視化等、異なるデータ特性間の関係が可視化できることはデータ構造の把握にとって極めて有益になる(図 3-⑤-1)。またこれらの処理が web UI(または GUI)から可能になることにより、Python 等プログラミング言語に不慣れな実験科学者にとっても、データ構造の把握が容易になり、データ取得作業

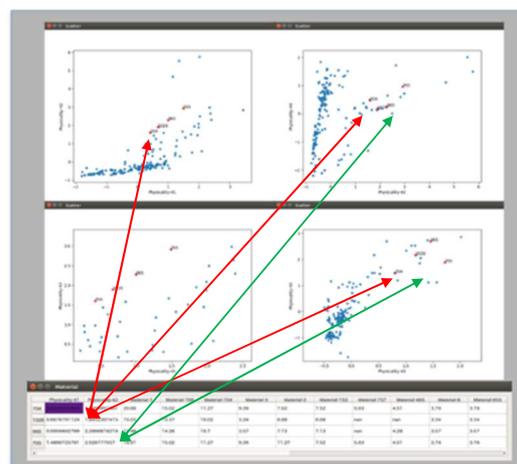


図 3-⑤-1 データセットの網羅的表示。  
上段の各図内のプロットデータの基になる組成データの内容が下段の表で示される等、各データ間の関係がダイナミックに連続表示できる

の効率化も期待される。

(2)により、格納されたデータへのアクセスが SQL 等で統一的でセキュアなアクセスおよびフロー管理が可能になったことにより、材料データおよび解析データの機密的な取り扱いが簡便にできるようになった。これらは、商用利用を念頭に置いた企業等の機密開発プロセスの円滑な実施を促進するものと期待される。これらの共通基盤の上に、現在、個別材料に特化した特徴解析システムの構築を進めており、これらを使った材料設計を後半期に推進することにより、材料開発向け AI 解析スキームを確立する予定でいる。

### (3) 有機材料の物性予測のための因子抽出スキームの構築

(概要) 本技術課題では、高分子構造と物性データの相関を基に、物性から組成を逆問題的に予測するモデルを確立する。また、有機高分子材料データに対する機械学習・深層学習の因子抽出方法を構築し材料設計高速化スキームを確立し、数件以上の高分子材料設計適用事例を実施する。

(主な成果・実施内容) 高分子材料物性データを基に、その組成比を逆問題的に予測する予測モデルを開発した。本開発では、機械学習手法を用い過学習を抑制しながら高次元データに対してクラスタリングにより次元削減を行い、材料物性および組成予測回帰モデルを構築した。このモデルを用いた物性予測においては、組成比から弾性率等の予測が十分な精度で可能であり、また組成予測モデルを用いた逆問題的最適解探索においては、弾性率を入力として、組成組み合わせ数億通りの中から目標弾性率を大幅に上回る物性を持った数 10 通りの組成候補の抽出に成功した。

一方、有機高分子材料に対する構造記述子「数密度 ECFP 法」を新たに開発した。数密度 ECFP 法と機械学習の活用により、第一原理計算と同等の精度で、線形ポリマーの屈折率予測に成功した(図 3-⑤-2)。更に、本手法を拡張し「クラス ECFP 法」を新たに提案し、機械学習により樹脂物性を予測できることを示した。この手法により、(i)混合原料を扱うことができ、(ii)一部の原料種が欠損していても構造式に基づく機械学習を

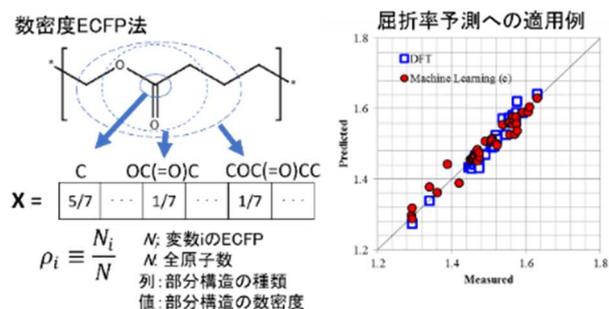


図 3-⑤-2 数密度 ECFP 法と屈折率予測

実施できるようになった。これら手法を応用し高分子材料設計適用事例を 10 件以上実現した。

技術課題(1)における事例共有情報を基に、技術課題(2)のシステムを用いて、本技術課題の成果の発展させることにより、個別材料に対する材料高速探索・設計手法確立が見込まれる。

#### (4) 離散幾何解析技術を用いた材料データ解析および統合ソフトウェア開発

(概要)本技術課題では、パーシステントホモロジーと機械学習・深層学習を融合し、材料構造データに対する定量的かつ実用的な基底選択を可能にする理論およびそのためのソフトウェアを開発する。パーシステントホモロジーを用いた解析ソフトウェアである HomCloud の Windows 版へ変換ソフトの開発および OCTA との統合解析を可能にするインターフェースモジュールを開発する。離散幾何解析に基づく構造情報解析により複雑材料特性の幾何学的記述子を開発し、機械学習法と融合することにより新たな材料設計指針およびその処理フローを提案する。

(主な成果・実施内容)東北大学への再委託により、Linux ベースで開発されている Homcloud から Windows 環境で動作可能なソフトウェアを自動生成するプログラムを開発した。これにより、最新の Windows 環境での動作が実現し、Homcloud はプラットフォームに依存しないマルチな環境でパーシステントホモロジー解析が可能なソフトウェアへと進化した(プラットフォームに依存しない高機能トポロジカルデータ解析ソフトウェアとして世界初)。また、応用事例をまとめたサーベイ論文等を執筆し(受理済)、OCTA 連携で扱われるポイントクラウド型入力データ作成法、実験画像データ解析で必要になる方体複体入力データ作成法、パーシステントホモロジーへの機械学習の活用法等、ユーザー利便性向上のためのドキュメント整備やマルチメディア教育環境も合わせて整備を行った。これらにより、広範な企業開発グループが Homcloud を使用することが可能となり、大幅な汎用化が期待される。一方、Homcloud による解析事例としてシリコン-バナジウム系金属ガラスの構造の解析を行い、パーシステントホモロジーと機械学習を融合させることで、冷却速度に依存する特徴的な構造があることを解明した。このように離散幾何学的な構造情報解析環境が整備され、機械学習との融合解析に成功したことにより、上記技術課題(1)、(3)の拡充、および(2)と連携することにより、高速探索・設計データハンドリングスキームが実現することが見込まれる。

[2] 高速試作・革新プロセス技術開発（⑥～⑨）

【事業内容毎の目標と達成状況】

事業内容		中間目標	成果	達成度
⑥様々な界面制御技術による自在なヘテロ接合素材の開発		サーモクロミックフィルムや樹脂/無機フィラー複合材料に向けた機能性ナノ粒子の高効率合成・分散技術、界面及び高次構造制御技術を確立	・開発した連続式水熱合成技術により分散性の高い均一ナノ粒子の高速合成に成功 ・ナノ粒子凝集構造制御技術とコンビジットシミュレータの連携により、解砕・分散挙動データセットを構築	○
⑦ポリマー系コンビジット材料プロセスに関する基盤技術		高強度・高耐熱材料や透明断熱材料に向けた自在な混練・発泡・押出成形技術の開発	・開発した小型溶融混練装置により、せん断速度と構造(モルフォロジー)、物性(耐衝撃性)の相関データを蓄積 ・超高圧・高制御性の連続発泡装置により、発泡の微細化条件を最適化するとともに、計算・計測の結果と連携	○
⑧自在合成を可能にするフローリアクターに関する基盤技術		高選択率、高効率のフローリアクターの実現、および反応条件と触媒の自動探索	・CO2からシクロヘキサンカルボン酸合成において、反応機構と触媒活性種を計算と実験から解明 ・フロープロセスによる粒子径、シェル厚さが精密に制御されたコアシェル型金属ナノ粒子触媒の合成に成功 ・エタノールからブタジエン合成において、計算により示唆された金属酸化物触媒を用い、高収率合成に成功 ・機械学習により熱硬化性樹脂の物性を予測するとともに、フローリアクターによりポリウレタンの合成を実施 ・ハイスループット合成・分析システムにより、触媒設計と反応に関する統合データの蓄積を開始	○
⑨ナノカーボン材料プロセスに関する基盤技術開発	1.CNT線材作製プロセスに関する基盤開発	高電導性CNT線材のためのCNTの紡糸、ドーピング等の作製技術を開発	・チューブ径、層数、バンドル径、バンドル長等の異なるCNTにつき紡糸技術を最適化 ・ドーピングによる構造と物性の実験結果をシミュレーションに反映	○
	2.大面積グラフェン高速合成および積層技術の基盤開発	大面積の透明導電グラフェン膜のロール・ツー・ロールによる高速作製技術を開発	・基板としてのh-BN(六方晶窒化ホウ素)薄膜及びその上のグラフェンの積層技術の最適化 ・プラズマCVD法によるグラフェンのロール・ツー・ロール堆積条件の最適化	○
	3.CNT複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発	導電性、耐熱性、放熱などの機能性CNT複合材料の作製技術の開発	・CNT、フィラーおよび高分子マトリックスの三成分系における表面処理に伴う凝集構造の違いにつき計算シミュレーションに実験データを提供	○

【成果の最終目標と達成可能性】

事業内容		現状	最終目標 (平成33年度末)	達成見通し
⑥様々な界面制御技術による自在なヘテロ接合素材の開発		ナノ粒子の高速合成、均一分散技術を構築	ナノ粒子合成・均一分散技術によりサーモクロミックフィルム、樹脂/無機フィラー複合材料を試作する	○
⑦ポリマー系コンポジット材料プロセスに関する基盤技術		小型化による溶融混練・発泡・成型装置の試作	自在混練・発泡技術により軽量・高強度・高耐熱性スーパーエンブレ、光透過性ナノ発泡断熱材料を試作する	○
⑧自在合成を可能にするフローリアクターに関する基盤技術		ハイスループット合成・分析技術による統合データベースの構築	機能性化学分子をフローリアクターにより自在合成する	○
⑨ナノカーボン材料プロセスに関する基盤技術開発	1.CNT線材作製プロセスに関する基盤開発	CNT紡糸・ドッピング技術の最適化	1kmのCNT線材を試作する	○
	2.大面積グラフェン高速合成および積層技術の基盤開発	h-BNおよびグラフェンの大面積化技術を構築	高速ロール・ツー・ロールプロセスによる高移動度グラフェンフィルムを試作する	○
	3.CNT複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発	表面改質技術による高機能化を構築	機能性CNT複合材料を試作する	○

【研究計画（線表）】

事業内容	平成28年度				平成29年度				平成30年度			
	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期
⑥ 様々な界面制御技術による自在なヘテロ接合素材の開発	ナノ粒子の合成・分散技術の開発				ナノ粒子特性改善				ナノ粒子分散フィルム試作プロセス技術の基盤確立			
⑦ ポリマー系コンポジット材料プロセスに関する基盤技術	溶融混練、押出成形、発泡技術等についての高度化				装置の自動化およびデータ取得の高度化							
⑧ 自在合成を可能にするフローリアクターに関する基盤技術	触媒設計技術の開発				フロー反応器の設計				触媒プロセスシステムの構築			
⑨ ナノカーボン材料プロセスに関する基盤技術開発					紡糸によるCNT線材作製				長尺化検討			
					プラズマCVDグラフェンとh-BN薄膜の積層				ロールツーロール化			
					高分子マトリクス中へのCNTと各種フィラーの分散試料の作製							
					フィラー改質によるモルフォロジー制御技術の確立							

## ⑥ 様々な界面制御技術による自在なヘテロ接合素材の開発

### ■目標

本事業内容では、研究開発項目[1]のシミュレータ開発と連携した、ナノレベルの構造制御から界面・高次構造制御までの一貫したナノ粒子プロセス技術の開発を行う。具体的には、計算・計測と連携した以下の2つの課題の研究開発を行う。

(1) ナノ粒子合成から機能性フィルム化の高速製造プロセス技術

(2) ナノ粒子凝集体の易分散化技術

(1)については、分散性の高いナノ粒子を用いた機能性フィルムの高速製造プロセスに関する基盤技術の開発を目的とし、モデル材料には、環境温度に応じて自律的に相変化を起こし赤外領域の透過率が可逆的に変化する特性(サーモクロミック特性)を有する二酸化バナジウム( $\text{VO}_2$ )ナノ粒子を分散させたサーモクロミックフィルムを選択した。中間目標は「ナノ粒子分散フィルム試作を一気通貫的に高速に行うプロセス技術基盤を確立する」であり、より具体的には、ナノ粒子の小径化(30 nm 以下)と均一粒径化(粒径分布 20 % 以下)を両立した上で、短時間試作を可能とするナノ粒子合成プロセスの確立と、ヘイズ値 1 % 台のナノ粒子分散フィルムの試作条件の選定とした。

また、(2)については、ナノ粒子(ナノフィラー)がポリマー中に分散されたナノ粒子分散ポリマーの開発を高速に行うプロセス基盤技術の確立を目的とし、ナノ粒子凝集体の易分散化技術を開発する。さらに、混練モデルプロセスにおけるナノ粒子の分散状態データを活用し、事業内容③-2においてマルチスケールシミュレーション連結技術の高度化の一環として開発を進めているコンポジットシミュレータ(事業内容③-2)の検証と高度化に貢献することで、ナノ粒子分散ポリマー材料開発の高速化を目指す。

平成 33 年度における最終目標は、ナノ粒子の構造制御から界面・高次構造制御までの一貫したナノ粒子プロセスによって、ナノ粒子分散フィルムの試作速度を高速化することである。 $\text{VO}_2$  等のナノ粒子を分散させたフィルムについては、顧客の使用環境下での評価が可能な実製品サイズのプロトタイプフィルム試作を行う。さらに、樹脂/無機フィラー複合材料については、実用化に必要な機能、性能が短期間で実現できることを実証する。

### ■研究開発の成果

#### (1) ナノ粒子合成・分散技術

水熱合成法の検討を行い、マイクロ波加熱および連続式水熱合成法によって、 $\text{VO}_2$  ナノ粒子の小径化と均一粒径化、さらに結晶化時間短縮が可能であることを見出した。

一般的な水熱合成法では、溶質析出による結晶核の生成およびその成長が進行するが、従来のバッチ法では、溶質の臨界過飽和濃度や合成時間等に応じて結晶核の密度やサイズが大きく変化するため小径化と均一化の両立は困難であった。また、従来のバッチ法による $\text{VO}_2$  ナノ粒子の水熱合成では、結晶化に高温で 6~24 時間保持することが必要であり、高速試作を行うことが出来なかった。そこで、エネルギー投入により溶質析出や結晶化の制御が可能なマイクロ波加熱法および連続式水熱合成法を用いて、従来よりも大幅に合成時間を短縮

し、かつ均一で小粒径化された VO<sub>2</sub> ナノ粒子を高速に製造するプロセスを開発した。ここでは、特に大幅な高速化が期待出来ると共に、量産性にも優れる連続式合成法による検討結果を示す。

374 °C 以上、22.1 MPa (218 気圧) 以上の高温高压条件にて連続で水熱合成できる装置 (図 3-⑥-1) を開発し、この装置を用いて条件検討を進めたところ、粒径 30 nm 以下、粒径分布 20 % 以下の VO<sub>2</sub> ナノ粒子が得られた (図 3-⑥-2)。また、粒径 30nm 以下となったナノ粒子の結晶性評価から、従来のバッチ式合成法で 6 時間高温保温して作製したものと同等であることが確認され (図 3-⑥-3)、連続式水熱合成法により結晶化時間を約 1/5000 に短縮化できた。



図 3-⑥-1 開発した連続式水熱合成装置

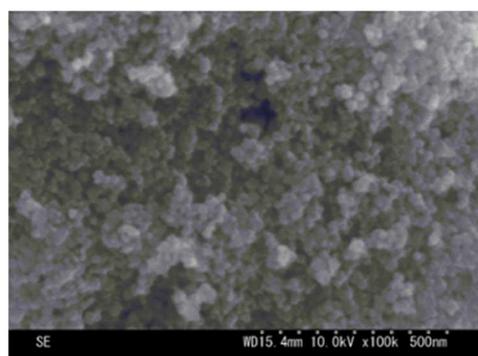


図 3-⑥-2 連続式水熱合成装置で作製した  
ナノ粒子の電顕写真

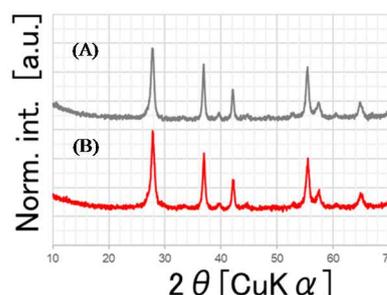


図 3-⑥-3 ナノ粒子の X 線回折による  
ナノ粒子の結晶性評価結果  
(A)バッチ合成品、(B) 連続式水熱合成品

合成した VO<sub>2</sub> ナノ粒子の分散については、メカニカルな分散によって DLVO 理論から予測される凝集せずに均一分散可能な閾値に分散粒径を制御することで、良分散液を得ることが出来た。さらに、その分散液を用いてラボレベルでのフィルム試作条件の検討を進め、VO<sub>2</sub> ナノ粒子の添加量を増やしてもフィルム中で良分散を保持でき、当初 3 % 以上あったヘイズ値を 1 % 台に改良できる条件を見出した (図 3-⑥-4)。ヘイズ値は、フィルム中でのナノ粒子分散性が損なわれると値が大きくなるため、低ヘイズ値はフィルム中でも良分散状態を維持していることを意味している。これにより、先に述べた VO<sub>2</sub> ナノ粒子の小粒径化、均一粒径化検討と併せ、目標としたヘイズ 1 % 値台のナノ粒子分散フィルムの試作条件の選定を達成することができた。

また、VO<sub>2</sub> ナノ粒子を用いたコンポジットフィルムについて分光エリプソメーターによる測定を

行い、相転移に伴う複素屈折率（屈折率  $n$ 、消光係数  $k$ ）を見積もった。得られたナノ粒子の物性値は、シミュレーション構築における検証データとして活用し、光学特性を精密に制御するプロセス技術開発を進める(計算科学との連携)。

さらに、本検討において作製した VO<sub>2</sub> ナノ粒子を用い、ナノプローブ分光により個別粒子の AFM 像と個別粒子の相変化に関連する光散乱像を同時に取得することに成功した。温度を変化させながら光散乱強度を測定することで、個別粒子の相変化による光学特性の変化を捉えることが可能となり、粒径が異なる粒子の光学特性の違いの解明につながることを期待される(先端計測との連携)。

なお、VO<sub>2</sub> ナノ粒子合成に用いた連続式合成法の汎用性を検証するため、液相還元法による Ag ナノ粒子合成に展開した。その結果、従来のバッチ式合成法では加熱下で 3 ~ 24 時間保持が必要であったが、連続式合成法により、滞在時間 2 分以内で平均粒径 30 nm 以下、粒径分布 20 % 以下の分散性に優れた Ag ナノ粒子分散液の合成にも成功している。

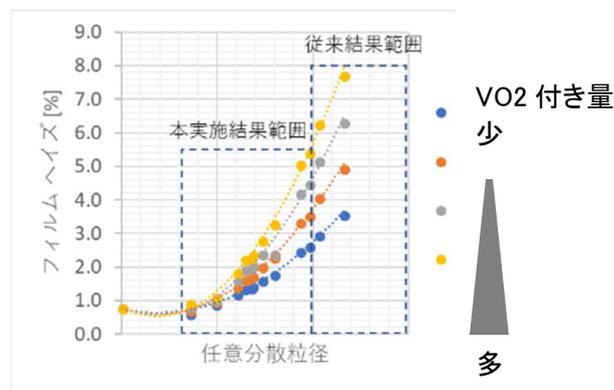


図 3-⑥-4 用いた VO<sub>2</sub> 分散液の分散粒径とフィルム時のヘイズの関係

## (2) ナノ粒子解砕・分散技術

無機ナノ粒子のモデル素材としてアルミナ( $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ )を用いた。混練プロセスにおける易分散化を図る各種プロセス技術について検討を行い、無機ナノ粒子を混練に供する前の凝集状態の適切な制御によって、大幅な易分散化が可能であることを見出した。

我々は、過去の研究で、湿式ジェットミルを用いた処理が、ボールミル処理等の汎用的なプロセスと比較して、アルミナナノ粒子の一次粒子への解砕を非常に効率的に進行させることが可能であるとともに、スラリー中でのナノ粒子間の凝集の抑制にも有効であることを見出している。湿式ジェットミル法は連続プロセスであり、量産化にも適している。湿式ジェットミル法の特徴を、ポリマーへの混練プロセスにおけるアルミナ凝集体の易分散化にも活用した(図 3-⑥-5)。湿式ジェットミル法を含む種々の条件での処理により、アルミナ原料から異なる凝集構造を持つアルミナ凝集体を作成し、微小圧縮試験により解砕強度を比較した。

アルミナ凝集体の微細構造と解砕強度評価結果例を図 3-⑥-6 に示す。凝集構造の制御により解砕強度を大幅に減少させることが可能であることが確認され、原料の 1/5 程度の力で解砕する凝集体とすることに成功した。

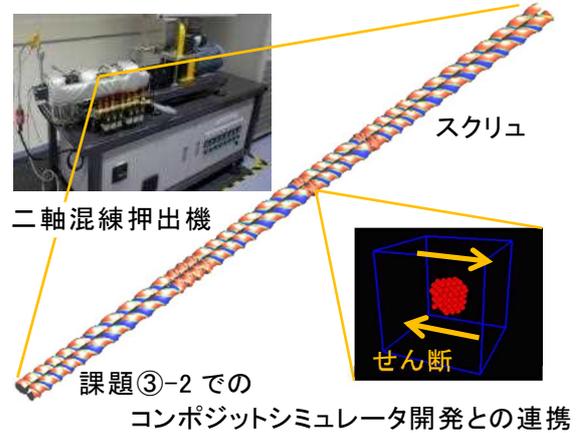


図 3-⑥-5 二軸混練押出機による無機ナノ粒子分散ポリマー材料の製造プロセス

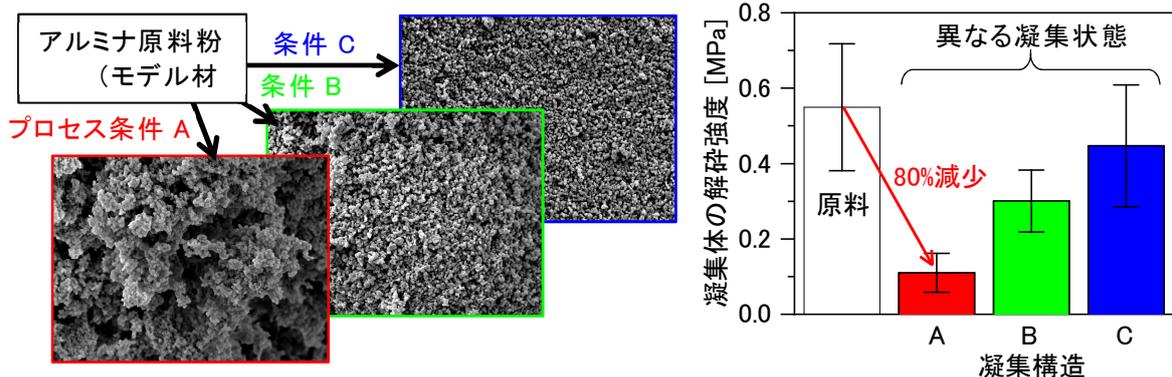


図 3-⑥-6 種々のプロセスで作成したアルミナ凝集体の微細構造と解砕強度

解砕強度の減少がポリマー中への混練時の易分散化に有効であることを検証するため、顕微鏡用加熱せん断ステージを用いて、アルミナ凝集体が種々のせん断条件下でポリマー中に分散していく様子を直接観察した(図 3-⑥-7(a))。時間とともに大きな凝集体が次第に減少し、ポリマーマトリクス中にナノ粒子が分散されていく様子が観察された。種々のせん断条件下でこのような観察を行い、画像解析により粒度分布の経時変化を抽出した(図 3-⑥-7(b))。凝集体の解砕強度を低減させることにより、ポリマー中への分散が進みやすくなっていること、必要

となるせん断強度が小さくなること、などが確認される。

また、無機ナノ粒子の表面処理技術の開発およびその凝集体の解砕・分散特性への影響、ラボ機を用いた二軸混練押出プロセスによるポリマー中への分散状態の評価についても、データの蓄積を進めている。これらのデータを、事業内容③-2で開発を進めているコンポジットシミュレータの予測精度向上に活用することで、無機ナノ粒子分散ポリマー材料の開発プロセスの高速化を図る。

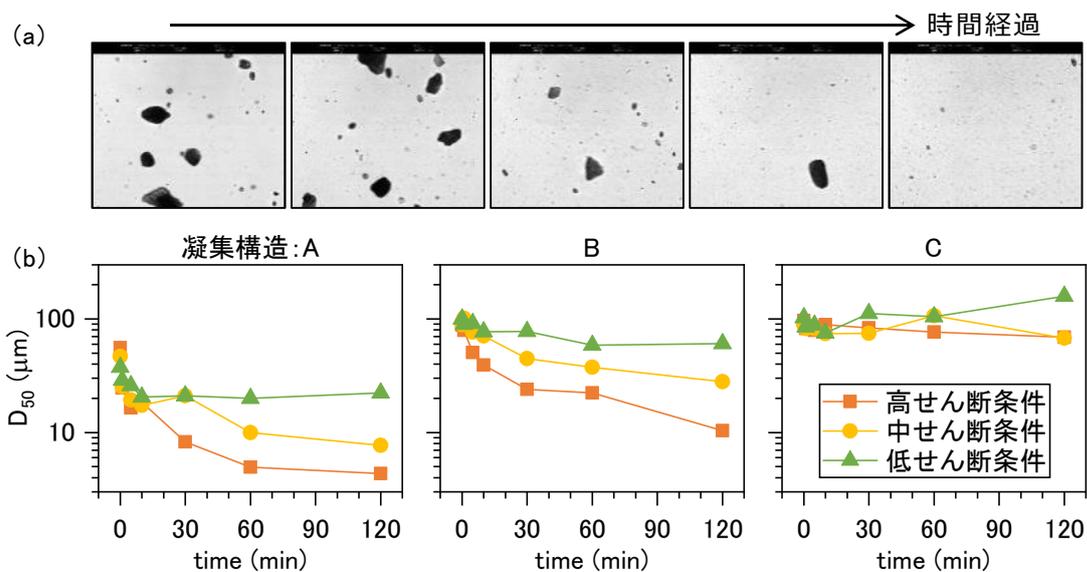


図 3-⑥-7 (a) 加熱せん断ステージによるアルミナ凝集体の解砕挙動の観察例  
(b) 画像解析から得た粒度分布の経時変化

## ⑦ポリマー系コンポジット材料プロセスに関する基盤技術

### ■目標

ポリマーブレンド/ナノコンポジット、発泡体等のポリマー系コンポジット材料の製造・評価プラットフォームを構築し、モデル材料の試作を行う。具体的には溶融混練装置、発泡成形装置の改良、自動化、データ取得の高度化により、ポリマー系コンポジット材料の試作高速化を実現する。さらに計算科学で得られたポリマー系コンポジット材料の構造、機能、製造プロセスに関する知見を実材料の構造、機能として迅速に具現化するための試作プラットフォームの開発を行う。これを用いた軽量・高強度・高耐熱のスーパーエンブラ系ナノコンポジット材料、光透過性・高断熱のナノ発泡断熱材料についてそれぞれ実用化に必要な機能、性能が実現可能であることを実証する。

### ■研究開発の成果

ポリマー系コンポジット材料の選定について、既往の研究についての文献調査や、プロジェクト参加企業からのヒアリングを行った。その結果、本プロジェクトにおいては、

- (a) 軽量、高強度、高耐熱で、自動車部品の金属代替に適用可能なスーパーエンブラ系ナノコンポジット
- (b) 住宅窓の高断熱化に適用可能な低熱伝導率の発泡ポリマー

の2つをターゲットとし、それぞれのモデル材料を検討することとした。

両者の製造プロセスに共通する課題として、既存の溶融混練、押出成形等の装置が、温度の制御性が悪く、安定化や昇温降温に時間を要し、これが材料の高速開発における障害となっていることが明らかになった。そのため、試作装置の開発にあたっては、各種化学プロセスに導入されているマイクロリアクターの発想に倣い、小型化によって温度制御の正確性、迅速性の向上を図ることを考慮した。

また、(a)においては、微細な分散構造を得るための高せん断性やエンブラに対応した高温の使用、(b)においては発泡の微細化を達成するための高い圧力が必要となると想定されたため、できる限り既存装置よりも高圧、高せん断、高温など、プロセスパラメータを広く取れる仕様とすることを考慮した。

表 3-⑦-1 に開発した小型溶融混練装置、小型発泡成形装置の概要を示す。共に一般的な装置に比べて小さなスクリー径を持つ一方、スクリー回転数や最大圧力では従来装置にない仕様を実現した。また、これらの装置にはそれぞれプロセスのデータ取得システムを装備した。作成した装置は既存の類似装置と昇温過程等の比較を行い、材料切り替え時間の短縮、評価のサンプル量低減、昇温/降温時の応答速度の向上など、試作高速化に資する効果を確認した。

表 3-⑦-1 開発した装置の概要

課題	(a)スーパーエンブラ系ナノコンポジット	(b)発泡ポリマー
装置	小型溶融混練装置	小型発泡成形装置
主な構成	二軸高せん断溶融混練装置+IR センサー+粘度測定装置	タンデム型発泡押出装置(二軸+単軸)+高圧発泡ガス供給装置
主な仕様	<ul style="list-style-type: none"> <li>二軸高せん断溶融混練装置</li> <li>スクリー径 15 mm、L/D = 90、</li> <li>最大使用温度 400℃、</li> <li>最高スクリー回転数 6600 rpm</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>二軸押出機</li> <li>スクリー径 15mm, L/D=50</li> <li>単軸押出機</li> <li>スクリー径 25 mm, L/D = 60,</li> <li>最大圧力 100 MPa (先端)</li> </ul>
写真		

(a) スーパーエンブラ系ナノコンポジット

本項目ではモデル材料として、高温剛性と耐衝撃性を併せ持つスーパーエンブラ系ナノコンポジットをターゲットとした。図 3-⑦-1 に代表的なポリマーブレンド/アロイの荷重たわみ温度と耐衝撃性(シャルピー衝撃強さ)の相関を示す。高温での剛性と耐衝撃性を両立したポリマーは単独で存在しないため、これらを両立したポリマーナノコンポジットの実現について検討を行った。

開発した小型溶融混練装置を用いて高耐熱樹脂に耐衝撃成分をブレンドしたポリマーコンポジットを試作した。また、少量で混練が可能なポリマーコンポジット用ミキサーを導入し、スクリーニング等に併用した。せん断速度および耐衝撃成分の含有量をパラメータとして試験片の作成を行い、シャルピー衝撃試験等によって耐衝撃性により評価した。試験片作成のため射出成形装置を新たに導入した。図 3-⑦-2 に作製した耐衝撃性試験片と引張測定の例を示す。

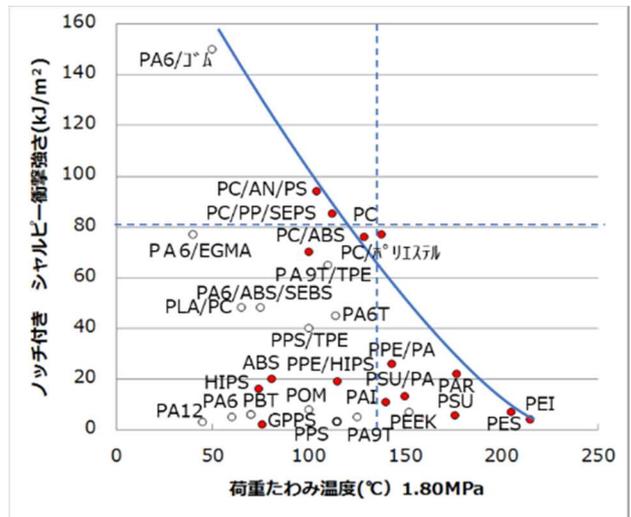


図 3-⑦-1 代表的なポリマーブレンド/アロイの荷重たわみ温度とシャルピー衝撃強さの相関

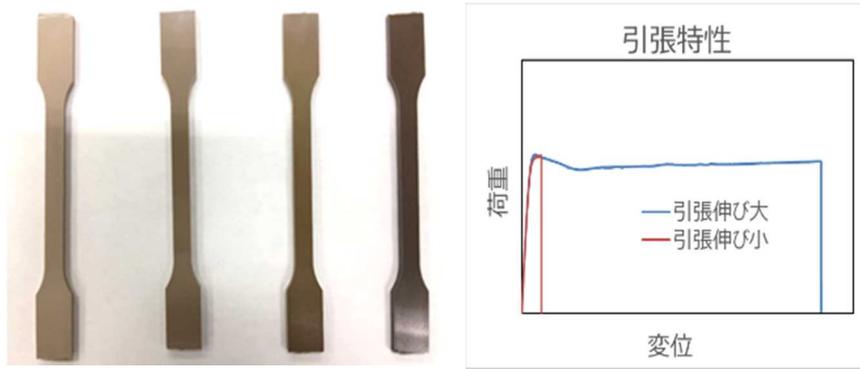


図 3-⑦-2 耐衝撃試験用試験片と引張り特性の測定例

作製した試料中の耐衝撃成分については事業内容⑩-1 との連携により、透過型電子顕微鏡 (TEM) により分散状況を確認した。また事業内容③-2 との連携により、粘性の異なるポリマーに異なるせん断速度を与えた場合の分散構造についてのシミュレーションを行った。

検討の結果、(i)高せん断時、装置での制御温度とポリマーの実際の温度が大きく異なること、(ii)粘性の把握が構造制御上重要となること、等の知見が得られた。これらを踏まえて装置に IR 温度センサー、オンライン粘度計等の追加を行い、耐衝撃性の向上を主たる目的として、組成、構造の最適化の検討を行った。この検討で得られたプロセスデータと機械的性質の測定データ、さらに分散状況のデータは事業内容③等で行われるシミュレータ開発に提供した。また得られたデータセットの提供を行った。

(b) 発泡ポリマー

本項目では環境調和型の二酸化炭素を発泡ガスに用い、高い空隙率と微細な発泡セルサイズを両立した発泡ポリマーの実現に向けた検討を行った。現在、このような発泡ポリマーは世界的な開発ターゲットとなっている。図 3-⑦-3 にこれまでの主な発泡ポリマーの開発状況を調査し、マップとして示した結果を示す。

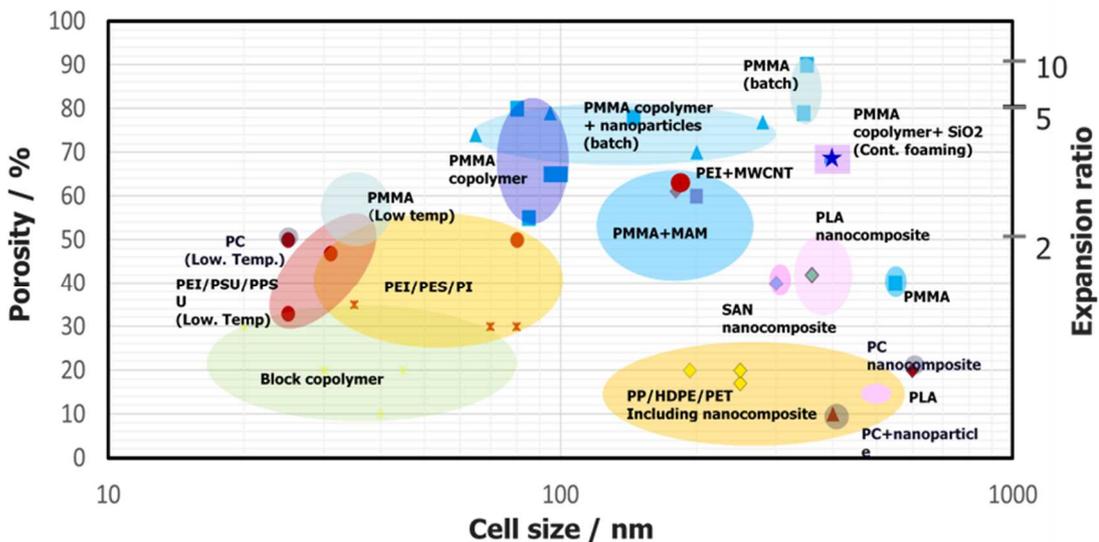


図 3-⑦-3 発泡セルサイズと空隙率を指標とした発泡ポリマーの開発マップ

ポリマーの発泡はバッチ発泡と押出成形機による連続発泡の二法に大別される。前者については、核材効果の検討のため、既存の断熱材料製造装置について、最高 100 MPa からの発泡試験を安全に行うための改造を行った。図 3-⑦-4 に装置の概要を示す。発泡においては大きな減圧速度が微細発泡に有利となるが、本装置ではおそらく世界でも例がないと思われる、100 MPa からおよそ 0.1 秒 (減圧速度の実測値 950 MPa/sec) で急減圧が可能になった。これにより、発泡ポリマーの作製を行って、微細化への効果を確認した。図 3-⑦-5 に作製した発泡体の一例を示す。

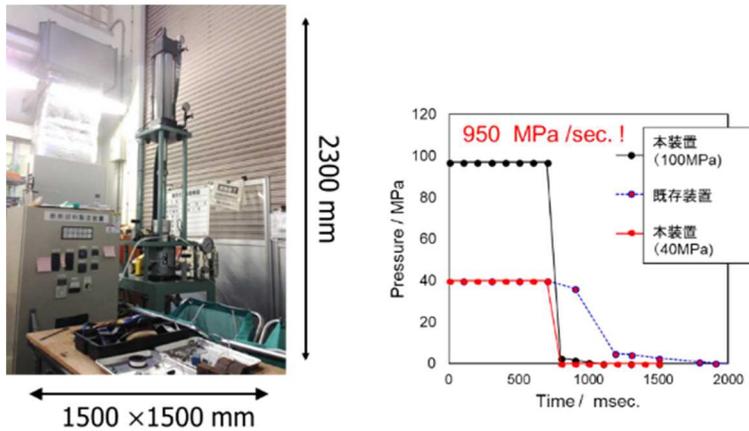


図 3-⑦-4 バッチ発泡用の装置写真および減圧速度の測定例

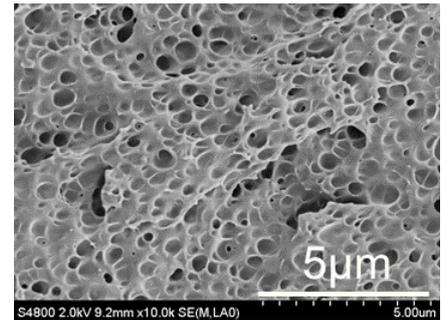


図 3-⑦-5 バッチ発泡で作製した PMMA 微細発泡体の例

連続発泡については、小型発泡成形装置を用いて、モデルのポリマーを用いた連続製造試験を行った。発泡体の評価のために走査型電子顕微鏡 (SEM) を導入し、気泡径や気泡密度の評価を行った。また、核材のポリマーへの分散状況や発泡構造の把握のため、事業内容⑩-2 との連携により X 線 CT による分散状況の計測を行った。核材が発泡構造に及ぼす影響について、事業内容③-2 との連携により、シミュレーションを行った。

検討の結果を踏まえて、小型発泡成形装置については核材添加用のサイドフィーダーや、ポリマーと発泡剤との分散性を向上させるためのミキサー装置など必要な改造を行うとともに、プロセスの自動化と高度化に向けて、吐出部の状況を画像で取り込み解析を行うためのデータ取得システムの改造を行った。これらを用いて、微細発泡を行うための核材種や温度、圧力等プロセスパラメータの最適化を進めた。また、事業内容③-2 による核材設計指針、事業内容⑩-2 による発泡構造解析との連携により、発泡の微細化を目的とした製造条件の最適化を進めた。図⑦-6 に連続製造により作製した発泡体とその微細構造の例を示す。現在、平均発泡径 5 $\mu$ m 程度の発泡体を核材なしで連続的に製造することに成功している。

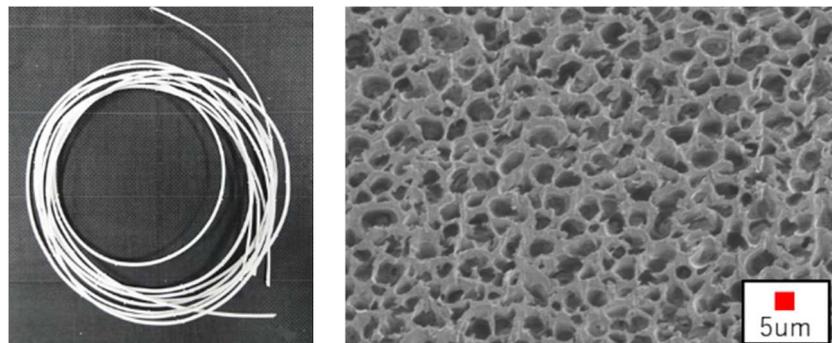


図 3-⑦-6 連続製造により作製した発泡体とその微細構造の例

以上、双方の課題について、製造・評価のプラットフォームを構築し、またモデル材料について、従来の開発に比して試作高速化を達成する予定である。

## ⑧自在合成を可能にするフローリアクターに関する基盤技術

### ■目標

化学品製造プロセスとして、これまでのバッチ法からフロー法に変換することで、高速製造、高選択率を実現する触媒反応プロセスを開発する。具体的には、反応路自動探索による高選択的な反応過程設計や第一原理計算等により高性能触媒な設計を行う。また、プロセスシミュレータによりシステムのエネルギーを最小化した最適反応器設計を行う。さらに、ハイスループット法による開発時間短縮とAI用統合データベース(DB)の構築につなげる。

開発する反応プロセスは、以下の4つの技術を開発する。

- (1)CO<sub>2</sub>を利用する機能性化学品製造
- (2)金属ナノ粒子コアシェル触媒の合成
- (3)天然資源を利用したゴム材料への変換
- (4)構造を制御した機能性樹脂の合成技術

平成33年度における最終目標は、選択性と効率性を両立したフローリアクターによる触媒プロセスを構築し、従来法と比べて高速化する自在合成技術を開発する。そのため、機能性化学分子の自在合成について、連続かつ高選択的なフローリアクター設計や触媒設計に関わるプロセス技術を開発する。

### ■研究開発の成果

#### (1) CO<sub>2</sub>を利用する機能性化学品製造

高機能性化学品製造におけるグリーンケミストリーの実現を目指し、CO<sub>2</sub>を原料とするシクロヘキサンカルボン酸の合成(図3-⑧-1)をモデル反応とし、計算-計測-プロセスの協働で高性能固定化触媒と高効率フロー合成プロセスの迅速開発に取り組んだ。

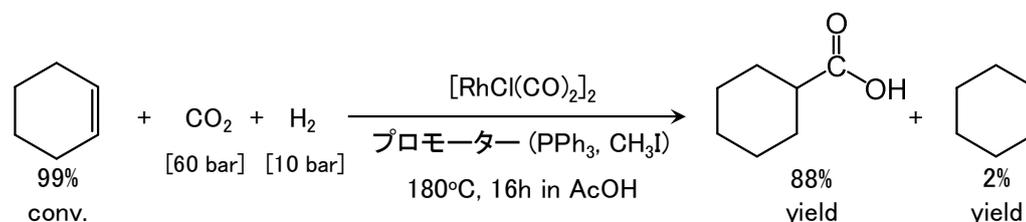


図 3-⑧-1 CO<sub>2</sub>を原料とするシクロヘキサンカルボン酸合成

(Angew. Chem. Int. Ed. 52 (2013),12119-12123)

高機能分子触媒、反応の設計(解析)技術を開発するため、反応経路自動探索計算(GRRM/AFIR)技術を触媒反応の機構解析に応用し、計算科学と実験科学の協働でモデル反応の触媒活性種(図3-⑧-2)と反応機構を短期間で解明し、触媒反応機構の解析系を構築することに成功した。これにより、フロー合成用の固定化触媒及びフロー合成反応の設計が可能となった。

次に、解明された触媒活性種の生成過程に基づき、フロー合成用固定化触媒の開発に取り組んだ。その結果、有望な Rh 系分子触媒の固定化について、SiO<sub>2</sub> 系固定化担体とその結合部構造(図 3-⑧-3) 等の触媒形態及び固定化条件を検討し、Rh 系固定化触媒の合成に見込みを立てることができた。

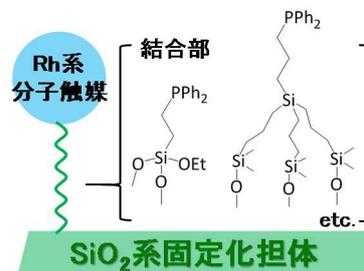
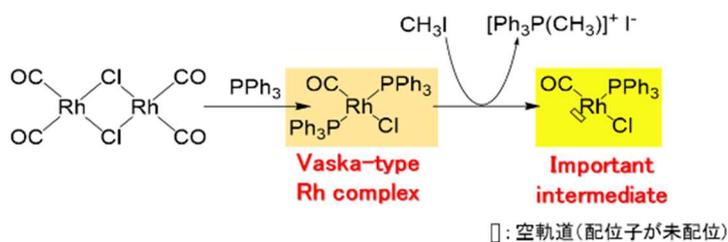


図 3-⑧-2 プロモーターの役割と触媒活性種の生成過程

図 3-⑧-3 Rh 系固定化触媒の概念図

さらに、固定化触媒を使用したフロー合成プロセスの開発に取り組んだ。本モデル反応の副反応について計算科学と実験科学の両面から検討した結果、CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub> から生成するギ酸(HCOOH)を出発原料として使用することで、シクロヘキサンの副生が抑制しシクロヘキサンカルボン酸が高選択率で合成できることを明らかにした。また、原料供給から On-line 分析、捕集まで自動化した、高温・高圧仕様の小型フローリアクター装置(最大温度 250 °C、圧力 25 MPa)の設計/導入を行った(図 3-⑧-4)。

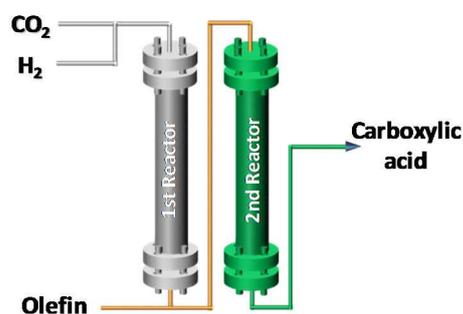


図 3-⑧-4 高温・高圧反应用小型フローリアクター装置(左)、及びフロー合成プロセスの概念図(右)

## (2) 金属ナノ粒子コアシェル触媒の合成

コア-シェル型触媒開発においては、プロセスの高速化を目指し、プロセス・計測・計算の三位一体の取り組みにより開発時間の高速化を検討した。

まず、コア-シェル型触媒の合成において、ナノメートルサイズの Pd@Pt (Pd コア-Pt シェル) をモデル素材として、コア-シェル型触媒の合成用フローリアクターを設計し、フロー合成プロセスの開発を行った(図 3-⑧-5)。フローリアクターの改造やプロセスパラメータ(流速、滞留時間、反応試薬等)の最適化を進めた結果、従来のバッチ合成プロセスと比較して遜色のない、粒径分布の揃った Pd@Pt の精密合成を達成した(図 3-⑧-6)。



図 3-⑧-5 コア-シェル合成用フローリアクター

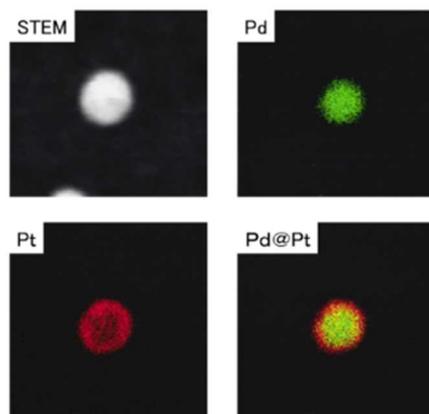


図 3-⑧-6 フロー合成した Pd@Pt の EDX 像

さらに、他のコア-シェル型触媒の合成に、開発したフロー合成装置・合成プロセスを適用し、汎用性を調べて適用範囲の広さを確認し、基盤技術となり得ることを明らかにした。

一方、コア-シェル型触媒の分析・評価においては、合成したコア-シェル型触媒の活性評価試験の結果と、X線吸収微細構造(XAFS)による触媒の電子状態や構造解析の結果から、特定の構造情報と触媒活性の相関が確認され、高性能触媒を設計・開発する上での有力な指針が得られた。また、コア-シェル型触媒のスクリーニング評価に向けてハイスループット X線回折(XRD)構造解析装置の導入を進め、迅速な触媒開発を促進する構造評価系を構築した。

コア-シェル型触媒の設計については、第一原理計算により求められた、コア-シェル型触媒の構造安定性予測および触媒反応のエネルギーダイアグラムの解析の結果を実験的に検証するため、コア-シェル型モデル触媒を合成し、表面分析や触媒活性の評価を行いその妥当性を評価した。その結果、Ru をコア金属に用いることで Pt シェルを安定に維持できることが明らかになった。この知見を基に、Ru@Pt の試作を行い各種の触媒特性を検討した。その結果、Pd@Pt と同等の触媒活性を示すことが明らかになっており、新たなコア-シェル型触媒と期待される。

### (3)天然資源を利用したゴム材料への変換

天然資源からゴム材料の研究開発においては、計算により高活性触媒を設計し、フローリアクターでプロセス評価しながら、触媒や生成物の計測解析を実施し、計算・プロセス・計測の三位一体化による研究開発を積極的に取組んだ。

事業内容④「マルチスケール反応流体シミュレータの開発」の中で、第一原理計算を用い金属酸化物を中心にエタノールからブタジエンへの反応機構の検証と反応エネルギーダイアグラムの詳細を検討した(図 3-⑧-7)。その中から、各反応素過程における活性化エネルギーと金属酸化物との関係から、本反応に有効と考えられる候補触媒を選出した。

天然資源を利用したゴム材料への変換反応を行うため、フローリアクター装置を導入するとともに、その稼働に必要なインフラ等の実験環境整備を行った。さらに、迅速反応生成物分析装置やフローリアクターシステム追加装置一式を導入し、これらの装置を活用して、天然資源からゴム材料の研究開発に取り組んだ。エタノールからブタジエンへの転換触媒について、第一原理計算より選出された候補触媒成分について担体、担持量、調製法等が異なる 100 種

以上の触媒を調製し、各種分析・計測を実施した。また、触媒の性能評価を実施し、合計 800 点の触媒活性データを取得した。その結果、第一原理計算により提案された金属酸化物系触媒の調製方法の最適化により、これまでに文献等で報告されているデータを上回る、世界最高水準の生産性を誇る触媒の開発に成功した。本触媒に関連する特許 2 件の出願を実施した。

