

「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—

## 目次

概要 .....	概要-1
プロジェクト用語集 .....	用語集-1
<b>1. 事業の位置付け・必要性について.....</b>	<b>1-1</b>
1.1 事業の背景 .....	1-1
1.2 政策上の位置づけ .....	1-4
1.3 NEDO が関与することの意義 .....	1-5
1.4 実施の効果（費用対効果） .....	1-5
1.5 国内外の状況.....	1-5
<b>2. 研究開発マネジメントについて .....</b>	<b>2-1</b>
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 中間評価への対応 .....	2-9
2.9 評価にたいする事項 .....	2-10
<b>3. 研究開発成果について</b>	
3.1 研究開発項目[1][2][3]（担当：AIST、ADMAT）全体の成果-1	
3.1.1 研究開発項目[1][2][3]（担当：AIST、ADMAT）全体の成果 .....	3.1-1
3.1.2 研究開発項目[1][2][3]（担当：AIST、ADMAT）成果の実用化・事業化に に向けた取組及び見通しについて .....	3.1-2
3.2.研究開発項目毎の成果（担当：AIST、ADMAT）	
3.2.1 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（①～⑤） .....	3.2.1-1
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 .....	3.2.1①-1-1
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 .....	3.2.1①-2-1
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	

.....	3.2.1②-1-1
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.....	3.2.1②-2-1
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	
.....	3.2.1③-1-1
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	
.....	3.2.1③-2-1
④マルチスケール反応流体シミュレータの開発.....	3.2.1④-1
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.....	3.2.1⑤-1
3.2.2 研究開発項目[2] 高速試作・革新プロセス技術開発 (⑥～⑨) .....	3.2.2-1
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.....	3.2.2⑥-1
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.....	3.2.2⑦-1
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.....	3.2.2⑧-1
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.....	3.2.2⑨-1-1
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.....	3.2.2⑨-2-1
⑨-3 CNT 複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発.....	3.2.2⑨-3-1
3.2.3 研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発 .....	3.2.3-1
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 ローブ分光.....	3.2.3⑩-1
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.....	3.2.3⑪-1-1
⑪-2 陽電子消滅法と X 線 CT.....	3.2.3⑪-2-1
⑫ フロープロセスの高感度 <i>in-situ</i> 計測：フロー型 XAFS および NMR	
.....	3.2.3⑫-1
⑬ ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発	
⑬-1 CNT 線材の導電阻害部を可視化する計測技術基盤開発.....	3.2.3⑬-1-1
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.....	3.2.3⑬-2-1
⑬-3 CNT 複合材料評価に関する基盤技術開発.....	3.2.3⑬-3-1
⑭ 超先端材料超高速開発基盤技術に関する調査.....	3.2.3⑭-1
3.2.4 研究開発項目[1] 材料データ構造化 AI ツール開発.....	3.2.4-1
3.2.5 研究開発項目[3] ナノ物質計測技術開発・ナノ欠陥検査用計測標準開発	
.....	3.2.5-1
3.2.6 研究開発項目[4] 基盤技術等を活用した機能性材料の開発／相分離シミュ レーションを活用した非溶媒誘起相分離による革新分離 材料の研究開発 .....	3.2.6-1
3.2.7 研究開発項目[4] 基盤技術等を活用した機能性材料の開発／高速通信用 次世代対応フレキシブル誘電材料の研究開発.....	3.2.7-1

(添付資料)

- ・プロジェクト基本計画
- ・プロジェクト開始時関連資料（事前評価結果、パブリックコメント募集の結果）
- ・技術戦略研究センターレポート
- ・特許論文等リスト

# 概要

		最終更新日	2022年6月13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 (2016年4月～2018年11月) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 大郷 毅 (2016年4月～2017年3月) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 片岡 茂 (2016年4月～2017年3月) 材料・ナノテクノロジー部 PM 岡本 昌彦 (2016年4月～2019年9月) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 久芳 完治 (2017年3月～2018年6月) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 菅原 徹 (2017年9月～2018年9月) 材料・ナノテクノロジー部 PM 三宅 政美 (2018年7月～現在) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 足利 重明 (2018年9月～2019年11月) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 吉岡 宏人 (2019年4月～2021年3月) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 原 謙治 (2019年10月～現在) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 大類 和哉 (2019年10月～現在) 材料・ナノテクノロジー部 担当者 高宮 健治 (2021年4月～現在)								
0. 事業の概要	日本の産業競争力の源泉である素材産業を支援するにあたり、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することで材料開発の試作期間・試作回数の短縮を図り、競争力の高い日本の素材産業の産業競争力の強化に貢献する。 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（委託） 研究開発項目[2] 高速試作・革新プロセス技術開発（委託） 研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発（委託） 研究開発項目[4] 基盤技術等を活用した機能性材料の開発（助成）（2019年度開始）								
1. 事業の位置 付け・必要性について	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。								
2. 研究開発マネジメントについて									
事業の目標	【中間目標】（2018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。 【最終目標】（2022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。								
事業の計画内容	主な実施事項	2016fy	2017fy	2018fy	2019fy	2020fy	2021fy	2022fy	
	[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発	→							
	[4]基盤技術等を活用した機能性材料の開発	→							