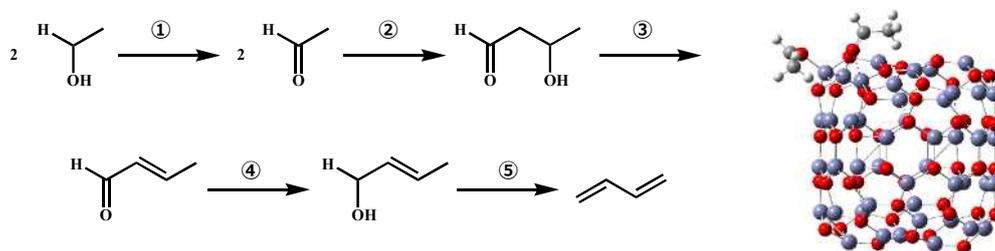


図 3-⑧-7 エタノールからブタジエン合成における反応経路

#### (4) 構造を制御した機能性樹脂の合成技術

構造を制御した機能性樹脂の合成技術においては、固定化触媒における触媒形態の最適化を行うとともに、リアクターシステム、迅速反応生成物分析装置を導入し、触媒性能を最大限に引き出す反応器設計技術の開発を行った。具体的にはフローリアクターにより重付加ポリマー(ポリウレタンポリマー)を取得するために、ポリウレタン化触媒の最適化を検討し(図 3-⑧-8)、その結果、目的の分子量および分布をもつポリマーを自在合成し、取得できる見込みを得た(図 3-⑧-9)。ここで得られた成果によって連携している事業内容⑤の AI システム構築に必要な樹脂物性データを効率的に取得できるものとして期待できる。

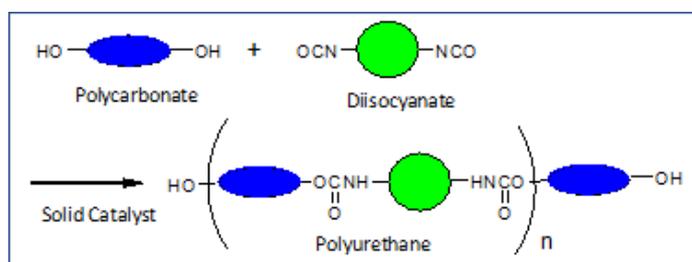


図 3-⑧-8 固定化触媒によるポリウレタンポリマーの合成

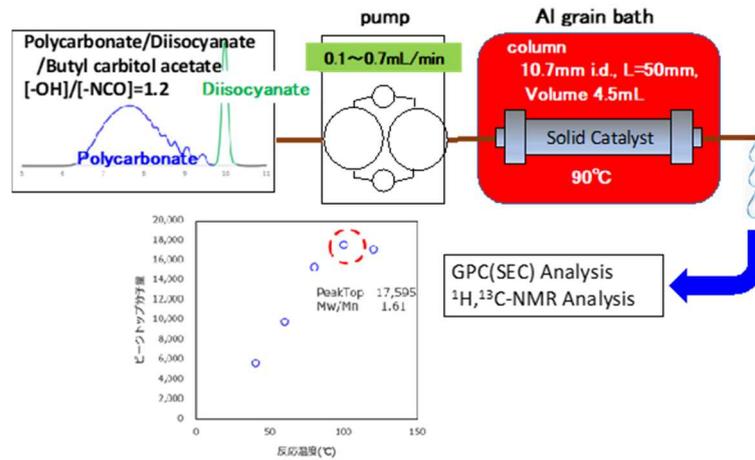


図 3-⑧-9 フローリアクターによるポリマー合成システム

再委託先の筑波大学では、微細藻類由来の不飽和炭化水素を機能化成品化するために、部位選択的な化学修飾法の開発に取り組み、藻類炭化水素の高部位選択的なヒドロシリル化反応を高収率で進めるための触媒・反応条件を見出した(図 3-⑧-10)。また、藻類オイルから熱硬化性樹脂・接着剤としての機能を有する新たなバイオプラスチックの創製可能な合成プロセスを開発した。



- C=Cの微小な反応性の違いを利用し、部位選択的な化学変換を実現
- 任意の機能性発現部位を導入することで、バイオプラスチックの特性変化が期待できる

図 3-⑧-10 藻類炭化水素から機能性プラスチック原料の合成スキーム

⑨ ナノカーボン材料プロセスに関する基盤技術開発

⑨-1 CNT 線材作製プロセスに関する基盤開発

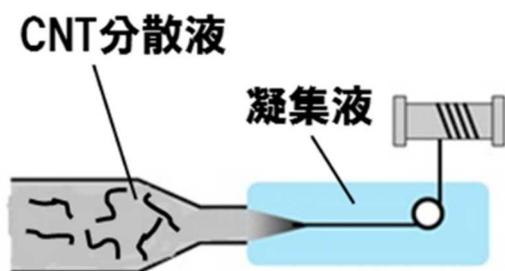
■目標

複数の紡糸方法でCNT 線材を作製し、導電性に影響すると想定される構造パラメータである CNT の配向状態を比較する。3 種類の CNT を用いて、10 m の CNT 線材を作製する。また、1種類のドーパントについて、ドーピング方法を開発し、シミュレーションのためのモデル構造を提供する。

■研究開発の成果

(1) CNT 線材の紡糸法開発

カーボンナノチューブ (CNT) 線材はナノスケールの CNT 粒子の集合体であり、従来電線に利用される金属のように熔融や圧延などによる成形加工を行うことができない。CNT 線材は構造の類似性から紡糸や紡績といった繊維に近い作製法が検討されており、主に直接紡糸、湿式紡糸、基板紡糸の3種に分類される作製法が報告されている。本項目では原料となるCNTを比較的自由に選択可能で、高配向、高密度が見込まれる湿式紡糸法(図 3-⑨-1-1)を選定し、CNT 線材の試作を実施した。原料として4種の異なるCNTを用いて試作した結果を表 3-⑨-1-1 に示す。D 社製のCNTは他と比較してアスペクト比が低いため、CNT 同士の凝集能力が小さくなり、線材化できなかつたと想定している。



CNT メーカー	層数	紡糸可否
A 社	単層	○
B 社	多層	○
C 社	多層	○
D 社	多層	×

図 3-⑨-1-1 湿式紡糸法の概略図

表 3-⑨-1-1 CNT 線材の試作結果

試作した CNT 線材(図 3-⑨-1-2)について、計測を担当する事業内容⑬-1 で開発した手法を用いて配向状態を評価し、導電率との相関を調査した(図 3-⑬-1-1 参照)。事業内容⑬-1 における計測の結果から、分散液中における CNT の分散度合いが伝導特性へ影響を与えていることが示唆された。今後は分散液の作製条件を検討するとともに、H30 年度目標である 10 m の CNT 線材を作製するため、紡糸プロセス条件の最適化を行っていく予定である。

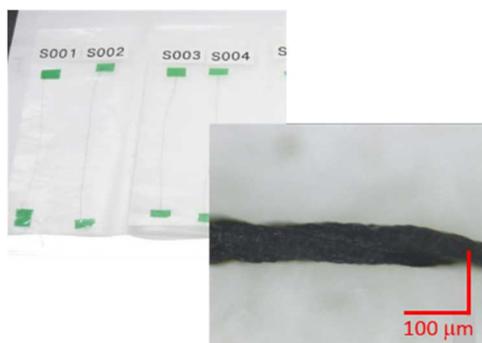


図 3-⑨-1-2 試作した CNT 線材

## (2) ドーピング方法の開発

CNT の導電率を向上させる方法として、異種元素や酸などによるドーピングが多数報告されている。ドーパントを選定するにあたっては以下の 3 点を考慮した。

- (1) 導電率向上の効果が大きいこと
- (2) 計測で評価可能な元素であること
- (3) シミュレータのモデル構造として適していること

以上から、本項目ではハロゲン元素であるヨウ素をドーパントとして選定した。前項で試作した CNT 線材に対して、ヨウ素をドーピングした結果を表 3-⑨-1-2 に示す。気相法、溶液法のどちらも導電率が増加したが、増加率は気相法の方が大きかった。しかしながら、気相法はバッチ式で高温処理が必要となるためスケールアップが難しく、溶液法は連続プロセス化が容易であることから、実用化に向けては今後も検討を続ける必要がある。

また、ドーピングした CNT 線材について、事業内容⑬-1 で導入した EDX 装置を用い、ドーパントであるヨウ素の分布を調査した結果、CNT 線材全体に一様に分布していることが分かった(図 3-⑬-1-2、図 3-⑬-1-3 参照)。これらの成果から得られた知見を、シミュレータのモデル構築に活用する。

ドーピング 方法	導電率 [S/cm]		増加率 [%]
	処理前	処理後	
気相法	9800	14000	39
溶液法	7700	9300	20

表 3-⑨-1-2 CNT 線材のヨウ素ドーピング結果

## ⑨ナノカーボン材料プロセスに関する基盤技術開発

### ⑨-2 大面積グラフェン高速合成および積層技術の基盤開発

#### ■目標

従来の3倍のスループットでのグラフェンのプラズマCVDを実現する。大面積h-BNのCVD合成手法の確立ならびにプラズマCVDグラフェン/h-BNの大面積積層技術を確立する。

#### ■研究開発の成果

現在はグラフェンなど二次元材料の工業利用に向けた黎明期にある。現在、各種デバイスの薄型化、フレキシブル化への要求も高まり、原子層グラフェンなど二次元材料について、ヨーロッパ、米国、中国、韓国など世界各国でグラフェンを工業材料として供給するための高スループット合成技術開発を実施しており、世界的な競争が激化している。今後、実用化開発競争はさらに加速し、利用分野の拡大など急速な展開が予想される。本研究では、二次元材料の本命であるCVDで合成される原子層グラフェンにおいて、高品質かつ高スループット合成技術を世界に先駆けて確立することを目標としている。これによりグラフェン本来の特性である高キャリア移動度の工業利用の実現に資する。

さらに、本研究では、上記のようなグラフェンをはじめとする二次元材料への期待に応えるため、高品質材料合成プロセスのさらなる高速化はもとより、原子層の積層技術と特性を発揮するための二次元材料の組み合わせ、すなわちヘテロ接合積層技術の開発に取り組んでいる。本研究ではこれらにおいて、国際的なアドバンテージを確保するための基盤技術を確立する。

図3-⑨-2-1は産総研が以前に独自開発したプラズマCVDグラフェン連続合成装置の概念図である。グラフェン合成の基材は銅箔であり、この装置を用いて銅箔を連続して巻き取りながら、水素とメタンの混合ガスのプラズマで銅箔表面を処理することにより、グラフェンを合成する。現在までに、プロジェクト開始前と比較して3倍の銅箔巻き取り速度でのグラフェン合成を達成とした。このように高品質のグラフェン透明導電フィルムをさらなる高スループットで連続合成することを可能とした。これは原子層グラフェンの世界最高スループットでの合成である。

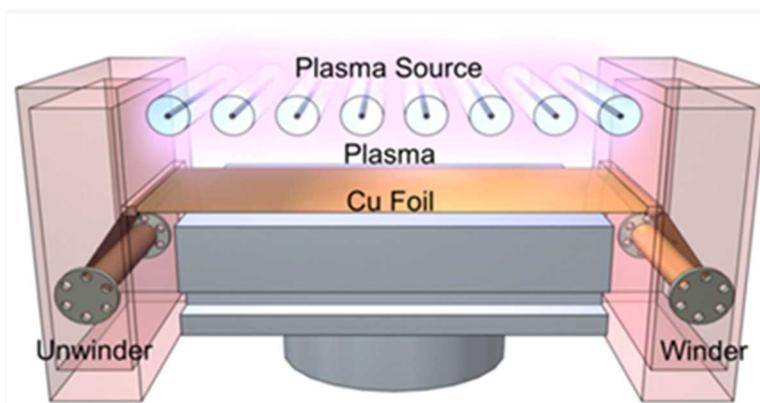


図3-⑨-2-1 プラズマCVDによる高スループットグラフェン連続合成装置

原子層グラフェンの他の材料に対する圧倒的な優位性は、その大きな移動度である。グラフェンは原子層の厚さゆえ、電気特性は支持基材に大きく影響される。現在、グラフェン本来の高

移動度を発揮するために最適な支持基材は六方晶窒化ホウ素 (h-BN) である。従来は物質・材料研究機構 (NIMS) が高圧合成で作製した最大数 mm のバルク結晶を世界中の研究機関が入手し、粘着テープで機械剥離により作製したマイクロメートルサイズの h-BN 薄片がグラフェンの高移動度実証実験で利用されてきた。工業的なグラフェンの高移動度利用のためには、大面積の h-BN が求められる。そのため現在、CVDによる大面積 h-BN 合成技術開発の世界的な競争となっている。従来、h-BNのCVD合成は銅箔基材を用いて開発されてきた。この場合、単層(厚さ 0.3 nm)あるいは数層の h-BN が合成される。一方、グラフェンの高移動度実現のためには、単層の h-BN ではなく、厚さ 10 nm 程度の多層の比較的厚い膜が必要とされている。今までは鉄基材を用いて厚い h-BN 合成技術開発を行ってきたが、本研究ではそれを高度化し、工業利用を目指して高品質で大面積な h-BN 合成技術の確立を目標に開発を進めている。平成29年度、平成30年度は原料ガスの精密制御およびチャンバー内アウトガス制御による品質向上法の開発に取り組み、合成面積 1 cm<sup>2</sup> で高品質な厚膜 h-BN 合成の再現性を著しく高めることに成功した。図3-⑨-2-2は合成した h-BN 薄膜のラマンスペクトルである。ピークの半値幅は 14 cm<sup>-1</sup> とたいへんシャープであり、高い結晶性を有することを示している。現在第1期の目標である 5 cm 角の大面積 h-BN 合成手法の確立に向かって開発を進めている。h-BN は二元物質であるため、グラフェンなどの一元物質と比較して成長のダイナミクスは複雑で、原料ガスの調整や基材の表面状態準備、特に大面積での温度の均一性が必要となるなど、たいへんデリケートである。これらの高度な制御手法の開発が、大面積化へのポイントとなる。

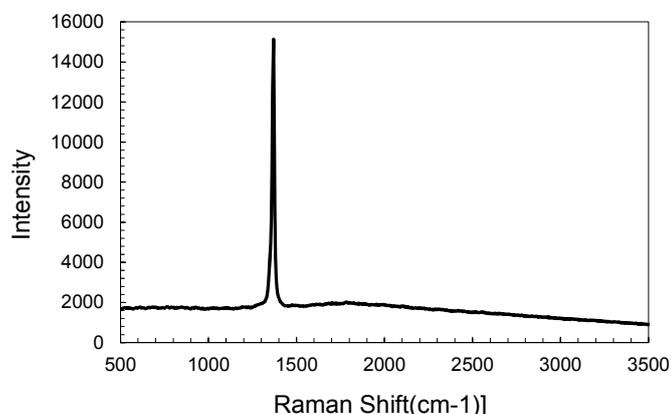


図 3-⑨-2-2 鉄箔を基材とする CVD で合成した高品質 h-BN のラマンスペクトル

本研究では、剥離 h-BN 薄片上に転写によりグラフェンを積層し、グラフェンのパターンニングおよび電極を形成することによりグラフェン/h-BN ヘテロ接合積層原子膜デバイスを作製する技術を開発している。このデバイスにより、グラフェンの移動度 20,000 cm<sup>2</sup>/Vs 以上を達成した (図3-⑨-2-3)。現在転写法の向上、デバイス作製手法の高度化により、さらに移動度を向上中である。ここではさらに事業内容⑬-2の積層グラフェンの局所電気特性計測に関する基盤開発と連携し、局所移動度測定に取り組んでいる。これにより獲得した局所移動度データを事業内容①のヘテロ接合積層原子膜のキャリア輸送シミュレーションにフィードバックし、h-BNに含まれ

る不純物や表面平坦性などとグラフェンの移動度との関係を明らかとする。以上のように、計算・プロセス・計測の緊密な連携の元、高移動度透明導電フィルム作製の基盤技術を確立する。

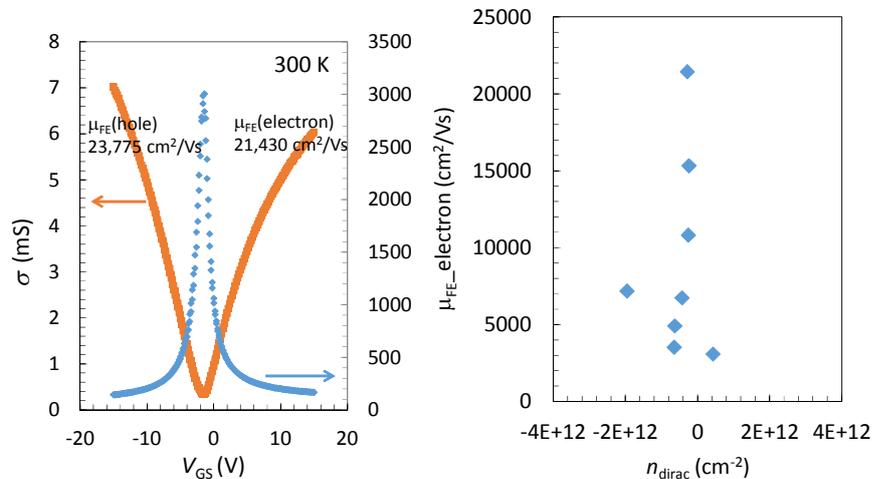


図 3-⑨-2-3 (左)グラフェン/h-BN デバイスの導電率(茶)およびシート抵抗(青)のゲート電圧依存性、(右)グラフェン/h-BN デバイスのキャリア移動度のディラック点での真性キャリア密度依存性

本研究ではさらに、当初の設定以外の研究内容として、原子層グラフェンの n 型導電性制御に取り組んでいる。グラフェンの電子デバイス応用には、n型・p 型制御が重要な技術課題である。従来、水分(H<sub>2</sub>O)や硝酸(HNO<sub>3</sub>)吸着による p 型導電性、アンモニア(NH<sub>3</sub>) 吸着による n 型導電性が報告されている。しかし表面吸着による導電性制御は長期安定性に課題がある。一方、カリウムがグラファイトの層間に挿入されると化合物を形成し安定であることや、カリウムが添加されたカーボンナノチューブが n 型導電性を示すことから、グラフェン層間にカリウムを挿入することで安定な n 型導電性実現の可能性があると考えた。そこで本研究では、プラズマCVD 法で成膜した二層グラフェンを用いて、カリウム添加による n 型化を試みた。プラズマCVD 二層グラフェンを水酸化カリウム水溶液に浸し、その後熱処理をすることでカリウム添加グラフェンを作製した。作製した試料は、TEM/EDS、XPS観察によりカリウム添加を確認した。電気特性測定のためフォトリソグラフィーによりホールバー素子を作製し、真空中室温で電気特性を評価した。図3-⑨-2-4 にシート抵抗—ゲート・ソース間電圧特性を示す。ディラック点が -7.2 V であり、カリウム添加による二層グラフェンの n 型伝導性制御に成功したことを確認した(カリウム添加していない試料でディラック点は +7.4 V と正の電圧であった)。6ヶ月後も電気特性に変化がないことを確認し、カリウム添加による安定な n 型導電性制御に成功した。

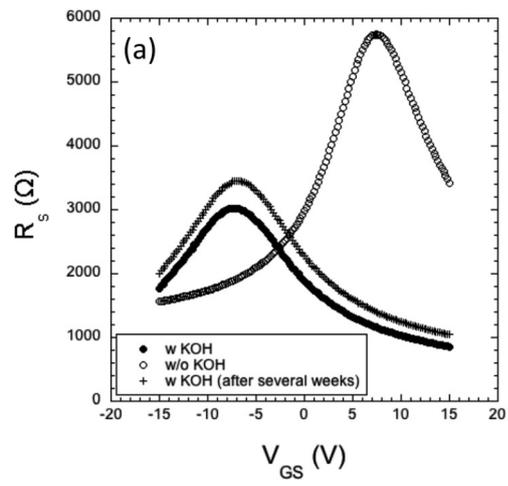


図 3-⑨-2-4 カリウム添加 2 層グラフェン(●、+)、およびカリウムを添加しない 2 層グラフェン(○)のシート抵抗のゲート電圧依存性

## ⑨ナノカーボン材料プロセスに関する基盤技術開発

### ⑨-3 CNT 複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発

#### ■目標

CNT・フィラーおよび高分子母材間の相互作用を自在に制御できる基盤技術を確立するために、CNT に対して官能基付与を行い、表面エネルギーを制御する。フィラーの表面エネルギーを  $10 \text{ mJ/m}^2$  以上変動させることができる表面処理技術を確立する。当該によって熱特性、電気特性が異なるサンプルを 18 種類以上提供する。さらに、フィラー添加順、製造法の異なるフィラーの分散状態が異なる試料を 2 年間で 60 種類以上提供する。

#### ■研究開発の成果

本研究においては、CNT 複合材料の高機能化を目指し、2 種類以上のフィラーの組み合わせによる高機能化を図る。特に、事業内容③-2 における計算科学(SOBA)を用いたシミュレーション技術との連携を図るために、シミュレーションに必要なパラメータである  $\chi$  パラメータの制御を目指し、CNT を含むフィラーの表面改質技術を確立することを目標としている。これにより、CNT 複合材料の材料設計を大幅に高速化することを可能にすると期待される。

まず、CNT と多種フィラーの組み合わせとして、最も一般的なフィラーであるカーボンブラック(CB)のハイブリッド化を試みた。結果を図 3-⑨-3-1 に示す。フッ素ゴムをマトリクスとして選択し、これに 10 wt%の CB を加えることにより、CNT だけの場合比べてパーコレーション閾が大きく低下することを確認した。また、パーコレーション閾以上の領域における導電率についても CB ハイブリッド系の方が高い値を示した。このことは、CNT と CB を複合化することにより、高機能化が可能であることのみならず、CNT の添加量を抑えることによる低コスト化が可能であることを示唆している。今後、グラフェンに代表される二次元材料やカーボンファイバー(CF)、ボロンナイトライド(BN)等の高機能フィラー、またゴム材料に添加されることの多いタルク等の添加剤とのハイブリッド系についてもその添加効果(物性面、機能面)について詳細に検討していく予定である。

表面改質技術においては、プラズマ処理などによる表面改質技術が知られているが、処理ムラなどの問題があることが知られていた。そこでこの処理ムラの問題を解決するべく、気相法を利用した表面改質技術の開発を行った。図 3-⑨-3-2 に導入した装置の外観を示す。本装置により窒素、酸素、アルコール類など様々な種類の分子を CNT の表面に反応させることが可能となった。現在処理条件の最適化を進めている。表 3-⑨-3-1にこれまでに作成した複合材料の組成を示す。18 種類の複合材料を作成し、その物性を測定した(図 3-⑨-3-3)。また、本試料は評価チームに提供し、構造評価を行うことによりシミュレーションの結果とリンクすることにより、表面処理の程度の最適化などの検討を進めていく予定である。

さらに、表面エネルギーの評価システムを構築しており、TG-MS を用いて逆ガスクロマトグラフィー(iGC)を作成し、簡便にフィラーの表面エネルギーを測定する技術の開発も進めている。既存の iGC ではガスは 3 種ほどしか用いなかったため精度が低かったが、ガス種を 15 種類程度まで増やすことのできる装置の開発も進めており、平成 30 年度に完成し実験に使用開始する予定である。これまで、CNT の表面エネルギーの改質は Shaffer らによる  $20 \text{ mJ/m}^2$  (Carbon (2012) 3416-3421)であったが、本年度の検討により約  $45 \text{ mJ/m}^2$  の制御を行った。

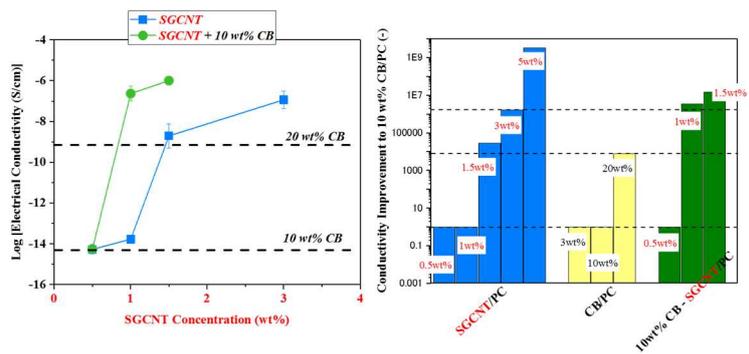


図 3-⑨-3-1 (左)CNT 複合材料および CNT/CB 複合材料の導電率  
(右)フィラー添加による導電率の改善



図 3-⑨-3-2 表面改質装置の外観

表 3-⑨-3-1 18 種類の複合材料の組成表

No.	CNT種	添加量(wt%)	CB添加量 (wt%)	母材
1	As-received	0.1	-	フッ素ゴムG912
2		0.5		
3		1		
4	Anneal SG (1200°C/N <sub>2</sub> /12h)	0.1		
5		0.5		
6		1		
7	Oxide SG (460°C/Air/3h)	0.1		
8		0.5		
9		1		
10	As-received	0.1	10wt%	
11		0.5		
12		1		
13	Aneal SG (1200°C/N <sub>2</sub> /12h)	0.1		
14		0.5		
15		1		
16	Oxide SG (460°C/Air/3h)	0.1		
17		0.5		
18		1		

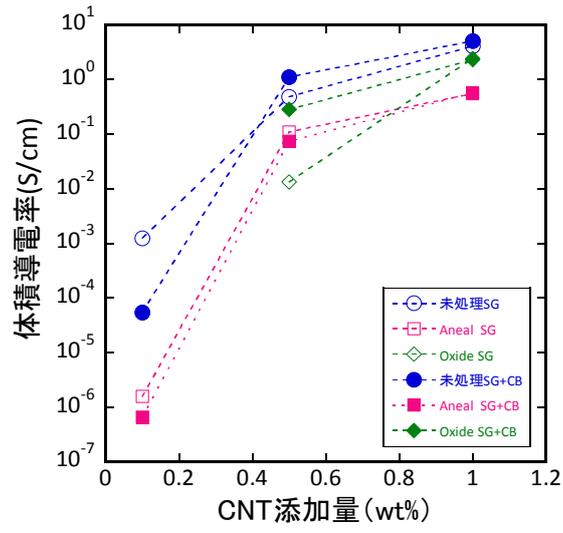


図 3-9-3-3 表面改質の導電性に与える影響

[3] 先端ナノ計測評価技術開発 (⑩～⑬)

【事業内容毎の目標と達成状況】

事業内容		中間目標	成果	達成度
⑩表面・界面の構造計測とナノ領域の多物性同時評価: 和周波分光およびナノプローブ分光		機能材料の埋もれた界面の構造と電子・光物性を同時計測する技術を開発	<ul style="list-style-type: none"> <li>有機半導体薄膜の動作時の官能基の向きを評価・解析することが可能な高速和周波分光システムを構築</li> <li>温度変化に伴う個々の酸化ナノ粒子の金属・絶縁体転移を顕微ナノプローブ分光により実測</li> <li>摩擦摺動状態における界面に存在する分子の配向の評価に成功</li> </ul>	○
⑪有機(無機)コンポジット材料の3次元マルチスケール構造評価: 電子分光型電子顕微鏡、陽電子消滅およびX線CT	1.電子分光型電子顕微鏡	電子線損傷によりこれまで困難であった高分子系材料の界面や3次元構造をSTEM-EELS、EDXにより解析する方法論を確立	<ul style="list-style-type: none"> <li>STEM-EELSによる高分子不均一系の相構造、界面の高感度分析に成功</li> <li>STEM-EDXトモグラフィにより、ポリマー系コンポジット材料の3次元ネットワーク構造の解析に成功</li> </ul>	○
	2.陽電子消滅法とX線CT	有機・高分子材料中の原子空隙(nm)からミクロンメートルまでの高分解能構造評価技術の開発	<ul style="list-style-type: none"> <li>陽電子消滅法において難観測材料として知られていたポリイミド中のナノ空隙の計測に成功</li> <li>高輝度マイクロX線CT技術により、ナノ発泡材料における核材と発泡に関する計算結果を実証する三次元観察に成功</li> </ul>	○
⑫フロープロセスの高感度・in-situ計測: フロー型XAFS及びNMR		実環境下におけるDNP-NMRの高感度測定手法の開発とIn-situ XAFSによる表面解析技術の開発	不溶性有機ポリマーの超高速解析を進め、従来の85倍の感度でNMR測定を可能にした。また、金属ナノ粒子のフロー合成条件下でのXAFS測定では、粒子の成長過程を測定できた。	○
⑬ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発	1.CNT電線の導電阻害部を可視化する計測技術基盤開発	CNT電線の電導機構を解明するため、バンドルの構造と抵抗、およびドーパント効果を解明する	<ul style="list-style-type: none"> <li>遠赤外分光法、比表面積測定、電子顕微鏡観察によるCNTバンドルの階層構造(CNT一本、バンドル、バンドル束)の評価技術を開発</li> <li>ロックイン式発熱解析法、光ビーム加熱抵抗変動法、電場増強ラマン分光法により、電導阻害部の可視化に成功</li> </ul>	○
	2.積層グラフェンの局所電気特性計測に関する基盤開発	高移動度グラフェン薄膜の電気特性の評価技術を開発	原子間力顕微鏡(AFM)を基本とした電磁波特性測定システムを試作し、周波数変化により深さ方向の電気的特性の評価に成功	○
	3.CNT複合材料評価に関する基盤技術開発	CNT-フィラー-ポリマーの三元系複合材料の構造と機械特性の評価技術を開発	ラマン分光・赤外分光と元素分析SEMにより表面修飾に用いた官能基の定性評価と空間分布の計測技術を確立	○

【成果の最終目標と達成可能性】

事業内容		現状	最終目標 (平成33年度末)	達成見通し
⑩表面・界面の構造計測とナノ領域の多物性同時評価: 和周波分光およびナノプローブ分光		和周波分光及びナノプローブ分光による多物性同時評価技術を開発	表面・界面の構造と物性を高速測定・解析し、AIによる材料設計のためのデータを提供する	○
⑪有機(無機)コンポジット材料の3次元マルチスケール構造評価: 電子分光型電子顕微鏡、陽電子消滅およびX線 CT	1.電子分光型電子顕微鏡	・STEM-EELSによる高分子不均一系の相構造、界面の高感度分析に成功 ・STEM-EDXトモグラフィーにより、ポリマー系コンポジット材料の3次元ネットワーク構造の解析に成功	ポリマー系ナノコンポジット材料やバインダ分散ナノ粒子の材料開発において実験的・網羅的に材料探索を行う場合と比べて探索時間を1/20に短縮するため、上記材料の物性に大きな影響を与える相分離構造等の不均一構造と界面に関わる構造因子の電子顕微鏡手法による高速・高感度分析を実現する	○
	2.陽電子消滅法とX線CT	陽電子消滅法の迅速化とX線CT技術の高コントラスト化、元素分析機能の付与に成功	nmから $\mu$ mまでのマルチスケール構造解析技術により、AI用データを提供する	○
⑫フロープロセスの高感度・in-situ計測: フロー型XAFS及びNMR		・XAFS: SPring8で、フローリアクターによる in-situ 計測を実施 ・NMR: 高速・高感度測定に成功	XAFSおよびNMR計測において、in-situ計測・解析が可能なフローリアクターを設計し、高感度で反応生成物等を測定する	○
⑬ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発	1.CNT電線の導電阻害部を可視化する計測技術基盤開発	CNTバンドルの階層構造の評価技術および導電阻害部の可視化技術を開発	CNT電線の階層構造(CNT一本、バンドル、バンドル束)の高速・自動計測により、AI用データを提供する	○
	2.積層グラフェンの局所電気特性計測に関する基盤開発	顕微電磁波顕微鏡技術を開発	大面積・高移動度・透明グラフェンフィルムの局所電気特性評価技術により、AI用データを提供する	○
	3.CNT複合材料評価に関する基盤技術開発	表面修飾した官能基の分析技術を開発	機能性CNT複合材料の構造と物性の評価技術によりAI用データを提供する	○

【研究計画（線表）】

事業内容	平成28年度				平成29年度				平成30年度				
	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	
⑩ 表面・界面の構造計測とナノ領域の多物性同時評価：和周波分光法およびナノプローブ分光法			高速和周波分光システムの構築										
					外場応答計測系の構築、埋もれた界面の分子挙動解析技術の確立								
					高分解能近接場光学顕微鏡の構築								
						光・電気特性同時計測システムの構築							
⑪ 有機（無機）コンジット材料の3次元マルチスケール構造評価 1. 電子分光型電子顕微鏡 2. 陽電子消滅法とX線CT			EELS等分析手法の高速化・高感度化										
								電顕計測手法のプロトタイプ化					
					陽電子計測パラメータの最適化								
									陽電子プローブ制御パラメータの最適化				
					高コントラストのX線CT計測技術の開発						サブミクロンオーダー分解能向上技術の開発		
⑫ フロープロセスの高感度・in-situ計測：フロー型XAFS及びNMR			フローセルの開発										
							フローセルを用いた反応過程観察				in-situフローセル観察手法の確立		
⑬ ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発 1. CNT電線の導電阻害部を可視化する計測技術基盤開発 2. 積層グラフェンの局所電気特性計測に関する基盤開発 3. CNT複合材料評価に関する基盤技術開発					CNTバンドルの抵抗測定						CNTバンドル中のドーパント計測		
					電磁波顕微鏡測定システムの構築						モデル試料(グラフェン/h-BN)計測		
					表面状態の評価						ファイバーの分散状態の評価		

## ⑩表面・界面の構造計測とナノ領域の多物性同時評価：和周波分光およびナノプローブ分光

### ■目標

「和周波分光」においては、試料中に埋もれた界面における分子配向状態等を評価できる和周波分光システムの高速度化を行うために複合レーザー系への拡張を行うとともに、高速・高精度測定系構築に加え、電圧、温度、湿度等の環境応答変化や埋もれた界面の分子挙動を高精度で計測できる試料検出部を構築する。また、高面圧でせん断を実現する試験機の設計を行い、開発した試験機を利用して高面圧せん断場における表面に吸着した界面活性剤の分子配向等の情報を得る。

「ナノプローブ分光」においては、試料表面の分子の局所物性を評価するために局所的な電気特性と吸収スペクトル等の多物性値を同時に計測可能とするナノプローブ分光システムを構築する。

### ■研究開発の成果

#### (1)和周波分光

界面敏感な振動分光法である和周波(SFG)分光を用い、有機薄膜トランジスタ(OFET)駆動時における界面での電荷挙動のその場観察を試みた。OFET 素子測定に際しては SFG 測定に最適化された素子を作製し測定に供した。

また、SFG 分光測定装置は従来産総研で用いていた SFG 分光装置に比べてレーザーの繰り返しを 5 倍速くしているため、これまでに比べ格段に測定の高速度化を達成することができた。図 3-⑩-1 にこの SFG 分光装置を用いて測定した、シリコン基板上に作製した OFET の SFG スペクトルを示す。ゲート電極にマイナス電圧を印加するとスペクトル全体の強度が増加するが、これは有機薄膜と絶縁膜界面での電荷蓄積によっておこる『電界誘起効果』によるものである。またプラス電圧を印加しても SFG 信号は変化しておらず、この素子が P 型半導体によるものであることがわかる。一方、この SFG 信号の増加挙動に関して素子にゲートバイアスを繰り返し印加すると、SFG 信号強度が完全には戻らなくなる現象が見られたが、これは OFET に繰り返しゲート電圧を印加した際に起こるバイアスストレス効果と対応しているものと考えられる。すなわち、有機半導体薄膜界面でトラップされた電荷は電圧をオフにしても完全には戻らず、膜界面に取り残されていることを確認することができた。さらに OFET における電荷蓄積状態の可視化のために、SFG 信号のマッピング測定を進めている。現在の測定における空間分解能は、X 方向 300 $\mu\text{m}$ 、Y 方向 100 $\mu\text{m}$  を達成しており、現在測定している OFET (チャンネル長 1 mm) より小さいチャンネルの素子でも十分測定が可能となった。図 3-⑩-2 に OFET の SFG マッピングの結果を示す。左側が電圧オフ、右がゲート電圧印加時の SFG 信号強度である。ゲート電圧の印加により、ソース、ドレイン両電極間だけでなく、広い範囲で電荷の蓄積が起こっていることが確認される。また、今回の OFET はスピコート法により成膜により作製したものであ

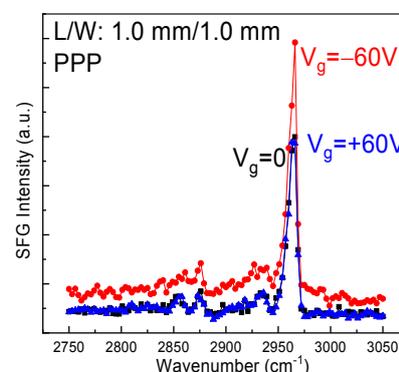


図 3-⑩-1 OFET にバイアス印加した際の SFG スペクトル

るが、膜の性質が比較的均質であることもマッピングデータより確認することができる。このように、高速測定が可能な SFG 分光により膜界面の分子挙動だけでなく、実動作条件下での界面の電荷挙動の観察が可能となった。この電圧印加時の電荷蓄積の解析については、シミュレーションを用いた解析との連携も視野に研究を進めている。

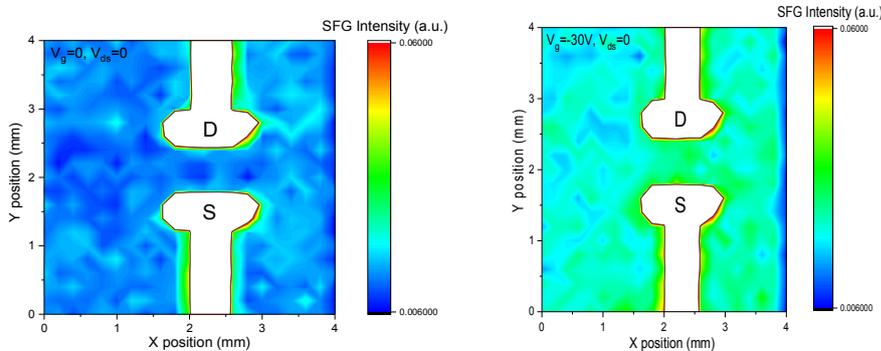


図 3-⑩-2 OFET の電極付近の SFG マッピング。(左) 電圧オフ、(右) ゲート -30 V 印加。

SFG その場観察用高面圧対応のせん断機構について、試験機の設計を行った。高面圧 (GPa オーダー) を実現するため、せん断部は平面と球を使用した点接触とした。測定時間におけるせん断部の安定性を確保するため、往復動のせん断機構を採用した。設計した試験機の概要図を図 3-⑩-3 に示す。SFG 計測のための調整機構として、粗動の高さ調整と微動の XY ステージと高さ調整機構が組み合わされている。せん断のための XY ステージには、面安定性の高いリニアモータステージを用いている。現在せん断機構の不具合修正と SFG 計測に向けた条件出しを行っているところである。

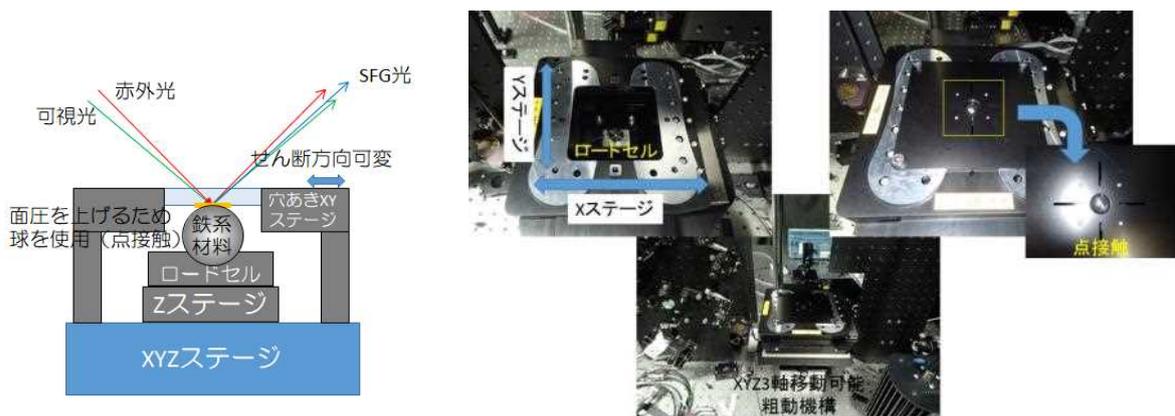


図 3-⑩-3 開発した SFG その場観察用高面圧対応のせん断機構

## (2) ナノプローブ分光

ナノプローブ分光では、走査型原子間力顕微鏡(AFM)と曲率半径が 10 nm 程度の先鋭な導電性 AFM プローブを用いて、半導体材料におけるサブマイクロメートルサイズのドメイン構造やナノ粒子材料等の構造計測と複数の物性測定を 10 nm 程度の空間分解能で同時に行える

技術を開発した。平成 28 年度に導入した AFM の一種である走査型近接場光学顕微鏡 (SNOM) に対して、光学測定と電気測定が出来るように AFM プローブに電圧を印加する機構を付加した。また、ナノ粒子材料の評価に必要とされる”その場観察”(試料温度可変)を行うための試料台を開発し、実際にモデル素材 (VO<sub>2</sub> ナノ粒子試料) に対して温度可変の測定を行った。一方、有機半導体の電気測定では、高電位測定にも対応可能な電位フィードバック制御型ケルビンプローブ顕微鏡 (KPFM) を構成してその性能を確認した。

SNOM を用いた光学測定について図 3-⑩-4 に示す。図(a)は測定の模式図である。測定用入射光の照射によりプローブ先端にはプローブ曲率半径程度のサイズを持つ近接場光が発生し、この微細な光により単一のナノ粒子からの光信号(散乱光)が計測される。図(b)は Si 平坦基板上に分散した VO<sub>2</sub> ナノ粒子試料に対して、本 SNOM を用いて測定した AFM 像と、同時に得られた光学像(光散乱強度像)を示す。粒径 100 nm 以下の粒子が光学的にも個々に明瞭に観察できている。測定光として波長

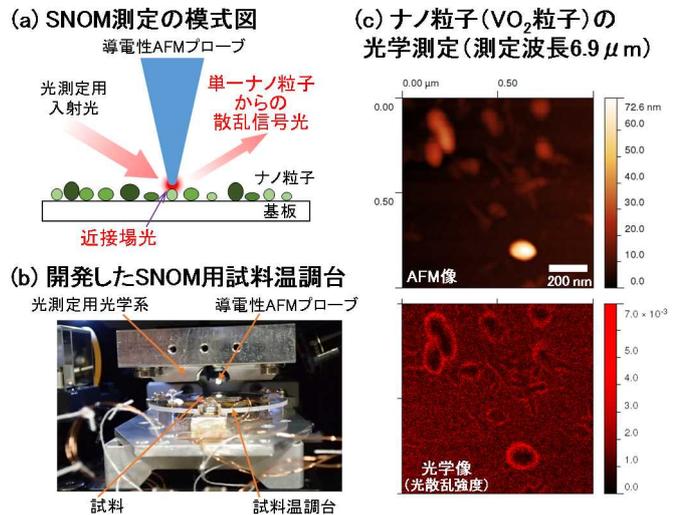


図 3-⑩-4 (a) SNOM の原理模式図、(b) 開発した試料温調台、(c) ナノ粒子の測定例

6.9 μm の中赤外光を用いているが、回折限界を超えてはるかに小さな粒子(粒径 < 100 nm) が測定できている。図(c)に試料温度可変用に開発した試料台を示す。本 SNOM では光学測定系、AFM プローブ、試料が極めて接近した位置に配置されるため、極薄型で、かつ温度安定性の良い温度可変試料台を開発した。図 3-⑩-5 に各温度にて測定された VO<sub>2</sub> ナノ粒子試料の光学像を示す。VO<sub>2</sub> は約 50°C の転移温度を超えると誘電体相から金属相へ相転移するため、相転移による複素誘電率の変化が光散乱強度にも変化を与える。下地の Si 基板では複素誘電率の温度変化は起きないため、ナノ粒子像と Si 基板部とのコントラストの変化から相変化が確認できる。図から 49.5°C における光学像と 50°C 以上のそれとでコントラストが変化しており、個々の粒子で相変化が起きていることが確認できた。

### SNOMによる”その場観察”(VO<sub>2</sub>ナノ粒子の温度相変化)

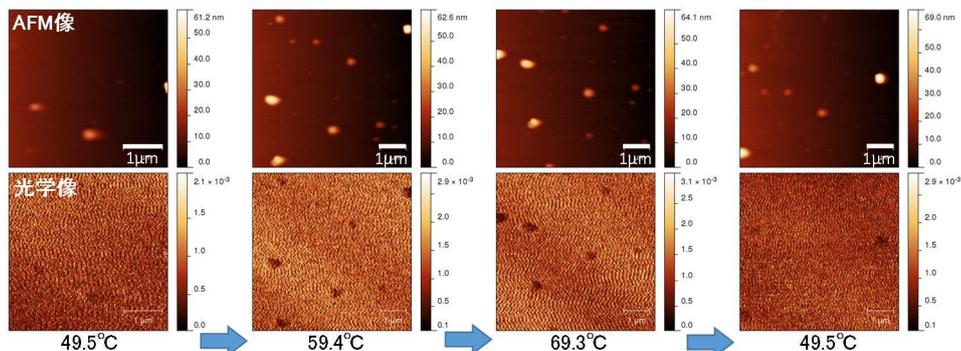


図 3-⑩-5 SNOM による VO<sub>2</sub> ナノ粒子の”その場測定”

次に KPFM による電位測定について図 3-⑩-6 に示す。抵抗の高い(キャリアの少ない)有機半導体薄膜デバイスのオペランド計測(動作中その場測定)に対応するためには、高い電位を計測する必要がある。このため、フェルミレベル位置の計測(キャリア濃度やバンドベンディング情報)には電位フィードバック制御型 KPFM(オープンループケルビンプローブ法)を利用した。動作状態での計測では図(a)に示すように、探針(導電性 AFM プローブ)をやや離れた状態で、探針-試料間に電位変調(角周波数  $\omega$ )を掛ける。探針振動に現れる変調成分強度 ( $A(\omega)$ )と 2 倍波成分強度 ( $A(2\omega)$ )を測定することで、試料電位を関係式  $\Delta\Phi \sim A(\omega)/A(2\omega)$ から求めることができる。これにより高電位 (-200 V $\sim$ +200 V)においても計測が可能となった。また、この方法とフローティング電源(非接地で動作する電圧源)を利用することでデバイスの動作状態での計測(オペランド計測)を実現した。図(b)はキャリアドープされた Si 試料に対する測定結果で、キャリア密度に対する仕事関数(電位)が検量線として得られた。

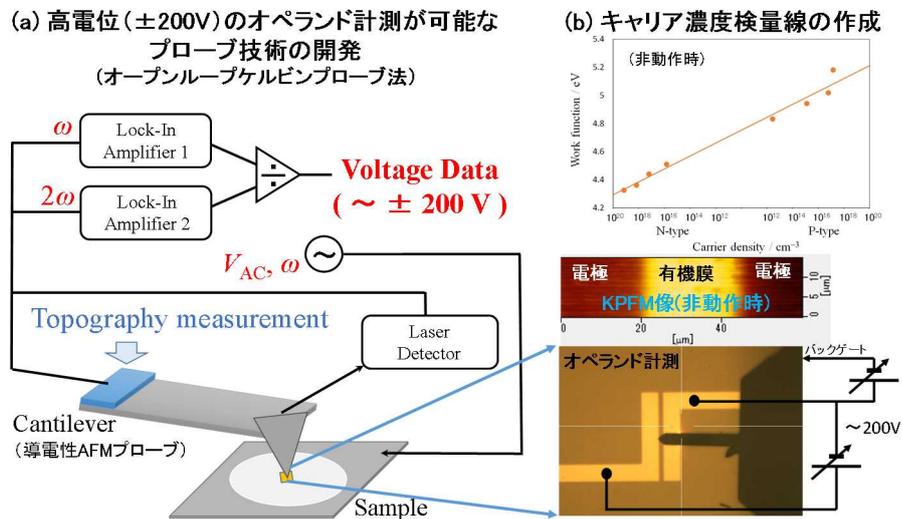


図 3-⑩-6 (a)高電位のオペランド計測可能な KPFM、  
(b)キャリア濃度等を計測するための検量線作成

## ⑪ 有機（無機）コンポジット材料の 3 次元マルチスケール構造評価：

電子分光型電子顕微鏡、陽電子消滅および X 線 CT

### ⑪-1 電子分光型電子顕微鏡

#### ■目標

透過電子顕微鏡(TEM)による電子線エネルギー損失分光(EELS)法等、極微小領域分析の高速・高感度化とその可視化技術を導入し、電子線損傷に弱い有機・高分子系材料の観測について高速化と、高感度化技術を確立する。また、観察手法、試料調整方法等のプロトコル化を含めた、電子分光型電顕計測システムの構築、ポリマー中の相分離やナノ粒子の分散状態計測を達成する。

#### ■研究開発の成果

走査透過型電子顕微鏡(STEM)は、極微小電子プローブ(～1 nm)を薄膜試料上で走査し、入射電子線と試料との相互作用で発生する特性 X 線や非弾性散乱電子を分光することにより、微小領域の構造解析に威力を発揮する。しかしながら、高分子材料をはじめとする有機系試料では、高エネルギー密度の電子線照射により、試料損傷が大きな問題となり、金属・半導体等で行われている高度解析を困難にしている。高分子系試料での STEM-EELS、EDX 高度分析を可能にすべく、スペクトルの高速・高感度取得のための装置、ソフトウェアの整備、解析条件の最適化を主にモデルサンプルを用いて検討した。これらの基礎検討を基として、本プロジェクト内で開発された、ゴム系ナノコンポジット材料の相分離、フィラー分散の 3 次元高度構造解析技術、およびポリフェニレンサルファイド(PPS)系高せん断ブレンドのモルホロジー・界面解析を行った。

#### (1)ポリマーブレンドモデル試料による STEM-EELS、EDX 分析手法の最適化

STEM による解析手法の最適化を進めるためのモデル試料としては、指標となる異なる元素が各々の構成ポリマーに含まれることが理想である。本研究では、ポリフッ化ビニリデン(PVDF)と L-ポリ乳酸(PLLA)のブレンドについて、かご状シリカ化合物であるポリシルセスキオキサン(POSS)-PMMA 変性体を相容化剤とし、熔融混練条件や相容化剤の化学構造による相容化への影響を STEM による EDX および EELS 分析により検討した。PVDF にはフッ素(F)、PLLA には酸素(O)、相容化剤にはシリコン(Si)が含まれ、さらに、結合状態の異なる O が相容化剤に含まれる。非相溶ポリマーブレンドでは、ポリマー間の相容性を高め、分散性、界面接合強度を向上させるため、第 3 成分を少量添加することが一般的に行われている。しかし、相容化剤として作用する第 3 成分のドメイン/マトリックス界面での局在性や分布を定量的に分析することは困難であった。

PVDF/PLLA ブレンド系での反応性相容化剤として、図 3-⑪-1-1 に示すような、エポキシ基を有する POSS(POSS(epoxy)<sub>8</sub>)、および PMMA を予めグラフト化した POSS(epoxy)<sub>8</sub>-g-PMMA を用いた。エポキシ基は PLLA 末端のカルボキシル基と反応し、PMMA は PVDF と相溶するため、界面に局在化することが期待できる。PVDF/PLLA 組成を 50/50 w/w、相容化剤添加量を 3 wt% とし、190 °C、50 rpm で 5 分間溶融混練を行った。図 3-⑪-1-2 に示すように、3 成分を同時に混練機に投入した場合 (One-step melt mixing) と 2 段階投入 (Two-step melt mixing) での構造の違いについて解析を行った。ウルトラミクロトームにより超薄切片を作製し、TECNAI OSIRIS (FEI 社製)により、加速電圧 200 kV、試料温度 110 K でのクライオ条件で、STEM 観察、および EDX、EELS 解析を行った。

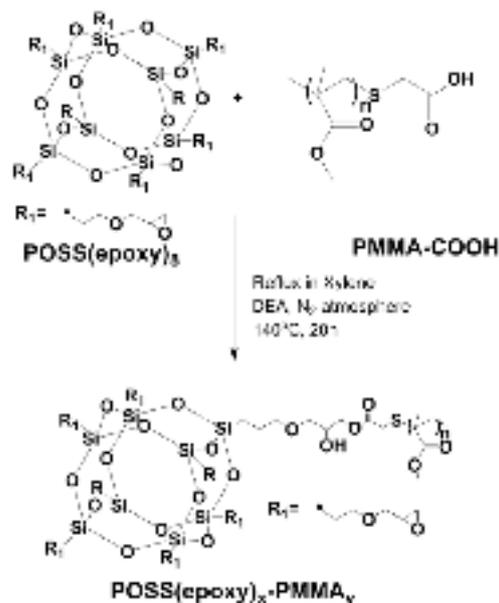
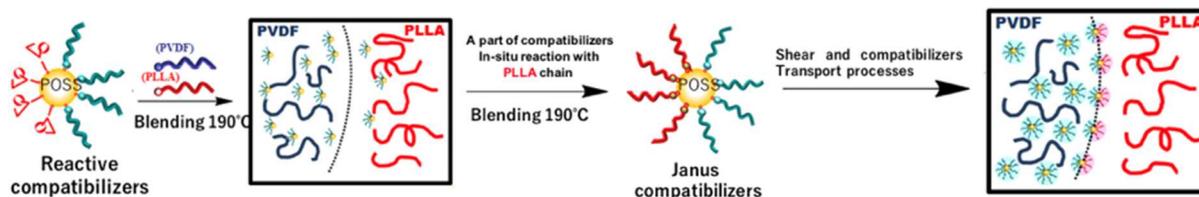


図 3-⑪-1-1 PMMA 変性かご状シリカ POSS の構造

(a) One-step melt mixing



(b) Two-step melt mixing ((PLLA+POSS)+PVDF)

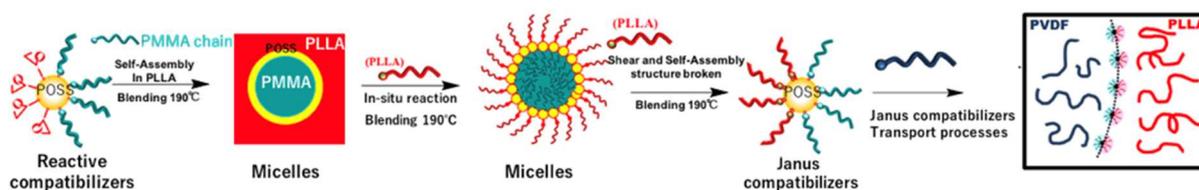


図 3-⑪-1-2 PVDF/PLLA/POSS ブレンドの溶融混練プロセス

図 3-⑪-1-3 は、(a) One-step melt mixing と (b) Two-step melt mixing サンプルでの PVDF/PLLA 界面での POSS 相容化剤の局在化を示す EDX 元素マッピングと界面での元素濃度プロファイルである。Si を赤、F を緑、O を青で示した。One-step では、相容化剤の界面での局在が不均一であり、PVDF 相内にも混在しており、一方、Two-step では、PVDF ドメインの周囲に Si リッチ層 (POSS) が約 50 nm の厚みで局在化していることがわかる。POSS にグラフト化した PMMA と PVDF の相溶性、PLLA と epoxy 基の反応性のバランスにより相容化剤の局在化が決まり、混練条件により相容化効率に違いがもたらされる原因が相容化剤の界面での局在性に起因していることが明らかになった。このような、ポリマーブレンド内に数%微量添加された相容化剤の局在を特製することは、従来の装置では感度が不足し、困難であったが、4 台

の EDX 検出器を試料周りに配置することにより、高速での分析が可能となった。

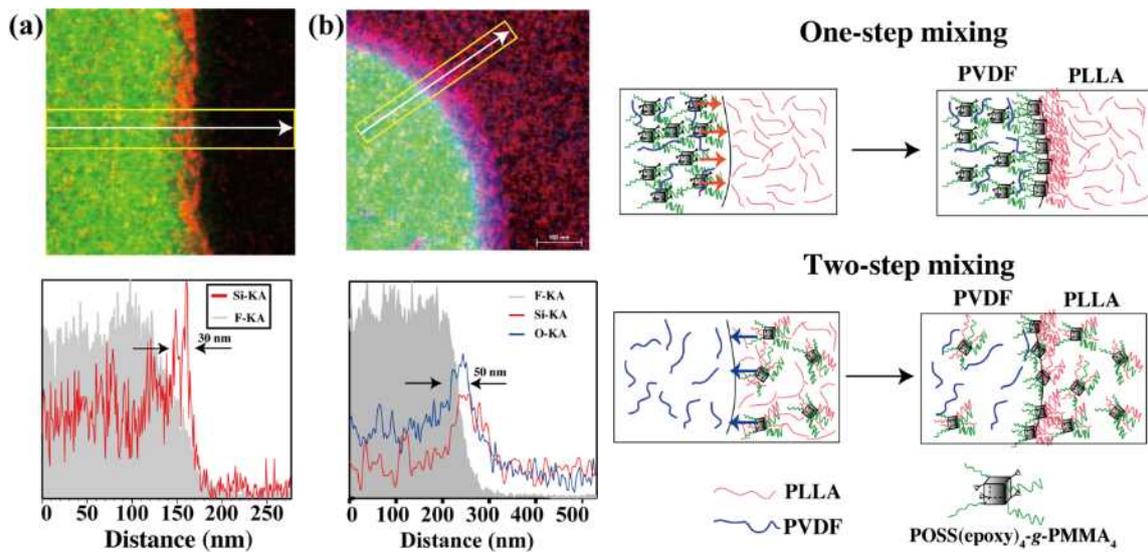


図 3-⑪-1-3 STEM-EDX マッピングによる PVDF/PLLA 界面での POSS 相容化剤の局在性の解析

EELS では、EDX と異なり元素組成のみならず、元素の結合状態に関する情報まで得ることが可能であるが、高分子試料では電子線損傷のために、これまで EELS での化学状態分析は不可能であった。STEM での EELS 取得条件を詳細に検討したところ、クライオ条件下で、照射量を検出限界まで下げることにより、535 eV 付近に現れる酸素の励起スペクトル(O k-edge)の強度が上がるのが図 3-⑪-1-4 に示すように明らかになった。この結果、O k-edge により PLLA、POSS、さらに POSS にグラフト化した PMMA の酸素がスペクトル形状の違いとして識別可能である。PVDF/PLLA/POSS(two-step)3 成分ブレンドと PVDF/PLLA2 成分ブレンドでの PLLA 相から得られるスペクトルでは、低エネルギー側から 2 番目のピーク(537 eV)に違いが見られる。さらに、PMMA ではこのピークが大きい。種々のポリマーの O k-edge を測定したところ、このピークは電子線損傷に敏感であることが判明した。3 成分系では、極微量の POSS が PLLA 相に溶解しているため、電子線損傷が抑えられていると考えられる。

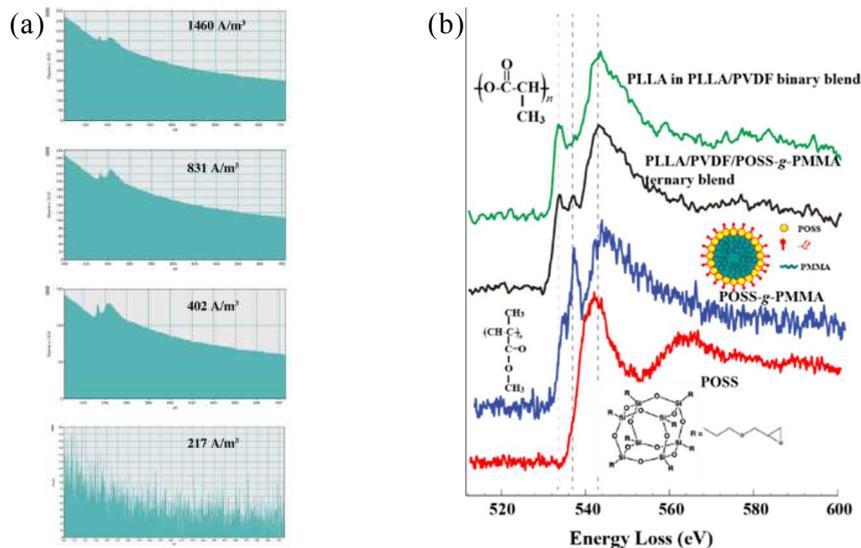


図 3-⑪-1-4 (a) EELS による PLLA の O k-edge の電子線照射量依存、および(b)化学結合状態分析

## (2)STEM-EDX トモグラフィーによる SBR/IR/シリカ 3 成分コンポジットの 3 次元構造解析

自動車タイヤ等ゴム材料では、転がり抵抗、ウェットグリップ性能、静粛性など、様々な機能を発現させるために、スチレン・ブタジエンゴム (SBR)、イソプレンゴム (IR)、天然ゴム (NR) 等のブレンドにシリカ等のナノフィラーを配合したナノコンポジットが開発されている。このような材料では、ゴムの相分離構造とシリカの分散構造がナノレベルで混在しており、通常の透過型電子顕微鏡 (TEM) 像で得られる二次元投影像では、構造を明らかにすることが困難である。そのため、TEM-トモグラフィーによる 3 次元構造解析が検討されているが、通常のとモグラフィーでは、ゴムの相分離とシリカの分散状態の 3 次元構造を同時に解析することは困難である。そこで、STEM による EDX 元素分布像を用いたトモグラフィーにより、3 次元構造再構築を行い、3 次元でのゴム相分離とシリカの分散状態とネットワーク構造を明らかにした。

SBR、IR、一次粒径が 18 nm のシリカを密閉式混練機により練り・加硫を行った。トモグラフィー用超薄切片は  $-120^{\circ}\text{C}$  でのクライオウルトラミクロトームにより作製し、四酸化オスmium ( $\text{OsO}_4$ ) により  $60^{\circ}\text{C}$ 、24 時間染色を行った。試料の電子線照射による変形等を抑制するため、110 K でのクライオ条件で、 $-55^{\circ}$  ~  $55^{\circ}$  の傾斜角を約  $2.5^{\circ}$  間隔で連続傾斜像を取得し、3 次元再構築を行った。

図 3-⑩-1-5 は、SBR/IR (60/40 部) にシリカフィラー 50 部配合した試料の無染色試料と ( $\text{OsO}_4$ ) 染色試料の STEM 環状暗視野 (STEM-ADF) 像である。無染色試料ではシリカの分散状態が確認され、一方、染色試料では、SBR/IR ブレンドの相分離構造が観察される。STEM-ADF 像では、強く染色された相が明るい相として確認される。図 3-⑩-1-6 は、染色試料の ADF 像と Si、及び Os

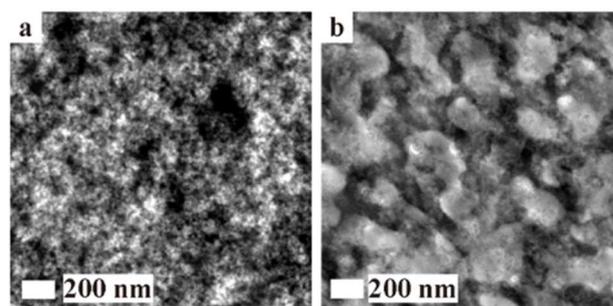


図 3-⑩-1-5 SBR/IR/シリカブレンドの (a) 無染色、(b)  $\text{OsO}_4$  染色による STEM 像

の EDX 元素マッピングであり、シリカの分散構造と SBR/IR ブレンドの相分離構造を明瞭に確認することができる。連続傾斜 EDX マップ像からの 3 次元構造構築のためには、EDX 信号強度が傾斜角度で大きく変化しないことが重要である。1本の EDX 検出器だけでは、X 線の検出量が傾斜角に大きく依存し、特に、検出器と反対側での高傾斜角では十分な信号強度が得られない。一方、均等に配置された 4 本の検出器で信号を捕らえることにより、大きな傾斜角度においても十分な信号強度が得られ、かつ、強度の角度依存も小さくなる。図 3-⑩-1-7 は、Si マップ (赤) と ADF 像から得られた SBR 相 (緑) の 3 次元再構築化像を重ねた像である。シリカフィラーはほぼ IR 相に分散し、共連続的な相構造を有していることがわかる。

3D-TEM/EDX 観測手法により、ゴムブレンド+フィラー系における相構造・フィラー分散状態の 3 次元観察を可能とした。STEM-EDX トモグラフィーは長時間の電子線照射 ( $\sim 10$  時間) において、試料が安定であることが要求されるため、今まで高分子系試料において報告例はない。フィラー充填量、ブレンド比率の異なるサンプルを観察し、フィラーが形成する 3 次元ネットワーク構造の変化を検討する予定である。また、観測したネットワーク構造が弾性率に及ぼす影響についてシミュレーションによる検討を進めている。

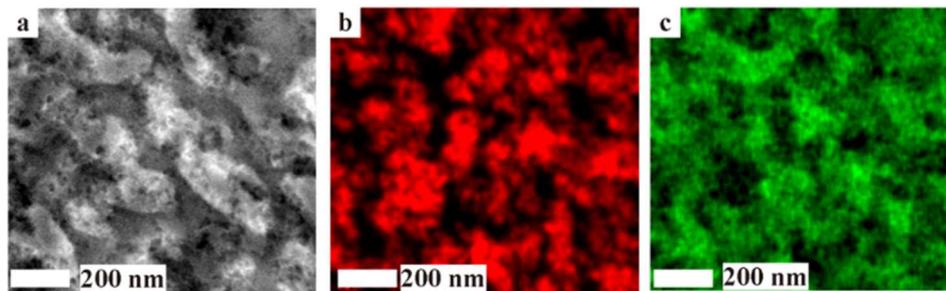


図 3-⑪-1-6 SBR/IR/シリカブレンドの(a)OsO<sub>4</sub> 染色による STEM 像, (b)Si マップ, (c)Os マップ像

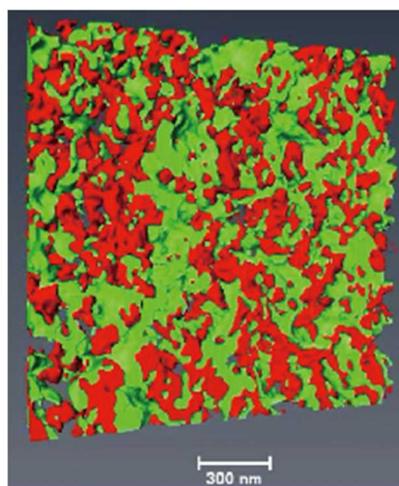


図 3-⑪-1-7 STEM-EDX トモグラフィーによる SBR/IR/シリカコンポジットの 3 次元構造

STEM による EELS、EDX の高感度化・高速化により電子線損傷を受けやすい高分子試料での多次元解析を可能にした。STEM では通常 2 次元の投影像であるが、分析機能を追加することにより、X-Y-E (エネルギー) の 3 次元情報となり、構造のみではなく、元素やその化学結合状態の情報が得られる。さらに、STEM-EDX トモグラフィーにより X-Y-Z の次元構造に E が追加された 4 次元情報が得られ、コンポジット材料の複雑な構造を明らかにすることが可能となる。STEM-EELS は、熔融混練等のプロセス条件の構造・物性への影響を明らかにすることを可能とし、STEM-EDX トモグラフィーは構造・物性の相関を 3 次元レベルで解析することを可能とする。今後シミュレーションとの連携を進めていく予定である。

⑪ 有機（無機）コンポジット材料の3次元マルチスケール構造評価:

電子分光型電子顕微鏡、陽電子消滅およびX線CT

⑪-2 陽電子消滅法とX線CT

■目標

高強度陽電子ビーム施設等の陽電子関連計測装置を活用し、シングルナノメートル(nm)レベル以下の径を有する細孔の構造を非破壊かつ in-situ で評価できる高精度陽電子消滅パラメータ計測技術の開発とともに、更なる高精度化に加え、高効率化を実現することで、有機・高分子系材料中のナノ細孔を解析するための陽電子プローブ制御パラメータの最適化を行う。

X線CT計測技術においては、マイクロメートルオーダーの3次元構造解析を実現するため、ポリマー系材料分析に資する高コントラスト計測を実現し、有機・高分子系材料に適用可能なX線CT計測技術を開発し、サブマイクロメートルオーダーまでの高分解能を達成する。

■研究開発の成果

(1) 陽電子消滅法

高強度陽電子ビーム施設等の陽電子関連計測装置を活用し、シングル nm レベル以下の径を有する細孔の構造を非破壊で評価できる高精度陽電子消滅パラメータ計測技術をモデル試料等に適用し、難観測材料として知られるポリイミド材料の解析技術を開発した(図3-⑪-2-1)。

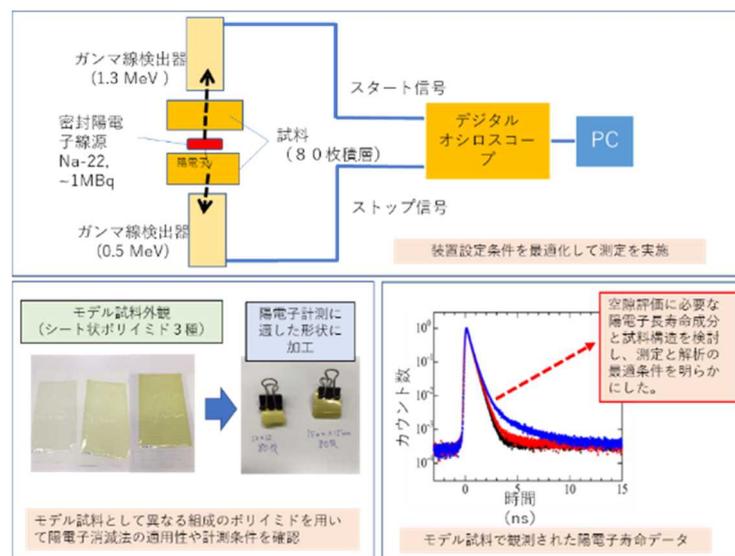
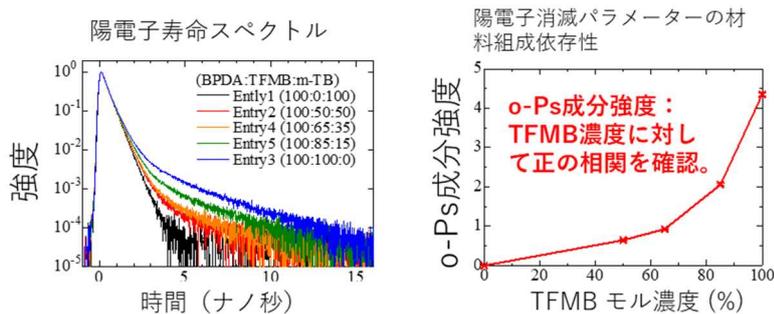


図 3-⑪-2-1 陽電子消滅パラメータ計測技術とモデル試料の適用結果

その陽電子消滅パラメータ計測技術の更なる高精度化に加え、ビームエネルギー等の測定条件を最適化することで、細孔構造を非破壊かつ in-situ で評価するシステムの高効率化を実現した(図3-⑪-2-2)。



- ・ 試料の測定準備手順の確定
- ・ 陽電子消滅パラメータのデータ取得 → 最適な測定時間と統計数を確定
- ・ 陽電子消滅パラメータの組成依存性を確認 (右図：オルトポジトロニウム(o-Ps)成分強度)

図 3-⑪-2-2 陽電子消滅パラメータ計測技術の更なる高精度化の概要図

さらに、有機・高分子系材料中のナノ細孔の評価を実施することで、更に高強度陽電子ビーム施設等の陽電子関連計測装置の陽電子プローブ制御パラメータの最適化をすすめた。

## (2) X線CT

X線CT計測技術において、マイクロX線CT法を用いた研究検討に着手し、事業内容⑦等で作製するコンジット材料等のサンプルのマイクロメートルオーダーの3次元構造解析を実施した(図3-⑪-2-3)。さらに、サブマイクロメートルオーダーでの3次元構造ならびに組成分析を同時に可能とする計測技術の構築のために必要な技術課題を詳細に明確化して解決策を具体化できた。

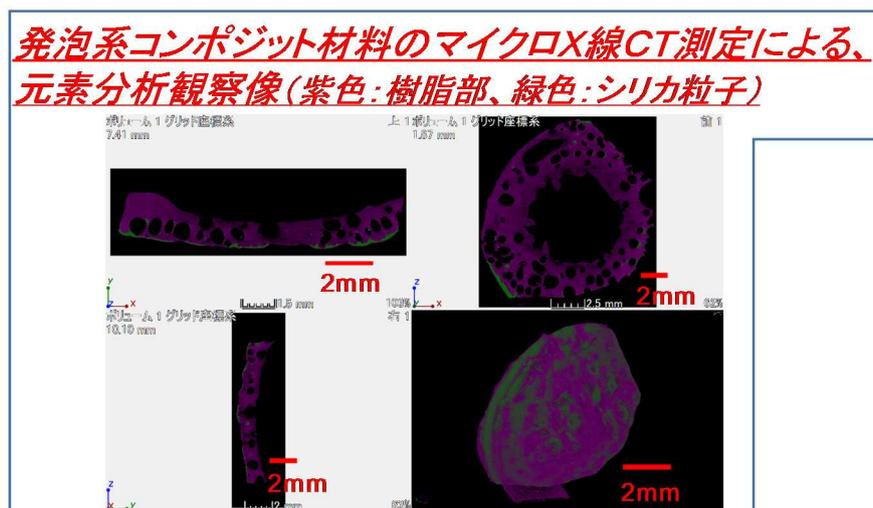


図 3-⑪-2-3 マイクロサイズ分解能での発泡コンジット材料内部構造の3D評価

次に、CTデータ可視化解析ソフトウェアを導入し、ポリマー系コンジット材料等のサンプルのマイクロメートルオーダーの3次元高コントラスト計測を実施した。さらに、高分解能X線CT

装置用のエネルギー検出器を導入整備するとともに、マイクロ X 線 CT 法におけるサンプル透視像の透過 X 線のエネルギー分布を X 線エネルギー検出器によって精密計測し、高コントラスト計測に必要な研究データを取得・評価した(図 3-⑪-2-4)。これらの取組みによって、サブマイクロメートルオーダーでの三次元構造ならびに組成分析を同時に可能とするオンサイト計測技術の構築を進めた。

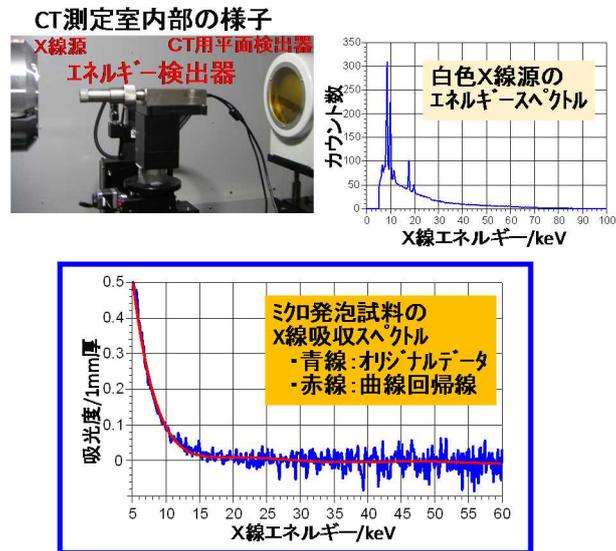


図 3-⑪-2-4 X 線エネルギー検出器による透過 X 線のエネルギー分布精密計測

さらに、事業内容⑦の発泡コンジット材料等のサンプルのサブマイクロメートルオーダーの 3 次元構造解析を実施し、0.8 マイクロメートル分解能までの三次元構造ならびに組成分析を同時に可能とするオンサイト計測技術を確立できた(図 3-⑪-2-5)。さらに、計算シミュレーション入力に資するパラメータ抽出ならびに高速化計測技術の構築のために必要な技術課題の明確化を進めている。

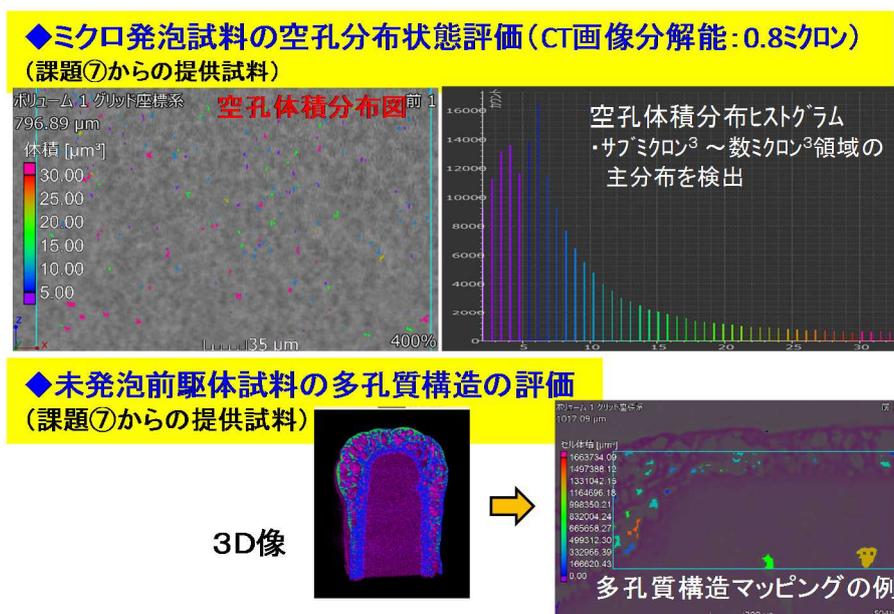


図 3-⑪-2-5 0.8 マイクロメートル分解能でのマイクロ発泡試料の空孔分布状態

## ⑫ フロープロセスの高感度 in-situ 計測:フロー型 XAFS 及び NMR

### ■目標

フロー型セルを用いた触媒表面での反応過程の直接観察および反応界面での電子状態やその周辺構造の観察技術の開発を行う。NMR 信号の増強、感度向上による実環境下でのフロー型 NMR 計測手法の確立および反応条件下における in-situ XAFS による表面物性の解析技術を開発する。

平成 33 年度最終目標としては、反応過程を高速・高感度でモニタリングする、in-situ 計測・解析が可能なフロー型 XAFS と NMR 計測技術を確立し、従来法と比べて高速のハイスループット計測技術を開発する。フロー反応中における触媒の状態および生成物の組成分のハイスループット計測により、触媒開発指針に資するデータを提供する。

### ■研究開発の成果

高付加価値材料を開発する上で、表面の局所構造を正確に理解することは必要不可欠である。特に、超高速でのデータ処理技術や人工知能を活用した研究開発が急速に進歩する現代～近未来において、機能の裏付けとなる構造情報を精密かつ高速に提供する構造解析手法は、キーとなる技術である。固体 NMR 分光法は、非破壊的な方法で材料そのものを解析することができ、適当な溶媒に溶解させる必要がある溶液 NMR 分光法に比べて適用範囲は広い。しかし、NMR の原理的な感度の低さとともに、化学シフト異方性や核スピン間の双極子相互作用を溶液中のように平均化することができないため、分解能が低く、得られる情報には限りがあった。近年、固体 NMR の感度を劇的に向上させる手法として、動的核分極法 (Dynamic Nuclear Polarization; DNP)を駆使する方法 (DNP-NMR) が注目を集めている。本プロジェクトでは、DNP-NMR を利用した材料、特に不溶性の有機高分子材料やそれに関連する触媒の超高速解析を進めるため、東アジア初の例として DNP-NMR 装置の導入に平成 28 年度後半から着手した。DNP-NMR 装置の導入が平成 29 年 12 月に完了し (図 3-⑫-1)、平成 30 年度前半において安定的に装置の運用を進めている。



図 3-⑫-1 固体 DNP-NMR 装置

不溶性有機ポリマーの超高速解析を進めるためのベンチマークとして、イオン交換樹脂などの実用材料として広く用いられている架橋型ポリスチレンの固体 DNP-NMR による構造解析に取り組んだ。このような不溶性有機ポリマーの DNP-NMR による構造解析例は乏しいが、分極剤となるラジカルの均一分散が鍵となることは知られていた。そこで我々は、ポリマーを効率よく膨潤させ、ラジカルの分散を促す溶媒の選択が鍵と考え、研究を進めた。1,1,2,2-テトラクロロエタンが架橋型ポリスチレンを効率よく膨潤させることを見出し、これを典型的な分極剤である TEKPol と組み合わせることで、NMR のシグナルを 85 倍に向上させることに成功した (図 3-⑫-2)。これは、測定時間が 7000 分に 1 に減少することに相当する。

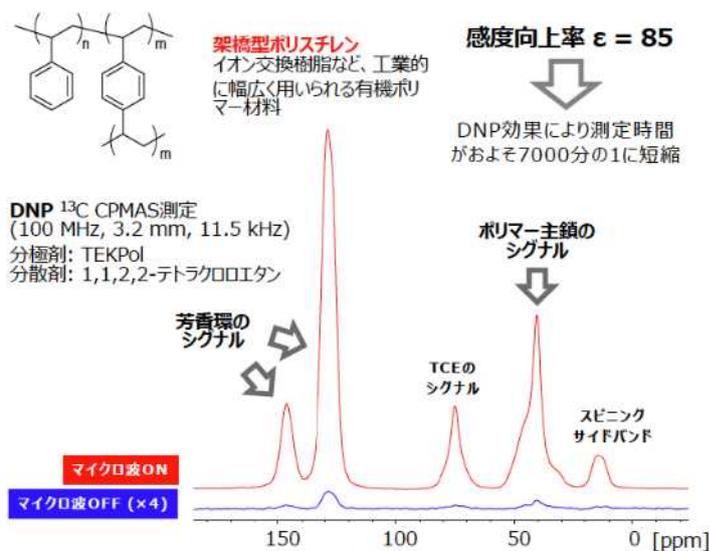


図 3-⑫-2 DNP-NMR による有機ポリマー材料の超高速解

再委託先の高輝度光科学研究センター (JASRI) では、金属ナノ粒子のフロー合成条件下における in-situ XAFS 測定の測定条件について検討した。反応液の流速、計測範囲、計測時間および X 線照射位置を変えて測定を行った結果、反応開始から約 0.5 秒後の Pd K 吸収端 XANES スペクトルの取得に成功し、数 nm 程度の Pd ナノ粒子の形成が確認された。

### ⑬ ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発

#### ⑬-1 CNT 電線の導電阻害部を可視化する計測技術基盤開発

##### ■ 目標

複数の CNT サンプルのバンドル構造を比較し、電気伝導性との関係を明らかにする。更に、ナノ材料内部のドーパント位置観察技術を開発する。1 種類のドーパントについて、CNT バンドル構造内部のドーパント位置を計測する。

##### ■ 研究開発の成果

###### (1) バンドル構造と電気伝導性の関係評価

CNT 電線は直径がナノメートルオーダーの CNT が集まってできており電線中には無数の CNT が存在するが、CNT の優れた性質を十分に反映した電線実現のためには CNT が理想的な配置で並んでいる必要がある。しかし、現状の紡糸技術では理想的に CNT を電線中に並べることは容易ではなく、配置によって電線の性能が左右され得る。とりわけ CNT はバンドル構造を形成し特有な配置をとり、CNT 電線中のバンドル構造が電気特性にどのような影響を与えるのか明らかにする必要がある。

本項目では事業内容⑨-1において、複数の条件で湿式紡糸法により作成した CNT 電線のバンドル構造の変化と導電特性の変化を評価した。SEM により電線側面を観察し、画像処理によりバンドルの配向係数を算出し、伝導特性との関係を図 3-⑬-1-1 に図示した。この図から配向係数と伝導特性には負の相関がある事がわかる。この結果は、各条件において紡糸に使用した CNT 分散液の分散度合いの差によって伝導特性が決まっている事を示していると考えられる。同様に分散液の作成条件と伝導特性を比較したところ相関を示した事から、プロセスを担当する事業内容⑨-1 に対して、分散液の作成条件に集中して開発を行うよう提案を行った。また、評価によって得られた実験データを CNT 線材のマルチスケールシミュレータの構築を目指す事業内容①-1 に提供した。今後はプロセス改良に伴う CNT 電線の品質向上に伴いバンドル構造と伝導特性の関係を追従し、因果関係の界面、効率的なプロセス開発支援、計算に有用な実験データ提供に継続して努める見込みである。

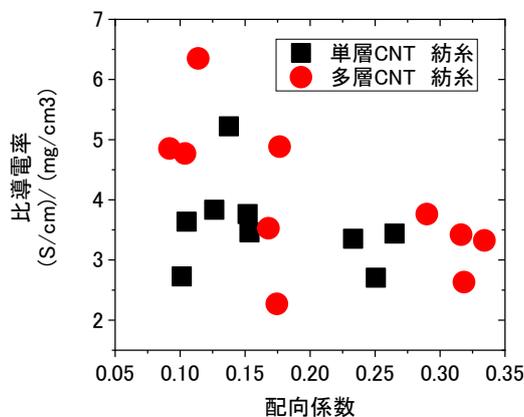


図 3-⑬-1-1 バンドルの配向と伝導特性の関係

## (2) CNT 電線中のドーパント位置評価技術開発

CNT へのドーピングは伝導特性を向上させる有力な手段としてよく知られている。事業内容⑨-1ではCNT電線の伝導特性向上の手段としてドーピング技術開発を行っているが、本項目ではドーパントの分布状況の評価技術開発およびプロセス、計算へのフィードバックを行う。

本項目ではドーパントの分布状況の評価装置として EDX 装置を導入した。図 3-⑬-1-2 は、事業内容⑨-1 で作成したヨウ素をドーピング処理した CNT 電線の断面の SEM 像及びヨウ素の EDX 像である。続いてバンドルスケールでのヨウ素付着状況を観察した結果が図 3-⑬-1-3 である。この画像からバンドル単位でヨウ素が付着しており、若干の強度ムラがある様子が確認できる。これは SEM の EDX 分析としては非常に高い空間分解能であり、測定の容易さを考慮すると世界的にも高い水準の測定が実現できている。プロセス技術の評価にはすでに十分に有用な観察ができているが、計算へのデータ提供という観点ではもう少し分解能の高いデータも求められている。そこで本項目ではより高い分解能が期待される測定について検討を行う見込みである。

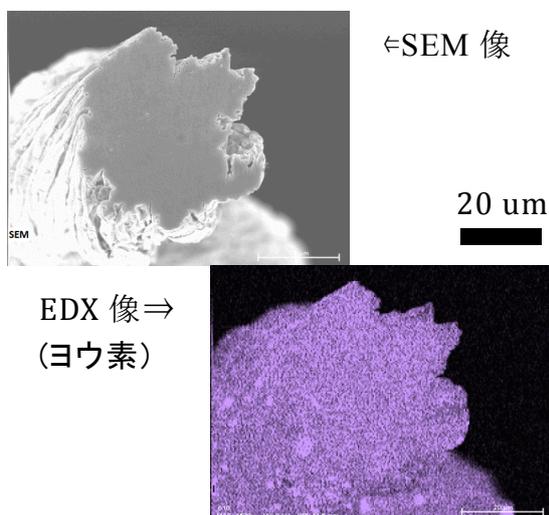


図 3-⑬-1-2 CNT 電線中のドーパントの分布状況

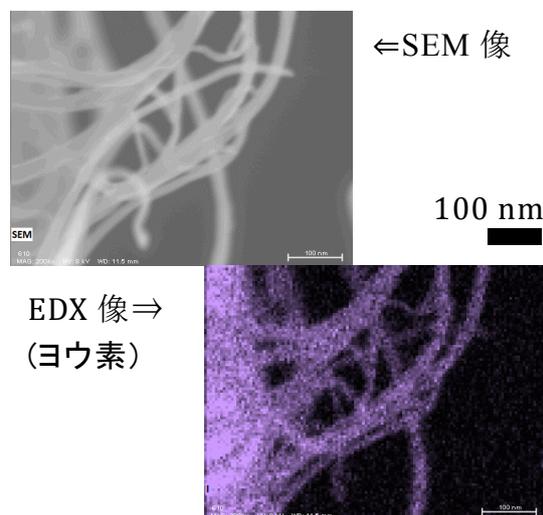


図 3-⑬-1-3 CNT バンドルに付着するドーパントの分布状況

### ⑬ ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発

#### ⑬-2 積層グラフェンの局所電気特性計測に関する基盤開発

##### ■ 目標

開発した計測システムと計測条件のライブラリにより、サンプル積層後に直ちに電気特性を評価でき、従来の測定のための前処理加工を削減して、評価に費やす時間を大幅に短縮する。

##### ■ 研究開発の成果

###### (1) 高周波電磁波顕微鏡の基盤技術研究開発

ナノ領域からマイクロメートル領域の電気特性を評価できる原子間力顕微鏡(AFM)を基本とした、表面の局所的な電磁波電気特性の測定システムを構築し、精度を検証した。電磁波顕微鏡計測システムにおいて、グラフェン/h-BN の実サンプルを測定し、既存の電磁波入力・検出装置より高周波信号を入力できるようにして高周波化、測定精度及び電気特性解析技術の向上を図り、測定条件のライブラリ構築を目指した。

具体的には、表面の微小構造観察に加え、測定に用いる電磁波の周波数を変化させることで試料の深さ方向の電気的特性を測定できる電磁波顕微鏡測定システムを導入した。導入した電磁波顕微鏡測定システムについて、誘電率やキャリア濃度の異なる標準試料を用いて測定精度を検証し、実サンプルの測定条件等の検討を進めた。その後、電磁波顕微鏡計測システムについて、測定対象となるグラフェン単層/多層膜やグラフェン/h-BN の測定を実施した。さらに、バイアス印可条件、高周波化及び掃引速度やデジタルフィルタ等の信号処理条件や外部回路の改良を行い、取得する電気特性の測定結果のノイズ特性やダイナミックレンジの改善を図り、標準試料やグラフェン/h-BN 等のサンプル種類ごとの測定条件の知見を蓄積した。

###### (2) 測定の高精度化(低 SNR 測定の実現)

最初に市販の走査型電磁波顕微鏡(Scanning Microwave Microscopy: SMM)システム(図 3-⑬-2-1(上))を基本構成として使用した。図 3-⑬-2-1 に示す測定装置構成では、SMM カンチレバーはインピーダンスマッチング回路を介して VNA (Vector Network Analyzer)のポート 1 に接続されている。そして、インピーダンス整合状態となる複数の共振周波数において、反射が極小となり、1~18 GHz の周波数範囲において VNA により反射特性を測定することができる。基本構成の SMM は、カンチレバーチップと VNA のインピーダンスマッチングを実現するために、50 Ω のシャント抵抗を持つ半波長( $\lambda/2$ )共振器で構成されている(図 3-⑬-2-1(上))。このインピーダンスマッチング回路は、半波長共振器と広帯域 50 Ω シャント抵抗からなる市販の構成であり、VNA 測定ポートと材料表面に接触する SMM カンチレバーとの間のインピーダンス整合を実現している。

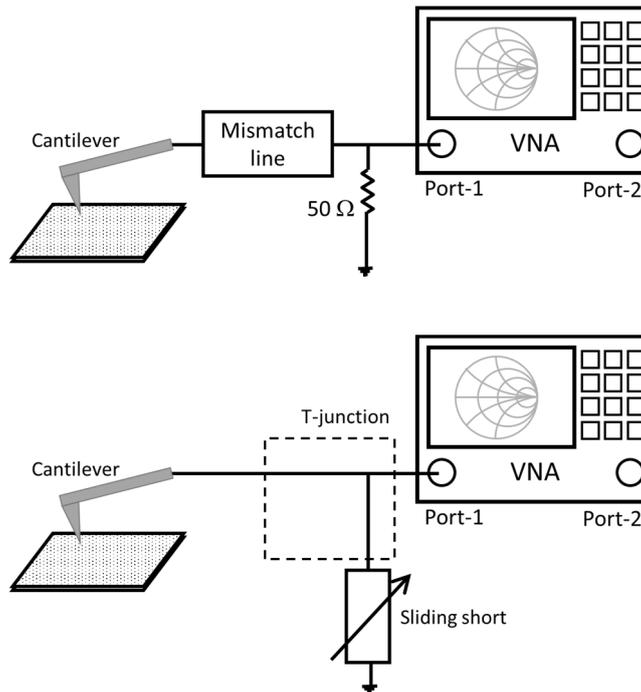


図 3-⑬-2-1 走査型マイクロ波顕微鏡の高感度化 : (上)既存品 (下)高感度型

本研究の提案方式では、整合回路としてパッシブ干渉回路(図 3-⑬-2-1(下))を SMM に搭載し、誘電体材料測定 of 信号対雑音比 (SNR) を改善することを目的としている。この干渉回路は、スライド式短絡終端器を備えた 1 ポート構成と、反射 VNA 測定用の T 分岐部により構成されている。そして、短絡終端器をスライドさせることによって、共振周波数、すなわち整合周波数点を調整することができる。この方式の特徴は、受動素子、T 接合、およびスライド短絡回路によってのみ形成される点にあり、アンプ等の受動回路を用いない点で、構造が簡単で、高安定かつ安価に実現することができる。原理としては、T 字型接合部のポート 1 に注入された信号は、スライド式短絡終端器と SMM カンチレバーに接続された 2 つのポートに分割される。分割された 2 つの信号は、短絡終端器と SMM カンチレバーとの間で干渉し、特定の周波数で共振現象(インピーダンス整合となる周波数)が発現する。この際、スライド短絡終端器を調整することで、オペレータが測定したい周波数に合わせることができる。

種々の誘電率を有する高誘電率材料(チタン酸バリウム、 $(\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x})\text{TiO}_3$ 、BSTO)を試料として、測定感度評価を行い、測定データ分布からノイズ特性を解析・評価した。また、図 3-⑬-2-2 は、約 7.5 GHz における公称値としての誘電率  $\epsilon_r = 194$  の材料表面における複素反射係数の測定結果を示す。データセットは、従来のシャント抵抗型回路および干渉回路を備えた SMM によってそれぞれ観察しており、干渉回路での反射特性の測定結果は、反射係数チャート上において非常に小さい偏差であることを確認した。これにより、干渉計回路を採用することで、測定データ分布(信号ノイズ比:SNR)のほぼ 90 % 以上の抑制を達成した(表 3-⑬-2-1)。

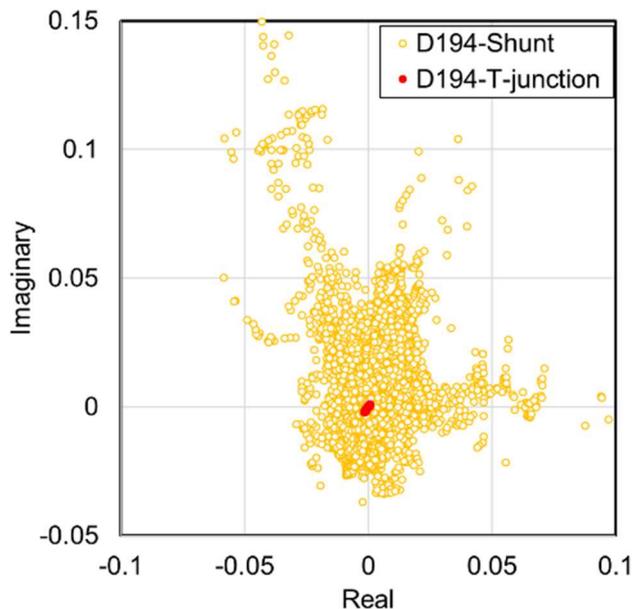


図 3-⑬-2-2 測定ばらつきの低減(精度向上)

表 3-⑬-2-1 測定時における信号/ノイズ比(SNR)の比較と改善

回路方式	実数部	虚数部
既存型	0.00530	0.01200
高感度型	0.00053	0.00065
改善幅	90.1%	94.4%

### (3) 誘電率の定量化

干渉計回路を用いた SMM による定量測定は、様々な誘電率(公称値としての 194~3800)について実証した。1.0  $\mu\text{m}$  x 1.0  $\mu\text{m}$  の領域でのすべての試料の測定は、共振周波数に近い、1.1 GHz、4.1 GHz、8.4 GHz および 16.2 GHz のいくつかの周波数ポイントで行い、図 3-⑬-2-3 に反射特性の試料表面の反射特性の平均値をプロットした。8.4GHz と 16.2GHz での測定結果は、比誘電率と反射特性の複素値の間に強い相関を確認することができた。特に、8.4 GHz での測定では、得られた反射特性データは、相関係数 ( $R^2$ ) が 0.9996 を超える相関を示しており、反射係数の虚数部 =  $-0.9998 \times$  実数部 + 0.0004 の関数で多項式フィッティングすることができる。また、16.2 GHz では、得られたデータは、相関係数 ( $R^2$ ) が 0.999 を超える相関を示しており、

反射係数の虚数部 =  $-5.4832 \times$  実数部<sup>2</sup> - 0.4595 x 実数部 - 0.00008 の関数で多項式フィッティングすることができた。この結果から、干渉回路を有する SMM では、 $\epsilon_r$  が約 100~3800 の高誘電率の特性を定量的に測定できることを示した。

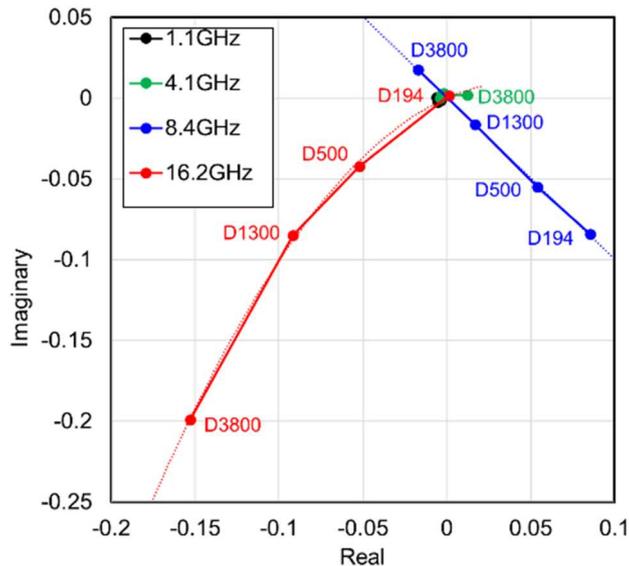


図 3-⑬-2-3 測定結果の定量化

#### (4) グラフェン電気的特性分布評価

高感度化を実現した干渉計型 SMM により、グラフェン 1.1 層の PET フィルムへ転写した膜の評価を行った(図 3-⑬-2-4)。特異的な現象として、AFM による表面形状の評価においては観測されていない、クラック状の電気的な像が観測された。電磁波測定において、クラック形状部位とその周辺では、振幅差は 0.1 程度、位相差は 1.0° 以上を観測しており、有意な差として観測している。形状に伴わない電気的な特性について、導電率の観点から解析を進める一方、その要因が材料合成、転写プロセス、保管・試料設置状況によるものか調査を進めている。

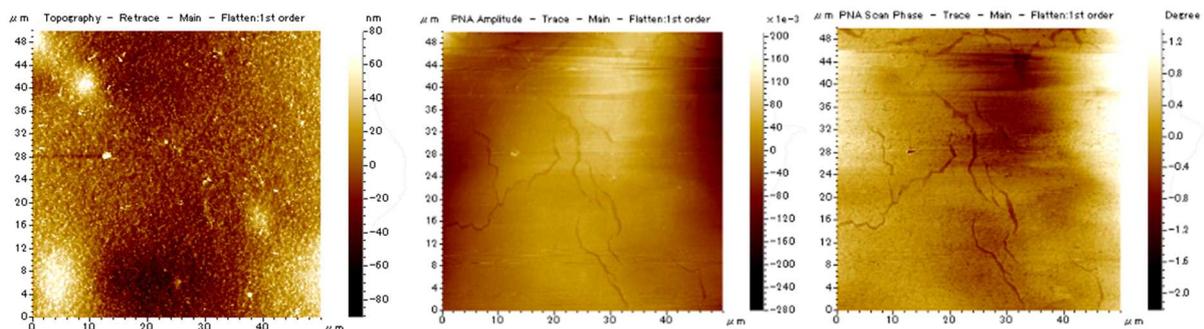


図 3-⑬-2-4 グラフェン 1.1 層転写膜の評価結果(左:形状像、中:マイクロ波位相像、右:マイクロ波位相像)

また、再委託先の九州工業大学では、CVD 合成したh-BN 薄膜の抵抗率や絶縁破壊電界など電気特性の評価を行った。プローブ法による測定でh-BN 薄膜の抵抗率を測定し、測定装置の上限である  $10^{11}\Omega\text{m}$  程度あるいはそれ以上であることを確認した。

### ⑬ ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発

#### ⑬-3 CNT 複合材料評価に関する基盤技術開発

##### ■目標

CNT 表面状態に関する導入官能基の定量的かつ空間的な分析を可能とする評価技術の開発。更に CNT 複合材料中における空間分散に関する評価技術を確立する。

##### ■研究開発の成果

###### (1) CNT 官能基の定量的/空間的な評価技術の開発

CNT 材料では、原料である CNT 粉末から様々な処理工程を経て、CNT 部材としての機能性を発現する。本開発項目では、上記処理工程で起こる CNT 表面状態の制御を目的として、処理前後での相関性を明確にする評価技術を構築することで、高機能 CNT 実用材料への展開を実現する基盤技術の開発を行う。

本項目では、事業内容⑨-3において創製された官能基処理を行ったスーパーグロス法による単層 CNT 材料を用い、CNT 表面官能基に関する定量的および空間的に可視化する技術の開発を行った。XPS/ラマン分光/赤外分光を相補的に用いることで官能基種を定量に評価する技術を確立した。更には付与官能基の空間分布評価法として、アニュラー型 EDS システムを用いることで 10 nm 以下の高い空間分解能にて軽元素イメージングすることを可能にし、空間分布を含めた官能基評価法の開発に成功した。