事業費推移 (単位:百万円)	会計・勘定	2016fy	2017fy	2018fy	2019fy	2020fy	2021fy	2022fy	総額
	一般会計	-	-	-	-	-	-	-	-
	特別会計 (電需)	1,226	2,609	2,597	2,215	2,399	2,497	208	13,751
	総 NEDO 負担額	1,226	2,609	2,597	2,215	2,399	2,497	208	13,751
	(委託)	1,226	2,609	2,597	2,165	2,329	2,447	208	13,581
	(助成) : 助成率 1 / 2				50	70	50	-	170
開発体制	経産省担当 原課	産業技術環境局 研究開発課 (2015年~2017年) 製造産業局 素材産業課 (2018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 副理事長 村山 宣光 SPL : 国立研究開発法人産業技術総合研究所 材料・化学領域長 濱川 聡 SPL : 国立研究開発法人理化学研究所 革新知能統合研究センター・チームリーダー 松本 裕治							
	プロジェクト マネージャー	材料・ナノテクノロジー部 主査 三宅 政美							
	委託先・再委 託先・助成先	<p><u>2016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(参加 16社 : コニカミルタ(株)、東ソー(株)、新日鉄住金化学(株)、パナソニック(株)、(株)村田製作所、出光興産(株)、(株)カネカ、JSR(株)、昭和電工(株)、積水化成品工業(株)、DIC(株)、東レ(株)、日立化成(株)、宇部興産(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(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)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>2017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(参加 18社 : コニカミルタ(株)、東ソー(株)、新日鉄住金化学(株)、パナソニック(株)、(株)村田製作所、出光興産(株)、(株)カネカ、JSR(株)、昭和電工(株)、積水化成品工業(株)、DIC(株)、東レ(株)、日立化成(株)、宇部興産(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(株)、日本ゼオン(株)、古河電気工業(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)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>2018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(参加 18社 : コニカミルタ(株)、東ソー(株)、日鉄ケミカル &amp; マテリアル(株)、パナソニック(株)、(株)村田製作所、出光興産(株)、(株)カネカ、JSR(株)、昭和電工(株)、積水化成品工業(株)、DIC(株)、東レ(株)、日立化成(株)、宇部興産(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(株)、日本ゼオン(株)、古河電気工業(株)) (国研)産業技術総合研究所</p>							

	<p>【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)高輝度光科学研究センター</p> <p>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</p> <p>【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>2019 年度</u></p> <p>研究開発項目[1][2][3] 先端素材高速開発技術研究組合(参加 18 社 : コニカミルタ(株)、東ソー(株)、日鉄ケミカル &amp; マテリアル(株)、パナソニック(株)、(株)村田製作所、出光興産(株)、(株)カネカ、JSR(株)、昭和電工(株)、積水化成成品工業(株)、DIC(株)、東レ(株)、日立化成(株)、宇部興産(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(株)、日本ゼオン(株)、古河電気工業(株)) (国研)産業技術総合研究所</p> <p>【再委託先】(10 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、名古屋工業大学、大阪大学、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</p> <p>研究開発項目[1] (国研)産業技術総合研究所、(国研)物質・材料研究機構、東京大学、奈良先端科学技術大学院大学、大阪電気通信大学、旭化成(株)、住友化学(株)、積水化学工業(株)、東レ(株)、三井化学(株)、三菱ケミカル(株)</p> <p>【再委託先】(1 機関) : 千葉工業大学</p> <p>研究開発項目[4] 【助成先】 : 東レ(株)、日鉄ケミカル &amp; マテリアル(株)</p> <p><u>2020 年度</u></p> <p>研究開発項目[1][2][3] 先端素材高速開発技術研究組合(参加 18 社 : コニカミルタ(株)、東ソー(株)、日鉄ケミカル &amp; マテリアル(株)、パナソニック(株)、(株)村田製作所、出光興産(株)、(株)カネカ、JSR(株)、昭和電工(株)、積水化成成品工業(株)、DIC(株)、東レ(株)、昭和電工マテリアルズ(株)、宇部興産(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(株)、日本ゼオン(株)、古河電気工業(株)) (国研)産業技術総合研究所</p> <p>【再委託先】(12 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、名古屋工業大学、大阪大学、豊橋技術科学大学、九州工業大学、東京大学、慶応義塾大学、大学共同利用機関法人情報・システム研究機構</p> <p>研究開発項目[1] (国研)産業技術総合研究所、(国研)物質・材料研究機構、(国研)理化学研究所、東京大学、奈良先端科学技術大学院大学、大阪電気通信大学、旭化成(株)、住友化学(株)、積水化学工業(株)、東レ(株)、三井化学(株)、三菱ケミカル(株)</p> <p>【再委託先】(1 機関) : 千葉工業大学</p> <p>研究開発項目[4] 【助成先】 : 東レ(株)、日鉄ケミカル &amp; マテリアル(株)</p> <p><u>2021 年度</u></p> <p>研究開発項目[1][2][3] 先端素材高速開発技術研究組合(参加 18 社 : コニカミルタ(株)、東ソー(株)、日鉄ケミカル &amp; マテリアル(株)、パナソニック(株)、(株)村田製作所、出光興産(株)、(株)カネカ、JSR(株)、昭和電工(株)、積水化成成品工業(株)、DIC(株)、東レ(株)、昭和電工マテリアルズ(株)、宇部興産(株)、(株)日本触媒、横浜ゴム(株)、日本ゼオン(株)、古河電気工業(株)) (国研)産業技術総合研究所</p> <p>【再委託先】(10 機関) : (国研)物質・材料研究機構、名古屋大学、京都大学、筑波大学、大阪大学、豊橋技術科学大学、九州工業大学、東京大学、慶応義塾大学、大学共同利用機関法人情報・システム研究機構</p> <p>研究開発項目[1] (国研)産業技術総合研究所、(国研)物質・材料研究機構、(国研)理化学研究所、奈良先端科学技術大学院大学、大阪電気通信大学、旭化成(株)、住友化学(株)、積水化学工業(株)、東レ(株)、三井化学(株)、三菱ケミカル(株)</p> <p>【再委託先】(1 機関) : 千葉工業大学</p>
--	---