今後は、開発した評価法を用いて CNT 表面状態の改善/制御を行うことで、高機能性 CNT 部材創製に向けたプロセス改良を行う予定である。

###### (2) CNT 複合材中の空間分散に関する技術開発

複合材料内にてフィラーとなる CNT の分散状態は部材自体の機械強度や電気特性といったバルク特性に大きく関わる因子であり、そのため CNT 分散状態の評価法は重要な技術である。本開発項目では複合材内の CNT 分散状態を可視化する評価技術の開発を行う。

本項目では事業内容⑨-3において創製されたフッ素ゴム/スーパーグロス法単層 CNT 複合材を用いた。産総研独自の技術であるロックイン発熱解析イメージングを用いることで複合材内に内包されるの  $\mu\text{m}$  スケールの微視的な CNT 導電パスを cm スケールの巨視的な視野で可視化することを可能にした(図 3-⑬-3-1)。この技術により複合材内の CNT 分散状態が高精度に評価可能であり、バルク物性における機能発現に向けた極めて有用な結果である。

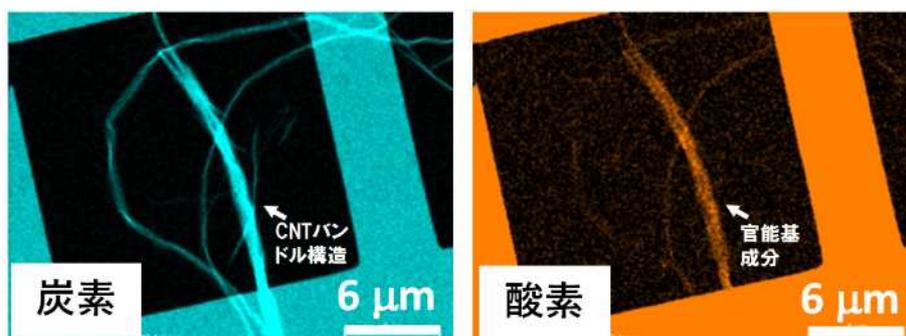


図 3-⑬-3-1 開発した CNT 官能基の高空間分解能イメージング評価技術

再委託先の京都大学では、近赤外分光イメージングによる CNT および架橋構造の可視化を検討した。この際に、近赤外分光イメージング法にてフッ素ゴム単体での評価は可能な一方で、CNT 添加時では光吸収が強く評価が難しいことが判明した。そこで全反射赤外分光 (ATR-FTIR) イメージング法を採取し、CNT 添加時でも良好なスペクトルを得られることを確認した(図 3-⑬-3-2)。CNT 濃度増加に従い、測定波長域全体での光吸収の増加を確認し、スペクトルのベースライン変動を用いることで CNT 分散状態に関するイメージングに応用できる可能性を見出した。更に、ラマンマッピング測定との摺り合わせを行うことで、ラマンでは均一に見える領域でも ATR-FTIR のベースラインに分布が生じることを見出した。この分布ムラに関する構造要因等に関しては引き続き検討を進めていく予定である。

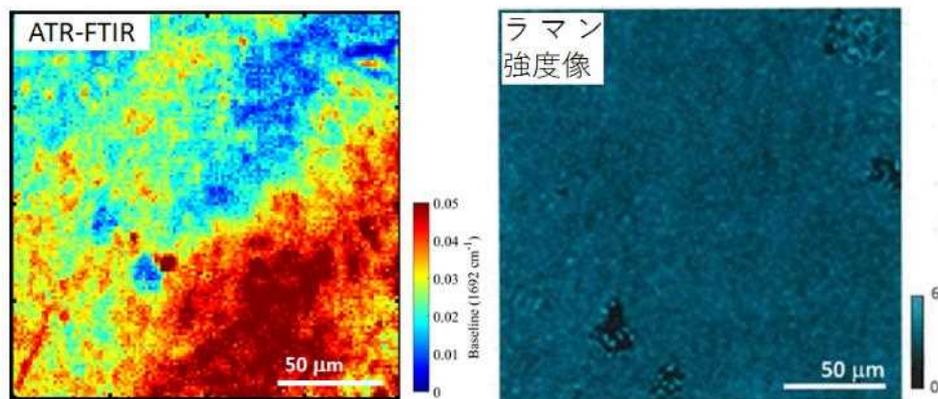


図 3-⑬-3-2 開発した CNT 複合材の分散状態イメージング評価技術

### 3.3 研究項目毎の成果 (担当：AIST、EIDEC)

本テーマはシングルナノレベルの半導体製造を目的とした技術だが、特に「ナノ物質計測技術の構築」のうち粒子追跡評価法 (Flow Particle Tracking (FPT) 法は、つくばの研究拠点である AIST、ADMAT チームのモデル材料の評価手法にも活用できることが期待されたので、研究開発項目 [3] に対し研究期間 3 年間 (平成 30 年度末まで) の研究計画を採択したものである。以下成果は上記 FPT 法以外にもプロジェクトの中で実施した内容を記載している。

#### 3.3.1 全体の目標および計画

表 3-3-1 本年度目標および達成見通し

研究開発項目	目標(平成30年度末)	成果	達成見通し
ナノ物質計測技術の構築			
液中ナノ粒子/ナノバブル計測技術開発	・ナノ材料製造領域における、ある流速をもって流動する液体の液中環境として定義される「流れ場」の中で目的外粒子計測評価法を新規に開発する。	・「流れ場」における粒子追跡評価法(Flow Particle Tracking (FPT) 法)を開発し、粒子径評価・粒子数評価・異なる材質の識別評価を同時計測可能とする手法を確立した。	○
液中異種ナノ粒子/ナノバブル計測技術開発	・フッ素樹脂パーツからの発塵評価、標準化を目的として、低屈折率材料であるフッ素樹脂粒子の高感度検出を実現するための検査標準溶液の選定・決定を行う。	・純水と比較し高屈折率液体の中で、取り扱い作業性・環境・安全等、総合的に検討し、サリチル酸メチルを検査標準溶液として選定した。またFPT法との組合せにてフッ素樹脂粒子の検出を確認した。	○
ナノ計測技術検証			
シングルナノパターンング材料(レジスト)による計測技術検証	・メタル系レジスト材料を対象とした計測技術の評価・検証を主に行う。該計測技術による露光パターンング特性の取得、レジスト物性や反応機構との相関取りへ適用、新たな材料での相関結果の検証、という評価・検証フローを通じて、材料開発期間の短縮にとって必要な高精度計	・HS-AFM等の計測技術をメタル系レジスト材料用に対応させる事で、現像過程観察が可能な事を検証できた。またこれらの計測技術をもとに、本材料の改善につながる成果が得られ(メタルレジスト向け新規現像液の適用)、パターンングとの相関取りもできた。	○
次世代レジストアウトガス計測技術開発	・次世代レジストのモデルレジストもしくはモデル膜を用い、コンタミネーション(コンタミ)形成に影響を与える各種評価条件及びその影響度を確認する。得られた結果をもとに、次世代レジスト向け高精度アウトガス計測の標準手法開発を目標とする。	・高出力EUV照射装置に次世代レジスト向けアウトガス評価機構を追加試作・導入、メタル系コンタミの発生度を複数モデルレジストにて確認した。また計測コストを低減可能な方法として、電子線+水素ラジカル照射方式を新たに提案・試作し、同様にコンタミ形成を確認、本方式の有効性まで確認した。	○
DSA精密計測技術開発	・シングルナノレベルの微細化を目指すシリコン半導体量産技術を低コストで実現できるDSA技術を早期に確立するために重要となるDSA精密計測手法を開発することを目標とする。	・時分割GI-SAXSIによる薄膜内部構造解析システム、及び高速in-situ AFMによるDSA相分離過程の精密計測システムを構築、DSA欠陥の発生・修復過程の可視化を実現した。また上記計測データを基にモデルパラメータの合わせ込みにより、DSA相分離過程の動的挙動の解析に適用可能な計算モデルを開発した。	○
ナノ欠陥検査用計測技術の開発			
ナノ欠陥検査用計測標準開発	・将来のLS微細化に必要となるEUVマスク欠陥検査技術の確立のための計測標準技術の開発を行う。	・検査装置の欠陥検出感度を定量的に評価・校正可能な欠陥検査標準マスクを作製した。作りこんだ各種パターン欠陥の形状観察・測定や、自然欠陥の評価を実施後、露光評価によるウェハ転写性の確認、両者結果の相関関係をシミュレーションを通じて取得できた。本シミュレーションを基に各種類のパターン欠陥に対する5nm世代での欠陥サイズ仕様を示した。	○

## 【研究計画（線表）】

事業項目	平成28年度				平成29年度				平成30年度			
	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期	第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期
ナノ物質計測技術の構築												
液中ナノ粒子/ナノバブル計測技術開発 液中異種ナノ粒子/ナノバブル計測技術開発	Flow Particle Tracking(FPT)法の基礎理論構築 (評価セル・光学系・解析アルゴリズムの構築)				FPT法による評価プロトコルの確立							
液中低屈折率材料(フッ素樹脂等)向けの清浄な検査標準溶液の調査・開発	部材発塵評価検査溶剤調査				パーティクル検出評価 (+溶剤低パーティクル化)							
ナノ計測技術検証												
シングルナノパターンニング材料(レジスト)による計測技術検証	レジスト材料を用いた計測技術の評価・検証/反応機構とパターンニング特性との相関取り				材料準備、検証方法の確立 相関取り方法の確立				計測技術の精度向上、相関取りの精度向上			
次世代レジストアウトガス計測技術開発	次世代アウトガス高精度計測技術				一次高精度化検討				二次高精度化検討			
DSA精密計測技術開発	DSA相分離精密計測技術、DSAガイド精密計測技術、DSAナノ欠陥計測技術の評価・検証				DSA相分離、DSAガイド計測、DSAナノ欠陥の相関実験手法の確立				DSA精密計測技術の確立			
ナノ欠陥検査用計測技術の開発												
ナノ欠陥検査用計測標準開発	プログラム欠陥マスク設計・製作				プログラム欠陥マスク露光実験 (欠陥転写性評価)				プログラム欠陥マスク設計・プログラム欠陥マスク露光実験			
	露光シミュレーション(欠陥転写性評価)											

### 3.3.2 ナノ物質計測技術の構築

#### ■ 目標

本事業では、ナノ材料製造領域における目的外粒子計測評価法を新規に開発する。具体的には現行利用されている粒子計測法である動的光散乱法や単一粒子光散乱法を凌駕する新規評価手法として、ある流速をもって流動する液体の液中環境として定義される「流れ場」における粒子追跡評価法（Flow Particle Tracking（FPT）法）を確立する。

また、半導体デバイス製造における発塵フッ素樹脂(PTFE)粒子の評価法である Flow Particle Tracking（FPT）法を用いた液中粒子測定において用いる清浄な検査標準溶液の開発によって半導体製造装置用パーツの発塵評価手法を確立し、半導体製造装置向け高純度液体材料、並びに高純度(低 PTFE 発塵)部品の製造、ひいては新規化学材料開発・それを用いた半導体デバイスの試行・歩留改善に大幅に寄与することを目標とする。さらに、メタル系パターンニング材料の反応機構の解明、DSA ミクロ相分離構造と欠陥構造の相関関係を明確化してシングルナノパターンニング材料の開発期間を大幅に短縮することに貢献する計測評価基盤技術の構築を目指す。

## ■研究開発の成果

### 1) FPT 法の確立

#### ・マイクロ流路における流れ速度分布計測法の新規開発

流れ場において、ナノ粒子のブラウン運動観察によって粒径計測を実施するには、流れ速度分布を適切に補正する必要がある。一方で通常使用されているトレーサー粒子を使用した流れ速度分布計測法は、系内にミクロンオーダーのトレーサー粒子を入れる必要があり、壁面との相互作用等を考えるとマイクロ流路を使用する測定系には適さないという問題点が存在する。そこで新規に流路に存在しているナノ粒子を利用して流速分布を計測する新規計測法開発を実施した。すなわち、新規にNPTV(Nanoparticle Tracking Velocimetry)法を開発し、ナノ粒子をトレースすることによるブラウン運動から生じる計測値の補正手法を確立することで、粒子変位のアンサンブルを計算することによって流速プロファイルを得ることが可能となった。空間に関する1次関数フィッティングにより流速プロファイルを推定し、一様な流速プロファイルを得ることに成功した。

#### ・安定した層流を形成、維持するための光学セルの設計

粒子輝点観察による粒径計測を高精度に実施するには、粒子輝点を明瞭に観察可能であること、流れ速度が精確に得られていることが必要である。そのため流路形状として湧き出し口と吸い込み口を有するフローセルを作製した。流路は奥行き方向に1mm以下の厚さを持っており、層流を形成することで再現性の高い流速分布を実現する。設計に当たり、流体シミュレーションによって流速場を計算し、流路中央部では一様な流速分布を形成することから流速分布計測が容易であり、粒径評価アルゴリズムにおける流速の補正を高精度に実施することが可能であることを確認した。本シミュレーション結果は実測結果をよく反映していることを付記する。

#### ・FPT法による粒径計測手法の確立

計測場は必ずしも対称流出はなく、非対称な流速場中においてもFPT法による粒径計測を実施することが必要となる。そこで既に開発し他NPTV法を適用したFPT法を実施することにより、流速分布の影響を補正し粒径算出を行うFPT法解析アルゴリズムの有効性の評価を行った。すなわち観察領域内部で流速が大きく異なるような状況下において、流速分布を考慮するFPT法のアルゴリズムで計測された粒径評価を実施したところ、測定時における流速分布が精確に補正され、高精度に粒径を決定できることを確認することができた。すなわち、非対称な流速場中で粒径評価を行うためには流速分布を考慮することが重要であり、FPT法のアルゴリズムが一般的な流路中での粒径評価に適していることを証明することができた。

#### ・ブロードニング補正によるFPT法粒径分布計測の高精度化

PTA/FPT法によって計測される粒径分布は、粒子ブラウン運動の影響によりブロードになることが知られている。そこでこのブロードニング効果を補正することで、高精度に粒径分布を決定する手法について検討した。開発したブロードニング補正法(Broadening Correction PTA, BC-PTA)では、粒径分布を形状パラメータと尺度パラメータを持つガンマ分布で仮定し、それら2個のパラメータを最尤推定法とベイズ推定法を組み合わせた新規方法論である。開発されたBC-PTA法について、高精度に粒径分

布を決定することが可能である AF4-MALS との評価結果を比較することで当該開発方法論の妥当性を検証することができた。

- ・ FPT 法による材料識別評価の実証

粒子のブラウン運動、光散乱強度の同時計測により FPT 法による材質識別を実施するための評価を実施した。すなわち、各観測粒子からの光散乱強度評価を行い、0 から 255 までの 256 諧調で撮像された輝点画像に対し二値化、輝点追尾した結果について、個々の粒子の追尾より求められた粒子径と平均輝度の関係を求めたところ、理論通りの材質識別能が確認され、FPT 法を用いた粒子径・材質識別の同時計測を実証することができた。

- ・ まとめ

流れ速度分布の新規計測手法 (NPTV 法)、FPT 法で計測される粒子径分布の不確かさを補正する BC-PTA 法などの基盤技術を構築することで、動的光散乱法や単一粒子光散乱法を凌駕する新規評価手法である「流れ場」における粒子追跡評価法 (Flow Particle Tracking (FPT) 法) を確立した。

なお、開発した FPT 法はプロジェクト後半 (2019 年度) より、つくば研究拠点において液中の粒子径を評価する技術として活用する。

## 2) 液中ナノ粒子/ナノバブル計測技術開発

- ・ 液中低屈折率材料(フッ素樹脂等)向けの清浄な検査標準溶液の調査・開発

半導体デバイス製造には高純度液体材料(洗浄液/有機溶剤/レジスト等)が必須であり、同材料を取扱う製造装置は配管/継手/バルブ/ポンプ等の部品で構成され、接液部に金属汚染を引き起こさないためにフッ素樹脂(PTFE)等が多用されている。しかし PTFE 粒子発塵観点からは製造歩留に影響を及ぼす。Liquid Particle Counter(LPC)、又は Flow Particle Tracking (FPT)法を用いた液中粒子測定において PTFE 粒子(屈折率:1.35)を超純水(屈折率:1.33)や IPA(屈折率:1.37)で検出する場合、Mie 光散乱理論から粒子と粒子が存在する液体の屈折率比が小さいため 100nm 以下の PTFE 粒子を感度良く検出することが原理的に困難である。今回 PTFE 粒子の液中検出感度向上が望める半導体業界向けの高屈折率検査標準液体の選定・開発を行った。1)取扱安全性、2)高屈折率液体自体に有意な光散乱や光吸収等の特性を有さないこと、3)LPC 又は FPT 等の検査装置調整/校正する標準粒子が安定して分散できること、4)フィルター等による液体の精製/清浄化が容易であること等から高屈折率液体 87 候補材料中からサリチル酸メチル(屈折率:1.537)を選定した。PTFE 粒子分散液(IPA/トルエン)を IPA/トルエン/サリチル酸メチルで更に希釈した液(PTFE 濃度 0.3%)に対して動的光散乱法にて PTFE 数平均粒径を求めた結果、IPA (屈折率:1.37)では PTFE 粒子径を計測出来ないが、トルエン又はサリチル酸メチルでは PTFE 粒子径 175nm を計測できたことから、原理的に高屈折率液体中での PTFE 粒子光散乱強度増を確認した。

PTFE分散液	PTFE濃度	希釈液体	PTFE濃度 (計算)	粘度 (cP)	屈折率	PTFE数平均粒径 (nm)
イソプロピルアルコール	20%	未(原液)	20.0%	2.0	1.3775	175
トルエン	30%	100倍IPA	0.30%	2.0	1.3775	DLS測定不可
		100倍トルエン	0.30%	0.55	1.4910	175
		100倍サリチル酸メチル	0.30%	3.0	1.5367	175

### 3) ナノ計測技術検証

#### ・シングルナノパターニング材料（レジスト）による計測技術検証

メタルナノ粒子を含有する“メタルレジスト”材料を合成・作製し、(i)先端ナノ計測技術の評価・検証、(ii)反応機構とパターニング特性との相関取りを推進した。具体的には、(i)高速原子間力顕微鏡(HS-AFM)を用いたレジスト現像過程のその場観察方法の評価・検証を行った。有機溶媒現像液を用いるメタルレジストの現像過程観察を可能にするための改良を行い、より安定な計測手法を確立した。本手法により(ii)従来の酢酸ブチルで現像している場合、メタルレジスト膜の現像挙動が膜の深さ方向に不均一であることがわかった。酢酸ブチルより極性の高い新規現像液を適用することにより、現像中の不均一性の低減に成功した(図 3-3-1)。また、新規現像液での EUV パターニング評価により、ラフネス(LWR)の改善とパターン間の残渣が低減した。一連の検討により、メタルレジストのパターニング性能が向上できることがわかった(図 3-3-2)。

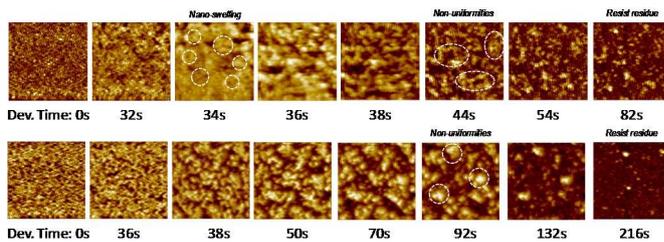


図 3-3-1 メタルレジストの現像過程(HS-AFM 観察結果)：酢酸ブチル現像液(上段)、新規現像液(下段)。

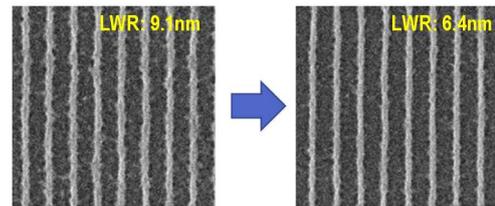


図 3-3-2 メタルレジストの EUV パターニング結果-走査型電子顕微鏡画像：酢酸ブチル(左)、新規現像液(右)現像による 20nm ライン。

#### ・次世代レジストアウトガス計測技術開発

メタル系モデル材料のアウトガス計測評価に必要とされる水素導入機構を平成 28 年度に高出力 EUV 照射装置へ導入し、レジスト性能を考慮して選定したメタル系モデル材料を用いて水素環境下におけるレジストアウトガス計測評価を実施した。得られた結果を元に高出力 EUV 照射装置におけるメタル系レジストのアウトガス計測に対する 3つの課題：

1. アウトガス律速条件の達成、
  2. アウトガス評価におけるレジスト露光量の適正化、
  3. アウトガス種の検出、
- を抽出した。上記対策として電子線方式装置と水素ラジカル発生源を組合せによるアウトガス計測手法(図 3-3-3)を提案し、実験的にこれら課題に対する有効性(図 3-3-4)を確認した。

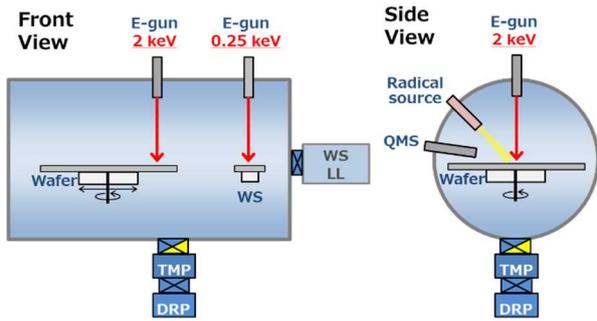


図 3-3-3 新規に提案した電子線照射と水素ラジカル発生源を用いた次世代レジスタアウトガス計測手法の構成図

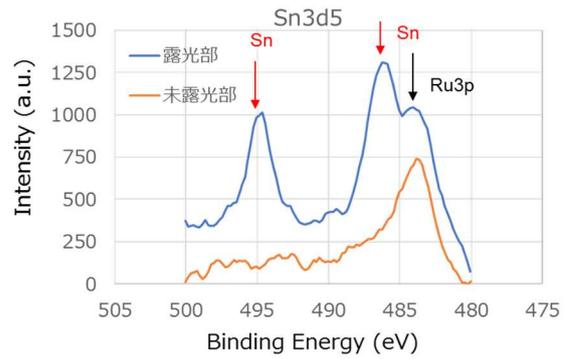


図 3-3-4 新規次世代レジスタアウトガス計測手法によるモデル材料(SnO<sub>2</sub>)の評価結果、XPS 解析により Sn コタミが検出された

・ DSA 精密計測技術開発

DSA (誘導自己組織化: Directed Self-Assembly) 材料の精密計測技術の開発に取り組んだ。特に、微細パターンのラフネス、位置ずれ、欠陥などの高精度かつ高速な計測手法を開発し、シングルナノレベルの微細化を目指すシリコン半導体量産を低コストで実現できる DSA 技術を早期に確立するために重要となる DSA 精密計測手法を開発した。また、高輝度かつ小口径の高エネルギー X 線を利用して、シングルナノレベルの高分解能な時分割 GI-SAXS (Grazing Incidence-Small Angle X-ray Scattering) 法による微細構造内部の欠陥を高速かつ高精度に解析する DSA ナノ欠陥計測手法を確立した(図 3-3-5)。更に、シングルナノレベルの微細構造の欠陥が発生する DSA 相分離過程を In-situ AFM (原子間力顕微鏡: Atomic Force Microscope) 技術により高速かつ精密計測する手法を確立した(図 3-3-6)。上記 DSA 精密計測技術により得られる結果をモデルパラメーターとして、DSA 相分離過程の簡易化モデル手法を構築し、実プロセスに近い大規模な系に対しても、欠陥構造の予測や欠陥ダイナミクスの解明を高速かつ高精度に行えるようにする DSA 精密計測支援技術を確立した。

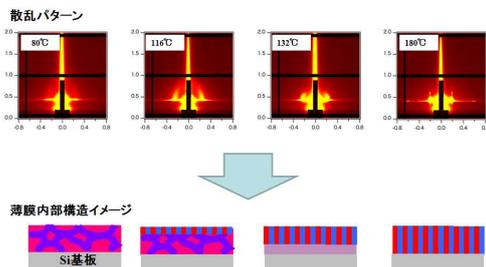


図 3-3-5 GI-SAXS 法による薄膜内部構造解析

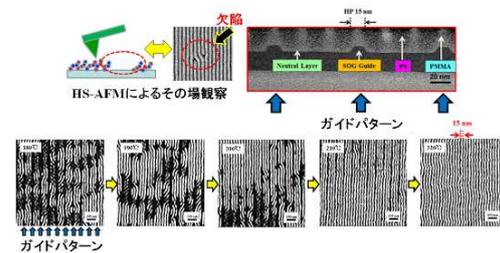


図 3-3-6 In-situ AFM による表面モルフォロジー解析

### 3.3.3 ナノ欠陥検査用計測標準技術の開発

#### ・ナノ欠陥検査用計測標準開発

評価し易いようにABI(Actinic Blank Inspection)装置にて通常よりも多くの自然欠陥が検出された EUV マスクブランクを選択し、そこにプログラムパターン欠陥を含むマスク上 64nmL/S パターン等を形成した計測標準としての Ta 吸収体構造の PDM(Programmed Defect Mask)を作製した。自然欠陥(ブランク欠陥)については ABI の欠陥信号強度(DSI)および欠陥位置、パターン欠陥については欠陥サイズをそれぞれ評価指標として、ウエハ上転写寸法  $16\text{nm} \pm 10\%$ 未満を満たす範囲を明らかにした(図 3-3-7、3-3-8)。また、ウエハ転写時のマスク 3次元効果低減に有効とされる新規構造の PDM に対する計測標準技術確立と仕様提示を目的として、多層膜掘り込み構造の PDM を作製した。

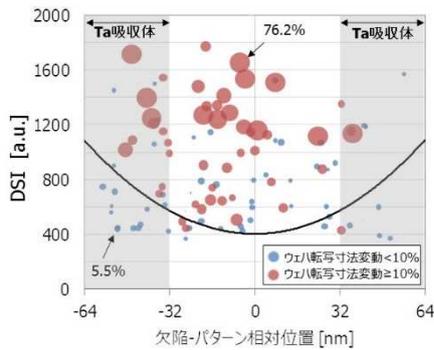


図 3-3-7 ブランク欠陥の位置・ABI 信号強度と転写性の関係

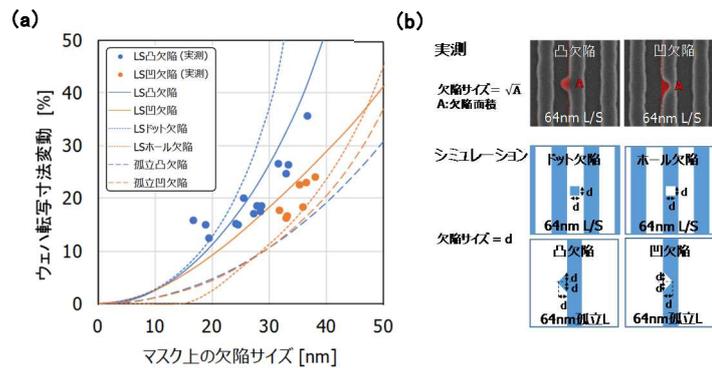


図 3-3-8 Ta 吸収体型 EUV PDM (a)マスクパターン欠陥サイズとウエハ転写寸法の関係 (b) マスクパターン欠陥 SEM 像の例とシミュレーションにおけるマスク欠陥形状モデル

## 4. 成果の実用化に向けた取り組み及び見通し

### 4.1 本プロジェクトにおける「実用化」の考え方

本プロジェクトにおける実用化とは、開発したマルチスケールシミュレータや AI 等の共通基盤技術が適切な管理の下、プロジェクト終了後も持続的にブラッシュアップ出来る運営体制を構築し、国内素材企業の材料開発支援を実施することを言う。

### 4.2 成果の実用化に向けた戦略

本プロジェクトの成果物として、

- (1)材料開発加速のための基盤技術(技術)
- (2)マルチスケール計算シミュレータ(シミュレータ)
- (3)新規開発・改良を施したプロセス、計測装置(装置)

が挙げられる。これらの成果物を集約し、産業界からの個別課題にオンデマンドで対応し、データの創出と材料開発加速を実施する拠点を構築していく。図 4-1 に成果物活用の戦略と拠点の考え方を示す。

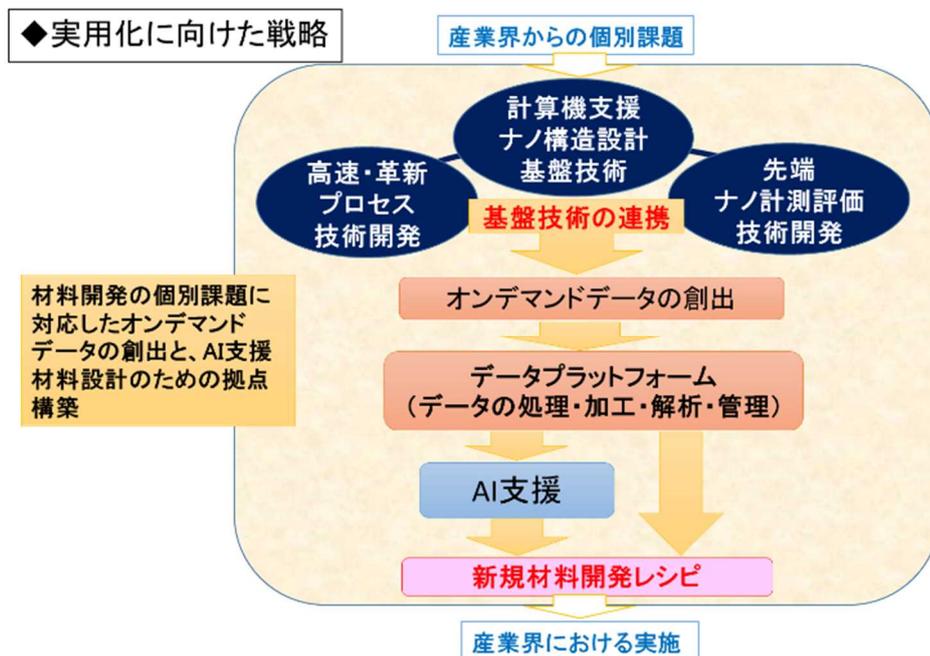


図 4-1 成果の実用化に向けた戦略の概念図

#### 4.3 成果の実用化に向けた具体的取組

本プロジェクトの成果の実用化に向けて、以下の様な具体的取組を実施する。

##### (1) 材料開発加速のための基盤技術(技術)

産総研、ADMAT、再委託先において開発された基盤技術も含めて、プロジェクト期間中より、研究成果届により報告書、プログラム、データ、ノウハウなどは知財の取り扱いと共に拠点に集約している。それら技術の蓄積を拠点においてオンデマンドで活用できるような体制を常に整えていく計画を立てる。波及効果としては、ADMAT 参加企業が、関与するプロジェクト成果を持ち帰り、プロジェクト期間あるいは終了後、タイムラグなく自社の材料設計に供することが期待される。

##### (2) マルチスケール計算シミュレータ(シミュレータ)

計算シミュレータに関して、クローズにして維持・発展させることはこれまで数多くのプロジェクトによる試みを顧みても、成功しているとは言い難いのが現状であるので、本プロジェクトの成果物であるマルチスケールシミュレータは、基本オープンソフトウェアとして、拠点、あるいはバックグラウンド IP を有する開発者により公開し、コミュニティによる維持・活用を進めていく。平成 30 年度時点で、すでに 9 種のシミュレータの開発が計画されているので、平成 30 年度終了時点で可能なものは、先行して公開し、世の中広くからフィードバックを受けることにより、後半期のシミュレータ高度化につなげて行く。

##### (3) 開発・改良を施したプロセス、計測装置(装置)

装置類に関しては、プロジェクト終了後も分散させることなく、拠点に集約することにより、相乗的で効率的な維持・管理を行っていく。またそのための組織体制を持続的に整えていく計画を立てる。

図 4-2 にプロジェクト期間中、終了後の成果物の実用化に向けた線表を示す。これらの技術、シミュレータ、装置を統合的に活用することを目的とし、産業界からアクセスする窓口として、産総研を拠点と位置付ける。

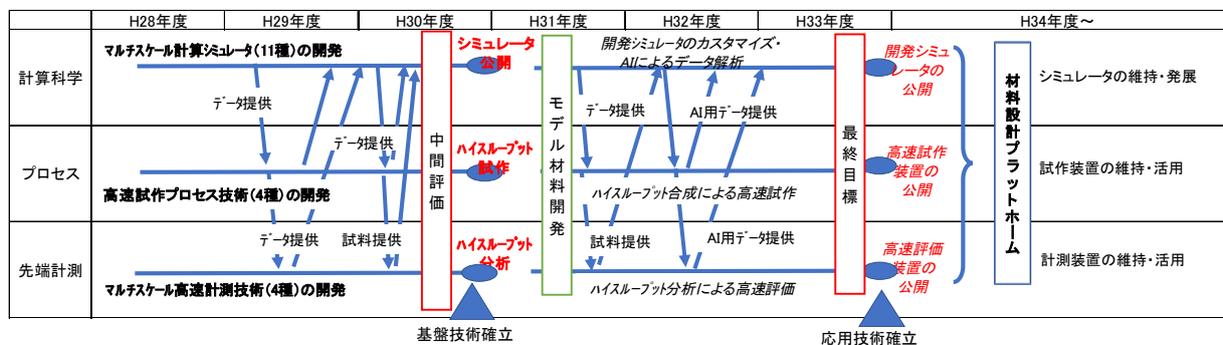


図 4-2 基盤技術の開発と成果の実用化に向けた具体的計画(第3章 図 3-1 再掲)

#### 4.4 成果の実用化の見通し

産総研を拠点とすることにより、成果の多岐にわたる要素を一括して産業界へ提供することが可能になる。この実用化の方法として画一的な組織、固定した利用形態では産業界の多様なニーズを満たすことはできないことが懸念される。そのため、現在産総研の提供する、コンソーシアム、共同研究、コンサルティング、共用設備等フレキシブルなシステムを駆使した柔軟な運用により、真の意味で産業界の求めるオンデマンドデータの創出と新規材料開発への適用が図られると期待される。図 4-3 に成果の実用化の具体的計画と見通しの概念を示す。

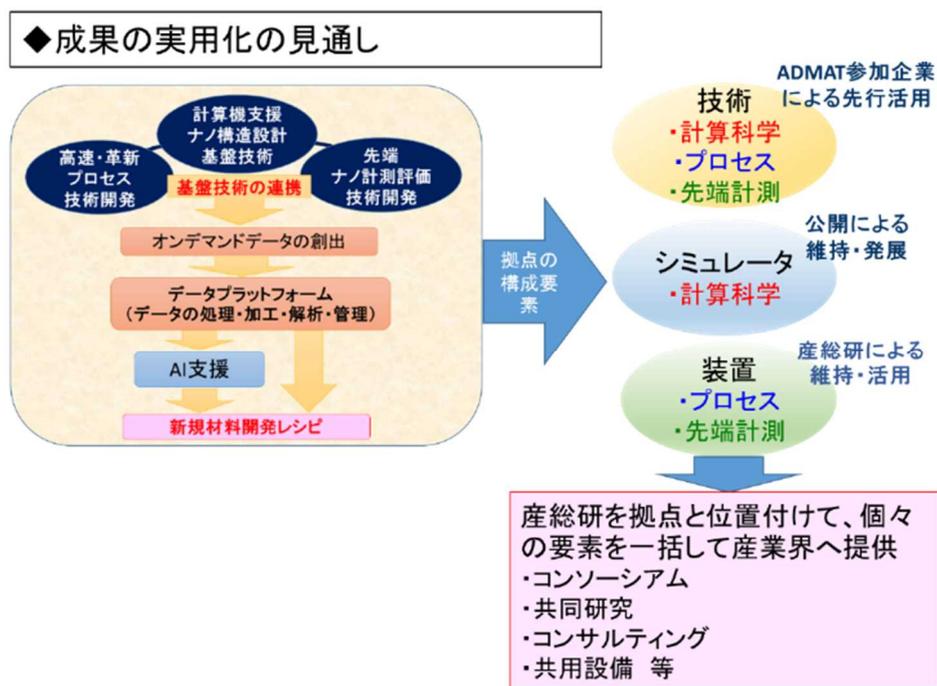


図 4-3 成果の実用化の具体的計画と見通しの概念図

## 「超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト」基本計画

材料・ナノテクノロジー部

## 1. 研究開発の目的・目標・内容

## (1) 研究開発の目的

## ①政策的な重要性

近年の最先端製品では、機能性材料の先進的な機能がもたらす付加価値によって製品全体の差別化が図られている場合が多い。従って社会要請に合致した素材機能についての戦略的ターゲットを絞り込み、素材そのものの機能が最大限発現するプロダクトイノベーションを誘発することが、我が国素材産業の提案力の高度化、ひいては産業全体の競争力強化につながる。国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構（以下「NEDO」という。）技術戦略研究センターの「平成26年度日本企業の国際競争力ポジションに関する情報収集」によると、我が国の機能性材料の開発・製造を担う部材産業は、機能性化学分野を中心に、市場規模が相対的に小さいながらも高いシェアを確保しており、これらをまとめると大きな市場を獲得している。また、日本企業の世界シェアが低い最終製品分野においても、それらを構成する部材・素材においては、我が国が中核的な地位を占めている状況。従って本分野は日本の産業競争力の源泉であり、今後も世界トップを走り続けていく必要がある。

機能性材料には大幅な省エネ性能や複合化による多種類の機能の発現といった性能向上が期待されているが、従来の機能性材料開発は、これまで蓄積してきた多くの材料の構造や物性、触媒を含む反応経路などの実験・評価データを踏まえ、“経験と勘”に基づく仮説を立てて、それを実験によって検証しながら、時間をかけて進められてきた。

本事業では「経験と勘」による非効率な開発プロセスを刷新し、高度な計算科学、高速試作・革新プロセス技術及び先端ナノ計測評価技術を駆使して、革新的な材料開発基盤技術を構築する。

科学技術イノベーション総合戦略2015（平成27年6月19日閣議決定）の「統合型材料開発システム（マテリアルインテグレーションシステム）」の中で重点的に取り組むべき課題として位置付けられている。

## ②我が国の状況

内閣府が戦略的イノベーション創造プログラム（SIP：Cross-ministerial Strategic Innovation Promotion Program）の中で岸 輝雄氏（東京大学名誉教

授、物質・材料研究機構顧問)をプログラムディレクターとして「革新的構造材料」(2014～)で推進。研究テーマの「マテリアルズインテグレーション」領域の中で構造材料を対象としてシミュレーションや数学的アプローチを活用しながら材料開発期間の一桁短縮する取り組みが行われている。

科学技術振興機構が「イノベーションハブ構築支援事業」の中で、寺倉 清之氏(物質・材料研究機構)をプロジェクトリーダーとして「情報統合型物質・材料開発イニシアティブ(MI<sup>2</sup>I: “Materials research by Information Integration Initiative)”(2015年～)を推進。重点分野として電池材料、磁性材料、伝導材料を対象に2015年7月から物質・材料科学とデータ科学とを融合させた新しい材料開発手法で、膨大なデータ群の蓄積と、ビッグデータ解析の一種である機械学習など、最先端の情報科学を駆使した解析を組み合わせ基盤の構築を図っている。

このような中、有機系の機能性材料を対象とした計算科学を活用した材料開発プロジェクトは存在せず、日本の強みである本分野の更なる産業競争力強化に向けて本プロジェクトを推進するもの。

### ③世界の取組状況

米国では、2011年6月に新たな素材開発インフラの構築を目指すプロジェクトとしてマテリアル・ゲノム・イニシアチブ(以下、MGI)をオバマ政権が打ち出した。本プロジェクトでは、最先端素材の開発から市場導入までに要する時間を半減させることを目標に掲げ、素材開発に用いられる計算機シミュレーションや実験的手法など、様々なデジタルデータを活用した統合的アプローチにより素材開発基盤の高度化を図ることを目指している。アプリケーションとしては生活向上、クリーンエネルギー、人材育成、国家安全保障の領域を設定している。ChiMaD(Center for Hierarchical Material Design)は2014年からNIST(National Institute of Standards and Technology)が運営するMGIの中核を担うプロジェクトであり、目的は革新的素材を開発設計するための次世代コンピューティングツール、データベース、実験手法の開発と産業界への導入にある。アルゴンヌ研究所、シカゴ大学コンピューティング機関等が参画している。

欧州では、欧州委員会が開始した「Horizon 2020」において、2015年から「Novel Materials Discovery(以下「NoMaD」という。)」プロジェクトがコンピュータ科学分野の「Centers of Excellence」の一つとして推進されることとなった(2016-2018)。NoMaDプロジェクトは、2013年よりドイツの研究機関や大学を中心に第一原理計算による物質材料データの収集を進めてきており、今後、材料科学のためのデータベースとビッグデータ分析ツールを開発していくことを目指している。

韓国では「第3次科学技術基本計画(2013年発表)」の中で、複数の材料技術を重点国家戦略技術に位置付けることにより、ナノテク・材料分野の研究を推進

している。2013年12月に策定した「第6次産業技術革新5か年計画（2014-2018年）」において、「素材・部材」を含む4分野の課題を「未来産業エンジン」に指定して支援している。2013年12月の「部品素材専門企業等の育成に関する特別措置法」に基づき、「第3次素材・部品発展基本計画（2013-2016）」を発表した。素材分野のフォロアーから抜け出し市場のリーダーになることを目標としている。

中国では「国家中長期科学技術発展計画（2006-2015）」の重点8分野の一つとして「素材（新材料技術・ナノ研究）」を指定した。現行の「第12次5か年計画要綱（2011-2015年）」で特定されている7つの戦略的振興産業の一つとして「新素材」を指定し、新素材産業の発展のために新材料の研究開発と産業化を推進している。

#### ④本事業のねらい

一企業で出来ない、非連続でインパクトが大きい課題を対象とした、次世代の材料開発の基盤技術開発として材料開発と計算科学の融合・連携によって革新的機能性材料の創成・開発の加速化を実現する。

具体的には主に有機系材料を対象とした従来に無い材料設計シミュレーションの開発や人工知能（以下「AI」という。）を活用した材料開発支援等を、革新的な試作プロセス開発や評価計測技術開発と共にナショナルプロジェクトとして行うことで、これまで“経験と勘”に基づいた材料開発文化に変革の兆しを誘発すると共に、競争力の高い日本の素材産業の優位性を確保する。

### （2）研究開発の目標

#### ①アウトプット目標

高機能材料・部材の研究開発支援を可能とする高度な計算科学、高速試作・革新プロセス技術、先端ナノ計測評価技術を駆使して革新的な材料開発基盤の構築を目指す。これにより従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮を目指す。

#### ②アウトカム目標

材料開発に掛かる年間エネルギー使用量を削減することにより 2030年に約136.8万kLの原油削減が期待される。また、本研究が関連産業の競争力強化に貢献することで2030年において約2兆円規模の市場獲得に資する。

#### ③アウトカム目標達成に向けての取組

プロジェクトで確立する基盤技術は、NEDOの成果報告や展示会、セミナー等で積極的に宣伝し、国内の材料開発研究者へ本基盤技術を周知することにより成果の拡大を促進する。

### (3) 研究開発の内容

以下の研究開発項目について別紙の研究開発計画に基づき研究開発を実施する。

#### 【委託事業】

研究開発項目①計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術

研究開発項目②高速試作・革新プロセス技術開発

研究開発項目③先端ナノ計測評価技術開発

本研究開発は、長期間の開発を要し高機能材料産業分野の研究開発を支援する「基盤的技術」に対して、産学官の複数事業者が互いのノウハウ等を持ちより協調して実施する事業であり、委託事業として実施する。

## 2. 研究開発の実施方式

### (1) 研究開発の実施体制

プロジェクトマネジャーにNEDO材料・ナノテクノロジー部 國谷 昌浩を任命して、プロジェクトの進行全体を企画・管理や、プロジェクトに求められる技術成果及び政策的効果を最大化させる。

NEDOは公募によって研究開発実施者を選定する。研究開発実施者は、企業や大学等の研究機関等（以下「団体」という。）のうち、原則として日本国内に研究開発拠点を有するものを対象とし、単独又は複数で研究開発に参加するものとする。ただし、国外の団体の特別の研究開発能力や研究施設等の活用又は国際標準獲得の観点から必要な場合は、当該の研究開発等に限り国外の団体と連携して実施することができるものとする。

研究開発能力を最大限に活用し、効率的かつ効果的に研究開発を推進する観点から、NEDOは研究開発責任者（プロジェクトリーダー）を選定し、各実施者はプロジェクトリーダーの下で研究開発を実施する。

本事業は、基盤技術の確立を目的としているため、研究開発実施者はNEDOと協議の上、可能な限り研究拠点を集約して、プロジェクトリーダーの指揮の下、組織的に知見・ノウハウを蓄積しながら研究開発等を推進することとする。

### (2) 研究開発の運営管理

NEDOは、研究開発全体の管理、執行に責任を負い、研究開発の進捗のほか、外部環境の変化等を適時に把握し、必要な措置を講じるものとする。運営管理は、効率的かつ効果的な方法を取り入れることとし、次に掲げる事項を実施する。

#### ① 研究開発の進捗把握・管理

NEDOは、主としてプロジェクトリーダーを通じて研究開発実施者と緊密

に連携し、研究開発の進捗状況を把握する。また、外部有識者で構成する技術検討委員会を組織し、定期的に技術的評価を受け、目標達成の見通しを常に把握することに努める。

#### ②技術分野における動向の把握・分析

NEDOは、プロジェクトで取り組む技術分野について、内外の技術開発動向、政策動向、市場動向等について調査し技術の普及方策を分析、検討する。なお、調査の効率化の観点から、本プロジェクトにおいて委託事業として実施する。

### (3) その他

本プロジェクトは非連続ナショナルプロジェクトとして取扱う。

## 3. 研究開発の実施期間

平成28年度から平成33年度の6年間

(平成28年度から平成30年度までを第1期、平成31年度から平成33年度までを第2期とする。第1期においては基盤技術の確立を目的とし、第2期においては研究進捗を見極めて、個別材料開発に資する展開フェーズとして研究を加速する。)

## 4. 評価に関する事項

NEDOは(1)事業の位置付け・必要性、(2)研究開発マネジメント、(3)研究開発成果、(4)実用化、事業化に向けた見通し及び取組の4つの評価項目について、外部有識者によるプロジェクト評価を実施する。評価の時期は、第1期終了時期を目途とした中間評価として平成30年度、事後評価を第2期終了時期の平成34年度に実施する。

なお、中間評価結果を踏まえ必要に応じて事業の加速・縮小・中止等の見直しを迅速に行う。評価の時期については、当該研究開発に係る技術動向、政策動向や当該研究開発の進捗状況等に応じて、事業実施を前倒しする等、適宜見直すものとする。

## 5. その他重要事項

### (1) 研究開発成果の取扱い

#### ① 共通基盤技術の形成に資する成果の普及

研究開発実施者は、研究成果を広範に普及するよう努めるものとする。NEDOは、研究開発実施者による研究成果の広範な普及を促進する。

#### ② 標準化施策等との連携

得られた成果については、知的基盤整備又は標準化等との連携を図ることとし、開発する計測技術等の標準案の提案等を構築する出口戦略に照らし合わせて戦略的かつ積極的に実施する。

③ 知的財産権の帰属、管理等取扱い

研究開発成果に関わる知的財産権については、「国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 新エネルギー・産業技術業務方法書」第25条の規定等に基づき、原則として、全て委託先に帰属させることとする。なお、共通基盤技術の開発段階から、事業化を見据えた出口戦略（データ管理を含む）を構築し、適切な知財管理を実施する。

④ 知財マネジメント

「NEDOプロジェクトにおける知財マネジメント基本方針」を適用する。

⑤ 人材育成・要素研究等

研究開発成果の最大化や周辺要素研究の加速を図るために本事業に関連する人材育成や要素研究等を実施する。

(2) 基本計画の見直し

NEDOは、当該研究開発の進捗状況及びその評価結果、社会・経済的状況、国内外の研究開発動向、政策動向、研究開発費の確保状況等、プロジェクト内外の情勢変化を総合的に勘案し、必要に応じて目標達成に向けた改善策を検討し、達成目標、実施期間、実施体制等、プロジェクト基本計画を見直す等の対応を行う。

(3) 根拠法

本プロジェクトは、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構法第15条第1号の二及び9号に基づき実施する。

6. 基本計画の改訂履歴

(1) 平成28年 3月、制定

(2) 平成29年 3月、「非連続ナショナルプロジェクト」の選定を受け、文言を追記等

## (別紙1) 研究開発計画

### 研究開発項目①計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術

#### 1. 研究開発の必要性

素材機能を最大限に発現し豊かな社会に貢献するプロダクトイノベーションの早期実現には、従来の「経験と勘」に基づいた材料開発ではなく、近年飛躍的に進歩している高度な計算科学をベースとした機能と構造の予測を材料開発に適用することが重要。素材産業分野は現時点では日本企業に優位性があるが、アメリカの MGI など海外においても材料開発を強化するプロジェクトが立ち上がっている状況であり、早期に高付加価値な材料を市場へ提供する手段としての基盤技術を開発し、競争力の高い日本の素材産業の優位性を確保していく。

#### 2. 研究開発の具体的内容

量子力学、粗視化分子動力学、有限要素法などを活用してナノスケールからマクロスケールまでの以下に示す材料設計を信頼性高く予測可能なマルチスケールシミュレーション手法を開発する。

- 1) 有機系材料の電子デバイス等への応用を想定したヘテロ接合構造と電子・熱・イオン等の挙動の相関をシミュレーションするキャリア輸送設計
- 2) 機能性高分子材料への応用を想定したコンポジット素材の相分離、微粒子分散、ナノ空孔等を最適に制御し、相反する機能（光学特性/断熱特性や力学特性/誘電特性等）の両立をシミュレーションする相反機能両立材料設計
- 3) ハイスループットな有機材料合成への応用を想定した触媒の反応過程の網羅的な探索技術と反応速度計算、触媒-流体界面設計を一連でシミュレーションするリアクター反応設計

等

なお開発するシミュレーション手法は上記1) 2) 3)の課題間の連携を考慮し、材料開発の試作回数・開発期間短縮に資するツールとして統一感のとれたものを開発する。

また、国内の他の研究開発の動き・成果と連携してAI（機械学習やデータマイニング等）を活用した材料探索手法を開発する。

#### 3. 達成目標

##### 【中間目標】

対象となる機能を構造、組成等から導き出せる新規のマルチスケール計算シミュレータを構築する。

##### 【最終目標】

構築した新規マルチスケール計算シミュレータを活用する事により、AI（機械学習

やデータマイニング等) を活用した材料探索手法を確立する。これにより従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮に貢献する。

また、プロジェクト終了後の開発したマルチスケールシミュレータや AI 等の共通基盤技術の管理・運営体制の計画を示す。

## 研究開発項目②高速試作・革新プロセス技術開発

### 1. 研究開発の必要性

研究開発項目①「計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術」の着実な実施にはシミュレーションにより予測されたサンプルを試作・評価し、シミュレーションの結果と照合することが重要である。一方、シミュレーション結果の中には従来試作が難しい条件等が最適解となる場合があるため、多様なサンプルを自在に試作可能とするプロセス開発の基盤構築が必要である。

### 2. 研究開発の具体的内容

研究開発項目①「計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術」のシミュレーション手法の高精度化と AI を活用した材料開発のために、組成や反応場等の様々なプロセス条件パラメータを制御して設計通りのサンプルを自在に試作する以下の高精度なサンプル作製技術の開発とその高速化技術を開発する。

- 1) 研究開発項目①の 1) に対応したサンプル作製のために、接合層の層間距離制御、傾斜機能制御等の技術を確立し、様々な界面を自在に制御して多層ヘテロ界面を作製する精密積層プロセス技術等の基盤を構築する。
- 2) 研究開発項目①の 2) に対応したサンプル作製のために、原料種、組成比、温度、圧力等の条件を自在に制御して複雑なコンポジット材料の構造と機能発現の相関を評価可能とするサンプルの作製手法等の基盤を構築する。
- 3) 研究開発項目①の 3) に対応したサンプル作製のために、連続で反応を精密に制御可能なフローリアクタープロセス技術等の基盤を構築する。

等

### 3. 達成目標

#### 【中間目標】

研究開発項目①「計算支援次世代ナノ構造設計基盤技術」で開発するシミュレータの高精度化に貢献するために、シミュレーション結果に対応するサンプルを精密に作製可能なプロセス手法を確立する。

#### 【最終目標】

中間目標までに開発したプロセス手法について高速化を図り、従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮に貢献する。

## 研究開発項目③先端ナノ計測評価技術開発

### 1. 研究開発の必要性

本事業の特徴である計算-試作-評価のサイクルの高速化のためには、試作したサンプルの構造や機能を短時間に十分な精度で、可能な限り“非破壊”又は“In situ（実環境や動作中）”で評価することが重要である。また、新規計測手法で従来計測手法では獲得しえなかった未開拓データが獲得可能となるため、新発見による材料開発の更なる高度化や開発期間の高速化を促す可能性があり重要な開発要素である。

### 2. 研究開発の具体的内容

研究開発項目①「計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術」のシミュレーション手法の高精度化と AI を活用した材料開発に必要な評価データを提供するために、研究開発項目②「高速試作・革新プロセス技術開発」で試作したサンプル等を“非破壊”又は“In situ”で構造評価・機能評価を可能とする以下の計測装置・手法の開発を行う。

- 1) 研究開発項目②の 1) 等で作製したサンプルを評価するために、非破壊で特定の界面の分子の化学構造、電子状態等の情報を得る計測技術等を構築する。
- 2) 研究開発項目②の 2) 等で作製したサンプルを評価するために、非破壊でシングル nm レベルの細孔構造の計測技術やサブ  $\mu\text{m}$  レベルで三次元の構造や組成分析を同時に可能とする計測技術等を構築する。
- 3) 研究開発項目②の 3) 等で作製したサンプルを評価するために、反応器内の触媒の固体表面状態を連続、高感度、高速で計測する技術等を構築する。  
等

### 3. 達成目標

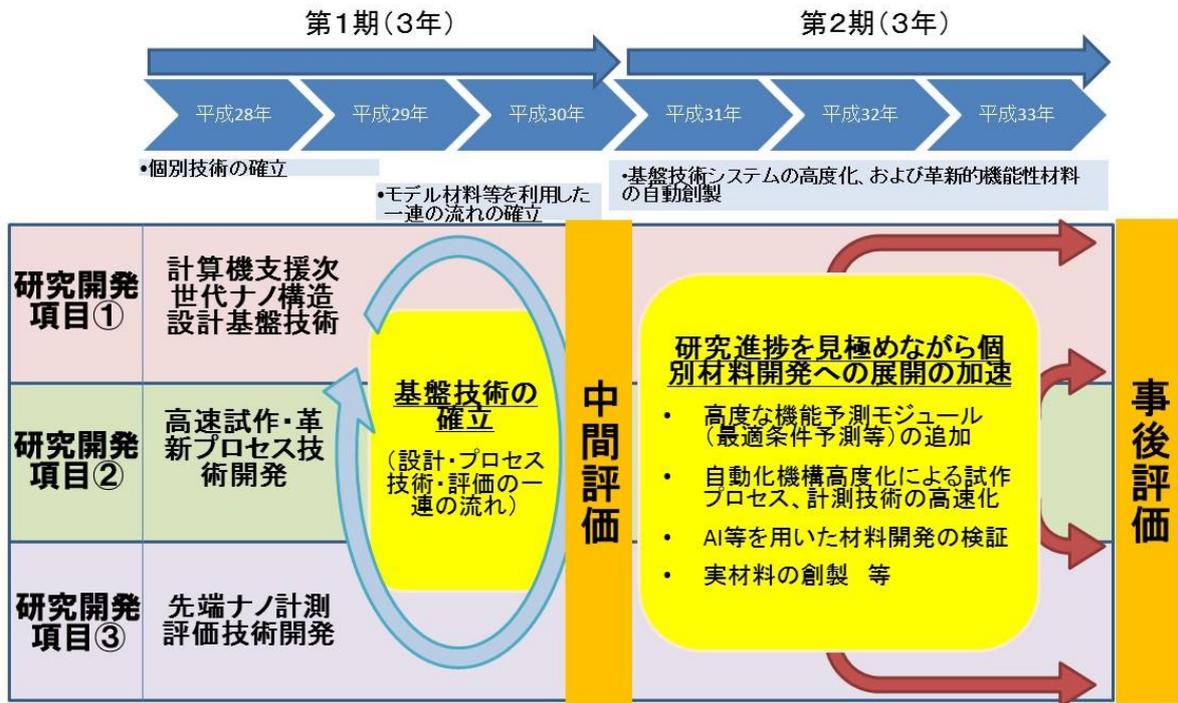
#### 【中間目標】

研究開発項目①「計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術」のシミュレーションの高精度化に必要な計測手法としてし、研究開発項目②「高速試作・革新プロセス技術開発」で試作されるサンプル等を“非破壊”又は“In situ”で評価を可能とする計測手法を確立する。

#### 【最終目標】

中間目標までに開発した計測手法を汎用化するとともに、計測時間の高速化等の手法で従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 の短縮に貢献する。

(別紙2) 研究開発スケジュール



研究開発事業に係る技術評価書(事前評価) (経済産業省)

事業名	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト			推進課室名	研究開発課、化学課、非鉄金属課、製造産業技術戦略室		
事業開始年度	平成28年度	事業終了(予定)年度	平成33年度	主管課室名	研究開発課		
事業の目的	機能性材料は社会のあらゆる分野で活用され、材料の工夫による圧倒的な省エネ性能の発現、更に単一機能改善による省エネ性能の向上に留まらない、複合化による多種類の機能の発現、といった性能向上が期待されている。従来の機能性材料開発は、基本的に“経験と勘”に基づく仮説を立てて、それを実験によって検証しながら進められてきた。本事業ではこれまでの開発プロセスを刷新するため、高度な計算科学、高速試作・革新プロセス技術及び先端計測評価技術を駆使して、革新的な材料開発基盤技術を構築する。また、革新的な機能性材料の創製とその開発期間の劇的な短縮(試作回数・開発期間を1/20以下)を目指す。						
事業概要	別紙記載のとおり。						
平成28年度概算要求額	1950 (百万円)						
成果目標(アウトカム)	成果指標				単位	目標最終年度42年度	
	開発した材料開発プロセス基盤技術の利用による省エネ効果(原油換算)			目標値	万kL/年	137	
活動指標(アウトプット)	活動指標				単位	28年度活動見込	
	開発に取り組む(共通基盤および応用)技術の数			当初見込み	項目	3	
事業所管部局(推進課、主管課)による自己点検・改善状況							
	項目			評価	評価に関する説明		
国費投入の必要性	事業の目的は国民や社会のニーズを的確に反映しているか。			○	本事業の推進により、我が国及び世界の重要課題であるエネルギー・資源問題の解決に大きく寄与することが期待される。		
	地方自治体、民間等に委ねることができない事業なのか。			○	産学官連携による中長期的な研究開発が必須であることから、国が取り組むべき事業である。		
	政策目的の達成手段として必要かつ適切な事業か。政策体系の中で優先度の高い事業か。			○	材料開発と計算科学の融合により、エネルギー・資源問題の解決に資する高機能性材料の開発加速化を推進する必要がある。		
事業の効率性	競争性が確保されているなど支出先の選定は妥当か。			○	本事業は、技術課題をいくつか設定した後、公募により事業者を募集し、外部有識者による採択審査委員会における厳正な審査を経て事業者を決定する。		
	受益者との負担関係は妥当であるか。			○	取り組む技術開発フェーズに応じて、委託・補助のスキームを取り入れる予定。		
	単位当たりコスト等の水準は妥当か。			○	本研究開発後に順次社会実装されていくものと推定して設定している。		
	資金の流れの中間段階での支出は合理的なものとなっているか。			-			
	費目・使途が事業目的に即し真に必要なものに限定されているか。			-			
	不用率が大きい場合、その理由は妥当か。(理由を右に記載)			-			
	その他コスト削減や効率化に向けた工夫は行われているか			-			
事業の有効性	成果実績は成果目標に見合ったものとなっているか			-			
	事業実施に当たって他の手段・方法等が考えられる場合、それと比較してより効果的あるいは低コストで実施できているか。			○	外部有識者会議等の実施により、他の方法等も含めた複眼的な検討を行う予定。		
	活動実績は見込みに見合ったものであるか。			-			
	整備された施設や成果物は十分に活用されているか。			-			
関連事業	関連する事業がある場合、他部局・他府省等と適切な役割分担を行っているか。(役割分担の具体的な内容を各事業の右に記載)						
	所管府省・部局名		事業番号	事業名			

点検・改善結果	点検結果	エネルギー・資源問題の解決に大きく貢献することが期待され、国費投入の必要性がある。
	改善の方向性	—

#### 外部有識者(産業構造審議会評価WG)の所見【技術評価】

＜研究開発内容及び事業アウトプットの妥当性／研究開発の実施・マネジメント体制等の妥当性＞  
 ・機能性材料の試作回数・開発期間を1/20以下にする目標について、検証方法や管理体制などを具体的に検討して進めること。

＜研究開発の実施・マネジメント体制等の妥当性＞  
 ・ステージゲートを真ん中の3年経過時に設定しているが、もう少し高頻度で事業の進捗状況を管理していくこと。  
 ・事業の成果が出てきた際の、成果の導入先や受入方法など、事前に検討しておくこと。  
 ・本事業でのデータベース使用に関する参画者の知財の取扱いについて、事前に検討しておくこと。

#### 外部有識者(産業構造審議会評価WG)の所見を踏まえた改善点等

＜研究開発内容及び事業アウトプットの妥当性／研究開発の実施・マネジメント体制等の妥当性＞  
 ・研究開発全体をみるトップマネジメントとして、プロジェクトガバナンスボードを設置し、PDCAサイクルを回しながら研究開発の検証や管理を行い、機能性材料の試作回数・開発期間を1/20以下にする。

＜研究開発の実施・マネジメント体制等の妥当性＞  
 ・PM(プロジェクトマネージャー)制度を活用し、PM自身が能動的に事業の進捗を随時確認し、管理する。  
 ・研究開始に先立ち、各開発項目の技術課題を企業との対話を重ねて深掘り整理しその上でそれらの技術・知財状況を分析し、研究開発計画・出口戦略を構築する。基本的な出口戦略の一つである、本事業の成果の実用化への展開を幅広く行うため、産学官オープンイノベーション体制を構築する。  
 ・知財の取扱いに関しては、研究開発やその成果の実用化にむけた多岐にわたる活動を容易にすべく、適切な形で拠点に集約する。また素材産業やユーザー企業はじめ内外の供給者／需要者を幅広く巻き込んだ知財戦略を構築する。

# 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト

## 平成28年度概算要求額 19.5億円 (新規)

産業技術環境局 研究開発課  
03-3501-9221  
製造産業局 化学課、非鉄金屬課、  
製造産業技術戦略室  
03-3501-1737, 1794, 0596

### 事業の内容

#### 事業目的・概要

- 機能性材料は社会のあらゆる分野で活用されていますが、材料の工夫による圧倒的な省エネ性能の発現、更に単一機能改善による省エネ性能の向上に留まらない、複合化による多種類の機能の発現、といった性能向上が期待されています。
- 従来の機能性材料開発は、基本的に、これまで蓄積してきた多くの材料の構造や物性、触媒を含む反応経路などの実験・評価データを踏まえ、“経験と勘”に基づき仮説を立てて、それを実験によって検証しながら、時間をかけて進められてきました。
- 本事業ではこれまでの開発プロセスを刷新するため、高度な計算科学、高速試作・革新プロセス技術及び先端計測評価技術を駆使して、革新的な材料開発基盤技術を構築し、革新的な機能性材料の創製とその開発期間の劇的な短縮（試作回数・開発期間を1/20）を目指します。

#### 成果目標

- 平成28年度から平成33年度までの6年間の事業であり、平成42年において、開発期間の劇的な短縮（試作回数・開発期間を1/20）による省エネ(原油約137万kL)及び革新的な機能性材料の導入による省エネ(原油約156万kL)を目指します。

#### 条件 (対象者、対象行為、補助率等)



### 事業イメージ

- 産学官連携による集中研体制で進めることにより、本事業の研究開発期間の大幅な短縮を図ります。

#### 計算科学 (AI等)



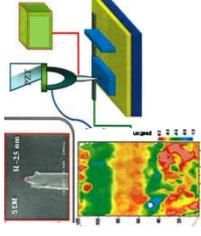
シミュレーション設計

#### プロセス技術



高速試作

#### 先端計測技術



先端ナノ計測

**基盤技術の確立**  
(設計・プロセス技術・評価  
技術等の一連の流れ)

### システムの高度化

- ・システムとして実用化に耐える高度化
- ・個別実材料開発、実課題解決への展開の加速



### 材料創製期間の劇的な短縮



(例)

### 革新的機能性材料の創製

「『超先端材料超高速開発基盤技術』基本計画（案）」  
 に対するパブリックコメント募集の結果について

平成28年3月24日  
 NEDO  
 電子・材料・ナノテクノロジー部

NEDO POSTIにおいて標記基本計画（案）に対するパブリックコメントの募集を行いました結果をご報告いたします。  
 貴重なご意見をいただき、ありがとうございます。

1. パブリックコメント募集期間  
 平成28年2月25日～平成28年3月9日
2. パブリックコメント投稿数＜有効のもの＞  
 計4件
3. パブリックコメントの内容とそれに対する考え方

ご意見の概要	ご意見に対する考え方	基本計画・技術開発課題への 反映
1. 研究開発の目的 (3) 研究開発の内容 [意見1] (2件) 従来の取組では到達できなかったレベルまで技術レベルを上げ げるために、計算-プロセス-計測が一連の流れとして連携を強化 できるようなプロジェクト構成になっているのは評価できる。従 来の単一企業のみ線の細いやり方では、米国のマテリアルゲノ ム等の取り組みに太刀打ちできない。ぜひ、「知」を集積してプロ ジェクトを成功させて頂きたい。 本プロジェクトが志向する共通基盤技術としての新たなチャ レンジへの期待は非常に大きい。	[考え方と対応] 本プロジェクトは、前半3年間は基盤技術開発、 後半3年間は進捗を確認しつつ個別材料開発へ の展開を加速していく予定で、「知」を集積す るために研究拠点の構築を前提としておりま す。計算-プロセス-計測が一連の流れで研究開 発が推進出来るようマネジメントしていきま す。	[反映の有無と反映内容] 特になし。

<p>[意見2] (1件)</p> <p>機能性化学品の分野では、競争力を維持する、あるいは高めるためには、今後、より精密な配合設計が必要になると見込まれる。計算化学は実際の複雑系を対象にして、計算化学活用のメリットを明確にして頂きたい。AIや数理的な視点で最適配合を予測する手法の確立も重要で、基盤研究を進めるべきと考える。</p>	<p>[考え方と対応]</p> <p>本事業の狙いは、材料開発と計算科学の融合・連携によって革新的機能性材料の創成・開発の加速化することであり、本プロジェクトの研究成果を発信することでユーザー（材料開発者）にメリットを明確に示していきたいと考えています。複合材料の配合から物性を予測する方法は、現状の基本計画、開発内容として排除していませんので、提案の一部として歓迎したいと考えます。</p>	<p>[反映の有無と反映内容]</p> <p>特になし。</p>
<p>[意見3] (1件)</p> <p>深層学習を如何に取り込めるかが課題で、コンソーシアム内の連携を取りながら取り組んで頂きたい。          プロセス技術におけるプロセスは、今の化学産業を根本から変えよう。プロセス革新を期待したい。          解析技術は、プロセスの中で何がおきているのかわかること、実際の使用段階で何がおきているのかわかること、だと考えられるそのような現象のナノ評価技術を構築して頂きたい。</p>	<p>[考え方と対応]</p> <p>深層学習（AIの活用）については、主としてプロジェクトの後半3年がメインであるものの、近年のR&amp;Dにおける重要キーワードであるため、コンソーシアム内のみならず、国内外の他の事業等と有効な連携を検討したいと考えます。フロープロセス、“Insitu”計測技術については基本計画内で設定済みです。</p>	<p>[反映の有無と反映内容]</p> <p>特になし。</p>

以上



技術戦略研究センターレポート

# TSC Foresight

Vol. **2**

## 機能性材料分野の 技術戦略策定に向けて

2015年10月

<b>1</b> 章	はじめに	2
<b>2</b> 章	機能性材料技術の置かれた状況	4
2-1	機能性材料産業の動向	4
2-2	機能性フィルムの市場動向	6
2-3	機能性フィルムの技術動向	8
2-4	諸外国の研究開発政策の状況	12
<b>3</b> 章	計算科学を活用した機能性材料開発分野の技術課題	13
3-1	計算科学	13
3-2	数理・情報科学	16
3-3	計測評価・試作技術開発	18
<b>4</b> 章	おわりに	19

TSCとはTechnology Strategy Center（技術戦略研究センター）の略称です。

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## 1章 はじめに

近年の最先端製品では、機能性材料の先進的な機能がもたらす付加価値によって、製品全体の差別化が図られている場合が多い。したがって、社会要請に合致した素材機能についての戦略的ターゲットを絞り込み、素材そのものの機能が最大限発現するプロダクトイ

ノベーションを誘発することが、我が国素材産業の提案力の高度化、ひいては産業全体の競争力強化につながる。

我が国の機能性材料の開発・製造を担う部素材産業は、機能性化学分野を中心に、市場規模が相対的に小さいながらも高いシェアを確保しており、これらをまとめると面的に大きな市場を獲得している。また、日本企業の世界シェアが低下した製品分野であっても、それらを構成する部素材においては、我が国が中核的な地位を占めている(図1)。

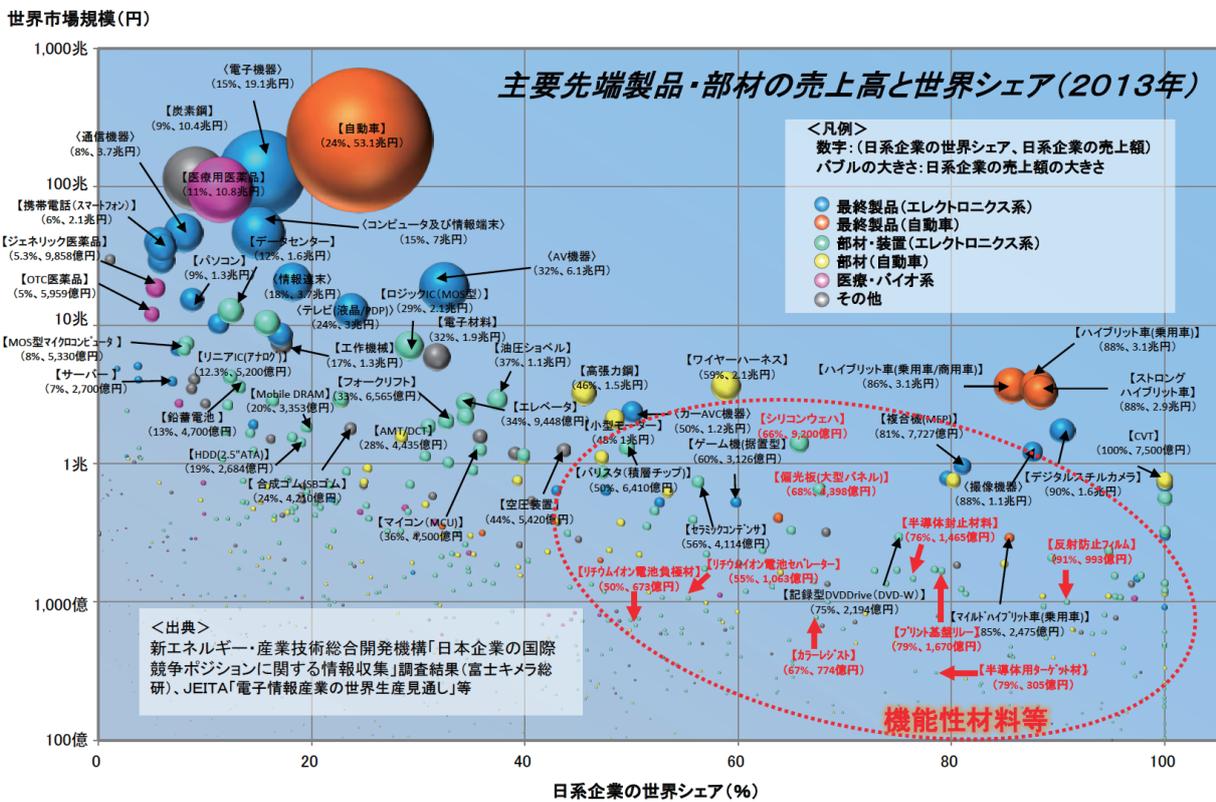


図1 主要製品・部材の市場規模と日本企業の世界シェア(2013年)  
 出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集(NEDO, 2015)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

例えば、液晶ディスプレイの製品の日本企業シェアは11%にとどまるが、特定の振動方向の光だけを通過させる部材である偏光板は、日東電工や住友化学などの日本企業が58%のシェア、更に素材となると、偏光板保護フィルムで100%、カラーレジストで71%など、極めて高いシェアを占める(図2)。

このような日本企業が強みとする機能性材料分野の強化を通じて、我が国の素材産業を世界と戦える産業として、より一層強化していくことが期待される。また、これら素材産業の優位性を保つためにも、

革新的機能の発現サイクルを止めることなく、機能性材料の技術革新を遂げていく必要がある。

なお、革新的な機能性材料の開発においては、従来型の実験的手法を中心とする材料開発と計算科学との融合・連携によって機能性材料開発の高度化・加速化を実現することが効果的であるため、計算科学の戦略的な活用による革新材料開発手法の獲得に向けた取組を推進することが望ましい。

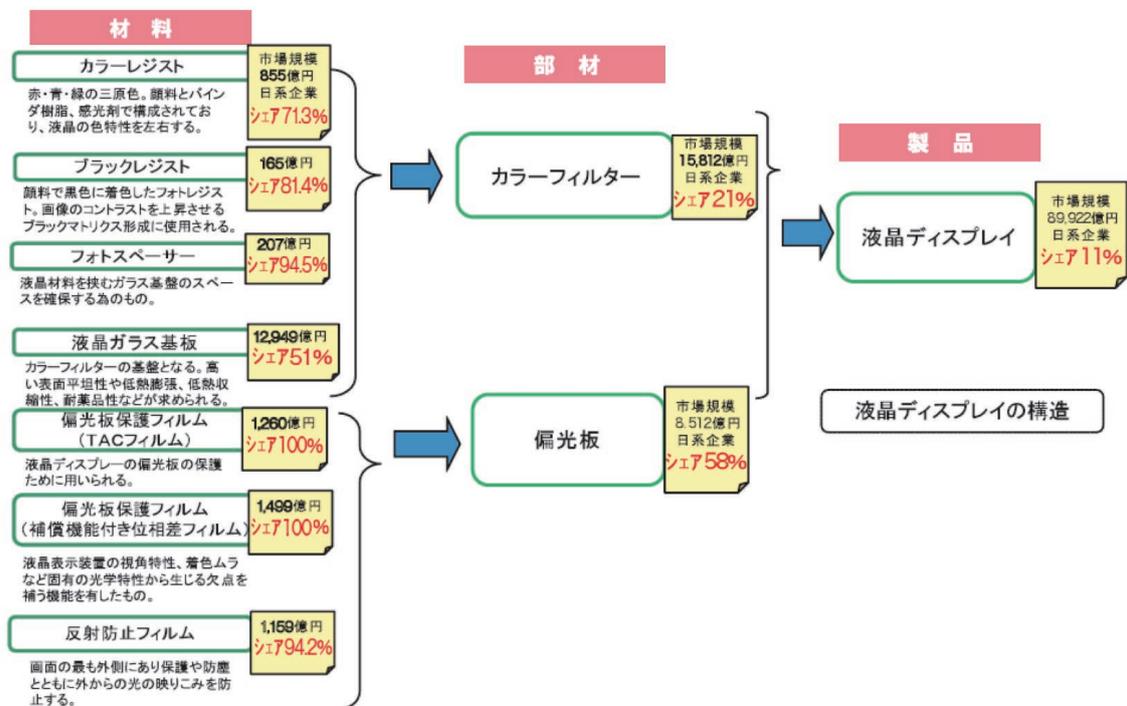


図2 液晶ディスプレイの例  
出所: ものづくり白書(経済産業省, 2012)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## 2章

### 機能性材料技術の置かれた状況

#### 2-1

#### -1 機能性材料産業の動向

##### (1) 欧米

欧米企業は汎用事業と医薬品事業を大幅に売却し、機能性化学品の強化とともに、アグリ(種子、農業)、バイオ、バイオ樹脂、ニュートリション、パーソナルケア・コンシューマー分野に注力している傾向が強い(図3)。



図3 欧米大手化学企業の事業分野選択事例

出所: 各社公表資料よりみずほ銀行産業調査部作成(2015年1月時点調査)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## (2) 国内

日本企業においては、大型買収も売却もない安定事業が多く、また各社が幅広い事業分野を選択している。従来からの強みはエレクトロニクスであるが、近年は、高性能繊維、自動車、メディカル、ヘルスケア分野に注力している傾向が強い(図4)。



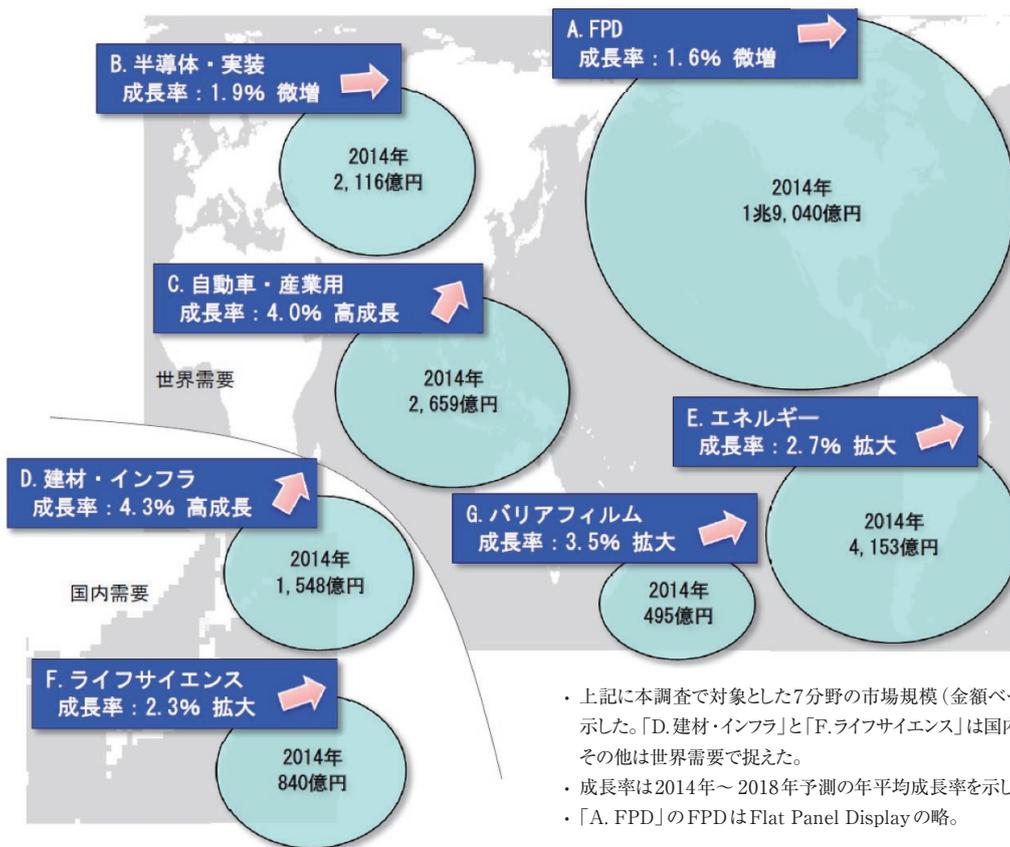
図4 国内大手化学企業の事業分野選択事例  
出所: 各社公表資料よりみずほ銀行産業調査部作成(2015年1月時点調査)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

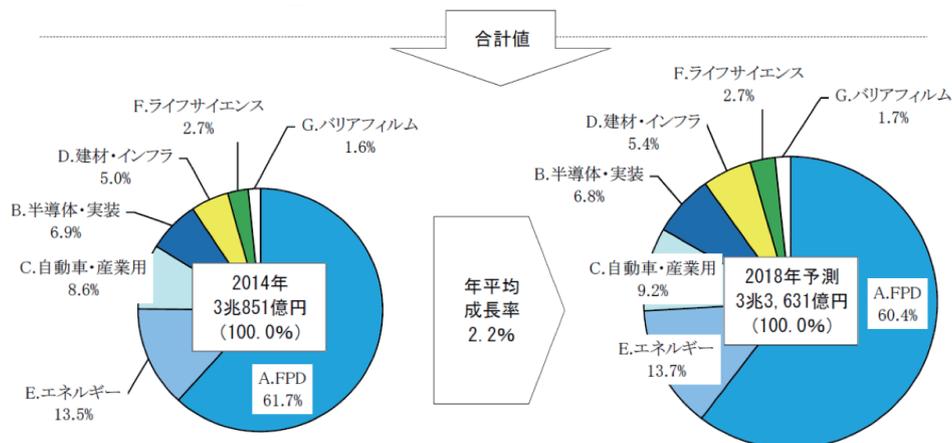
## 2-2 機能性フィルムの市場動向

ここでは、機能性材料のうち、材料の種類の多さ、成形自由度の高さ、後加工により様々な機能付与が可能といった特徴を持ち、幅広い分野で高機能化に繋がる2次元形態材料である機能性フィルムを対象に、その市場動向について調査・分析を行った。

2014年現在、機能性フィルムは3兆円を超える市場があり、今後も引き続き拡大する見通しである。特に自動車・産業用途、建材・インフラ用途の機能性フィルムは、高い成長率となることが見込まれている(図5)。



- ・ 上記に本調査で対象とした7分野の市場規模(金額ベース)を示した。「D.建材・インフラ」と「F.ライフサイエンス」は国内需要、その他は世界需要で捉えた。
- ・ 成長率は2014年～2018年予測の年平均成長率を示した。
- ・ 「A. FPD」のFPDはFlat Panel Displayの略。



※上記円グラフは本調査で対象とした7分野の合計値

図5 機能性フィルムの市場動向

出所:「2015年版 機能性高分子フィルムの現状と将来展望」(富士キメラ総研, 2015)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

様々な機能性フィルムにおいて、各機能性フィルムの世界シェア（販売量ベース）上位3社から日本企業を主要日本メーカーとして抽出し、それらのシェアを合算した。図6に示すように、主要日本メーカーが50%

以上のシェアを獲得している機能性フィルムの品種は全体の約7割を占めている。

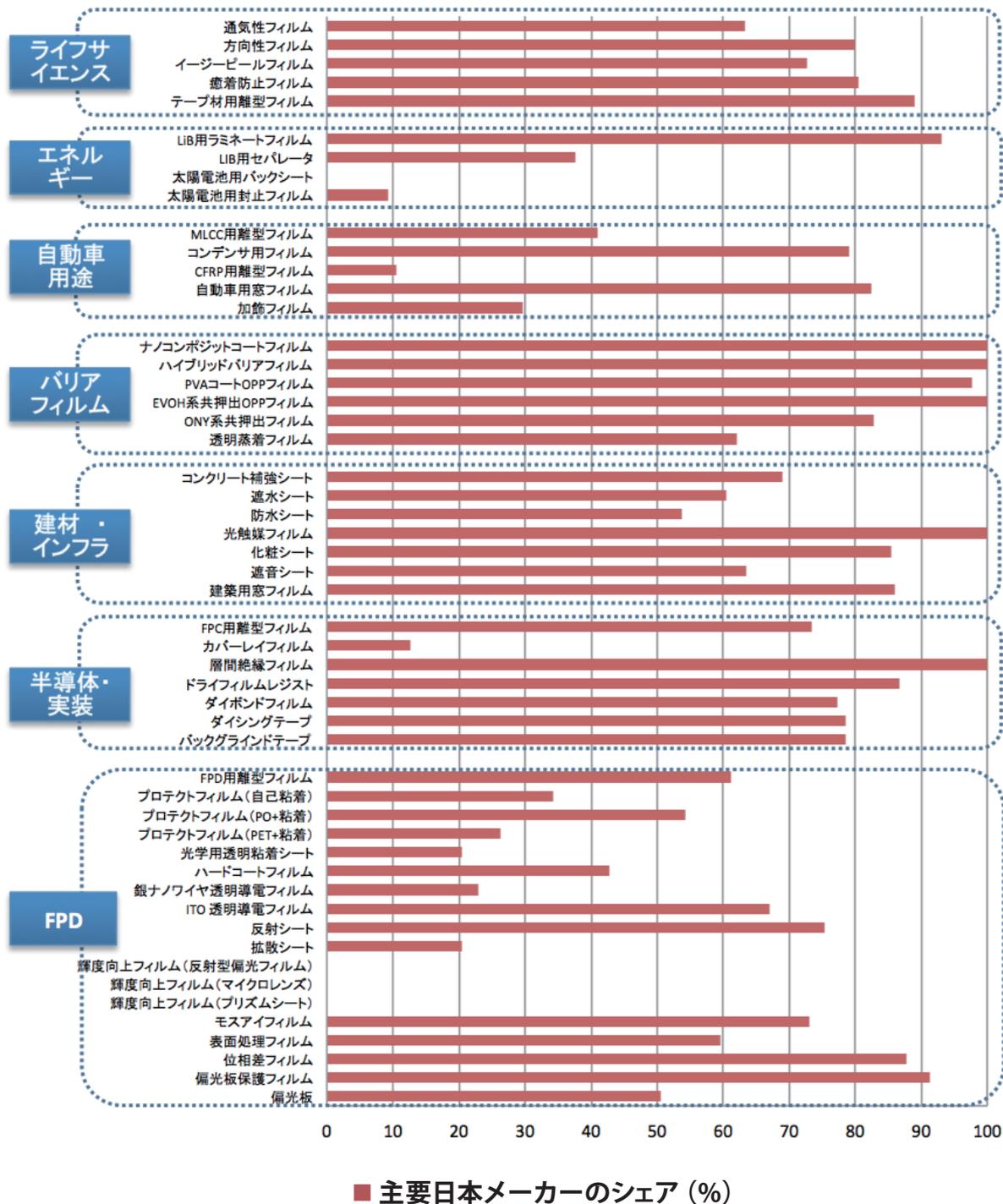


図6 機能性フィルム各品種の主要日本メーカーのシェア

出所：「2015年版 機能性高分子フィルムの現状と将来展望（富士キメラ総研）」よりNEDO 技術戦略研究センター作成（2015）

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## 2-3 機能性フィルムの技術動向

### (1) 発表論文数の推移

全ての分野の「機能性フィルム」論文数は年々増加傾向にある。近年、特に太陽電池や蓄電池等のエネルギー関連機器を主用途に見据えた研究の論文数が急激に増加している(図7)。

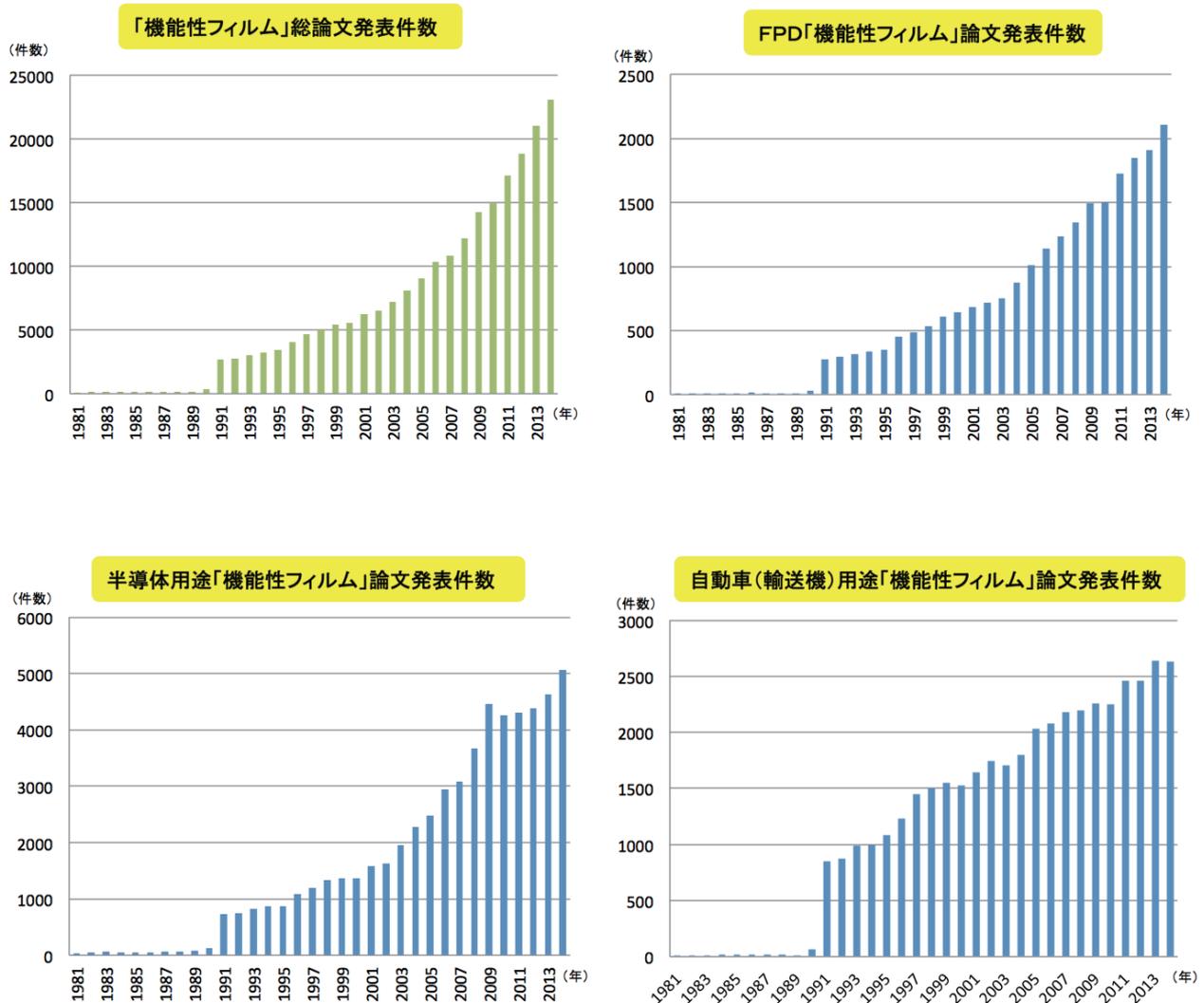


図7-1 機能性フィルムに関する論文数の年推移

出所: NEDO 技術戦略研究センター作成 (データベース: Web of Science Core Collection) (2015)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

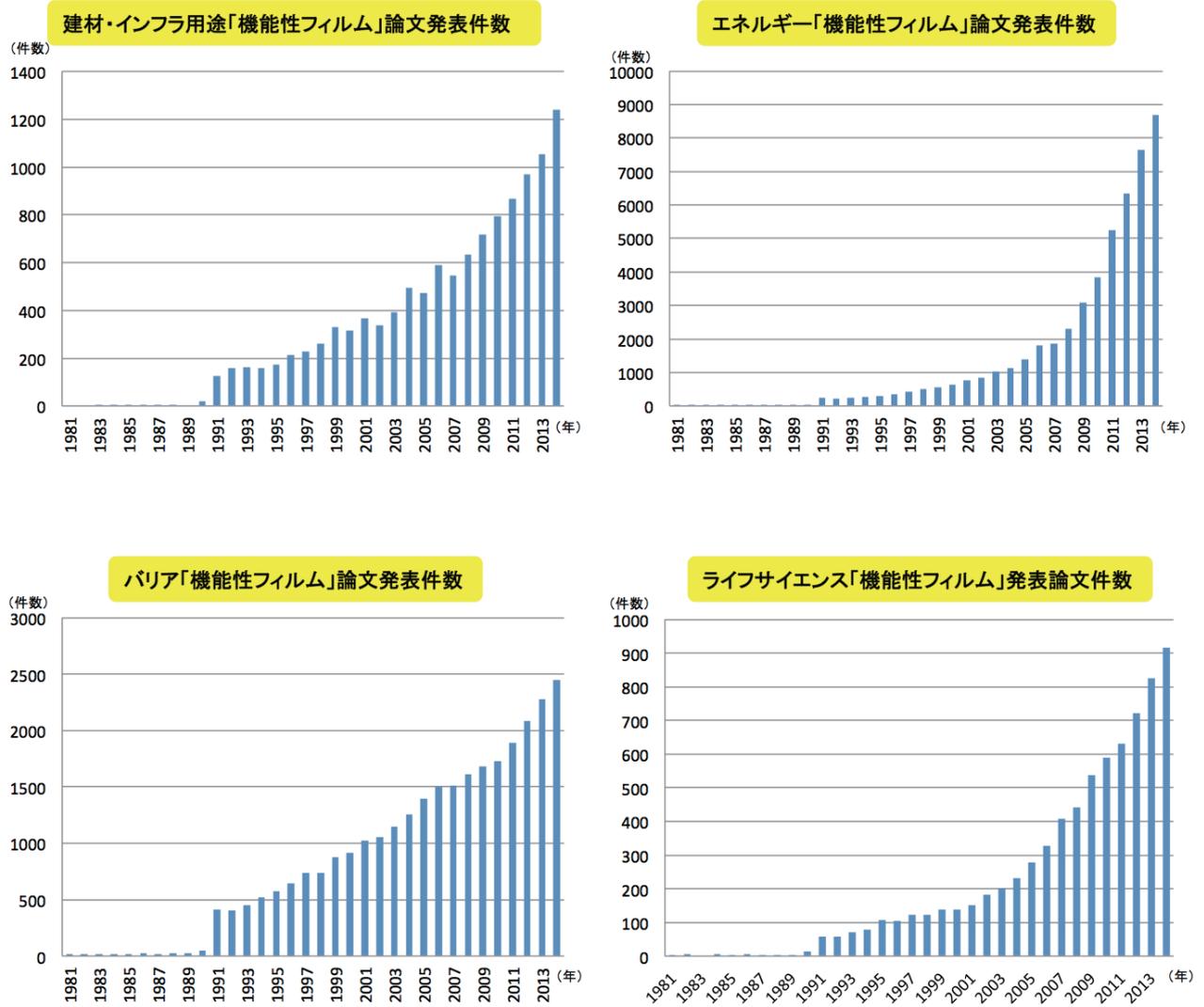


図7-2 機能性フィルムに関連する論文数の年推移

出所：NEDO 技術戦略研究センター作成（データベース：Web of Science Core Collection）（2015）

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## (2) 国別発表論文数の比較

日本は図示した全ての分野において2～4位に位置し、総数でも3位となっていることから、機能性フィルムに関する幅広い基礎技術力を有していることがわかる(図8)。

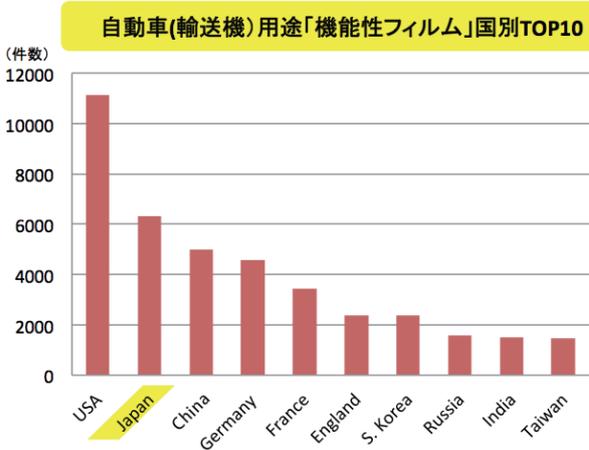
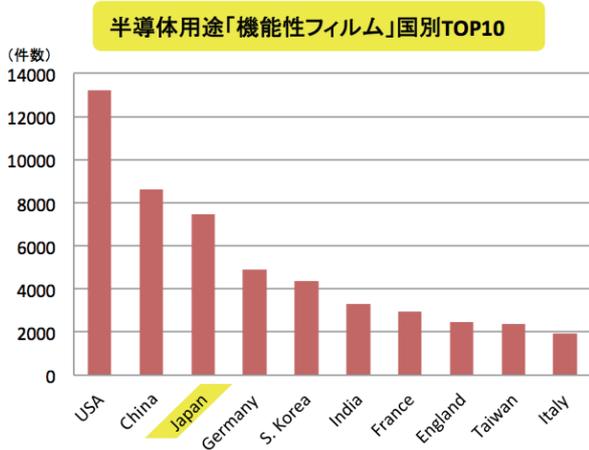
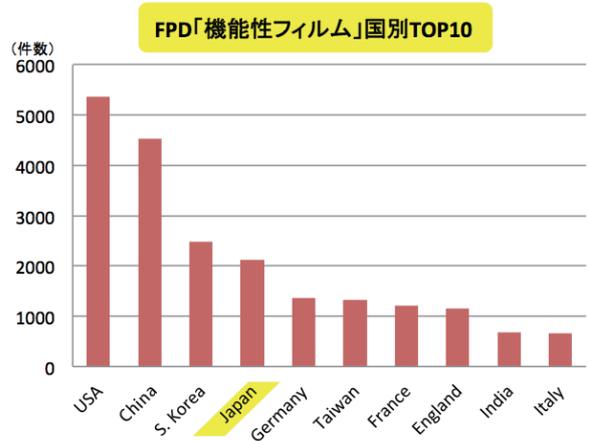
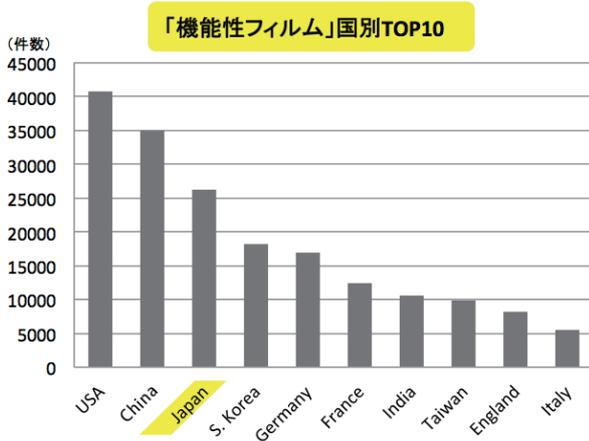


図8-1 機能性フィルムの国別発表論文数(上位10ヶ国)

出所: NEDO 技術戦略研究センター作成(データベース: Web of Science Core Collection) (2015)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

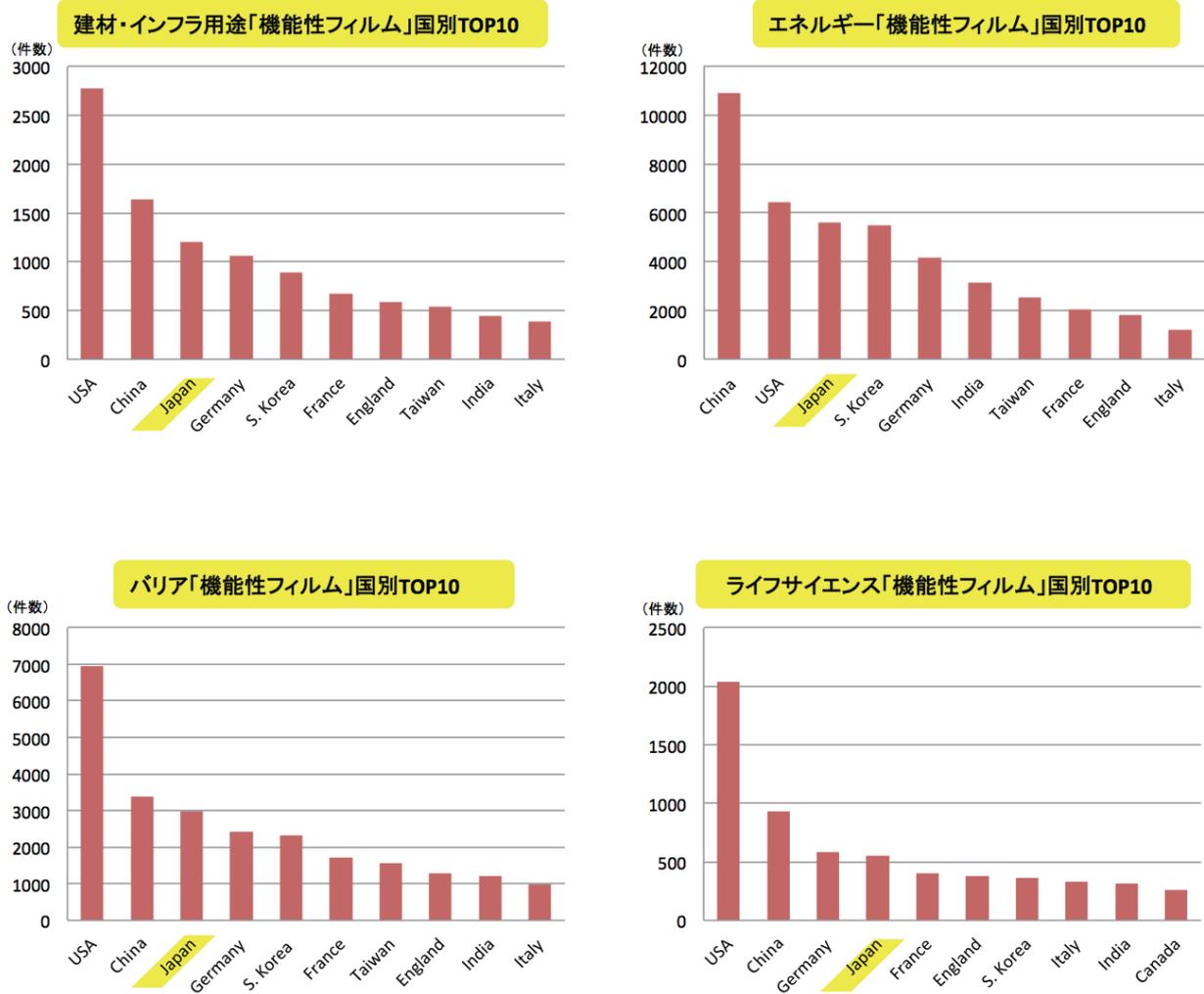


図 8-2 機能性フィルムの国別発表論文数 (上位10ヶ国)