		研究開発項目[4] 【助成先】：東レ(株)、日鉄ケミカル&マテリアル(株)
情勢変化への対応	<p>・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 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。</p> <p>・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「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。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、その結果を踏まえ 2019 年度より学術論文等から物性データを自動抽出し構造化する AI ツールのプロトタイプ開発を開始した。</p> <p>・計算科学を用いる材料開発研究者のすそ野を広げるという観点から、プロジェクト前半に開発したシミュレータを公開するとともに、公開したシミュレータを含む基盤技術を用い個別の材料開発を行う助成事業を 2019 年度より開始した。</p>	
中間評価結果への対応	<p>2018 年度に中間評価を実施。以下指摘事項について対応した。</p> <p>【1】研究開発マネジメント</p> <p>・各研究テーマにおいて大学や公的研究機関が果たす貢献内容をより明確に示し、集中研による一層のシナジー効果を期待する。→プロジェクト後半、再委託の見直し等を行い、国研－大学－企業間の連携を強化した。</p> <p>・データベースの公共性を鑑みながらデータの公開方法をよく吟味してほしい。→本プロジェクトのオープン・クローズ戦略を踏まえて再検討し、コンソーシアムにおいて共有データとして利活用をすすめていくこととした。</p> <p>【2】研究開発成果</p> <p>・成果の普及については、論文、研究発表、展示会への出展は適切であったが、特許出願は、やや少なめであり、今後成果と共に増えることを期待する。→プロジェクト後半において、個別課題の進捗により特許出願も増加した。</p> <p>・計算科学、プロセス技術、先端計測技術を相互に連携させながら、個別材料開発において、より高精度で広範囲な対象に適用出来るよう材料設計プラットフォームを継続的に発展させてほしい。→共同研究等による広範な利用が可能な材料設計プラットフォームを構築した。</p> <p>【3】成果の実用化に向けた取組及び見直し</p> <p>・実用化に向けて具体的な運営体制やマイルストーンを示し、プロジェクト終了後にも国内企業が成果を継続的に利用できる仕組みを作ることが望まれる。→。コンソーシアム、材料設計プラットフォームの運用体制を整備した。</p> <p>・長い目で見た展開を見据え技術育成・人材育成にも取り組んでほしい。→コンソーシアムに人材育成機能を持たせるとともに、NEDO 特別講座事業を開始した。</p>	
評価に関する事項	事前評価	2016 年度実施 担当部署：経済産業省産業技術環境局研究開発課
	中間評価	2018 年度 中間評価実施
	事後評価	2022 年度 事後評価実施



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)	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、論文・特許等の公開データに対する、材料データの構造化AI ツールのプロトタイプを作成するとともに、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。	モデル素材群の材料データを創出するために必要なマルチスケール計算シミュレーター群を開発し、それらとプロセス・計測実験により得られる実験データを活用する機械学習・データ科学ソフトウェアを開発した。更に、これらの成果を集約し、データレポジトリを収納・運用するためのデータプラットフォーム群を構築した。これらのプロジェクト成果をモデル素材群に活用し、その全てに対して試作回数・開発期間が従来の概ね 1/20 以下となる事を確認した。これらのプロジェクト成果を管理運営するため、データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムを設立し、2022 年 4 月から活動を開始する。この技術を大きく普及するために、秘匿ニーズと共用ニーズの矛盾を解決する情報技術を開発し、データプラットフォームに備えるといった当初の計画を超えた成果もあげた。これも、コンソーシアムを通じて普及していく予定である。	◎
	[2] 高速試作・革新プロセス技術開発 (プロセス)	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。	サンプルを精密に作製可能なプロセス手法を開発するとともにハイスループット装置および機械学習と組み合わせることで、従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間をほぼ 1/20 に短縮した。プロジェクト終了後は、データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムをとおして、材料設計プラットフォームの一部として開発したプロセス技術を広く普及させる予定である。	○
	[3] 先端ナノ計測評価技術開発	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	研究開発項目[2]プロセス等で試作される材料の構造	

	(先端計測)	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。	をマルチスケールで測定できる計測機器群や構造と物性の相関が測定可能な計測機器群を開発した。また当初の計画のとおりいくつかの装置では、"非破壊計測"、"In situ 計測"を実現するとともに、計測の高速化も達成した。これらの装置を用いてモデル素材群の計測・評価を行い、その結果を[1]計算科学、[2]プロセスにフィードバックすることにより、プロジェクト全体目標である「試作回数・開発期間の従来の 1/20 以下」に貢献した。プロジェクト終了後は、データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムをとおして、材料設計プラットフォームの一部として開発した計測技術を広く普及させる予定である。	○
	[4]基盤技術等を活用した機能性材料の開発	第 1 期で確立されたシミュレーション手法を自社での機能性材料開発に適用し、その有用性（試作回数・試作期間 1/20）を実証する。	相分離シミュレーションを活用した非溶媒誘起相分離による革新分離材料の研究開発では相分離シミュレーションの活用による合理的プロセス設計と試作回数削減効果により、条件検討の期間を 1/20 程度にまで大幅に短縮できた。 高速通信用次世代対応フレキシブル誘電材料の研究開発では広帯域で安定して低誘電正接となる最適解と思われる材料系を開発されたシミュレータと独自データを活用した合理的試行錯誤により短期間で見出すことができ、その合成に成功。試作品は現行検討品より 20%もの低誘電正接化を示し、試作回数が 1/20 となる有用性を実証することができた。	○
	投稿論文	「査読付き」1 1 6 件、「その他」6 6 件		
	特 許	「出願済」48 件、「登録」5 件、（うち PCT 出願 6 件）		

	その他の外部 発表 (プレス発表 等)	研究発表・講演：590 件、プレス発表：25 件
--	------------------------------	--------------------------

<p>4. 成果の実用化に向けた取組及び見直しについて</p>	<p>研究開発項目[1][2][3] (委託)</p> <p>プロジェクトの研究開発成果を集約し、産総研において一元的に管理運用する環境として材料設計プラットフォーム(MDPF)という構想を提案しその構想に基づき、計算科学・プロセス・先端計測各々の基盤技術により、以下のような成果物が MDPF に集約された。プロジェクト終了後、産総研の管理のもと、技術コンサルティング、共同研究等の枠組で産業界に提供していく予定。</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 (委託)</p> <p>広範な時空間スケール、多様な材料・機能に対応したシミュレータ群を開発。プロジェクトにおいて各取材開発に活用するとともに、シミュレータの普及・発展のために、2019 年度より随時公開し、拡張 OCTA などをはじめとして、すでに産業界において利用が進められている。</p> <p>研究開発項目[2] 高速試作・革新プロセス技術開発 (委託)</p> <p>ナノ粒子分散ポリマー、混練・発泡、ナノカーボン材料、触媒の 4 つの材料・プロセスを対象にし、高速試作・革新プロセス環境を構築した。各々の装置群は、コアとなる試作装置および周辺の評価・計測装置よりなり、試作－評価装置群の組み合わせにより、プロセス条件、評価結果等のデータが効率的に取得されて、MDPF に蓄積されるように構成されている。</p> <p>研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発 (委託)</p> <p>汎用的な計測装置に加えて、先端ナノ計測技術の構築、設備の整備を進めた。それらの技術および設備を MDPF に加えることにより、計算シミュレーション・AI 予測－試作－評価によるサイクルの質をより高める。</p> <p>研究開発項目[4] 基盤技術等を活用した機能性材料の開発 (助成)</p> <p>相分離シミュレーションを活用した非溶媒誘起相分離による革新分離材料の研究開発については、本助成事業で得られる成果を活用し、耐薬品性分離膜及びガス分離膜用支持体の販売、社内利用等を計画している。</p> <p>高速通信用次世代対応フレキシブル誘電材料の研究開発については、本助成事業で得られる成果を活用し、高周波領域での実用化の障害となっている伝送ロスの低減メカニズム、設計思想を明らかにする事により、高周波対応フレキシブル銅張積層板 (FCCL) の早期実用化を目指す。</p>	
<p>5. 基本計画に関する事項</p>	<p>作成時期</p> <p>変更履歴</p>	<p>2016 年 3 月 作成</p> <p>2017 年 3 月 「非連続ナショナルプロジェクト」の選定を受け、文言追記等改訂</p> <p>2019 年 2 月 研究開発項目④として助成事業の追加等により文言追記等改訂</p> <p>2019 年 10 月 PM の変更、SPL の追加等改訂</p> <p>2022 年 3 月 研究開発項目①の延長、2021 年 6 月の SPL 追加の反映、5. その他重要事項の一部修正改訂</p>

## 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト用語集

研究開発項目 [1][2][3] (AIST、ADMAT 担当分) 【委託】

用語(日本語)	English	用語の説明
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。
C++	C++	汎用プログラミング言語の一種。C 言語から派生し、オブジェクト指向プログラミングに適する。
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)

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
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(マウスやタッチパッドなど)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。
Hamaker ポテンシャル	Hamaker potential	→ ハマカーポテンシャル
h-BN	Hexagonal Boron Nitride	六方晶窒化ホウ素
in-situ		→ その場観察
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。 ( <a href="http://www-tph.cheme.kyoto-u.ac.jp/kapsel">http://www-tph.cheme.kyoto-u.ac.jp/kapsel</a> )
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。
LASSO 回帰	LASSO Regression	線形回帰の損失関数に、説明変数の絶対値の和(L1 正則化項)を加えた回帰手法。過学習を抑えると同時に、変数選択することができる。

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。
OCTA	OCTA	2002 年に土井正男らによって開発されたソフトウェア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。
OpenMP	OpenMP	共有メモリ型並列計算機においてプログラムを並列化するための規格
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。
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。
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
SLLOD 法	SLLOD method	一様剪断下における分子動力学法の一つ。通常の運動量から一様剪断の寄与を除いたものを新たに運動量と定義し、その時間発展を追跡していく方法。
SMILES	Simplified molecular input line entry system	分子や化合物の構造を 1 行の文字列で表す方法。
Smoothed Profile 法	Smoothed profile method	コロイド分散系を扱うためのシミュレーション手法の一つ。コロイド粒子を流体として扱い、固液界面に厚みを持たせて、安定なシミュレーションを行うことができる。
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ーからなる、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マイ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。
アクチュエーター	Actuator	電場、光等の外部刺激を与えることにより変形する材料。
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。
アッペ数	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。
陰解法	Implicit method	濃度や応力などの状態の時間変化を計算する場合の方法。陽解法に対して、次の時間の状態を計算するために、つじつまが合うように反復計算を行う。静的に近い状態の場合、時間刻みを長くとれるメリットがある。

液晶エラストマー	Liquid crytalline elastomer	液晶メソゲンを分子内に含む架橋高分子。相転移、異方性等液晶の性質と、エラストマー（ゴム）の性質を併せ持つ。
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。
エネルギー密度	Energy density	蓄電デバイスにおける、単位重量（または体積）あたりの蓄えることが可能なエネルギー量。
エンプラ	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。
ガウス過程回帰	Gaussian Process Regression	目的変数の予測値を正規分布として出力する機械学習手法。予測値と予測値の不確かさを考慮した回帰分析を行うことができる。

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。
構造因子	Structure factor	物質にX線などを照射した際に干渉性散乱の原因となる因子。原子間距離、規則性などを表し、動径分布関数をフーリエ変換した結果に対応する。

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。
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た扱い、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。
自己拡散	Self diffusion	均一に分布している分子あるいは原子が、運動しながら位置を変えていく拡散運動。全体の分布状態は変化しない。
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 $\mu$ 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	ナビエー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。
スマートウィンドウ	smart window	電気、光、熱などの外的刺激によって光の透過率、反射率や色調を変化させることができる素材を用いた窓で、太陽光や熱の出入りを制御することにより空調負荷を減らすことできる。