出所: NEDO 技術戦略研究センター作成 (データベース: Web of Science Core Collection) (2015)

## 2 -4 諸外国の研究開発政策の状況

### (1) 韓国

「第3次科学技術基本計画(2013年発表)」の中で、複数の材料技術を重点国家戦略技術に位置づけることにより、ナノテク・材料分野の研究開発を推進している。

2013年12月に策定した「第6次産業技術革新5カ年計画(2014-2018年)」において、「素材・部品」を含む4分野の課題を「未来産業エンジン」に指定し支援している。

2013年12月の「部品素材専門企業等の育成に関する特別措置法」に基づき、「第3次素材・部品発展基本計画(2013-2016)」を発表した。素材分野のフォロワーから抜け出し、市場リーダーになることを目標としている。

### (2) 中国

「国家中長期科学技術発展計画(2006-2020年)」の8つの重点分野のひとつとして「素材(新材料技術・ナノ研究)」を指定した。

現行の「第12次5カ年計画要綱(2011-2015年)」で特定されている戦略的振興産業7つのうちのひとつとして「新素材」を指定し、新素材産業の発展のために新材料の研究開発と産業化を推進している。

### (3) 米国

マテリアル・ゲノム・イニシアチブ(MGI)は、2011年6月にオバマ政権が打ち出した、新たな素材開発インフラの構築を目指すプロジェクトである。本プロジェクトでは、最先端素材の開発から市場導入までに要する時間を半減させることを目標に掲げ、素材開発に用いられる計算機シミュレーションや実験的手法など、様々なデジタルデータを活用した統合的アプローチの展開により、素材開発基盤の高度化を図ることを目指している。アプリケーションとしては、生活向上、クリーンエネルギー、人材育成、国家安全保障の領域を設定している。

CHiMaD(Center for Hierarchical Materials Design)は、2014年よりNISTが運営するMGIの中核を担う国家プロジェクトであり、目的は革新的素材(樹脂、合金)を開発設計するための次世代コンピューティングツール、データベース、実験手法の開発と産業界への導入にある。アルゴンヌ研究所、シカゴ大学コンピューティング機関等が参画している。

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## 3章 計算科学を活用した機能性材料開発分野の技術課題

これまでの機能性材料開発では、経験と勘に裏付けされた実験的手法が大きく貢献してきた。現在の機能性材料は、材料のナノコンポジット化による機能の発現や、相反する二つ以上の機能を同時に高めることによる従来にない機能の実現など、材料の構造や合成手段等が複雑化する状況にある。このため、従来型の開発手法では実用化までに非常に大きな時間とコストがかかるという課題が顕在化しつつある。

このような課題の解決手段の一つとして、材料開発と計算科学との融合・連携によって革新的機能性材料の創成・開発の加速化を実現することが挙げられる。

具体的には、①マルチスケール（複数の階層）に応じた計算科学の高度活用、②高次元のデータから法則性を見いだす数理・情報科学の活用、③仮説⇔実証を効率的に行うための計測評価・試作技術との連携に関する各技術課題等を抽出していくとともに、これらを一体として推進していく必要がある（図9）。

## 3-1 計算科学

### (1) 計算手法の分類

ここで取り扱う計算科学とは、「物質（材料）が従う力学（ニュートン力学・量子力学）の方程式を、コンピュータを使って近似的に解こうとする科学」である。方程式を数値的に解いた結果として分かる基本情報としては、①原子の位置（結晶構造や高分子鎖の折りたたみ構造など）と運動に関する情報、②電子の状態（軌道、エネルギーなど）、③物質のもつエネルギー、等がある。物質の機能に関わる物性データも、基本的には上記①～③のデータが基となって得られる。

扱う対象や注目する物性、近似の方法等により、計算科学における計算（シミュレーション）手法には多くの方法が知られているが、その手法は図10のように分類できる。

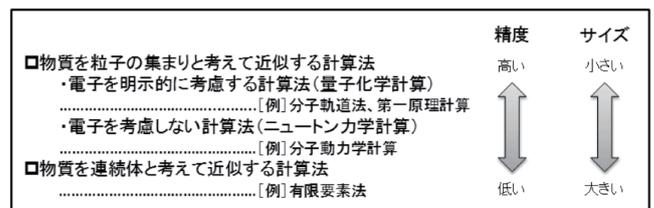


図10 計算手法の分類と特徴  
出所：NEDO 技術戦略研究センター作成（2015）

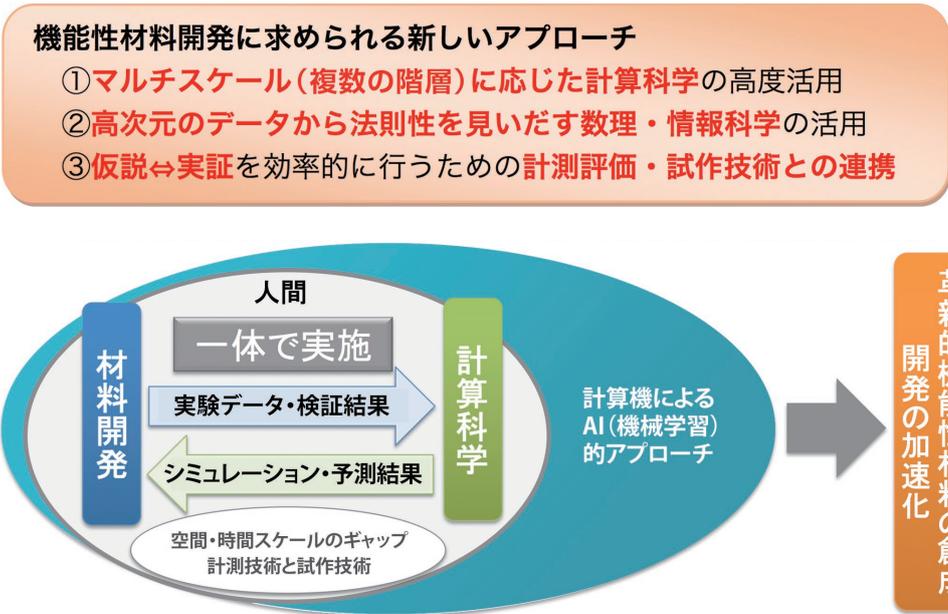


図9 機能性材料開発に求められる新たなアプローチ  
出所：NEDO 技術戦略研究センター作成（2015）

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## (2) 材料開発への計算科学の適用

### ①無機材料・金属材料（結晶性材料）

無機材料や金属材料は、構造の最小単位となる結晶の構造（電子状態を含む）が計算や実験で分かると、材料のもつ電気的、磁気的、光学的性質を示すパラメータを第一原理計算等により求める（例えば、結晶の中に異なる元素をわずかに導入（ドーピング）したときに、これらの性質がどう変わるかについて計算により予測する）ことができる。このような材料構造の改変による物性変化をシステムティックに計算し、場合によっては実験と比較することにより物性の改良を行うことが可能となっている。

### ②ソフトマテリアル（高分子材料、非晶性材料）

高分子材料を代表とするソフトマテリアルは無機材料などと異なり、構造の単位が非常に大きいこと、結晶の単位格子のような明確な秩序性をもたないことなどの特徴がある。このため、量子化学的計算だけでソフトマテリアルを取り扱う場合には計算量が膨大となり、「京」の稼働する現在においても計算が困難である。したがって、ソフトマテリアルに対して計算科学を適用するためには、図11のように材料の持つ「階層」に合わせた計算手法（物質を粒子としてみる手法～物質を連続体とみる手法）を適宜活用する必要がある。

一方、時間スケールに関してもソフトマテリアル特有の問題がある。高分子材料の構造は不均質であることが多く、また、例えば荷重を加えたときの弾性・粘性・塑性的な変形挙動が材料の構成部位ごとに大きく異なり、変形過程で分子鎖の切断や結合といった反応も生じるなど、材料の内部構造の変化が時間に依存する。このため、計算においては時間スケールも捉えておく必要がある。

### (3) マルチスケール・シミュレーション

材料の特性を知るために、量子化学計算などを用いたナノスケールシミュレーションを行う場合は、空間/時間スケールを数nm/数十ns程度の小さな計算モデルに限定せざるを得ないが、ほぼ計算したい化学構造式そのものをモデルとしたシミュレーションが可能である。そのため、計算結果の解釈が容易で、開発者が必要とする分子構造を直接取得することができる。一方で、前述したように高分子材料全体を考慮したナノスケールシミュレーションを行うことは、計算量の制限により現段階ではほぼ不可能である。

これに対して、高分子の構造を部分的に取り入れたメソスケールシミュレーションという手法がある。メソスケールシミュレーションにおいては、高分子の各構成部位を例えば、ビーズ（「ヒモ」と「玉」）とみなす（＝粗視化）。粗視化をほどこすことにより、現実の材料に近い空間

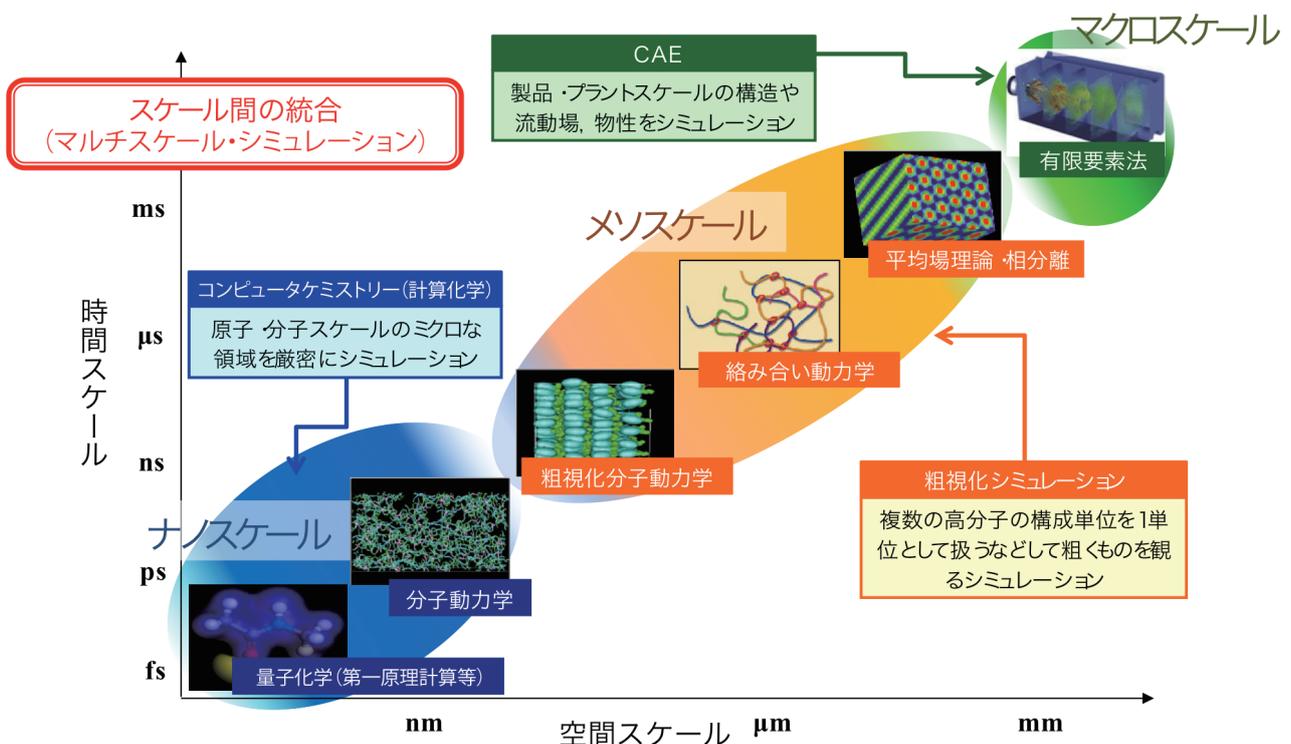


図11 高分子構造の各階層と計算手法の対応

出所：東レ株式会社作成資料を基に NEDO 技術戦略研究センター作成 (2015)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

及び時間スケールの計算が可能となり、材料の表面や界面の構造や材料内部における構造の多様性を包含したシミュレーションを行える可能性がある。その反面、粗視化したがいえに高分子の化学構造は抽象化されてしまう。メソスケールシミュレーションは現在発展途上の手法であり、例えば、パラメータの決定方法については研究が進行中である。

ソフトマテリアルを開発する目的で計算科学を利用しようとする場合には、上記のような種々の計算手法を使い分けるだけでなく、それぞれの手法の良さを一体として活用できることが望ましい。これが「マルチスケール・シミュレーション」の考え方である。各研究者らは、異なる階層のシミュレーション手法をうまく連成させて一体化したシミュレーション手法を研究している。ソフトマテリアルの開発には、最新の研究成果に基づくシミュレーション手法の適用が必要である。

## (4) マルチスケール・シミュレーションの例

高分子材料を開発する上で、常に注目されるのが相分離挙動(2種類の高分子が混ざるか・混ざらないか、混ざらない場合にどのような状態をとるか)である。例えば、ほとんどの高分子は、異種混合しても均一に混ざらず、ミクロスケールの海島のような分離構造をとる。また、2つの混ざりの悪い高分子の末端を繋げたブロックコポリマーもある。このブロックコポリマーは、2つのブロック部は分離するが、結合されて繋がっているため、数nmの分子スケールで近接しなくてはならないことから、10～20 nm程度の「ドメイン」と呼ばれる部分構造を持ったマイクロ相

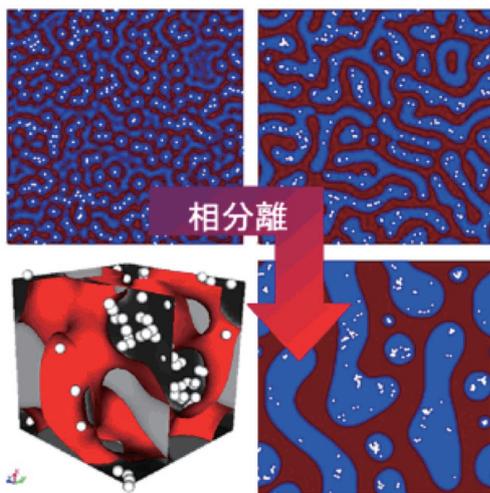


図12 粗視化シミュレーション事例

出所：ナノ粒子を含む高分子混合系材料の構造をシミュレーションするソフトウェア(産業技術総合研究所, 2010)

分離構造をとる。このように、相分離構造はソフトマテリアルの構造を規定する重要な因子であり、ソフトマテリアルの開発者は構造制御によって材料の使用目的にあった物性を発現させようとする。

現状から考え得る、近未来の相分離材料の設計には、①ナノスケールシミュレーションを用いることによって、高分子をメソスケールで記述するためのパラメータの設定、②メソスケールパラメータを入力とした相分離シミュレーション(メソスケールシミュレーション)、という手順がとられると考えられる。実際の実験結果(相分離構造データ)がある場合は、シミュレーション結果と対応させることでメソスケールパラメータの精密化が可能であるが、必ずしも実験結果が計算に必須というわけではない。シミュレーション結果から、例えば高分子の分子鎖を少し長くするといったパラメータ変更を行い、再度シミュレーションを実施し、所望の相分離構造に近づけていくことができる。

図12は2種類の高分子が混合された系とナノ粒子が充填された材料の分散構造のシミュレーションを行った事例である。材料の構造から、その機能を計算によって導出するためのシミュレーションを行うソフトウェアを開発していくことが必要である。

## (5) 大型計算リソースの戦略的活用

材料シミュレーションの取組として、計算環境の整備も行われている。文部科学省のハイパフォーマンス・コンピューティング・インフラ(HPCI)により、「京」や大学の持つ大型計算リソースを高速ネットワークで結び、5つの戦略分野:「予測する生命科学・医療及び創薬基盤」、「新物質・エネルギー創成」、「防災・減災に資する地球変動予測」、「次世代ものづくり」、「物質と宇宙の起源と構造」を設定し、戦略的に活用されている。

上記HPCIの助成をうけ、3つの拠点(東京大、分子科学研究所、東北大)と11の協力機関が、物性科学、分子科学、材料科学を母体とする計算科学研究者で構成されるネットワーク型組織(計算物質科学イニシアティブ:CMSI)を結成し、研究活動が推進されている(図13)。



図13 計算機のインフラ整備

出所：NEDO 技術戦略研究センター作成(2015)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## 3-2 数理・情報科学

発現する材料の機能は、当該材料の合成プロセスや製造プロセスの条件によって大きく異なるため、大量の条件データから、目的とする機能に結びつく有効な条件（因子）を効率的に抽出できることが材料開発の迅速化につながる。また、機能（性能）目標を達成するための試行回数を有意に削減し、試行効率を向上させることが開発期間を短縮する上では効果的である。したがって、どのような合成や製造プロセ

スであれば目的とする機能が期待し得るかを類推する手法に関する技術（AI等）の開発が期待される（図14）。

近年、大量のデータを高次元データとして取り扱う統計・数理的手法が発達している。多次元の条件を変えて実際に製造した、又はシミュレーションにより予測した大量のデータから、要求機能に対する有効因子や発現機能を更に高度化するための材料構造や製造条件を、効率的に抽出・予測する検討が行われている（図15）。

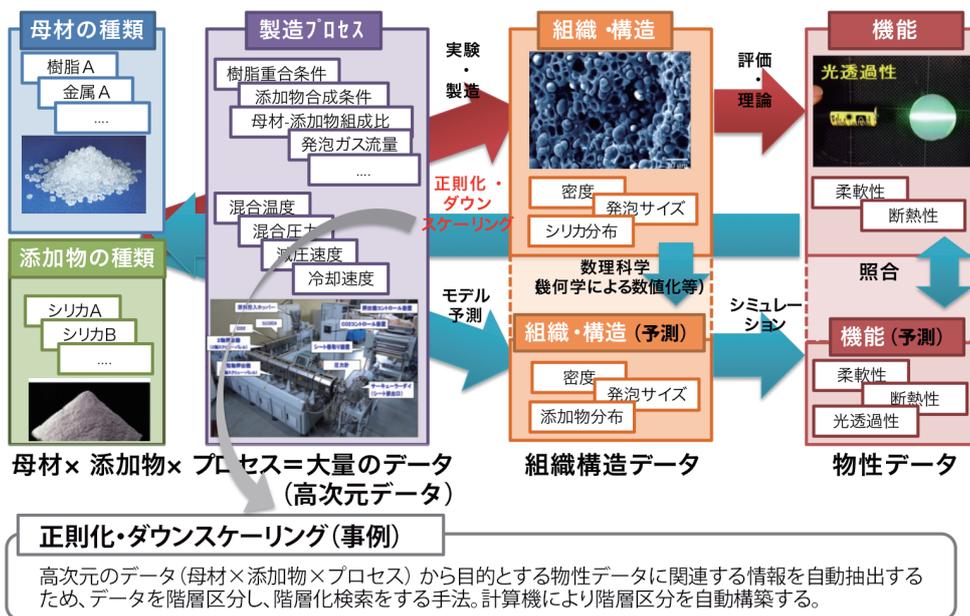
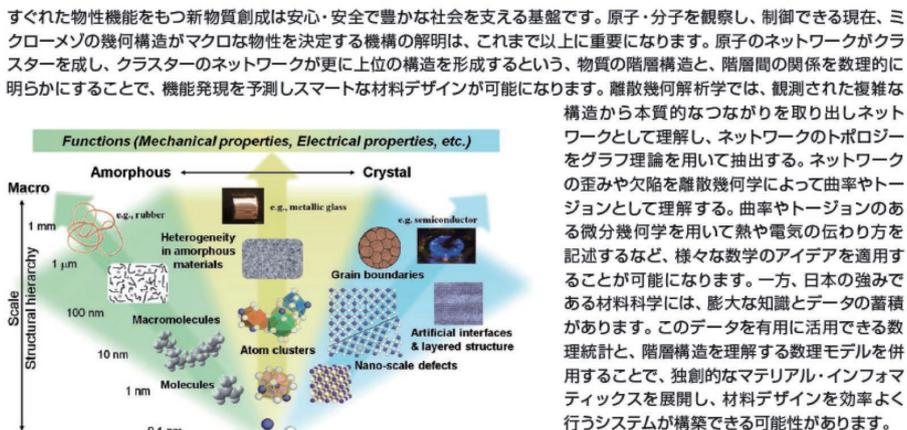


図14 素材合成・製造プロセス・構造・機能との概念図  
出所：NEDO技術戦略研究センター作成（2015）

## 物質の階層構造をとりいれたマテリアル・インフォマティクス



東北大学大学院理学研究科数学専攻・WPI-AIMR

図15 材料開発による数理科学の研究事例  
出所：東北大学大学院理学研究科数学専攻・WPI-AIMR（2014）

## 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

具体的な計算手法としては前述のナノスケールシミュレーションや相分離シミュレーションを用いることになるが、いくつもの物性を最適化するために、必然的に実験データの数もシミュレーションの回数も増加する。限られた時間・リソースの中で開発を進めていかなければならない状況下で、大量のデータからの確に開発の方向性を見つけていくために、数理学・情報（データ）科学を用いた実験・計算結果の評価／フィードバックの可能性が注目されている。

仮説⇔実証によるアプローチと、勘と経験による試行錯誤を併用した従来の材料開発では、すでにある実験条件の周辺で新しい条件を設定する傾向や、多くの実験条件の中から注目する条件のみを変化させ、変化させた条件が目標とする機能に及ぼす効果を知ろうとする傾向があり、探索空間を意識・無意識にかかわらず狭めてしまうこと、実験の数の増大を招いてしまうことなどの問題がある。

更に、現在のシミュレーション技術は部分的・限定的であり、すべての実験条件を考慮し、アウトプットとして機能（性能）を予測する計算ができないことが多いために、シミュレーションの役割が研究者の思考の補助にしかならず、探索の方向づけは研究者の発想に依存している。加えて、過去の知識・経験を活かすということも研究者の主観による判断に依存している。

数理・情報科学と計算科学の協働による新しい材料開発では、現在の開発活動と、次にどこを探索すべきかの抽出活動を研究者の主観や発想だけに頼らず、計算機の力を借りてできるだけ客観化することを目標とする。すなわち、最終的な判断は研究者が行うとしても、過去の暗黙知も含めて、判断に至るプロセスにできるだけ計算機を関与させ、判断材料を客観化（見える化）することを目標とする。

近年、特に気象予報や気候予測の分野において実施されている大規模な予測シミュレーションが効果を上げている。データ同化と呼ばれるこの計算手法は、確率分布の考え方をベースに既存のデータに新しいデータが付加されたときの確率分布の変化を漸化式的に解いていく手法である。従来多く用いられてきた「最適化計算」とは異なり、予測値と予測値を取り得る確率という観点から予測・推測の妥当性を客観的に判断できる点に特徴があり、例えば、ある物性のピーク値が予測できた場合に、その予測がどれくらい確からしいかを予測により得られる物性の期待値の分布によって把握する。

データ同化手法には、カルマンフィルター、マルコフ連鎖モンテカルロ（MCMC）法等が、実際の計算アルゴリズムとしては粒子フィルター等が報告されている。ただし、データ同化の応用先としては気象や天体データなど、時系列性のあるデータへの適用が中心になっており、必ずしも材料開発への応用例は多くないことから、効果的な材料開発への適用方策について検討していく必要がある。

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## 3-3 計測評価・試作技術開発

計算科学を活用した技術開発においては、革新的な機能性材料を創成するだけでなく、開発の過程そのものの効率を飛躍的に高めるための、以下のような先端的な共通基盤技術の検討を併せて推進していく必要がある。

### (1) 計測評価技術開発

シミュレーションにより提案された設計どおりの材料を試作し、最適な合成や構造が実現できているか、目的とする機能が発現できている

るかの計測評価を行う技術開発が必要である。機能発現がナノ構造に起因していることから、ナノスケールでの計測技術が不可欠である。

ナノ計測評価技術の事例としては、素材の構造解析を行う陽電子消滅法 (PAS)、界面構造解析を行う和周波発生分光法 (SFG)、物質との相互作用解析を行う原子間力顕微鏡 (AFM) などがあり、これら複数の計測評価技術を組み合わせる必要がある (図16)。

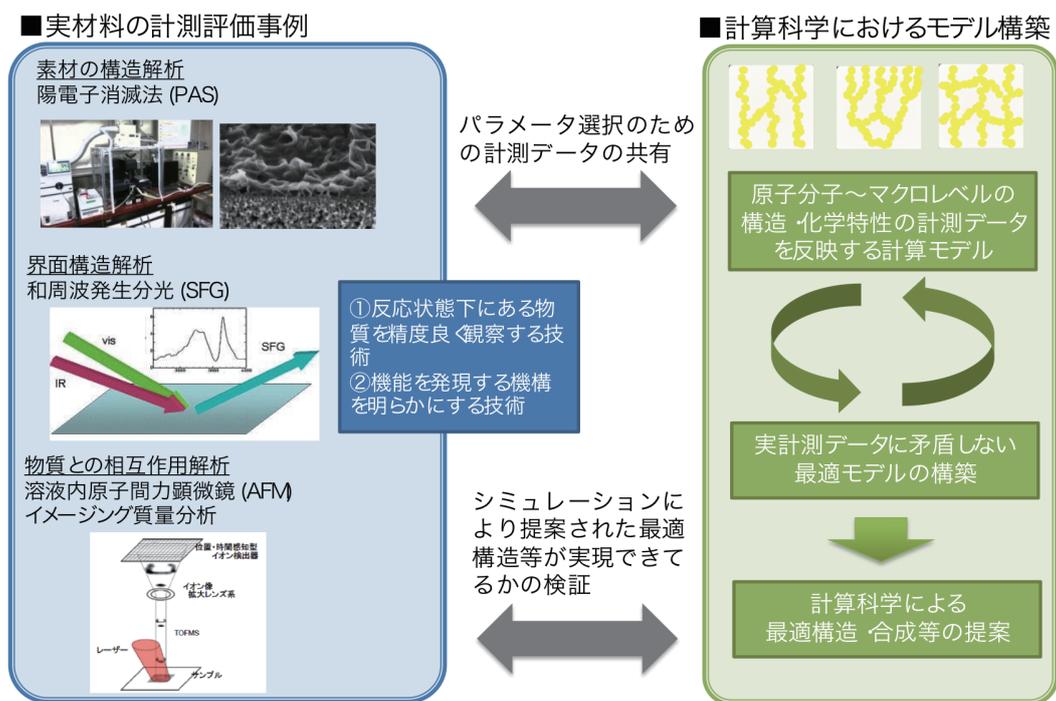


図16 計測・評価技術と計算科学との連携イメージ

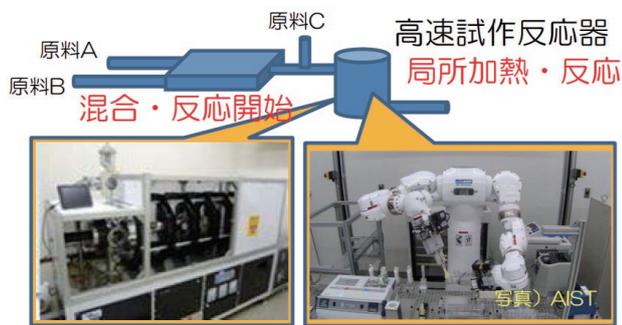
出所：産業競争力懇談会 2014年度 プロジェクト 最終報告 革新的高機能分離素材の開発（分離・除去・吸着）（2015）、東北大学大学院理学研究科 森田明弘教授発表資料（2015）等を参考に NEDO 技術戦略研究センター作成（2015）

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

## (2) 試作技術開発

従来の機能性材料の製造においては、コスト削減のための大型プラントでの多段階反応による大量合成が必要であったが、素材開発の加速化のためには、材料試作そのものを劇的に短縮し、高精度で新素材の試作を可能とするための、新しいプロセス開発が必要である。なお、創薬分野では、ロボットによる化学合成を利用した少量多品種合成による、コンビナトリアルな高速スクリーニングやフロー型反応器や固定化触媒を組み合わせる精密な化学合成を行い、新規化学材料の開発と製造を同時に進める、新しいアプローチが検討され始めているところである。

機能性材料開発においても、①迅速な反応を可能とする触媒技術、②マイクロリアクターの設計・製造技術、③マイクロ波やレーザー等による選択的・局所的な加熱技術、④新規吸着剤や膜等による分離・精製技術などを組み合わせ、これらをバッチ処理ではなく、全自動フロー型のこれまでにない高速プロセスで試作するための技術開発が必要である(図17)。



全自動フロー合成システム開発 シーケンス型ロボット合成システム開発

図17 高速試作プロセスの概念図

出所：産業技術総合研究所発表資料(金属ナノ粒子の連合成装置を開発(2011))等を参考に経済産業省産業技術環境局研究開発課作成(2015)

## 4章 おわりに

我が国の機能性素材産業は、個々の製品の市場規模は小さいものの、世界中で高いシェアを有しており、これらをまとめて大きな市場を獲得している状況である。この素材産業の優位性を保つためにも、機能性材料の技術革新を継続していく必要がある。

本レポートでは、機能性材料のうち、材料の種類の多さ、成形自由度の高さ、後加工により様々な機能付与が可能といった特徴をもち、幅広い分野で高機能化に繋がる2次元形態材料(機能性フィルム)を対象に、我が国の産業や技術動向について調査・分析を行った。その結果、多くの機能性フィルムの品種において日本企業のシェアが50%を超えており、論文発表に関しても我が国の優位性が依然として高いことがわかった。ただし、先進国のみならず、人海戦術方式の新興国の猛追を退け、将来にわたって我が国の優位性を維持するためには、技術開発を加速していく必要がある。

機能性フィルムを含む従来の機能性材料開発では、これまでの経験と勘に裏付けされた実験的手法が大きく貢献してきたが、開発対象材料の構造や合成手法等がますます複雑化しているために、近年では実用化まで非常に大きな時間とコストがかかるようになってきている。この課題を解決する手段として、材料開発と計算科学との融合・連携による機能性材料開発の効率化・加速化が有望視されている。

これまでにない革新的な機能性材料の開発、及び開発期間の短縮に向けて、①マルチスケール(複数の階層)に応じた計算科学の高度活用、②高次元のデータから法則性を見いだす数理・情報科学の活用、③仮説と実証を効率的に行うための計測評価・試作技術開発を実現することが有効と考えられるため、これらを一体で推進していく技術開発への注力が望まれる。

本資料は技術戦略研究センターの解釈によるものです。掲載されているコンテンツの無断複製、転送、改変、修正、追加などの行為を禁止します。引用を行う際は、必ず出典を明記願います。



技術戦略研究センターレポート

# TSC Foresight

Vol. **1**

## ナノカーボン材料分野の 技術戦略策定に向けて

2015年10月

<b>1</b> 章	ナノカーボン材料技術の概要	2
1-1	ナノカーボン全般の概要	2
1-2	ナノカーボン種類ごとの概要	2
<b>2</b> 章	ナノカーボン材料技術の置かれた状況	3
2-1	技術開発の動向(国内、海外)	3
2-2	我が国のナノカーボン研究の置かれた状況	9
2-3	ナノカーボンの産業競争力(諸外国との比較)	21
2-4	CNT/グラフェン用途先の世界市場予測	27
2-5	ナノカーボンの実用化の促進	27
2-6	ナノカーボンの安全性評価手法の開発	27
<b>3</b> 章	ナノカーボン材料分野の技術課題	28
3-1	単層CNT	28
3-2	グラフェン	29
<b>4</b> 章	おわりに	31

TSCとはTechnology Strategy Center(技術戦略研究センター)の略称です。

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## 1 章 ナノカーボン材料技術の概要

### 1 -1 ナノカーボン全般の概要

CNT（カーボンナノチューブ）、グラフェン、フラーレン等のナノカーボン材料は、その発見、又は、その後の研究の進展に日本の研究者が大きく貢献し、日本が世界トップレベルにある材料である。これらナノカーボン材料は、非常に軽量であることから構造部材への応用、電気や熱の伝導率が高いことから導電材料や放熱部材への応用、電子的特性が高いことから高速トランジスタへの応用などに期待されており、市場への波及効果が大きい。また、我が国では確保が難しい金属資源を代替でき、無尽蔵である炭素を利用して、材料産業を活性化することが国益に大きく貢献すると考えられる。以上のことから、ナノカーボン材料技術分野は、最も重要な研究開発分野の一つである。特に、単層CNTにおいては、国立研究開発法人産業技術総合研究所（以下、産総研）等における先駆的な研究により、日本が世界でもトップクラスの技術を有している。

特許分析によると、2000～2012年の特許出願総数では日本のシェアは25%とトップであるが、出願件数の推移を見ると年々減少しており、代わって中国、韓国の躍進が顕著になっている。応用分野は、特に電気・電子分野やエネルギー分野が中心である。また、これらの分野の中でも、注目される機器や部材は年々変化しており、近年は太陽電池、半導体・メモリやトランジスタ等に注目が集まっている状況にある。

ナノカーボン材料の産業化を阻害する要因に生産コストの課題がある。ナノカーボン材料の現在の価格は単層CNTで1,000万円/kg程度、比較的合成が容易な多層CNTでも2～3万円/kgのオーダーであり、既存のカーボン製品（3,000円/kg程度）との価格差、コスト/性能比（C/P比）の開きが大きい。実用化のためには、競合品と代替可能なレベルまで価格を下げ得る生産技術の革新が必要である。

ナノカーボン材料の用途開発研究への意欲は世界中で依然として旺盛である。ナノカーボン材料の優れた特徴（例えば、単層CNTでは比重はアルミニウムの約半分、機械強度は鉄鋼の約20倍、電子移動度はシリコンの約10倍、電流密度耐性は銅の1,000倍以上、熱伝導性は銅の5倍以上）をいかした用途は、構造材料、放熱材料、

高電流密度電線材料、透明導電膜、高性能トランジスタ等の多方面にわたり、それらの市場は今後も拡大していくと予想される。このため、ナノカーボン材料の実用化を加速することで、我が国の川上・川下産業の活性化が期待できる。

### 1 -2 ナノカーボン種類ごとの概要

ナノカーボンの種類ごとの材料市場の予測を表1に示す。ナノカーボン材料自体の市場規模は、全ての種類を合わせても2030年で2千億円程度（予測）に過ぎず、決して大きなものではないが、これらの材料の用途は多岐にわたるため、応用製品の市場規模全体は、その数十倍になるものと考えられる。

表1 ナノカーボン材料の市場予測

ナノカーボン種類	2013年市場規模	2030年市場予測
CNT	32億円	660億円*
グラフェン	13億円	1,000億円
フラーレン	29億円	70億円

出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集 (NEDO,2014)。ただし、※は平成23年度 特許出願動向調査報告書 (特許庁) よりNEDO 技術戦略研究センター算出。

#### ①多層CNT

多層CNTは、比較的生産が容易であることから、国内においても年数百tレベルで生産されており、リチウムイオン電池電極の導電補助材等への実用化が推進されているが、用途が期待されたほど広がらず、また他国の追い上げが激しく、すでに低価格競争の領域に入っている。課題としては、CNTの優れた性能を生かせる新しい用途の開拓や低コスト化製造技術などが挙げられる。

#### ②単層CNT

単層CNTは、多層CNTに比べて電気伝導性や熱伝導性に優れている。我が国はスーパーグロース法（SG法）や流動気相成長法（eDIPS法）など世界に誇れる製造技術を保有しており、eDIPS法は名城ナノカーボンにて、スーパーグロース法は日本ゼオンにて量産開始が間近となりつつある。これらの技術を更に発展させつつ、材料の用途先の実用化を進めることができれば、我が国の優位性を発揮することが可能である。課題としては、より低コストでの製造技術のみならず、チューブ結合状態の違いから発現する半導体性/金属性を

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

より高純度に分離する技術、性能向上及び用途拡大のための長尺化製造技術を確立することなどが挙げられる。

### ③ グラフェン

グラフェンは数年前から世界中で研究が活性化しており、CNTと同様の分野で実用化を目指している。諸外国においては、国家レベルでの研究開発投資が急激に拡大している。最も注目されている特徴としては、電子移動度の速さ(理論上はシリコンの約100倍)であり、高速トランジスタへの応用を念頭に置いた研究が盛んである。また、原子層厚の透明性を生かした透明導電膜への応用研究も活発化しており、世界規模でグラフェンの大型化・大量生産への開発競争も繰り広げられている。

単結晶グラフェンを成膜する技術の成果は多く発表されているが、本来得られるべき特性は十分に得られていない。課題としては、低欠陥成膜技術、界面制御技術、大面積でありながら本来の特性を発揮できる膜の作製技術などが挙げられる。

グラフェンの製造方法については、上述の薄膜を合成する方法の他、黒鉛などのグラファイト状態の塊を剥離分散させて作成する方法なども開発されている。この方法によって得られる薄膜は、(数層～数十層の)厳密には原子層ではない場合が多いが、グラフェンに近い

諸物性を得ることができ、更に、分散液による塗膜化、樹脂と複合化して使用できる等の特徴がある。

### ④ フラーレン

フラーレンに関しては、現在実用化されている用途としては化粧品や潤滑油の添加剤などであり、電子的な特性利用の面では有機薄膜太陽電池材料や蓄電材料等としての応用が有望視されている。

## 2章 ナノカーボン材料技術の置かれた状況

### 2-1 技術開発の動向(国内、海外)

#### (1) 特許・論文分析

##### ① 出願人国籍別の特許出願件数推移・比率

日本の出願件数は2004年をピークに徐々に減少している。2008年以降は中国と韓国の出願数が顕著に増加し、日本を上回る状況である。このため、2000～2012年の総出願件数において日本の特許出願

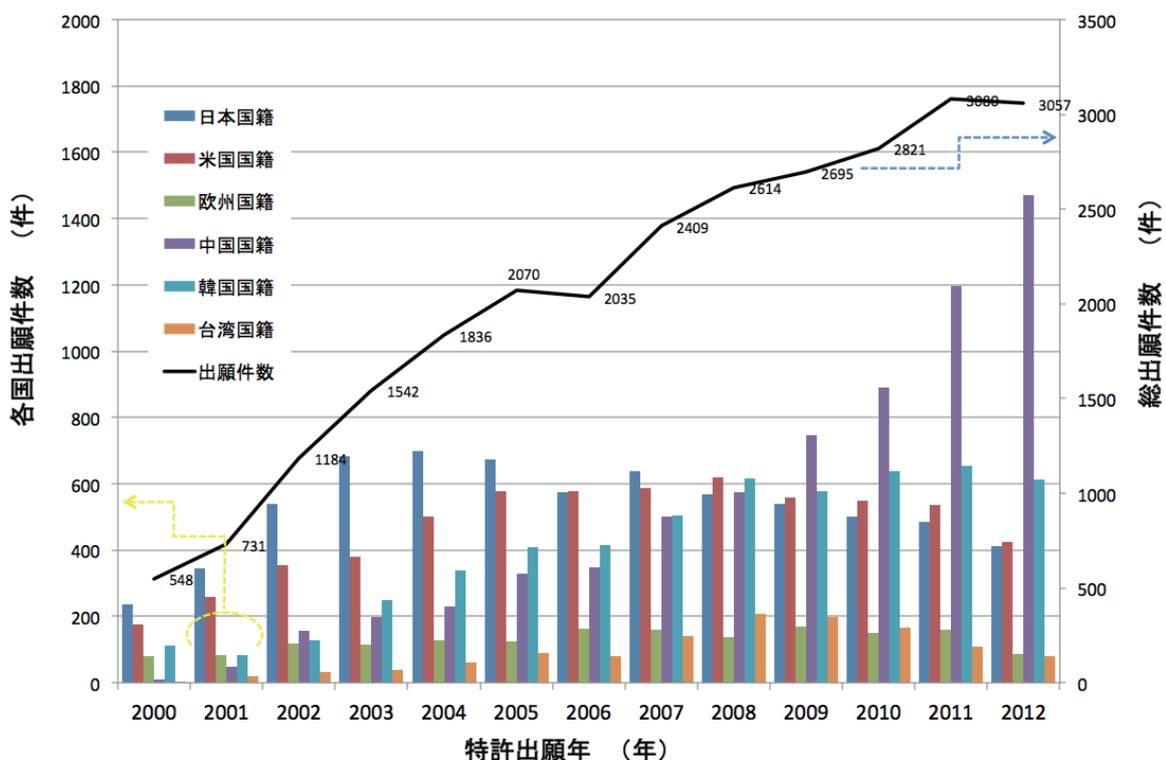


図1 ナノカーボンに関する出願人国籍別の特許出願件数推移

出所: ナノカーボンに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

件数の割合は25%となっており、2000～2009年の29%から低下した。  
(図1、図2)

国別の上位出願人を示した表2を見ると、欧州のST Microelectronics  
の出願件数が飛び抜けて多いことがわかる。台湾では鴻海精密工

業、韓国ではサムスングループからの出願が多い。日本及び米国にお  
いては、各出願人の出願件数は多くはなく、上位出願人間の出願件  
数の差は小さい。また、中国は、精華大学、鴻富錦精密工業、鴻海精  
密工業(台湾資本)が多くの特許を出願している。

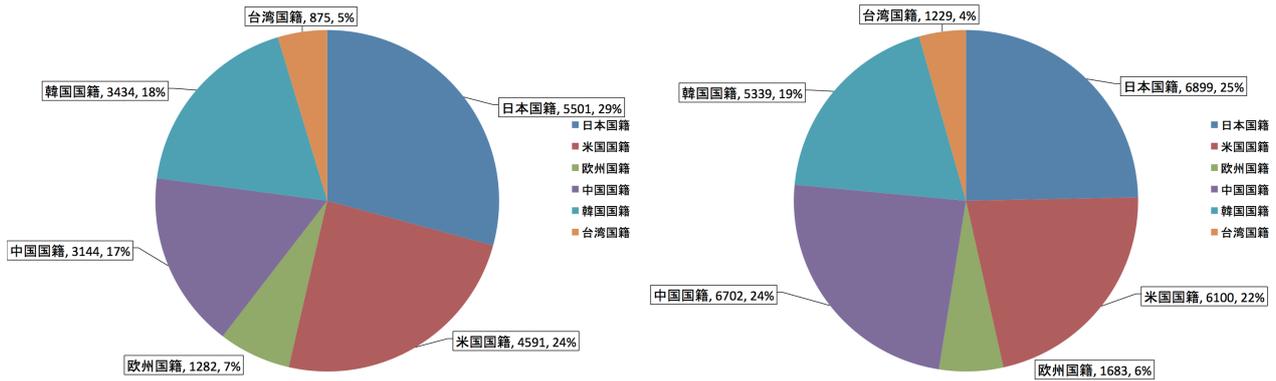


図2 ナノカーボンに関する出願人国籍別の特許出願件数・比率 (左図:2000～2009年、右図:2000～2012年)  
出所:ナノカーボンに関する出願状況調査(NEDO, 2014)

表2 ナノカーボンに関する出願人国籍別及び出願人別の特許出願件数ランキング (2000～2012年)

国	順位	上位出願人	件数
日本	1	パナソニック	298
	2	産業技術総合研究所	283
	3	東レ	236
米国	1	IBM	177
	2	DU PONT	101
	3	XEROX CORP	123
中国	1	UNIV TSINGHUA	787
	2	HONGFUJIN PRECISION IND SHENZHEN CO LTD	749
	3	HON HAI PREC IND CO LTD	694
韓国	1	SAMSUNG ELECTRONICS CO LTD	586
	2	SAMSUNG SDI CO	502
	3	KOREA ADVANCED INST SCI AND TECH	298
台湾	1	HON HAI PREC IND CO LTD	502
	2	IND TECH RES INST	158
	3	NAT UNIV TSINGHUA	45
欧州	1	ST MICROELECTRONICS	1580
	2	COMMISSARIAT ENERGIE ATOMIQUE	69
	3	SIEMENS AG	68

出所:ナノカーボンに関する出願状況調査(NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ②技術区分別の特許出願動向

技術区分別の出願傾向は各国とも同様であり、ナノ炭素材料自体

の特許出願をはじめ、製法や特性の向上、加工・改質方法、材料の成形・接合などの出願件数が多い。(図3)

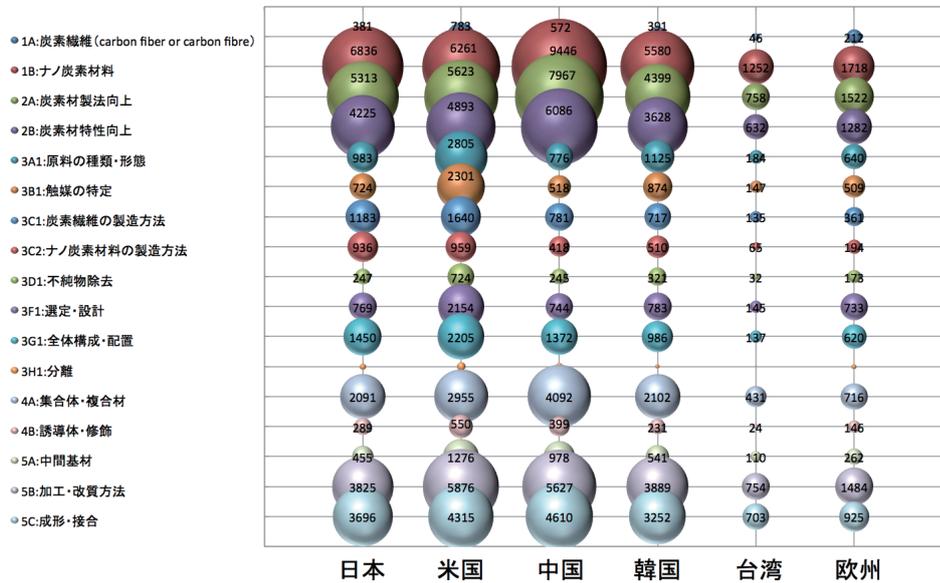


図3 ナノカーボンに関する特許出願における出願人国籍別及び技術区分別の出願件数 (2000～2012年)

出所: ナノカーボンに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

## ③製造方法別の特許出願動向

製造方法別の出願数を見ると、日本はアーク放電法、プラズマ法 (プラズマCVDを含む)、燃焼法、気相 (CVD): 接触分解法、水添加CVD法の出願割合が高く、他国に比べるとアルコールCVD法

の出願が少ないことがわかる。米国はプラズマ法の出願が最も多く、他の主要な製造方法に関する出願はほぼ均等である。一方、中国はアーク放電法と水添加CVD法に関する出願割合が高い傾向にある。(図4)

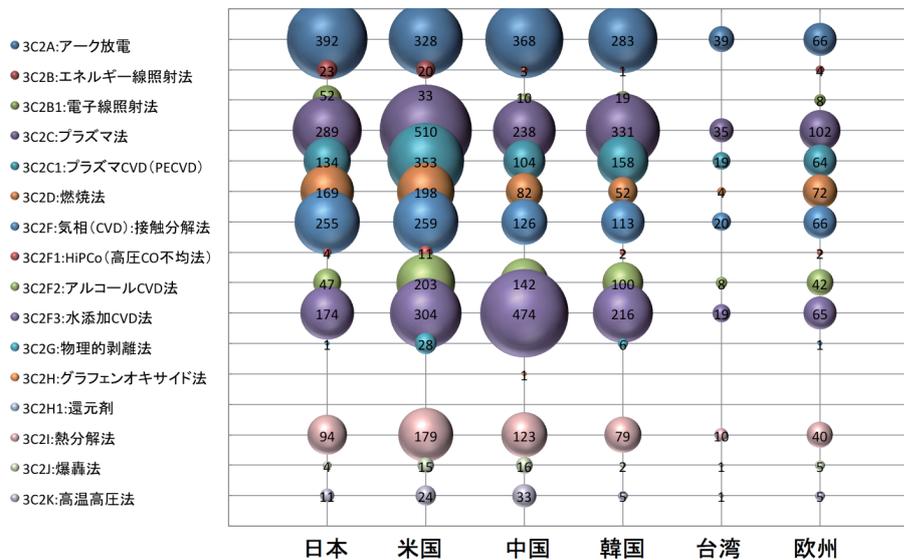


図4 ナノカーボンに関する特許出願における出願人国籍別及び製造方法別の出願件数 (2000～2012年)

出所: ナノカーボンに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ④ 応用分野別の特許出願動向

応用分野別の出願動向（図5上図：中分類）からは、各国とも電気・電子分野への応用に関する出願件数が特に多く、次いでエネルギー分野が続くことがわかる。また、これらの内訳（図5下図：小分類）を見ると、電気・電子分野では電子放出素子、センサ、半導体製造装置

部材の比率が高く、エネルギー分野では二次電池、燃料電池、太陽電池など電池材料用途が主であることがわかる。また、米国及び中国では医薬・医療・バイオ分野への応用に関する出願件数が日本よりも多く、エネルギー分野と同程度の件数となっている。（図5）