スメクチック相	Smectic phase	液晶の秩序化された状態の一種。メソゲンが一方 向 配向しているとともに、横方向も層状の秩序を 持つ状態。
接触角	Contact angle	固体表面に液滴を落とした際、液滴表面と固体 面とのなす角度。濡れ性の指標。接触角が小さい ほど液滴は大きく広がっている状態で濡れ性がよ いとされる。
相互拡散	Mutual diffusion	組成に差がある 2 相が接触した際に、互いの相 に分子あるいは原子が移動していく拡散運動。分 布状態は時間とともに変化する。
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) として取り扱うこと。
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。

ソフトマテリアル	Soft material	金属や無機材料のようなハードマテリアルに対して、液晶、コロイド、高分子、ゲル等柔らかい材料の総称。
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。
秩序パラメータ	Order parameter	分子あるいは分子の一部分の配向やパッキングなどの秩序の程度を表すパラメータ。対象とする秩序に応じて様々な定義が存在する。
チャンネル材料	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。
敵対的生成ネットワーク(GAN)	Generative adversarial network	2つのニューラルネットワークを用いて、一方でデータを生成し、もう一方でその真偽を判別させて、互いに競わせるように学習させたモデル。実在しないが現実的な画像の生成などに広く利用されている。条件付き(conditional)であることで、単に画像等が生成できるだけでなく、条件を指定して所望の画像を生成することができる。
電界誘起効果	Electric-field induced effect	和周波(SFG)分光では、対象となる試料に電場がかわっている場合、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 $E_0$ の二乗で変化する。 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。
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生じる現象。
動径分布関数	Radial distribution function	ある粒子の周囲に存在する粒子の密度分布を粒子間距離の関数として表したものの。
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。
トモグラフィー	tomography	試料を一定角度おきに傾斜させながら画像を取得し、得られた連続傾斜像から 3 次元内部構造を可視化すること。
曇点	Cloud point	高分子溶液など、均一混合している溶液を冷却した際に、液が曇る温度。相分離温度に対応する。
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。

二酸化バナジウム	Vanadium dioxide	サーモクロミック特性を示す代表的な物質。68 °Cを境に絶縁体相から金属相への相転移が生じ、この相転移に起因してサーモクロミック特性を発現する。
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。
ネマチック相	Nematic phase	液晶の秩序化された状態の一種。メソゲンが一方方向配向しているが、横方向の秩序はない(重心はランダムに存在している)状態。
粘弾性	Viscoelasticity	粘性と弾性を併せ持つ性質。時間スケールにより挙動が変化する。応力とひずみの関係が線形である場合は線形粘弾性、非線形な場合は非線形粘弾性として区別される。
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こと。
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。
パワー密度	Power density	蓄電デバイスにおける、単位重量(または体積)あたりの出力できる電力の大きさ。

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る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こと。CNTは繊維状物質なのでバンドルを形成する。
光コヒーレンストモグラフィ	Optical coherence tomography	光の干渉性を利用することで非破壊・高分解能に試料内部の3次元断層画像を測定する技術。
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 $\chi$ と鎖長に基づき混合自由エネルギー変化を求め、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。
分光エリプソメーター	Spectroscopic ellipsometer	入射光の偏光状態をさまざまに変化させ、試料を通った光の偏光状態の変化から、試料の特性を解析し解明する分析法。現在、薄膜の膜厚や光学定数を求める一般的な手法となっており、誘電体・半導体・金属・有機膜など、さまざまな物質解析に用いられている。
分子触媒	Molecular catalyst	均一系触媒の 1 種で錯体触媒触媒とも呼ばれる。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。
ポリマーアロイ	Polymer alloy	複数のポリマーを混合し、特性を改質したプラスチックのこと。
マイクロスイマー	Micro swimmer	流体中を遊泳するミクロン程度の大きさの微生物や生命体。あるいはそれを模倣した物質。
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。
メソゲン	Mesogen	液晶分子内の液晶性を発現する剛直な部分。
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。
粒子径	Particle size	ナノ粒子の直径を指す。一次粒子径は走査型電子顕微鏡写真の目視の粒子径、平均粒子径は市販の粒子径解析ソフトを用いて走査型電子顕微鏡写真から求めた平均の粒子径。分散粒子径は粒度測定装置で求めたナノ粒子分散液中の凝集体の粒子径。一般的に、分散粒子径は一次粒子径よりも大きくなる。
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。
レオロジー特性	Rheological property	弾性、粘性、組成など応力とひずみ、あるいはひずみ速度の関係に関する特性。
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。



## 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト用語集

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（材料データ構造化 AI ツール）

【委託】

用語（日本語）	English	用語の説明
AI	AI	artificial intelligence の略語。人工知能のこと。
アノテーション	Annotation	自動抽出する対象を、人工知能に学習させるために、文章中の対象語彙にマーキングすること。複数の語彙や、関係性を抽出対象とする場合、マーキングにタグを付ける。
アノテーションガイドライン	Annotation guideline	文章の記載の仕方や語彙の定義が著者により異なることから、アノテーションの対象や範囲がアノテーション作業により揺らぐ。この揺らぎは教師データとして適当ではなく、できる限り抑える必要がある。この揺らぎを抑えるアノテーションの方法をまとめたガイドラインを、「アノテーションガイドライン」という。
API	API	Application Programming Interface の略称。ソフトウェアや web サービスをつなぐインタフェースのこと。
人工知能	Artificial Intelligence	人間の知的な機能をコンピュータによって実現するための技術。
注意機構	Attention mechanism	深層学習で用いられる技術で、データ中の不必要な情報を排除し、必要な情報だけを選択する仕組み。
BERT	BERT	Bidirectional Encoder Representations from Transformers の略。大規模な自然言語データから学習された言語モデル。
CAS	CAS	Chemical Abstracts Service の略称。
ChEBI	ChEBI	Chemical Entities of Biological Interest の略称。欧州バイオインフォマティクス研究所が提供する化合物データベース・オントロジー。
クラスタリング	Clustering	データ解析手法の一つで、データ間の類似度に基づいてデータをグループ分けする手法。