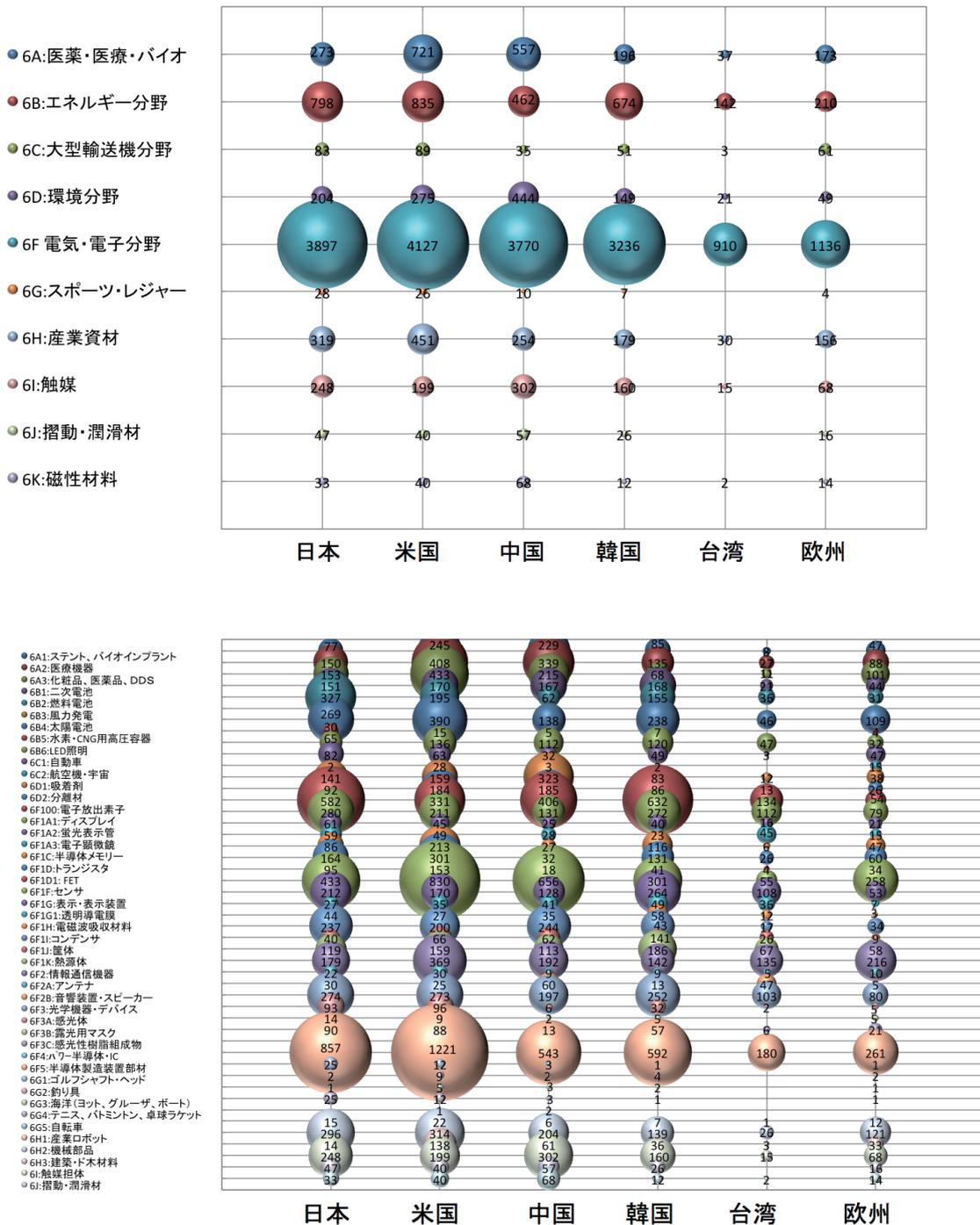


図5 ナノカーボンに関する特許出願における出願人国籍別及び応用分野別の出願件数（上図：中分類、下図：小分類）（2000～2012年）  
 出所：ナノカーボンに関する出願状況調査（NEDO, 2014）

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ⑤発表者国籍別の論文発表件数比率・推移

日本からの論文発表件数は2004年からの伸びが鈍い一方、欧州、米国、中国の伸びが大きく、相対的に日本の論文件数比率が低下し

ている傾向にある。ただし、2000～2014年の総発表件数の比率は依然日本が1位である。(図6、図7)

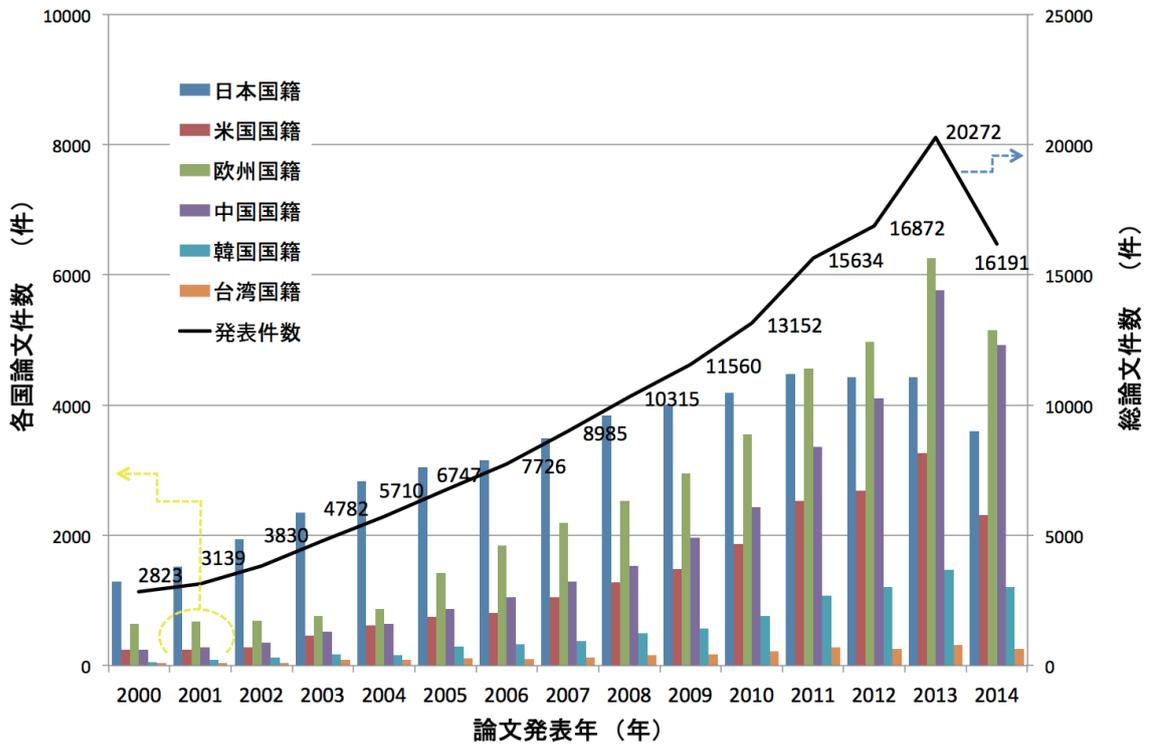


図6 ナノカーボンに関する発表者国籍別の論文発表件数推移 出所: ナノカーボンに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

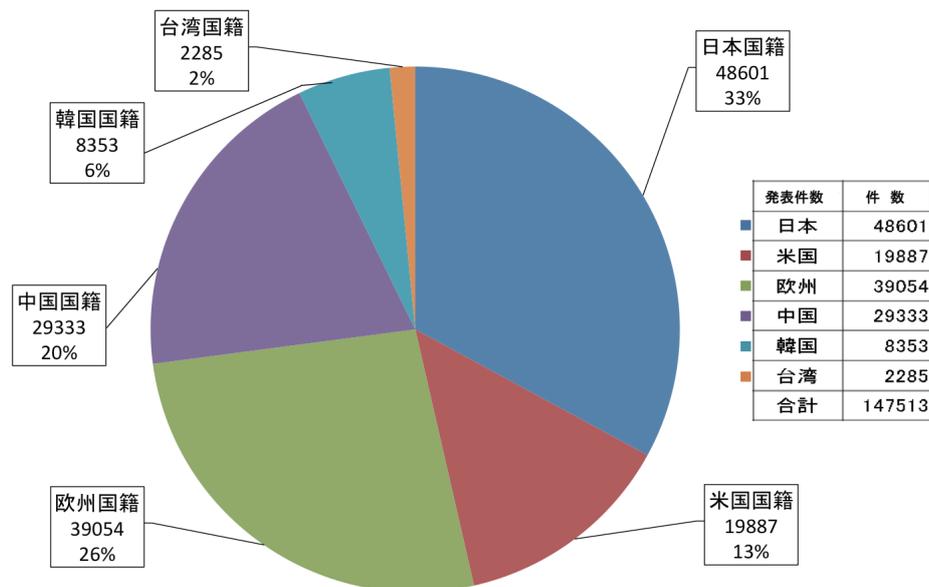


図7 ナノカーボンに関する発表者国籍別の論文発表件数・比率 (2000～2014年)

出所: ナノカーボンに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

また、研究機関ごとの論文発表件数を見ると、発表件数の多い研究機関の上位を日本が占めており、日本の基礎研究力が非常に強いことがわかる。(表3)

表3 ナノカーボンに関する機関別論文発表件数ランキング (2000～2014年)

順位	国	研究機関	発表件数
1	日本	科学技術振興機構	4,859
2	日本	東京大学	4,260
3	日本	東北大学	4,075
4	日本	大阪大学	3,526
5	日本	産業技術総合研究所	3,142
6	日本	名古屋大学	2,759
7	日本	京都大学	2,581
8	日本	九州大学	2,196
9	中国	Tsinghua Univ	1,482
10	米国	Univ California	1,386
11	中国	Peking Univ	1,203
12	日本	東京理科大学	1,069
13	日本	物質・材料研究機構	1,065
14	韓国	Seoul National Univ	910
15	中国	Zhejiang Univ	907
16	韓国	Sungkyunkwan Univ	904
17	米国	Massachusetts Inst. Technol	711
18	中国	Fudan Univ	707
19	韓国	Korea Univ	688
20	米国	Univ Texas	655

出所:ナノカーボンに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

## (2) 諸外国の技術開発動向

米国や欧州ではCNTやグラフェンなどの各材料に特化した研究拠点が形成されており、基礎研究を牽引している。(表4)

表4 諸外国の技術開発動向の特徴

米国	CNT研究で実績を挙げていた大学(ライス大学、MIT など)が牽引。IBMはCNT製トランジスタを使い、世界で初めて基本的な動作を可能に。CNTの純度を99.99%に高める技術も開発済みで、10nmまで微細化できることを実証済。基礎研究とアプリケーションを睨んだ開発が同時に進行。
欧州	グラフェン研究のフロンティアとして基礎研究に強み。各国の拠点的研究機関と連携し(ドイツ:マックスプランク研究所、オランダ:デルフト工科大学など)、活発な研究が展開されている。
韓国	研究拠点(KAIST、POSTEC、成均館大)が官・学に形成され、産業界とも連携して研究が急速に進展。電子デバイス応用に向けた材料研究も盛ん。CVD法により大面積のグラフェンを作製し透明導電膜を目標に見据えたグラフェン応用研究が盛ん(サムスン)。
中国	研究者数、論文数は飛躍的に増加。量的観点から見れば世界的な一極を占めている。中国科学アカデミー(CAS)、精華大学などが拠点となり、裾野も広がっている。

出所:CRDS「ナノテクノロジー・材料分野 科学技術・研究開発の国際比較2011年版」を基にNEDO 技術戦略研究センター作成 (2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## (3) 諸外国の公的支援

諸外国及び日本のナノカーボン研究への公的支援の状況を表5に示す。欧州、韓国、英国及びシンガポールではグラフェンのみへの研究開発支援が行われている。我が国の支援額は必ずしも多くはないが、支援対象となる研究テーマはグラフェンよりもCNTに関する内容が多い傾向にある。

表5 諸外国の公的支援

国・地域	プロジェクト名、又は団体名	研究開発費	ナノカーボン種類
欧州	Graphene Flagship	約1400億円	グラフェン
米国	ナノテク国家戦略に基づいて、DOD/DOE等が各種研究開発を実施	詳細不明	CNTとグラフェンを含むナノ材料
韓国	Graphene Mat. And Comp. Commercialization Projectなど	約510億円以上	グラフェン
日本	低炭素社会を実現する革新的CNT複合材料開発Project/ナノ炭素材料実用化Project	約120億円	CNTとグラフェン
	新学術領域研究/原子層科学	約10億円	グラフェン
	CREST/次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する革新材料・プロセス研究	1課題あたり0.3～1億円	CNTとグラフェンを含むナノ材料
英国	Graphene Hubなど	約103億円	グラフェン
シンガポール	特別な名称は無し	約80億円	グラフェン
ドイツ	The Innovation Alliance Carbon Nanotubes	約70億円	CNT
中国	国家重点基礎研究発展計画(973計画)	非公開	グラフェンとCNT

出所:各所公表資料を基に、NEDO技術戦略研究センター作成(2014)

## 2 -2 我が国のナノカーボン研究の置かれた状況

### (1) ナノカーボン研究の状況

我が国は、ナノカーボン研究のうち、eDIPs法やSG法などの合成技術をはじめとする単層CNTの製造技術力が高く、また国内メーカーによる量産化の準備が進んでいる。しかし、近年は諸外国も研究開発を活性化しており、今後の競争はますます激化していく状況にあるため、我が国の製造技術力を引き続き保つことが必要である。

諸外国では、特にグラフェンに対する公的資金の投入が大きく(欧州のGraphene Flagshipなど)、大きな成果が報告されている。現状のままでは我が国は海外勢に対して遅れをとる可能性があり、将来、産業化が進展した場合、特に、大きな市場である透明電極やエレクトロニクス関連等のマーケットを失うことが懸念される。

ここではナノカーボン材料のうち、単層CNTとグラフェンについて、更に詳細な調査を行った結果を示す。

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## (2) 単層CNT

### ①単層CNTに関する出願人国籍別の特許出願動向

世界全体での出願件数は2006年をピークに減少している。一方で、韓国及び中国は出願件数が増加傾向にある。国籍別出願比率

では、米国の出願が圧倒的に多い。我が国は出願件数では米国に及ばないものの、産総研によるeDIPS法やSG法などの製造方法に関する強力な特許を有していることが強みである。(図8、図9)

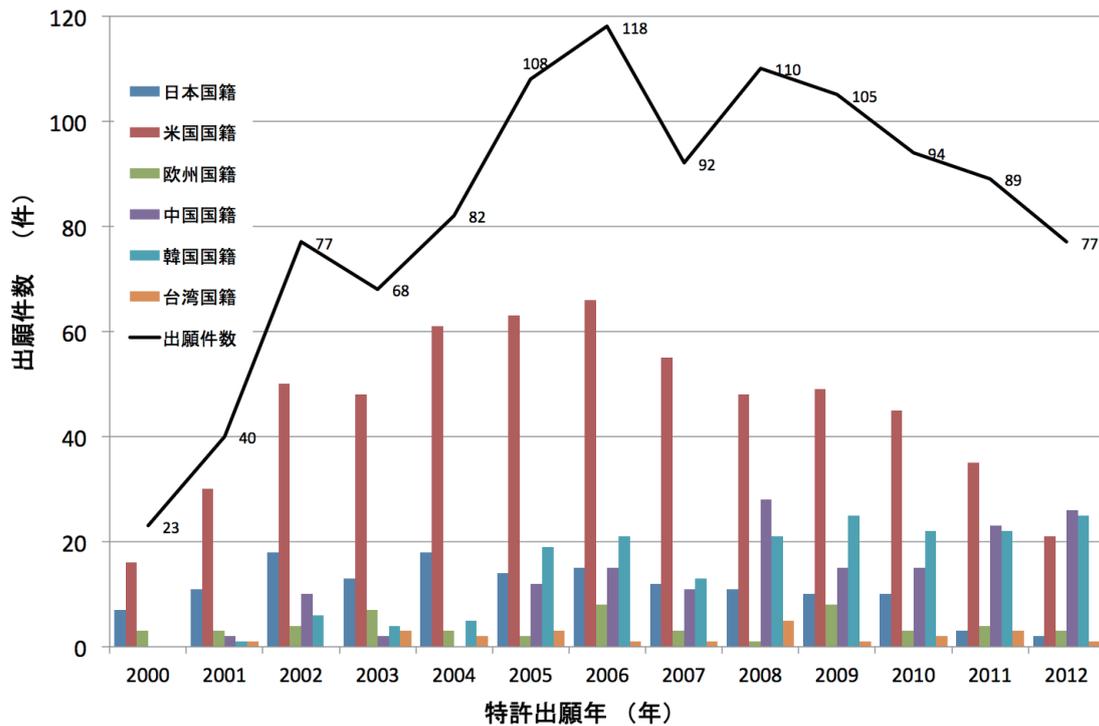


図8 単層CNTに関する出願人国籍別の特許出願件数推移

出所: 単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

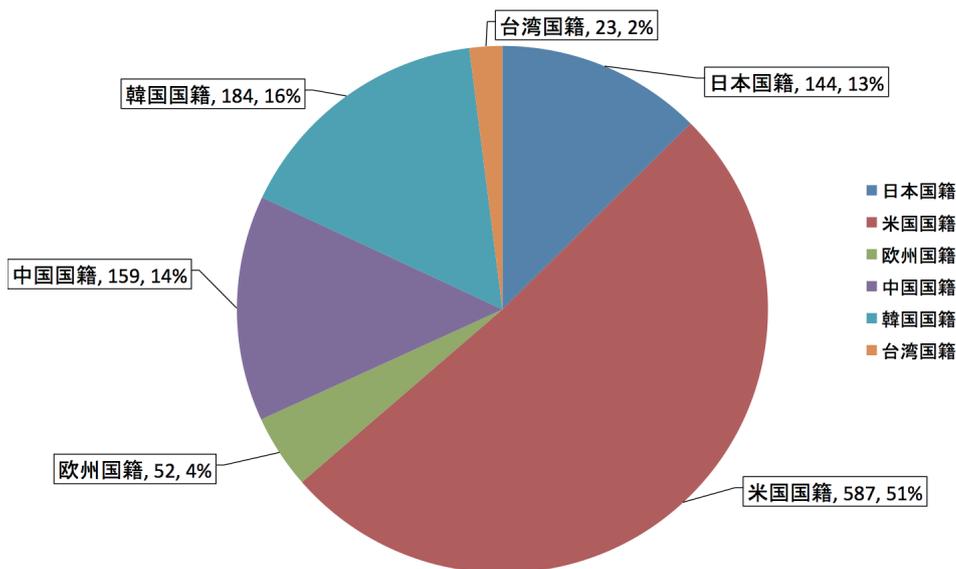


図9 単層CNTに関する出願人国籍別の出願件数・比率 (2000～2012年)

出所: 単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

我が国における単層CNTの出願人別特許出願件数は産総研が突出している。これは前述のように同所がSG法やeDIPS法などの製造方法に関する特許を有することによるものと考えられる。科学技術振興機構の出願件数がこれに続いており、表5と合すると我が国の公的支援による研究開発の知財化が有効に機能していることが推測される。米国ではライス大学が突出しており、同国における単層CNTの中心的な研究機関であることがうかがえる。(図10)

単層CNTに関する技術区分別の出願数を見ると、米国は出願分

野が幅広く、件数も多い。また各国とも、ナノカーボン全体の出願傾向と同様に、ナノ炭素材料、製法や特性の向上、加工・改質方法及び成形・接合の出願割合が高い傾向にある。(図11)

製造方法別の出願数については、米国はアーク放電法とプラズマ法を中心に多岐に渡る製造技術に多くの出願がある一方で、日本はプラズマ法、接触分解法に比較的強みがある。中国はアーク放電法以外の出願は極めて少ない。欧州は、製造方法の出願が全体的に少ない。(図12)

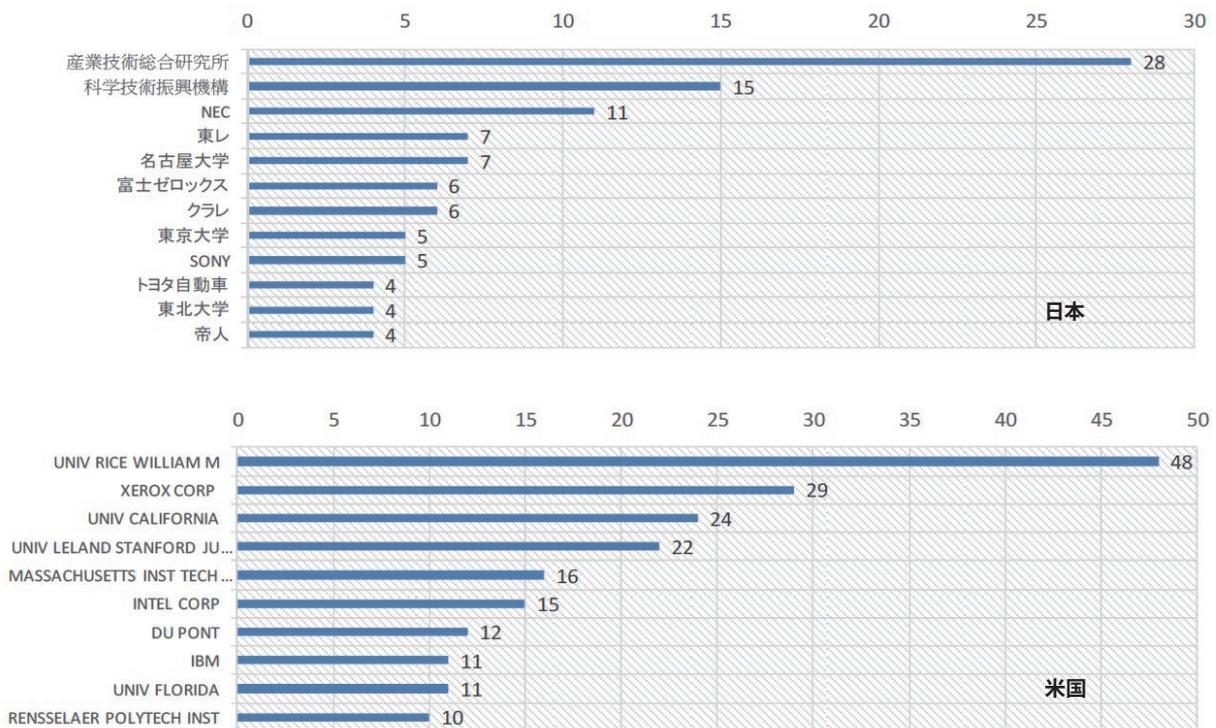


図10 単層CNTに関する日本国籍及び米国籍の出願人別出願件数ランキング (2000～2012年) (上図：日本、下図：米国)  
出所：単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

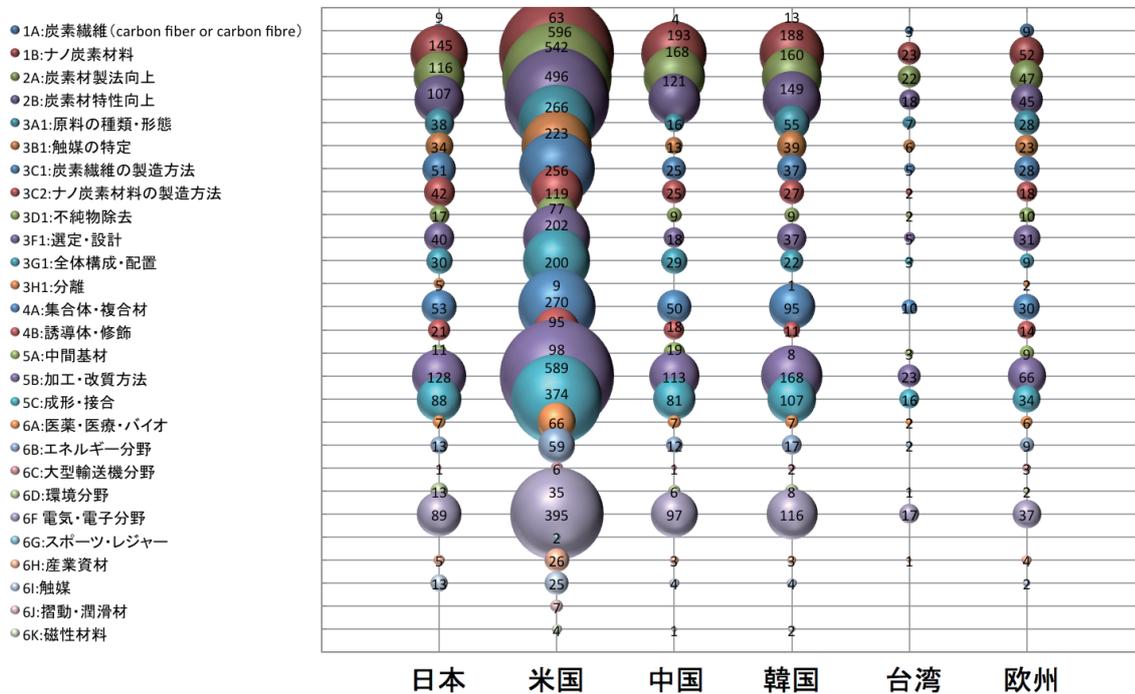


図11 単層CNTに関する特許出願における出願人国籍別及び技術区分別の出願件数 (2000～2012年)  
出所: 単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

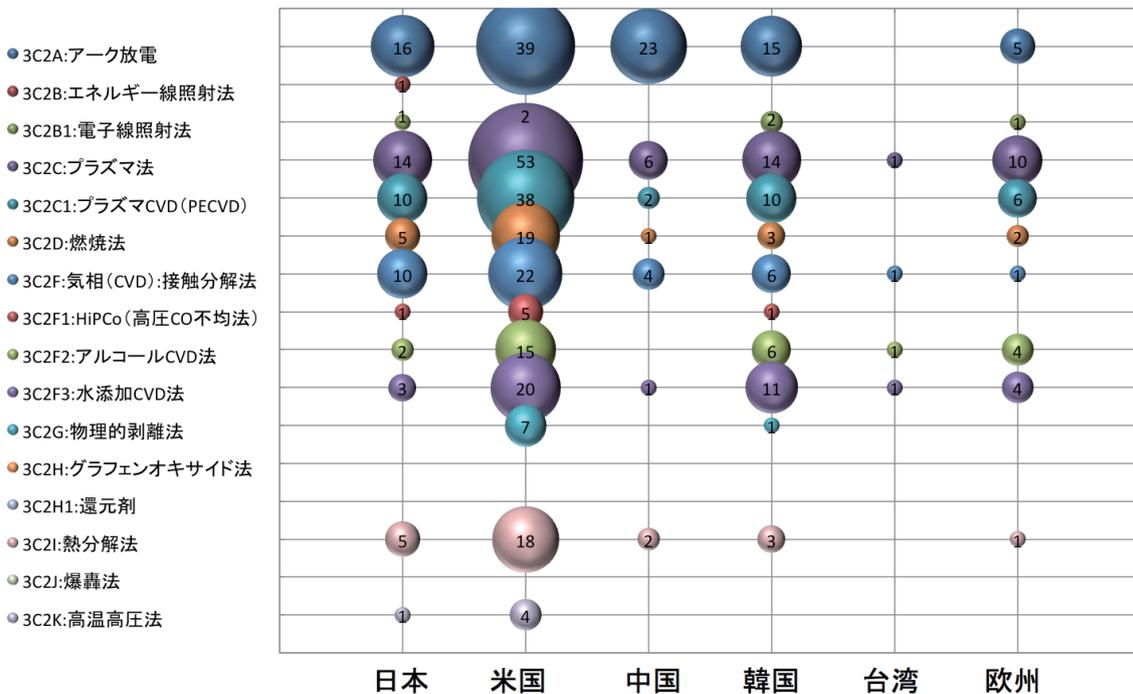


図12 単層CNTに関する特許出願における出願人国籍別及び製造方法別の出願件数 (2000～2012年)  
出所: 単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ②単層CNTに関する発表者国籍別の論文発表動向

発表者国籍別の論文発表件数総数は、2009年をピークに減少しており、日本からの発表件数の減少傾向を反映している。ただし、2000～2014年の日本からの発表件数総数は依然一位であり、特に、科学技術振興機構、産業技術総合研究所など国の研究機関からの発表件数が多いことから、これらの機関への公的資金の効果が

大きいことがうかがえる。米国では、前述のように特許出願件数は他国より圧倒的に多いが、論文発表件数は3位（4位の中国とほぼ同等）であり、単層CNTに関しては基礎研究よりも産業応用が主となっているものと考えられる。欧州、中国からの発表件数は、わずかながら年々増加傾向にある。（図13、図14、図15）

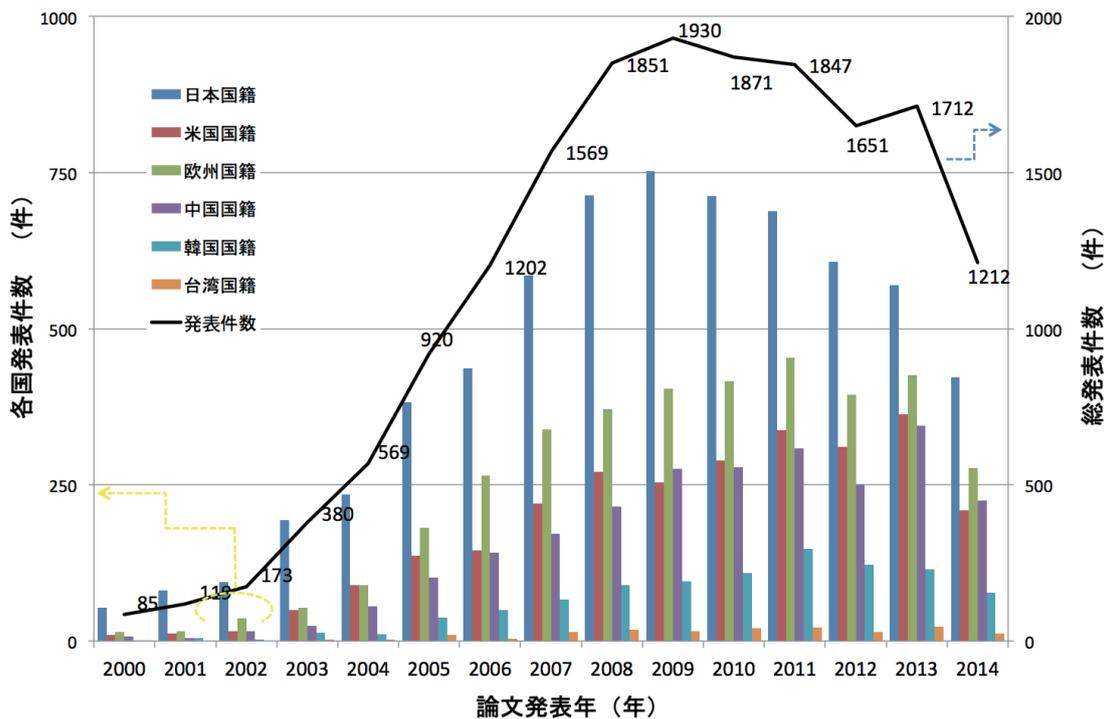


図13 単層CNTに関する発表者国籍別の論文発表件数推移

出所：単層CNTに関する出願状況調査（NEDO, 2014）

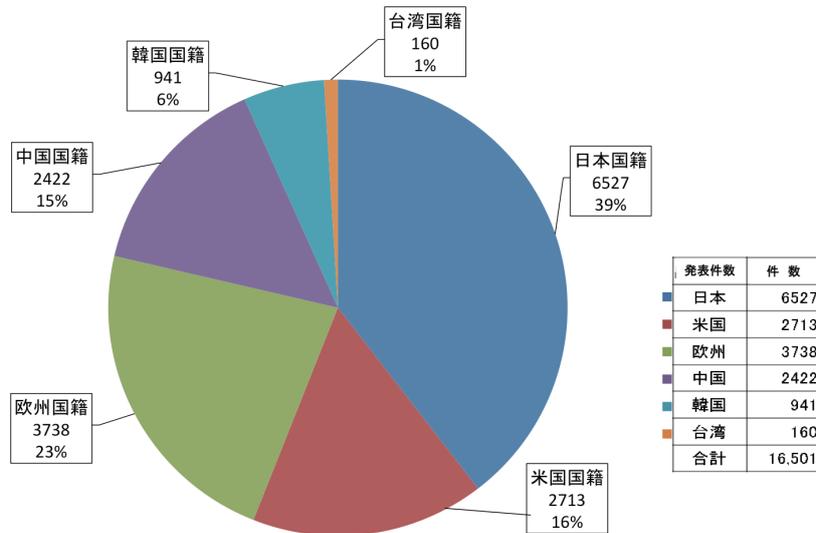


図14 単層CNTに関する発表者国籍別の論文発表件数・比率（2000～2014年）

出所：単層CNTに関する出願状況調査（NEDO, 2014）

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

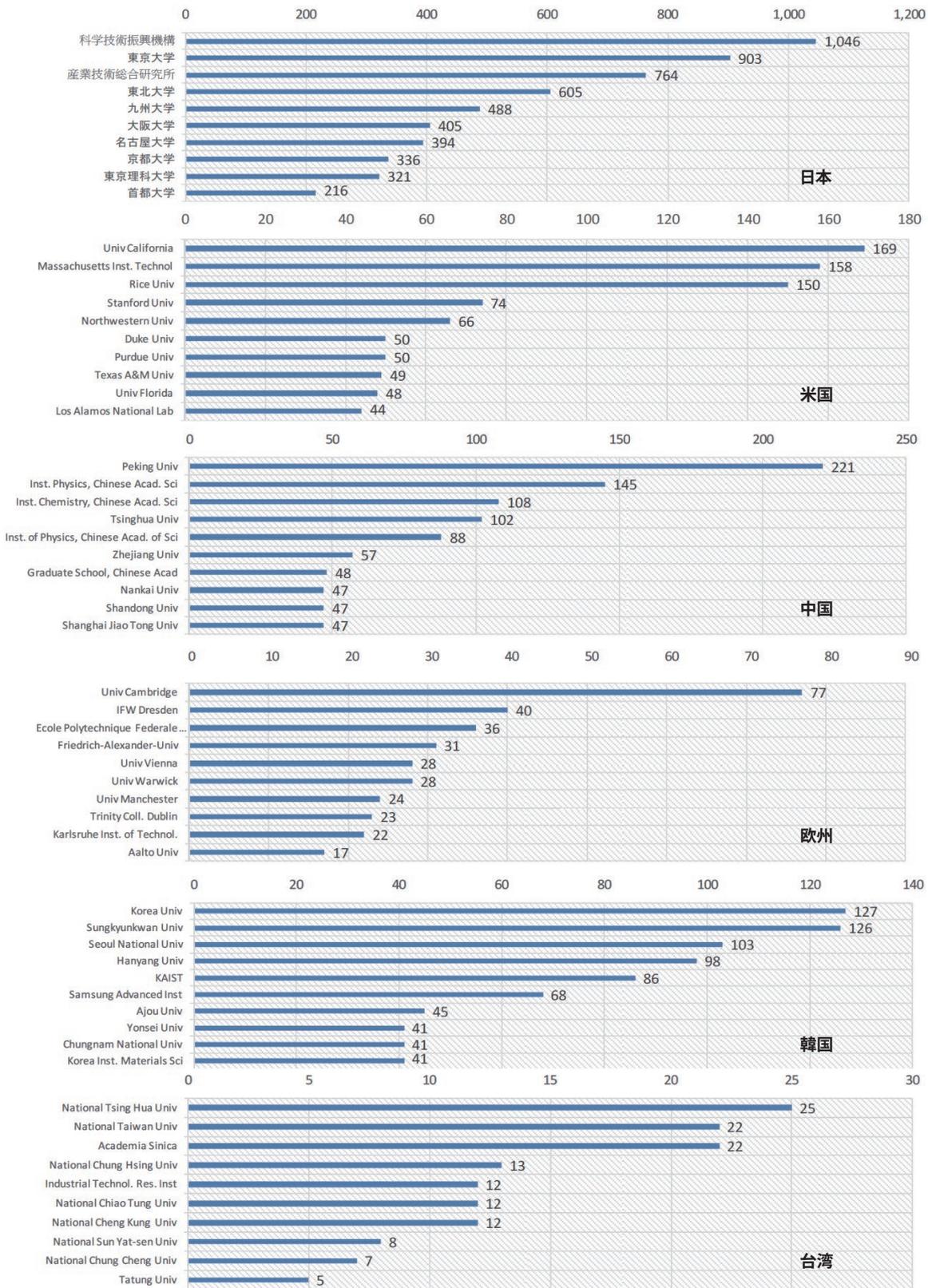


図 15 単層CNTに関する発表者国籍別及び機関別の論文発表件数ランキング (2000 ~ 2014年)  
 出所: CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## (3) グラフェン

### ① グラフェンに関する出願人国籍別の特許出願動向

2010年以降、中国からの特許出願件数が急激に増加している。その結果、2012年時点で中国は2000年以降の特許出願総数が1位となった。重要特許がどれくらいの割合で存在するかまでの分析

は困難であるが、今後の脅威となる可能性が高い。出願総数は中国の次に米国、日本、韓国と続く。欧州は公的資金の投入が多いにもかかわらず、特許出願件数は少ない。日本、米国ともに出願人別出願件数の上位には、電子デバイスメーカーや研究機関が並ぶ(図16、図17、図18)。

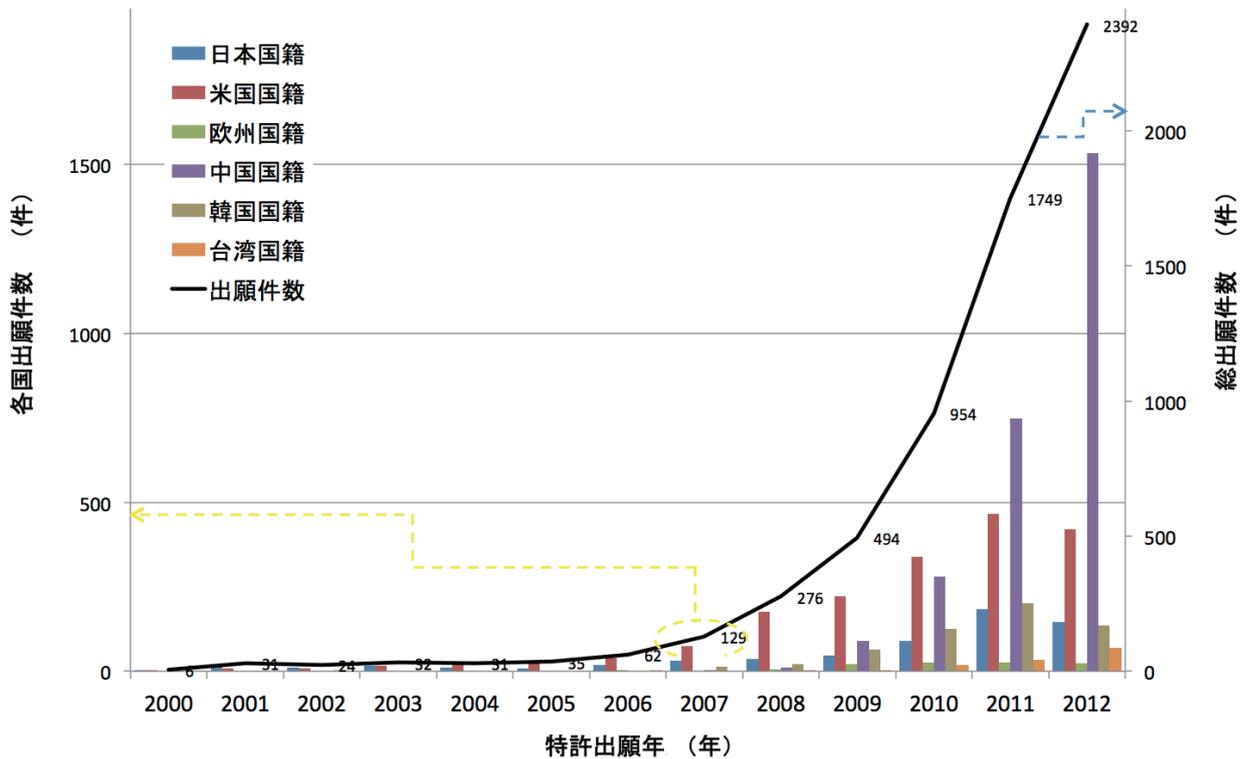


図16 グラフェンに関する出願人国籍別の特許出願件数推移

出所: ナノカーボン(グラフェン)に関する出願状況調査(NEDO, 2014)

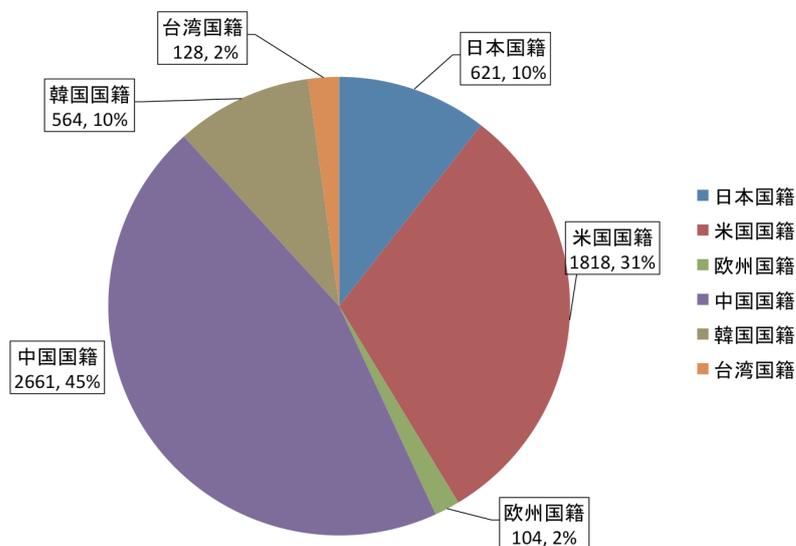


図17 グラフェンに関する出願人国籍別の出願件数・比率(2000～2012年)

出所: ナノカーボン(グラフェン)に関する出願状況調査(NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

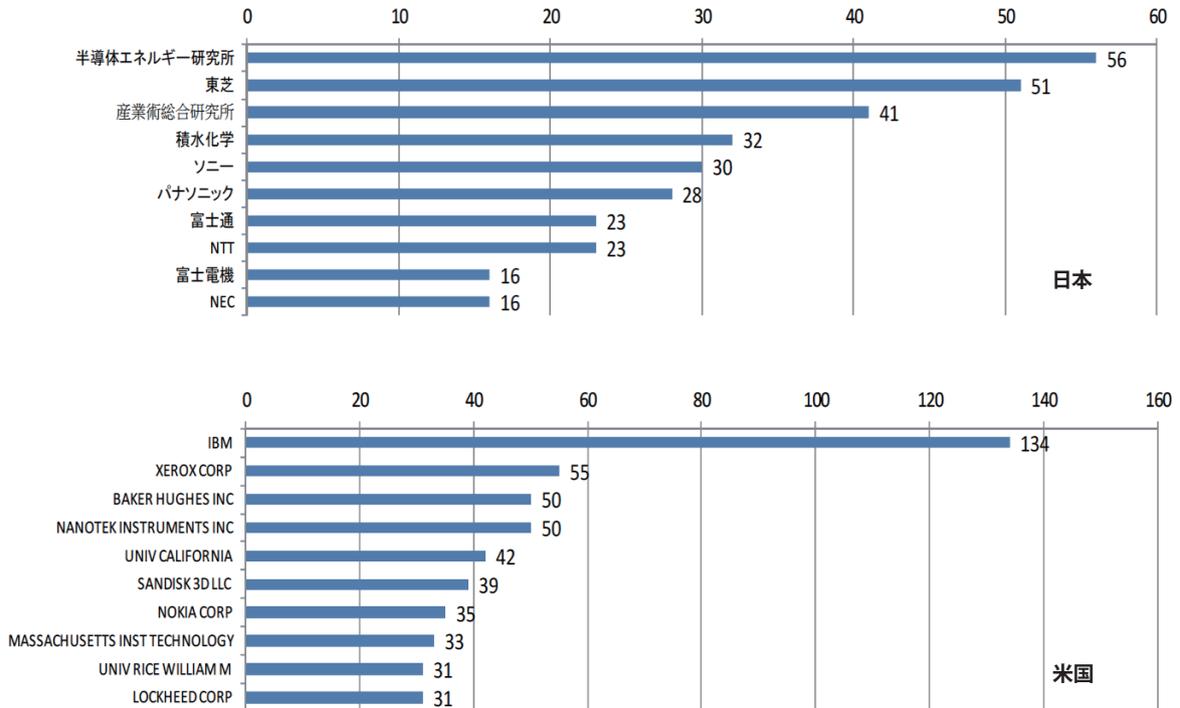


図18 グラフェンに関する日本国籍及び米国籍の出願人別出願件数ランキング (2000～2012年) (上図：日本、下図：米国)  
出所：ナノカーボン（グラフェン）に関する出願状況調査（NEDO, 2014）

出願総数が圧倒的に多い中国の技術区分別の出願数は、製法向上、特性向上、加工・改質方法、成形・接合に関するものが多い。米国も同様の技術区分への出願が比較的多いが、中国よりも広い範囲で出願されている。日本や欧州も米国と同様の傾向にあるが、出願数自体が少ない。(図19)

製造方法別の出願については、日本は主にアーク放電、プラズマ法、気相(CVD)・接触分解法に集中している。中国は、全体の出願数は少ないが、高温高压法に関する出願数の割合が他国に比べて高いことが特徴である。欧州は製造方法に関する出願自体が非常に少ない。(図20)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

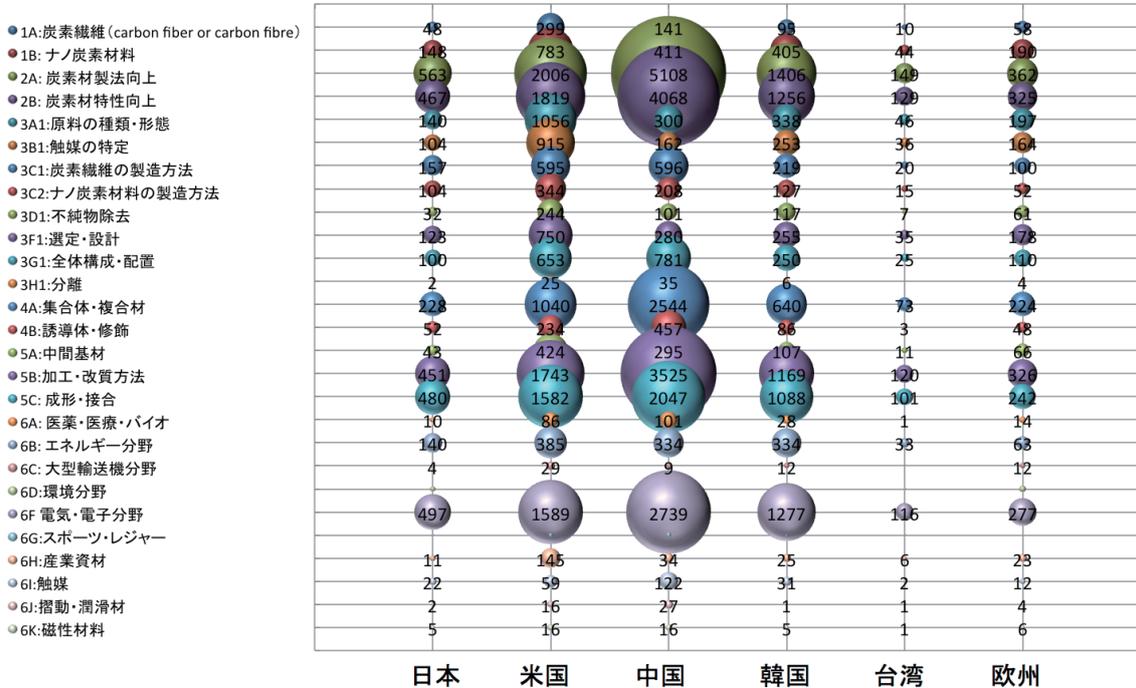


図19 グラフェンに関する特許出願における出願人国籍別及び技術区分別の出願件数 (2000～2012年)  
出所:ナノカーボン(グラフェン)に関する出願状況調査(NEDO, 2014)

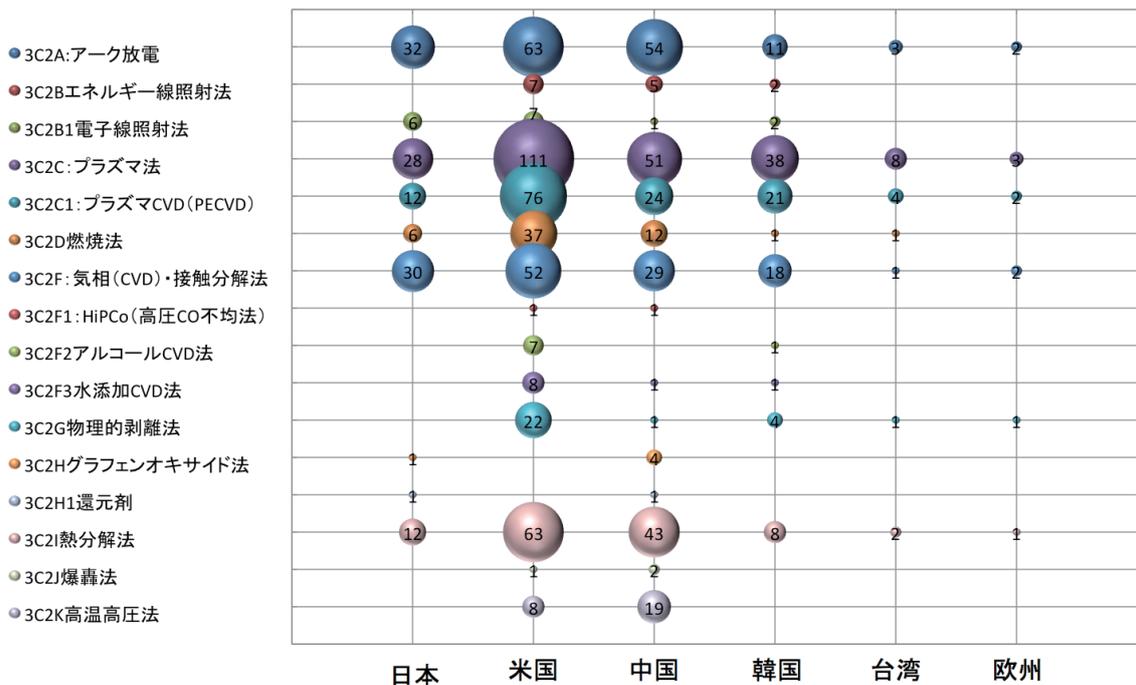


図20 グラフェンに関する特許出願における出願人国籍別及び製造方法別の出願件数 (2000～2012年)  
出所:ナノカーボン(グラフェン)に関する出願状況調査(NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ②グラフェンの発表者国籍別の論文発表動向

特許出願件数の動向と同様に2010年以降、中国からの論文発表件数が急激に増加しており、総論文数の増大に寄与している。(図21)

日本は公的資金の投入が少ないにもかかわらず、総論文数は中国、欧州に次いで3番目の位置につけている。欧州では公的資金の多くが基礎研究に費やされていると推測され、特許件数が少ないこと

とは対照的に、総論文数は中国とほぼ互角である。研究開発力は非常に高いが、産業化の推進における弱点があるのではないかと考えられる。また、米国の総論文数は多くはないが、早い時期から欧州と同等数の論文が発表されていることから、基礎的かつ重要度の高い論文が多いと推測される。(図22)