コーパス	Corpus	自然言語処理の研究に用いるため、自然言語の文章を構造化し大規模に集積したもの。
データキュレーション	Data curation	ある目的に沿って、データを収集すること。広義にはデータの整理・構造化などを含めることがある。
データプラットフォーム	Data platform	データ駆動型の研究や開発が盛んになる中で、データを総合的に提供する基盤を指す。略語はDPF。本プロジェクトで使用したDPFは、国立研究開発法人物質・材料研究機構が管理運用するDICEである。 <a href="https://dice.nims.go.jp/">https://dice.nims.go.jp/</a>
データサイエンス	Data Science	統計、科学的手法、AI、およびデータ分析などの複数の分野を駆使してデータから価値を引き出す研究分野のこと。
深層学習	Deep learning	機械学習手法の一つで、データの背景にあるルールやパターンを学習するために、多層の構造を用いる方法。
弾性率	Elastic modulus	物質の変形しにくさを示す物性値、応力とひずみが比例関係にある（弾性変形）領域における、その比例係数に相当する。
エンコード	Encode	入力情報を内部表現に変換すること。
エンドポイント	Endpoint	RDF やオントロジーを外部に提供する際の識別名や接続先を示す URL、URI のこと。またそのシステム。
エンティティ	Entity	概念を表す言語表現、あるいは、概念そのもの。
エンティティ抽出	Entity Extraction	文書中に記述された特定の種類の概念の表記を特定すること。
エンティティリンキング	Entity linking	概念を表す言語表現を、データベースあるいはオントロジー上の対応する概念として識別すること。
評価データ	Evaluation data	人工知能システムや機械学習技術を評価するためのデータ。入力とそれに対応する出力結果のペアの集合よりなる。
F5 VPN	F5 VPN	インターネット上でもセキュアな通信経路を確保できるVPN（Virtual Private Network）の一つ。

F 値	F-value	検索ツールや機械学習システムの性能を測る尺度の一つ。精度と再現率の調和平均。
ガラス転移温度	Glass transition temperature	液体から短距離秩序を持つアモルファス状態（ガラス状態）に転移する温度のこと。
ホモポリマー	Homopolmer	高分子の繰り返し単位が一種類しかないもの。
インスタンスセグメンテーション	Instance segmentation	デジタル画像処理技術の一つで、画像に写っている複数のオブジェクトを一つずつ個別に認識して区別する技術。
is-a 階層	Is-a hierarchy	概念間の上位下位関係のこと。
ナレッジグラフ	Knowledge graph	知識を構成する概念の集合とそれらの間の関係をつないだグラフ構造のこと。
MeSH	MeSH	Medical Subject Headings の略。NLM（米国国立医学図書館）が作成する生命科学分野のシソーラス。
MI	MI	Materials Informatics の略語。これまでの実験や計算による研究開発と異なり、大量のデータから新規材料・物性発現を予測するなど、データ駆動の手法を使って行う材料研究開発のこと。
ニューラルネットワーク	Neural network	脳の神経回路の一部を模した数理モデルのこと。近年の深層学習の基盤となるモデル。
光学文字認識 (OCR)	Object character recognition	文字を含む画像を計算機で解析して、テキストを書き起こす処理のこと。略して OCR と呼ばれる。
オブジェクト検出	Object detection	デジタル画像処理の技術の一つで、画像に写っている特定のオブジェクト（人間、建物、車など）の領域を検出する技術。
オブジェクト認識	Object recognition	画像解析において、画像中の特定の対象物を認識する記述。
ONNX	ONNX	Open Neural Network Exchange の略。機械学習モデルを表現するフォーマット形式。
オントロジー	Ontology	概念を定義するための構造をもった辞書のこと。
PoLyInfo	PoLyInfo	国立研究開発法人物質・材料研究機構が管理運用する高分子データベース。2022年4月時点で、28,433種のポリマーの構造、添加物、物性、プロ

		セス、反応経路、NMR スペクトルなどを収録する。 <a href="https://polymer.nims.go.jp/">https://polymer.nims.go.jp/</a>
疑似教師データ	Pseudo training data	シミュレーション等で作成したデータで、機械学習の教師データとして使用するデータのこと。
RDF	RDF	Resource Description Framework の略称。情報を主語・述語・目的語の組み合わせ（トリプル）で表現する World Wide Web Consortium (W3C) の仕様の一つ。
関係抽出	Relation extraction	概念間の意味関係を抽出する手法あるいは技術の総称。
関係性	Relationship	ここでは、エンティティとエンティティ間の関係を意味する。データを構造化するために必須の要素。
ルールベース	Rule-based	機械学習を用いずに、データのパターンを明示的に記述する方式
持続的高度化システム	sustainable upgrade system	アノテーションの結果を機械学習し、その結果をアノテーションにフィードバックする、循環的なワークフローで教師データの高度化を図るためのシステム。TeamAnno を主要な要素とする。
TeamAnno	TeamAnno	複数メンバーでアノテーションできる web アプリケーション。機械学習用の教師データを作成する上で必要な、比較機能を持ち、AI によるサジェスト機能により作業の効率化が図れる
テキストマイニング	Text mining	大量の文章データ（テキストデータ）から、有益な情報を取り出すこと
シソーラス	Thesaurus	単語の上位 / 下位関係、部分 / 全体関係、同義関係、類義関係などによって単語を分類し、体系づけた類語辞典・辞書。
教師データ	Training data	人工知能など機械学習において、訓練に用いられる例題と回答のデータセットのこと。
訓練データ	Training data	教師データと同意。
URI	URI	Uniform Resource Identifier 略。Web 上にあるあらゆるファイルを認識するための識別子の総称。
Wikidata	Wikidata	ウィキメディア財団が提供する共同編集型のデータベース。

## 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト用語集

研究開発項目 [3] 先端ナノ計測評価技術開発(ナノ粒子計測) 【委託】

用語（日本語）	English	用語の説明
NPTV	Nanoparticle Tracking Velocimetry	ナノ粒子を追尾し流速を評価する手法。
FPT	Flow Particle Tracking	流れ場の中で粒子を追尾し PTA 原理により粒子径を算出する方法。
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。
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。
レジスト	Resist	感光性材料。一般的には高分子樹脂。
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。
LPC	Liquid Particle Counter	液中粒子計数器。
FPT 法	Flow Particle Tracking Method	流れ場中での粒子ブラウン運動追跡評価法。
IPA	Isopropyl Alcohol	アルコールの一種。(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> CHOH
HS-AFM	High Speed Atomic Force Microscope	高速液中原子間力顕微鏡。
LWR	Line Width Roughness	ライン線幅ラフネス。
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。
DSA	Directed Self-Assembly	誘導自己組織化。
GI-SAXS	Grazing Incidence-Small Angle X-ray Scattering	微小角入射 小角 X 線散乱検出。

In-situ AFM	In-situ Atomic Force Microscope	過渡変化計測可能な原子間力顕微鏡。
用語（日本語）	English	用語の説明
モルフォロジー	Morphology	構造。
ABI	Actinic Blank Inspection	露光光と同じ波長による EUV 基板検査。
PDM	Programmed Defect Mask	作り込み欠陥マスク。
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。

## 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト用語集

研究開発項目 [4] 基盤技術等を活用した機能性材料の開発／相分離シミュレーションを活用した非溶媒誘起相分離による革新分離材料の研究開発【助成】

用語(日本語)	English	用語の説明
1 価イオン	Monovalent ion	原子内や分子内で電子を失う又は獲得することで、電子の数が陽子に比べて1個少ない又は多い状態。リチウムイオンやナトリウムイオンが代表的。
拡張 OCTA	Extended OCTA	マルチスケールシミュレータ OCTA のインターフェースを画像処理、機械学習ライブラリとの連携ができるように、超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクトで機能強化したもの。
加水分解	Hydrolysis	化合物が水と反応することによって起こる分解反応
ガス透過度	Gas permeation	単位面積、圧力、時間当たりのガス分子の量として表示されるガス分離膜の性能指標となるパラメータ。高いほど少ない面積、圧力、時間で大量のガスを処理できる。
ガス分離膜	Gas separation membrane	1nm 未満の細孔を形成されたガスを分離する膜。フィルム状、または中空糸状の形態が一般的である。ガスを透過する薄い分離機能層と、これを支える支持層とからなることが多い。
基材	Base material	その上に塗布などの加工を行うための材料。
凝固液	Coagulation solution	高分子を溶媒に溶解した溶液(原液)に対して、高分子を析出させる性質を持つ非溶媒を添加された液体で、原液中の高分子を析出、凝固させて形状を保持する役割を持つ。非溶媒の種類、温度、組成といったパラメータを制御することで、凝固した高分子の多孔質体としての特性を大きく左右する。
共連続孔	Co-continuous pore	テラポッドを積み上げたように空間的に連続した構造を有する連通孔。
コーター	coater	製品や材料に薬品などを塗布するための装置
CUI	Character User Interface	コンピュータ/ソフトウェアと利用者の情報のやり取りを全て文字によって行う方法。
GUI	Graphical User Interface	コンピュータ/ソフトウェアと利用者の情報のやり取りの大半を、マウスやタッチスクリーンなどによる画面上の位置の指示と画像などの情報提示で行う方法。
(高分子物理分野の)自己無撞着場理論	Self-consistent Theory	高分子鎖の配位エントロピーを計算し、高分子の平衡構造を予測する手法。
スーパーコンピュータ	Super Computer	大規模・高速の計算能力を達成することを目的とした集積型コンピュータ。

スピノーダル分解	Spinodal Decomposition	濃度揺らぎにより、不安定状態から平衡状態へ状態変化する相分離現象。
スプリングエイト	SPring-8	兵庫県の播磨科学公園都市にある世界最高性能の放射光を生み出すことができる大型放射光施設。
正極材	Positive electrode material	電池の電極のうち、プラスの電極に使用される材料。
選択分離	Selective separation	複数物質が溶解している溶液中から、特定の物質を選択的に分離すること。
相対的エネルギー差 (RED)	Relative energy distance	ポリマーと溶媒の溶解度パラメータの比。ポリマーと溶媒が溶解するかどうかを示す指標。この値が1より小さいと、溶解し合うと推測される。
多価イオン	Multivalent ion	原子内や分子内で電子を失う又は獲得することで、電子の数が陽子に比べて2個以上少ない又は多い状態。
中和	neutralization	酸性とアルカリ性の水溶液を混ぜることで、中性にすること。
天然ガス精製	Natural gas purification	採掘された天然ガスの主成分であるメタン以外の、燃料や有価物として使用できない部分を除去し、精製するプロセス全般を指す。ガス分離膜が実用化されているのは、不純物のうち酸性ガス、特に二酸化炭素を分離するものである。ガス分離膜の耐久性を低下させる成分として、芳香族炭化水素の存在が知られている。
ナノレベル	Nano Level	10 億分の 1 の水準。
ナノろ過膜	Nanofiltration	2nm より小さい粒子や高分子を阻止する液体分離膜で、硬度成分の除去、硫酸イオンの除去、海水淡水化のスケール成分除去等に用いられる。
2 価金属イオン	Divalent metal ion	原子内で電子を失い、電子の数が陽子に比べて2個少なくなった状態。マグネシウムイオンやカルシウムイオンが代表的。
粘弾性	Viscoelasticity	変形のしやすさ(弾性)と流れやすさ(粘性)の両方を合わせた性質。
排気処理	Exhaust gas treatment	有機溶媒が蒸発したガスを、吸着したり燃焼したりして無害化する処理。
非溶媒誘起相分離	Non-solvent Induced Phase Separation	多孔質構造の形成方法の一つ。ポリマーを該ポリマーの良溶媒に溶解させたポリマー溶液を、該ポリマーの非溶媒に接触させると、ポリマー濃厚相とポリマー希薄相に分かれる(相分離する)。
フェーズフィールド法	Phase-Field	場の変数(密度・温度など)を用いて、不均一場における連続体モデルで現象論的に材料組織の形成過程を記述する手法。
分子動力学シミュレーション	Molecular Dynamics Simulation	原子に働く力から、ニュートンの運動方程式を解法することにより、原子位置の時間発展をシミュレーションする手法。