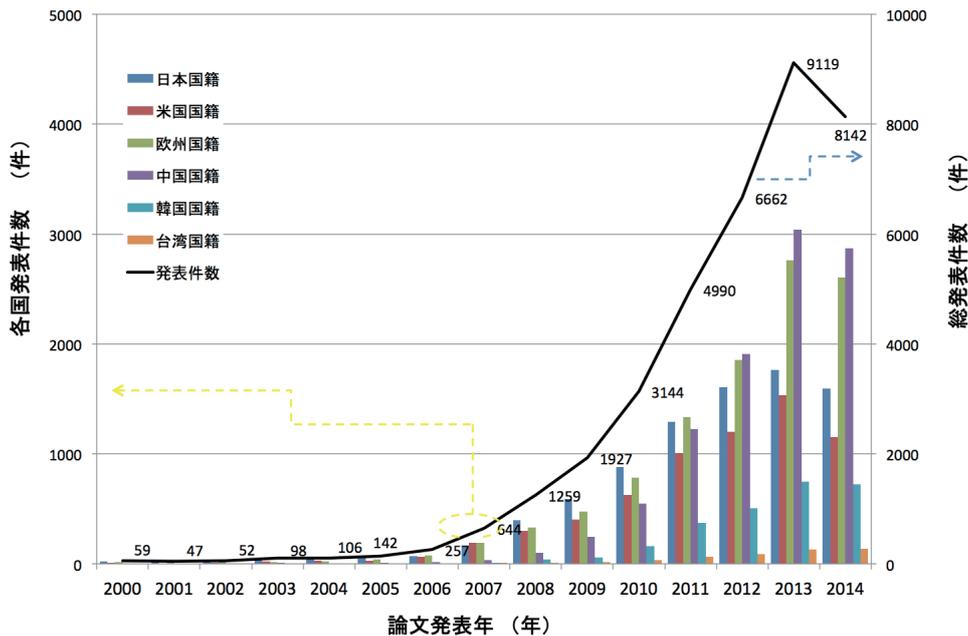


図21 グラフェンに関する発表者国籍別の論文発表件数推移

出所: ナノカーボン (グラフェン) に関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

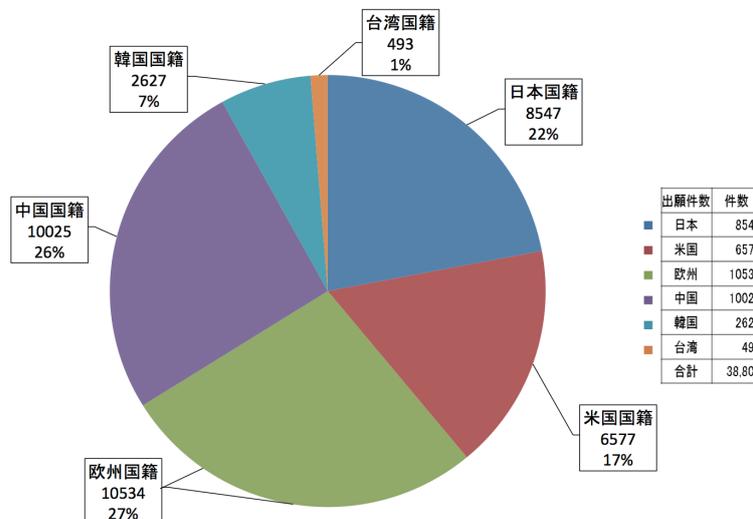


図22 グラフェンに関する発表者国籍別の論文発表件数・比率

出所: ナノカーボン (グラフェン) に関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

論文発表件数の多い研究機関は、日本、米国、中国においては特定の機関に集中している（日本は東京大学、米国はカリフォルニア

大学とテキサス大学、中国は北京大学）のに対し、欧州においては多くの機関に分散している傾向がある。（図23）

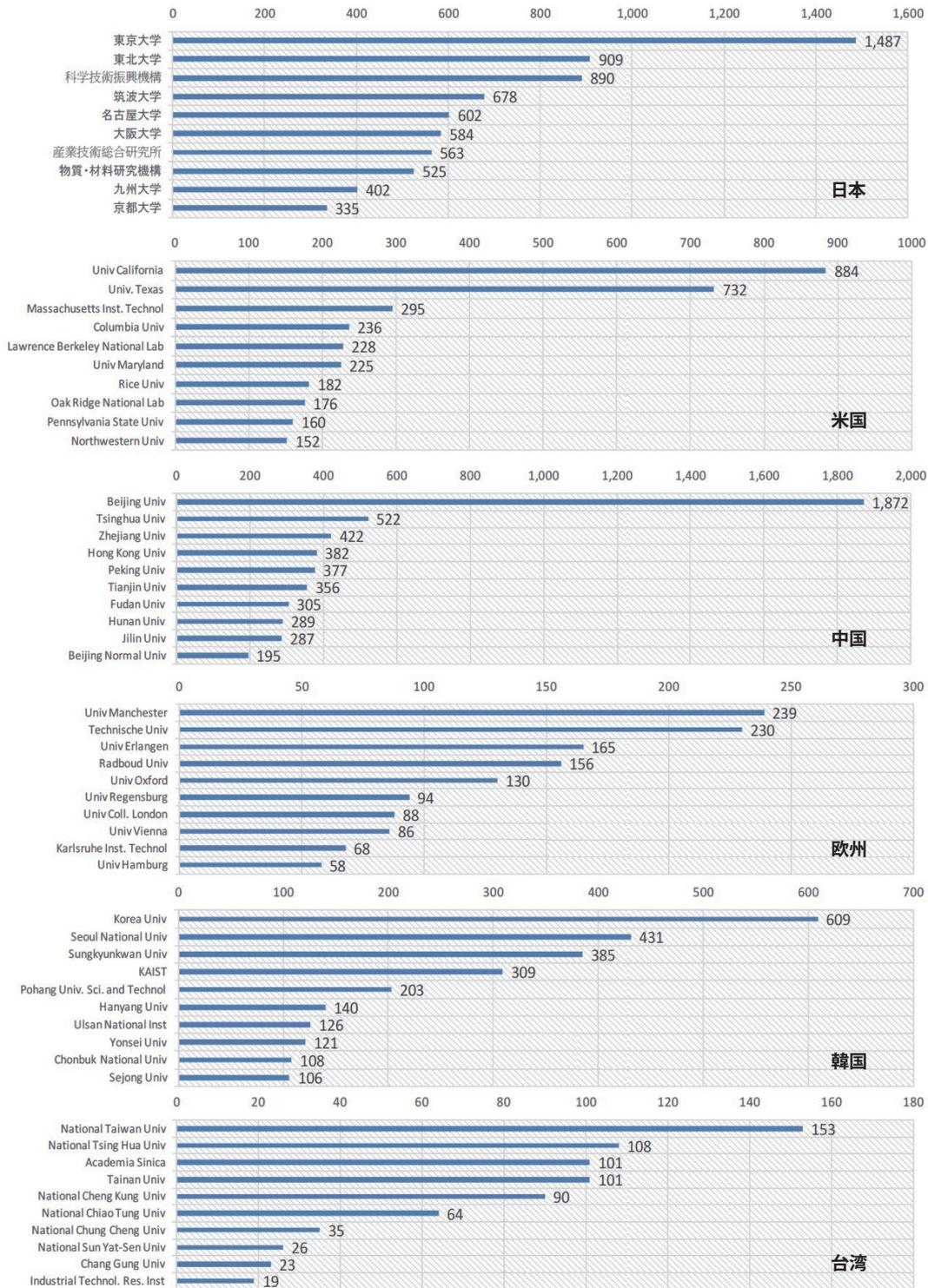


図23 グラフェンに関する発表者国籍別及び機関別の論文発表件数ランキング（2000～2014年）  
出所：ナノカーボン（グラフェン）に関する出願状況調査（NEDO, 2014）

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ③ グラフェン研究の状況

我が国のグラフェン研究に対する公的資金の投入額はCNTに比べて少ないものの、図24に示すように日本人研究者の論文数や被引用数は非常に多いことから、我が国のグラフェンに対する研究開発力は決して劣っていないと考えられる。

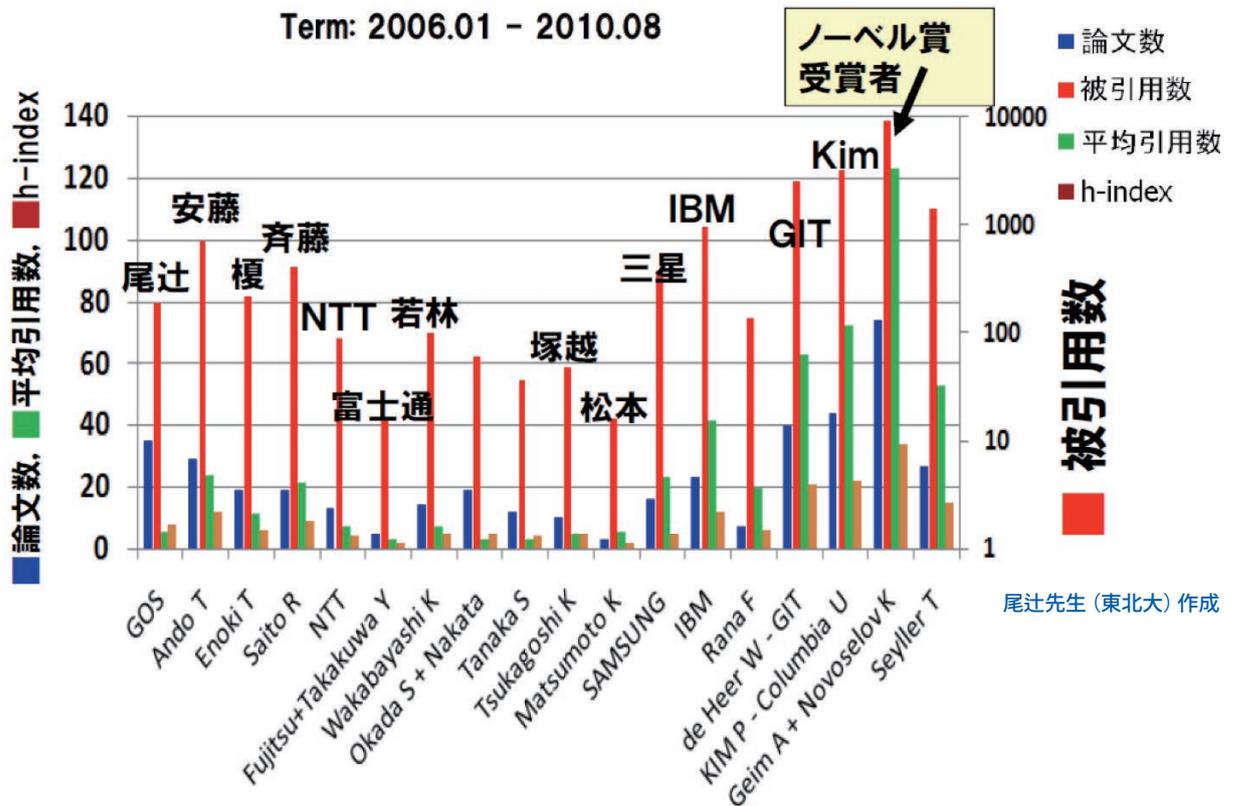


図24 グラフェン研究者又は研究機関の論文発表件数及び重要度の比較

出所:平成24年 総合科学技術会議 科学技術イノベーション政策推進専門調査会  
ナノテクノロジー・材料共通基盤技術 検討ワーキンググループ (第7回) 資料3-9

※ Ando T.:安藤恒也 (東工大) 文科省科学研究費補助金 (文部科学省基盤研究) グラフェン系の光応答と電気伝導:2010-2012年度 (代表:安藤恒也)  
グラフェン系の特異な量子輸送現象:2007-2009年度 (代表:安藤恒也)  
※ Saito R.:斎藤理一郎 (東北大) 原子層科学:平成25-29年度 ((文部科学省新領域研究)  
※ GOS:尾辻泰一 (東北大) グラフェン・オン・シリコン材料・デバイス技術の開発  
平成19-25年 (科学技術振興機構戦略的創造研究推進事業 CREST)  
※ h-index: 研究者の発表論文を被引用数の多い順に並べて順位付けし、その順位>被引用数となるとき順位をh-indexと定義。

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## 2 -3 ナノカーボンの産業競争力 (諸外国との比較)

我が国におけるCNT及びグラフェンの産業競争力を把握・予測するために、プレイヤー、市場規模、用途等について調査を行った結果を示す。

### (1) CNT

#### ①プレイヤー

主なCNT製造企業を表6に示す。製造規模の大きな企業はCNano Technology (米国)、昭和電工 (日本) であり、多層CNTを市場に供給している。CNano Technologyは中国で生産することにより、コストを低減している。また、海外では、多層CNTを製造する企業が単層CNTの製造も手がける傾向にある一方、日本企業は単層CNT、多層CNTいずれかの専業となる傾向にある。

表6 主なCNT製造企業

地域	企業名(国)	CNT種類	生産能力(千/年)	備考
日本	名城ナノカーボン	単層	2	名城大ベンチャー。産総研と共同研究でeDIPS法の工業生産プラントを設立。
	日本ゼオン	単層		山口県徳山工場内にSG法の製造プラント建設を決定。2015年下期に量産開始予定。
	宇部興産	多層	20	2011年11月販売開始。
	昭和電工	多層	400	直径150nm。炭素含有率99%以上。生産拠点は川崎。
	保土谷化学工業	多層	—	生産拠点は郡山。
	JFEエンジニアリング	多層	—	アーク放電法による製造。
北米	SouthWest NanoTechnologies (米国)	単層	—	CVD法による製造。粒径制御、プリント用インク等の用途。
	CNano Technology (米国)	多層	500	生産拠点は中国。市場平均価格の1/2~1/3で販売。丸紅情報システムズと用途共同開発。\$100/kg、純度95%。
	Hyperion Catalysis International (米国)	多層	40	1984年の物質特許の他、製法、応用の特許を取得。CNT単体でなくマスターバッチ、コンパウンドにて販売。
	Nanographite Materials (米国)	多層	—	直径60-80nm。日本ではGSIクレオスが供給元。カーボンナノファイバも販売。
	BuckyUSA (米国)	単層・多層	—	多層CNT:直径5-15nm、単層CNT:直径0.7-2.5nm。フラーレンも販売。
	Carbon Nanotechnologies (米国)	単層・多層	—	High Pressure Carbon Monoxide (HiPco) プロセス。純度95%以上。
	Unidym (米国)	単層・多層	10	CNTベンチャー。High Pressure Carbon Monoxide (HiPco) プロセス。
	Cheap Tubes (米国)	単層・2層・多層	—	グラフェンも販売。
	Nanoresearch (カナダ)	単層	—	旧名称はSES Research。フラーレンも販売。
欧州	Thomas Swan (英国)	単層・多層	(6kg/月)	インキュベーション事業。
	Bayer MaterialScience (ドイツ)	多層・単層	260	「Baytubes」の商品名で販売。純度99%以上。
	Nanocyl (ベルギー)	多層・単層	40	工業向け用途の他、研究用試料も販売。
アジア	成都有機化学 (中国)	単層	—	Chinese Acad. Inst. Chemistryの技術を採用。
	Sun Nanotech (中国)	単層・多層	—	CVD法による製造。純度80%以上(通常品)と90%以上(高純度品)の両方を販売。
	Shenzhen Nanotech Port (中国)	単層・多層	—	純度90%。

出所:平成23年度 特許出願技術動向調査報告書(炭素材料及びその応用技術)(特許庁)等を基にNEDO技術戦略研究センター作成(2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ②世界市場規模推移及び予測

2014年のCNTの世界市場は約34億円となっているが、図25に示すように、今後は海外市場を中心に、2020年に約290億円、2030年に約660億円規模へと急激な拡大が予測される。その要因として、後述するようにCNTの用途先市場の拡大が挙げられる。

中でも、表10に示すように、大きな伸び率が予想される電気二重層キャパシタやリチウムイオン電池 (LiB) 負極材等の電極用途の他、もともと市場の大きな自動車用ケーブルへの適用も期待される。

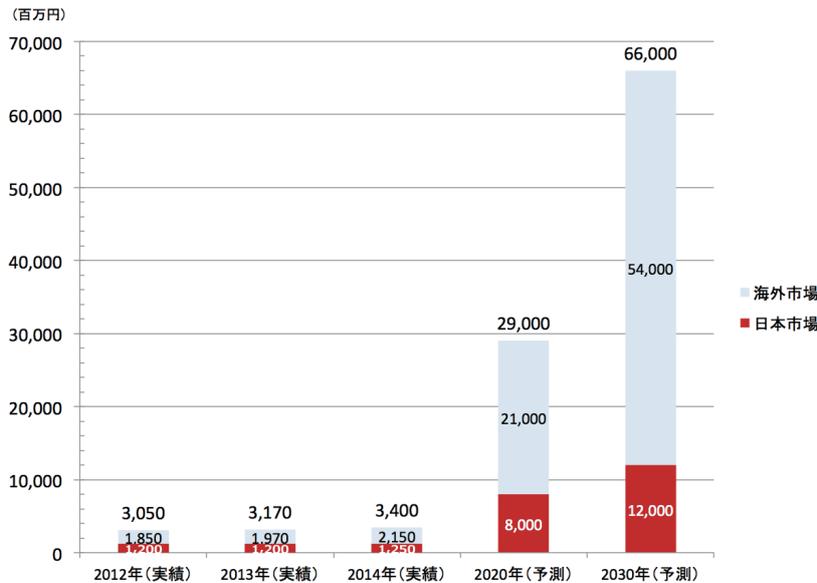
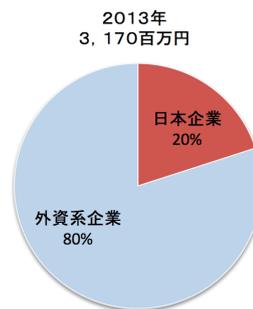


図25 CNTの世界市場規模推移及び予測

出所:平成23年度 特許出願動向調査報告書(特許庁)よりNEDO技術戦略研究センター算出(NEDO, 2014)

## ③日本企業シェア及び優位性

昭和電工が直径150nm程度の多層CNTを製造しており、リチウムイオン電池(LiB)電極材としての高い評価を受けているなど、外資系企業に比べて日本企業は材料性能面での優位性がある。一方、外資系企業は、早期に搬送用トレーなどに用いる樹脂の添加剤用CNTの大量合成に対応しており、また大規模プラントの建設実績があるなど、価格面での優位性がある。(図26)



日系企業の優位性	外資系企業の優位性
<ul style="list-style-type: none"> <li>・昭和電工は、150nm近辺の径を有し、市場では電池の負極や粒子径の大きい正極材料向けとしての評価が高い。</li> <li>・昭和電工等、日本企業は、負極向けの導電助剤用を中心とした材料面の技術面(導電性機能等)の優位性がある。</li> <li>・課題は、材料としては外資系企業と比較して優位性があるが、大量合成ができないため、応用開発が進んでいない点があげられる。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・外資系企業は搬送用トレー、自動車等の樹脂添加用途に関しての技術面と大量合成への対応が早い点で優位性がある。</li> <li>・なお、外資系企業は、参入当初から価格を下げるため大規模なプラント建設を実施した経緯がある。</li> </ul>

図26 CNTの日本企業シェア及び優位性

出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集(NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ④分野別用途

想定されるCNTの応用分野と用途は、CNTの高強度、軽量、高熱伝導、高電流密度といった特性、及び電気・電子的な特性がそれぞれ多方面で優位性を発揮できるため、図27のように多岐にわたる。

既存用途には、主に帯電防止用のトレイ、リチウムイオン電池(LiB)の負極材、自動車用燃料チューブ等がある。(表7)

現在、各社が新しい用途を模索しており、欧州ではプラスチックコンパウンドやセメント等への応用なども検討されている。また、高容量の電池やキャパシタ用途などで評価されれば、当該市場の拡大につながる。また、研究開発段階の想定用途としては、主に電池分野の合金系の負極材、シリコン代替半導体回路、フレキシブル電気回路、高性能熱交換器等がある。

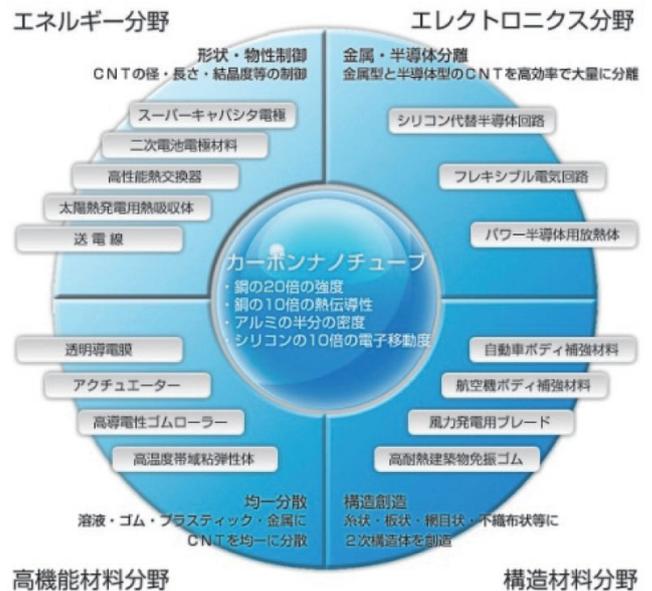


図27 CNTの応用分野と用途

出所:産業技術総合研究所  
ナノチューブ応用研究センター  
WEBサイト (2014)

表7 CNTの分野別用途

分野	具体的用途例	備考 (動向等)
エレクトロニクス	・透明導電フィルム ・半導体微細構造の金属配線やビア配線 ・平面型ディスプレイ等のための電界放出電子源	・中国ではカーボンナノチューブを使用した透明導電フィルムを使用したスマートフォン用のタッチパネルが製造されるなど商業化が進んでいる。 ・東レは、世界で初めて2層カーボンナノチューブを使った透明導電フィルムの量産技術を確立している。
構造材料	・スポーツ用筐体 ・強化用コンパウンド、セメント ・宇宙用エレベータ(建造時のロープの素材)	・東欧地域では、プラスチックコンパウンドやセメントに添加する事で、着色(黒色)と強度アップ(10%程度)になる事から採用されている。 ・スポーツ用の強化材料は中国やその他アジア地域での需要が多い。
エネルギー	・LiB 用導電助剤(負極材用、LFP(リン酸鉄リチウム)正極材用) ・電気二重層キャパシタ ・燃料電池電極(電極触媒担体) ・太陽電池電極 他	・電池向けでは、もともと球状黒鉛負極などの導電助剤向けに利用されてきたが、コストダウンの方向性から削減の方向にある。一方、Si やスズなどを添加したハイブリッド系負極用の助剤に採用されており、又、LFP の正極材料向けにも採用されている。これは中国で市場が先行している。
高機能材料	・搬送用トレイ(HGAトレイ) ・自動車(燃料チューブ、フューエルポンプ、静電塗料用)	・搬送用トレイ等の帯電防止用途は中国やその他アジア地域(大半が中国)での数量が多い。 ・欧米では主に自動車に利用されており、燃料チューブやフューエルポンプ、静電塗料用の外板(バンパー、フェンダー)に応用されている。日本でも一部、燃料チューブなどでの適用事例がある。

出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## (2) グラフェン

### ① プレイヤー

主なグラフェン製造企業を表8に示す。先行して市場に参入したのは欧米企業であり、各国の主要企業は、XG Sciences(米国)、Graphenea(スペイン)、Applied Graphene Materials(英国)などである。最近では韓国、マレーシア、中国等のアジア企業の参入が増えている。特に、鉄鋼業大手のポスコ(韓国)が数年前にXG Sciencesの筆頭株主となり、韓国内にグラフェン工場を設立する動きがある。日本企業では、グラフェンプラットフォーム、インキュベーション・アライアンス、

仁科マテリアル等のベンチャー企業が販売を開始している。

なお、現在の主要参入企業は、主にパウダー状のグラフェンを製造しているが、Graphenea(スペイン)、Graphene Master(オランダ)など、膜状のグラフェンを製造する企業も現れてきている。

その他、グラフェンとグラファイトの間に近い材料である高分子焼成グラファイトがパナソニックとカネカの2社で開発されており、スマートフォンなどの放熱シートとして実用化に成功している。この材料は日本独自のものであり、グラフェン数百層の厚みがあるものの、グラフェンに近い優れた熱伝導特性を生かした製品のひとつである。

表8 主なグラフェン製造企業

地域	企業名 (国名)	備考
日本	グラフェンプラットフォーム	グラフェンインク。東工大横浜ベンチャープラザ内R&Dセンター。
	インキュベーション・アライアンス	グラフェンフラワー。高速CVDプロセスの開発に成功。
	仁科マテリアル	機能付酸化グラフェン、有機溶媒分散型酸化グラフェン等作成。
	アイテック	iGurafen- $\alpha$ 、複層構造のグラフェンコンポジットシート。
北米	XG Sciences (米国)	鱗片状グラフェン粉末、ポスコ(韓国)の傘下。
	Nanoltegris (米国)	ナノグラフェン水溶液。MONO(1~2層)、QUATTRO(3~4層)。
	Graphene Laboratory (米国)	3Dプリント用などの開発。
	American Graphite Technologies (米国)	3Dプリント用などの開発。
	Lomiko Metals (カナダ)	グラファイト、グラフェン、3Dプリント用などの開発。
欧州	Graphenea (スペイン)	酸化グラフェン、CVDによるグラフェン単層膜を販売。
	Graphene Nanotech (スペイン)	化学的剥離法による単層グラフェンなど。
	Graphos (イタリア)	酸化グラフェン。300 $\mu$ mサイズまで製造可能。
	Graphene Master (オランダ)	単結晶グラフェン膜。CVDによる高面積成長。
	Hqgraphene (オランダ)	2次元材料結晶を販売、剥離グラフェンも取り扱い材料の一つ。
	Applied Graphene Materials (英国)	ボトムアッププロセスによるグラフェンパウダー製造。
	Haydale Graphene Industries (英国)	低温プラズマ法によるグラフェン。CNTも製造。
アジア	Cientifica (英国)	—
	Graphene NanoChem (マレーシア)	—
	The Sixth Element (Changzhou) Materials Technology (中国)	酸化グラフェン、グラフェンパウダー販売。生産能力100t/年。
	Ninbo Morsh Technology (中国)	2013年に300 t /年のグラフェン製造ラインを構築。
Samsung Techwin (韓国)	30インチグラフェン膜(透明電極用)をソウル国立大と共同研究。	

出所:NEDO 技術戦略研究センター作成 (2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ②世界市場規模推移及び予測

現在のグラフェン市場は、世界的に研究開発需要によって支えられている。主に次世代の高速、高周波トランジスタなどの半導体やITO (Indium Tin Oxide:インジウムスズ酸化物) に代わる透明電極などのエレクトロニクス分野を中心に、リチウムイオン電池、燃料電池、太陽電池用途などのエネルギー分野、また、塗料やフィルム、樹脂成形品などの複合材産業分野における実用化、量産化に向けた研究開発が進められている。

今後、ウェアラブルデバイスへの応用をはじめとして、様々な応用分野の市場が本格的に立ち上がり、2030年には1,000億円の市場規模になると予測されている。(図28)

なお、CNTと比較して、表裏で電子を貯められるキャパシタ用途として、2次元的な広がりによるセンサー用途としての市場拡大が見込まれる。

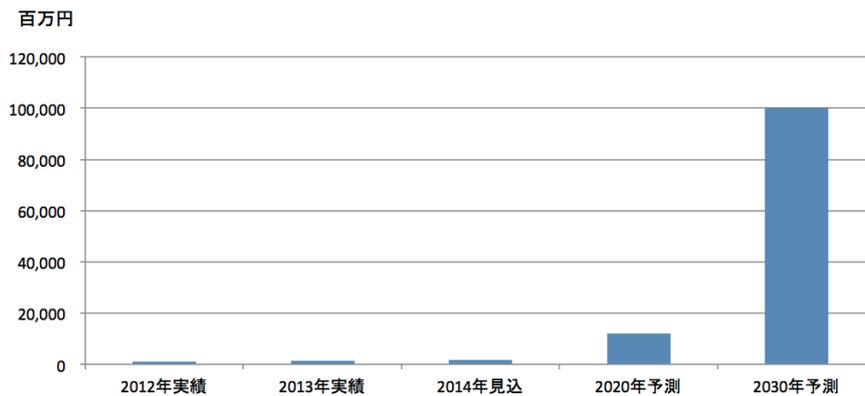


図28 グラフェンの世界市場規模推移及び予測  
出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集 (NEDO, 2014)

## ③日本企業のシェア及び優位性

日本企業の優位性としては、世界トップレベルの材料研究開発力、高い解析・評価技術力、半導体技術開発で養われたプロセス技術力などが挙げられる。一方で、外資系企業は、大型の公的支援プロジェクトや巨額投資による資金力をもつ。(図29)

なお、現時点でのグラフェン市場は、剥離グラフェンが主流であり、原子層グラフェンはまだ研究開発段階である。

日系企業の優位性	外資系企業の優位性
<ul style="list-style-type: none"> <li>・材料研究開発では世界トップレベル</li> <li>・高レベルでの基礎物理と理論解析</li> <li>・CNT 以来の高品質成膜技術</li> <li>・高い膜質評価技術</li> <li>・半導体で培われた高い技術</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・大型の公的支援プロジェクト</li> <li>・研究者層の厚み、困り込み</li> <li>・巨額投資</li> <li>・基本技術、特許の取得</li> <li>・中国での参入ラッシュ</li> </ul>

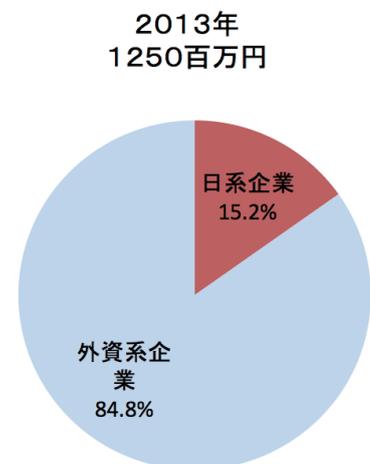


図29 グラフェンの日本企業シェア及び優位性  
出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集 (NEDO, 2014)

## ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## ④分野別用途

グラフェンの用途としては、CNTと同様に、エレクトロニクス、エネルギー（電池）、構造材料など、非常に幅広い分野への応用が想定されており、これらの実用化を目指した研究開発が進められている。

これまでは、主に導電性材料や放熱材用途への製品化開発が進められてきたが、近年、樹脂成形品、塗料、導電インクなど添加材用途としても注目されつつある。グラフェンを用いることで、CNTやカーボンブラックよりもカーボン材料の添加割合を低減できるうえ、成形品では強度改善などの効果も期待できる。エレクトロニクス用途への展開においては、特に透明電極や高性能センサ、高速トランジスタ等の実現が期待されており、そのためには優れた特性を有する原子層グラフェン膜の開発が課題である。

表9 グラフェンの分野別用途

分野	具体的用途例	備考(動向等)
エレクトロニクス	トランジスタ、IC	高周波、高速トランジスタの開発、スピントロニクスへの応用
	センサ	バイオセンサ、イオンセンサ、赤外線センサの開発
	コンデンサ	高い導電性を生かし電気二重層キャパシタの電極材
	RFID タグ	グラフェンインクによるアンテナの印刷
	フレキシブルデバイス	グラフェンインクによるポリイミドフィルムへの電極形成
	LED	ガラス基板上にグラフェン層を挿入して LED 化
	透明電極	ITO代替としてタッチパネル、太陽電池、有機 EL 等への応用
構造材料	樹脂成形品	強度や帯電防止、抗菌性を生かし筐体、ギア、ボトルなどへの応用
エネルギー	リチウムイオン電池	負極材としての研究、開発
	太陽電池	透明電極や中間電極材として研究、開発
	燃料電池	電極触媒として Pt 触媒代替
高機能材料	導電インク	タッチパネルやプリントエレクトロニクスへの応用
	塗料	静電塗装用プライマーなどへの応用
	3D プリント材料	3D プリント材料の 1 つとして研究開発
その他	放熱シート	スマートフォン用にモバイルヒートシンクとして製品化
	ヒートスプレッタ	半導体用としても開発
	光変調器	グラフェン導波路変調器の研究開発

出所：平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集（NEDO, 2014）

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## 2-4 CNT/グラフェン用途先の世界市場予測

各用途先の市場予測（表10）によると、CNTについては自動車用ケーブル、ゴム・樹脂複合材料の市場の伸びが大きいことがわかる。特に自動車用ケーブルについては、電気自動車などの普及により、今後、電装部品配線の使用量が増大すると見込まれており、重量低減及び高い電流密度特性による電力消費量低減の効果が得られるナノカーボン電線材料としての応用が期待される。

グラフェンは圧力センサなど、優れた電氣的、機械的特性を活用した高機能センサーへの応用に対する期待が大きい。透明導電性フィルムは現在のITOからの置き換えが中心となるため、市場の伸びは大きくはないが、ITOから全て置き換わる可能性もあり、また、フレキシブル性を利用した新たな用途拡大も見込まれる。

RFトランジスタは、CNTとグラフェンの両方の応用先として期待されている。実現すれば、自動車用ケーブルと同等の極めて大きな市場を獲得することにつながるため、本分野の研究は活発である。しかし、いずれの用途先への応用もハードルの高い技術課題の解決が必要である。

表10 CNT/グラフェン用途先の世界市場予測

用途先	2013年 市場規模	2030年 市場予測	主な ナノカーボン材料
自動車用ケーブル	24,500 億円	48,000 億円	CNT
PAN系炭素繊維	1,344 億円	3,200 億円	CNT
ゴム・樹脂複合	580 億円	2,980 億円	CNT
圧力センサ	2,928 億円	10,800 億円	グラフェン
透明導電性フィルム	994 億円	1,500 億円	グラフェン
RFトランジスタ	14,600 億円	41,000 億円	CNT・グラフェン
電気二重層 キャパシタ	168 億円	2,000 億円	CNT・グラフェン
LiB負極材	480 億円	1,180 億円	CNT・グラフェン

出所：平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集（NEDO, 2014）

## 2-5 ナノカーボンの実用化の促進

ナノカーボンの応用範囲は多岐にわたり、様々な提案がなされている。実用化を促進させるためには、研究開発と並行して、素材をより多くの企業に活用してもらい、応用製品を積極的に提案してもらうことが必要である。

その一環として、「技術研究組合単層CNT融合新材料研究開発機構（TASC）」は、様々なスペックのCNTサンプルを企業に提供する活動を平成22年より始めており、これまでにいくつかの試作例が

発表されている。表11は、TASCが提供しているCNTサンプルの一覧である。グラフェンに関しては、産総研が中心となり、グラフェンコンソーシアムが設立されたところであり、今後、CNTと同様の活動に繋がる可能性がある。

表11 TASC提供のCNTサンプル一覧

提供可能サンプル内容		
番号	名称	スペック
1	eDIPS-CNT	1~2nmの範囲で希望に合わせて応相談
2	CNT粘弾性体(SG-CNT)	-196℃~1000℃で粘弾性を示す、1センチ角
3	分散性に優れたCNT(SG-CNT)	0.1~0.3重量%の分散液
4	CNT不織布(SG-CNT)	導電率 ~50S/cm、比表面積 500~1000m <sup>2</sup> /g
5	金属CNT(eDIPS-CNT)	純度95%以上
6	半導体CNT(eDIPS-CNT)	純度95%以上
7	高伝熱ゴム(SG-CNT)	熱伝導性 20w/mk以上
8	低添加導電性大面積ゴム(SG-CNT)	CNT充填率1wt%未満 体積導電率 1S/cm以下
9	CNT複合材料 (樹脂・ゴム・フィルム)	体積導電率1S/cm以上のゴム、樹脂 ゴム：NBR、SBR、フッ素、シリコン等 樹脂：アクリル系、スチレン系等 形状：任意(要相談)
10	CNT・金属複合体	熱伝導率750W/mk以上、引張強度約70MPa 材料内の熱伝導経路の設計要相談 アルミニウムマトリクス以外は要相談

出所：材料の未来を変えるCNT  
(技術研究組合単層CNT融合新材料研究開発機構（TASC），2012）

## 2-6 ナノカーボンの安全性評価手法の開発

産業技術総合研究所安全科学研究部門は、2011年にNEDOプロジェクトにおいて「ナノ粒子特性評価手法の研究開発」の成果として「ナノ材料リスク評価書」を作成した。

また、2013年にTASCと共同で、「カーボンナノチューブの作業環境計測の手引き」、「カーボンナノチューブの安全性試験のための試料調製と計測、および細胞を用いたインビトロ試験の手順」を作成した。これらの文書では、主にCNTに関して、安全性・有害性評価及び暴露評価結果を示すことにより、統一的な計測方法及び安全管理方法の確立を目指した。

今後グラフェンに関しても同様のリスク評価を行い、安全指針や評価基準の策定を行っていく必要がある。

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## 3章 ナノカーボン材料分野の技術課題

### 3-1 単層CNT

単層CNTについて、技術課題及びロードマップが示された例を図30に示す。

単層CNTにおいては、商業プラントが立ち上がり始めた段階であるため、現状ではまだ高コストであるが、用途先の拡大に伴って材料としての普及が進めば、量産効果によりおよそ1万円/kgになると見

込まれている。ただし、単層CNTの品質を向上させるためには、技術的なブレイクスルーが必要である。例えば、炭素繊維補強材料としては力学的特性の改善、CNT配線としては繊維化技術、基幹素材（電子デバイス等）としては高結晶化技術の確立等である。これらの技術課題が解決できれば、2030年以降には高品質な単層CNTが数千円/kgとなると予測されている。その結果、単層CNTはあらゆるところで用いられる基幹材料として、国内産業の下支えになることが期待できる。したがって、単層CNTについては各用途先への利用に繋がる応用技術開発を強力に推進し、低コスト化と高品質化を加速させることが望ましい。

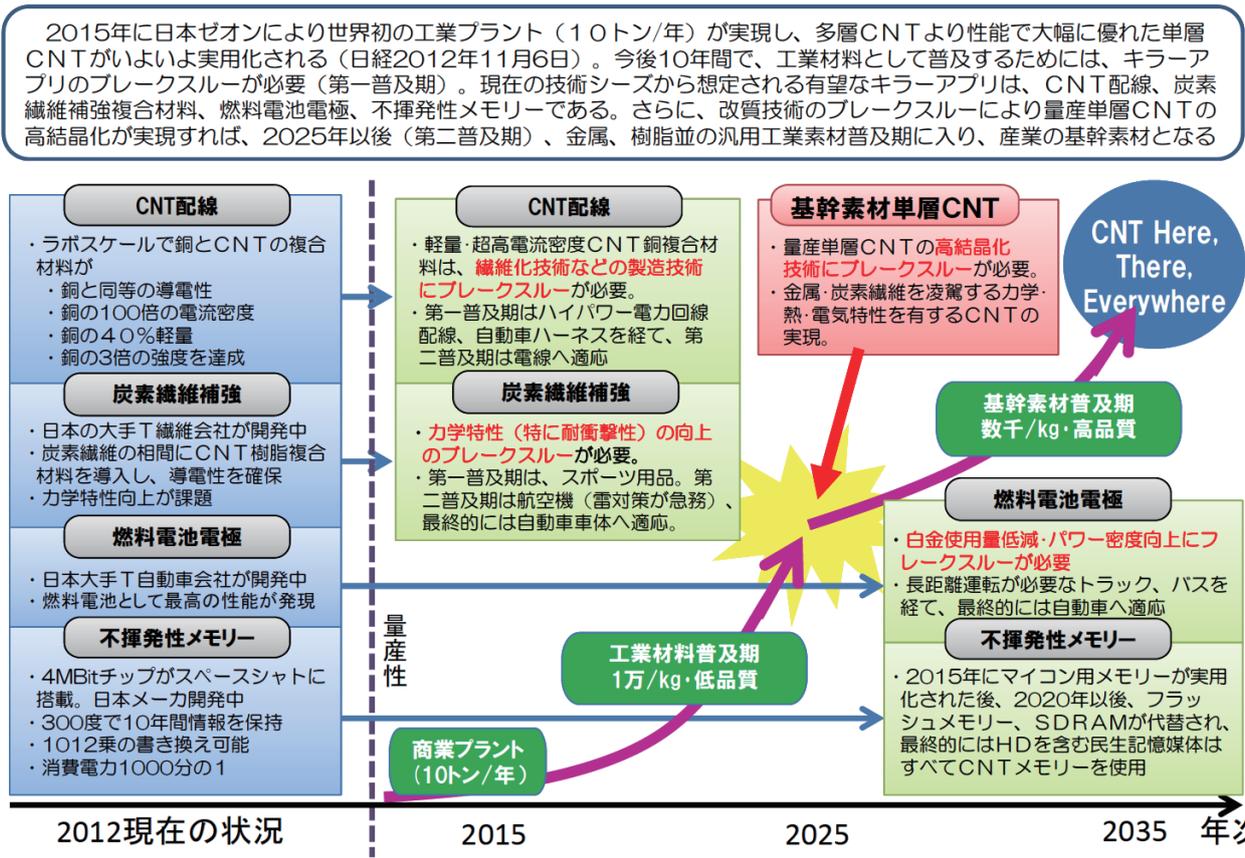


図30 単層CNTの本格的普及期から産業の基幹素材へのロードマップ

出所：平成24年 総合科学技術会議 科学技術イノベーション政策推進専門調査会 ナノテクノロジー・材料共通基盤技術 検討ワーキンググループ（第8回） 参考資料1

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

## 3-2 グラフェン

グラフェンについて、技術課題及びロードマップが示された例を図31に示す。グラフェンにおいては、薄膜合成による原子層グラフェンと、バルクから焼成する剥離グラフェンとでその製造方法が大きく異なるため、その技術課題も大きく異なる。原子層グラフェンは、面状の薄膜として用いられるため、電子デバイスなどの製造プロセス技術が適用できる用途が適していると考えられる。剥離グラフェンはその形状から、CNTと同様な分散、異種材料複合化による利用が主となる。

図31のロードマップでは、主に原子層グラフェンに関する用途先と技術課題が述べられている。

原子層グラフェンに関する技術課題としては主に、成膜方法（高品質化）、加工・修飾方法、ヘテロ構造形成方法が挙げられている。用途としては主に、透明電極、トランジスタ・テラヘルツデバイス、センサーが挙げられている。グラフェン材料によりこれらの電子デバイスが高性能化することで、従来のシリコンデバイスの代替だけでなく、新たなデバイス市場が創出される可能性もある。

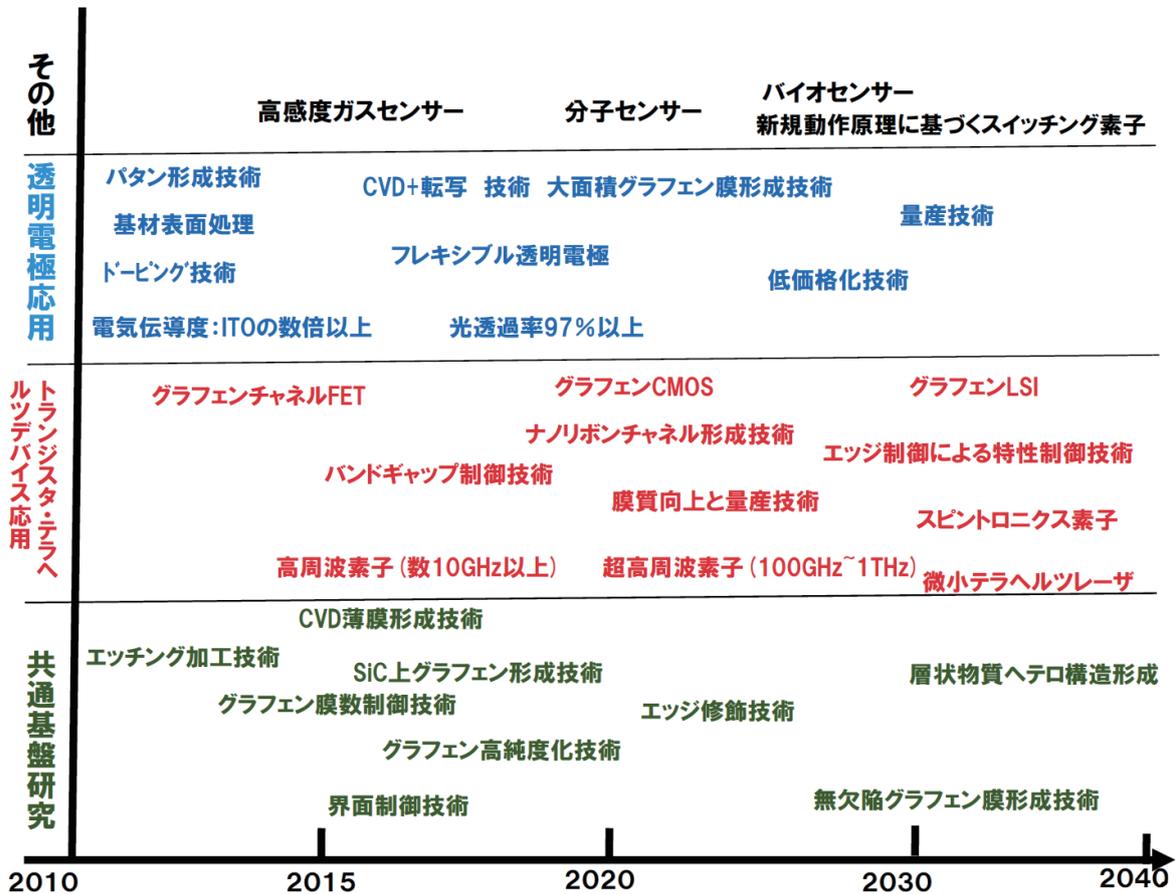


図31 グラフェン応用開発ロードマップ

出所:平成24年 総合科学技術会議 科学技術イノベーション政策推進専門調査会 ナノテクノロジー・材料共通基盤技術 検討ワーキンググループ (第8回) 参考資料2より抜粋

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

グラフェンのもつ二次元形状と非常に優れた物性を産業化へと繋げるためには、用途先ごとに異なるブレイクスルーが必要となる。グラフェンの結晶サイズと原子層数を座標軸として、応用が期待される各用途先をプロットしたものが図32である。この中で市場への波及効果が最も大きいと推定される透明電極、センサ、フォトニクス、スピントロニクスなどのデバイス関連分野では、幅広い結晶サイズの数原子層グラフェンを合成する技術が必要である。

また、透明電極の製品で必要となる導電膜の各用途における、価格と性能（電気特性）についての到達目標をKPI (Key Performance Indicator) として指数化した図33に示すように、グラフェンを基幹材料として実用化するためには、量産化技術及び高結晶化技術のブレイクスルーにより、現状よりも2～3桁のコストダウンと性能向上が必要となることわかる。

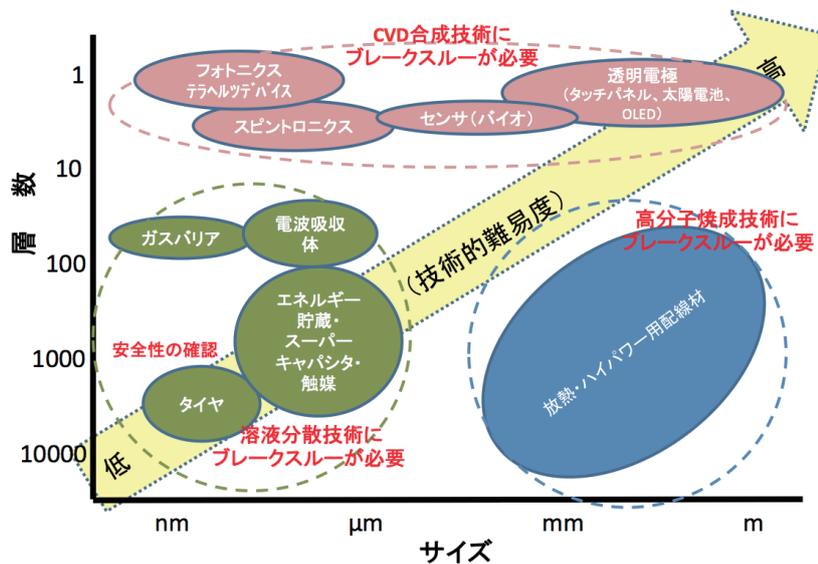


図32 各用途先に求められるグラフェンのサイズと層数及びブレイクスルー要素  
 出所:平成24年 総合科学技術会議 科学技術イノベーション政策推進専門調査会ナノテクノロジー・材料共通基盤技術 検討ワーキンググループ(第8回) 参考資料1を基に NEDO 技術戦略研究センター作成(2014)

- 理論的性能達成には、**高結晶化技術**にブレイクスルーが必要。(金属・炭素材料を凌駕する力学・熱・電気特性)
- 基幹材料化には、**量産化技術**にブレイクスルーが必要。(価格を一万分の一)

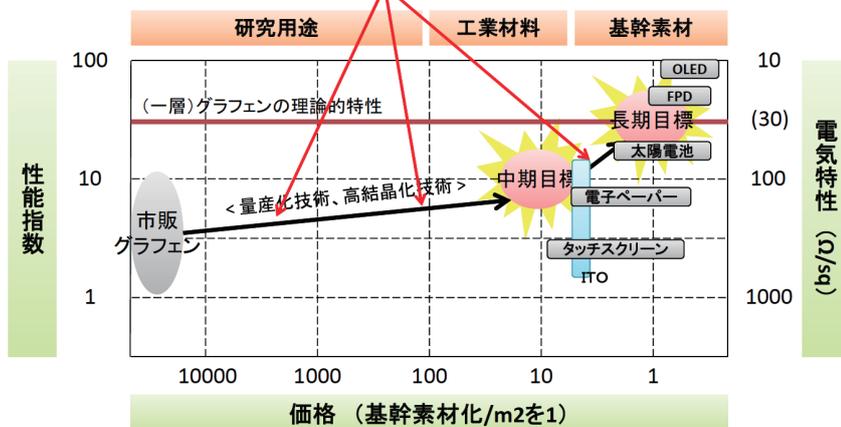


図33 グラフェンの導電膜利用におけるKPI  
 出所:平成24年 総合科学技術会議 科学技術イノベーション政策推進専門調査会ナノテクノロジー・材料共通基盤技術 検討ワーキンググループ(第8回) 参考資料1より抜粋

## 4章 おわりに

これまで述べてきたように、単層CNTの製造に関して我が国は世界トップレベルの技術力を保持している。例えば、eDIPS法やスーパーグロース法(SG法)など、優れた技術による工業的量産が開始されつつある。今後はその優位性を拡大していくために、低コスト化、高品質化などの合成技術の課題解決を進めるとともに、これらを応用開発に生かし、製品の実用化を推進していく必要がある。

グラフェンにおいても、我が国の世界的な学術研究レベルは非常に高いが、EUや他の諸外国に比べ研究開発投資が少ない環境にある。今後、グラフェン産業を牽引していくためには、技術課題を俯瞰した上で、日本の優位性を調査、抽出、分析し、効率的な資本投下を行い、諸外国を上回る研究成果を生み出していくことが必要である。具体的には、現在の主な技術課題として挙げられる高品質膜合成技術におけるブレイクスルーを生み出すとともに、用途先開発の推進が必要である。