並列計算	Parallel Computing	ある計算をいくつかの独立した小さな計算に細分化し、複数の CPU で同時に計算を実行。
紡糸技術	Spinning technology	原液を所望の形状に成形し、凝固させる工程のうち、特にその形状を繊維状にするものをいう。
放射光	Synchrotron Radiation	ほぼ光速で直進する電子が、その進行方向を磁石などによって変えられた際に発生する細く強力な電磁波のこと。
枚葉	Single leaf	ロール状に巻き取っていない平判状のシート。適当なサイズにカットし、一枚ずつ処理されることが多い。
マルチスケールシミュレーション	Multiscale Simulation	対象とする時間・空間の異なるシミュレーション手法を連結すること。
モジュール	module	作成した分離膜をろ過装置に搭載できるように、組立加工したもの。
溶媒抽出	solvent extraction	液状あるいは固状の試料に溶媒を加え、溶解度の差を利用して試料中の特定の成分を溶媒相に移して、他の物質から分離する操作。
leave-one-out 交差検証	Leave One Out Cross Validation	機械学習において、正解データから 1 つだけ抜き出してテストデータとし、残りのデータを教師データとして予測することを繰り返すことで、未知のデータに構築した機械学習モデルを適用したときの精度を評価する手法。
力場パラメータ	Force Field Parameters	分子動力学シミュレーションにおいて、原子に働く力を計算するための関数に含まれるパラメータセット。
量子化学計算	Quantum Chemical Calculations	シュレディンガー方程式に基づき、原子や分子の電子状態を解析する手法。
ロール to ロール	roll to roll	ロール状のシートを巻出し、加工を施した後、再びロール状に巻き取る方式のこと。

# 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。

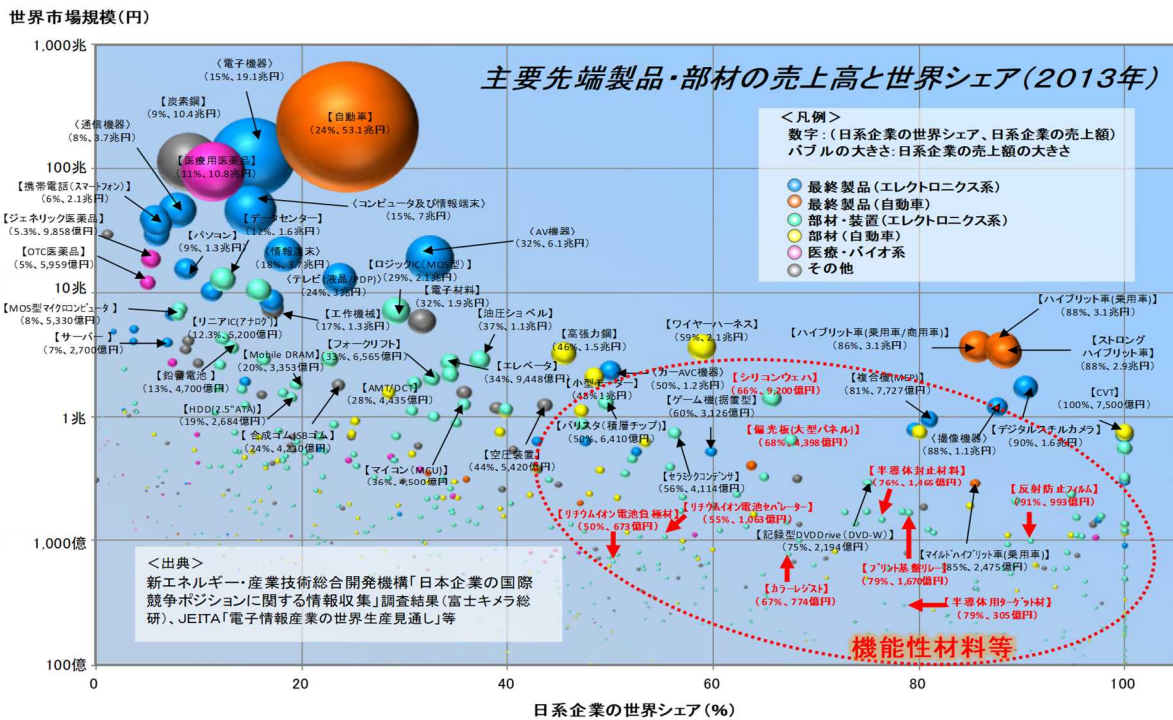


図 1-1 主要製品・部材の市場規模と日本企業の世界シェア (2013年)

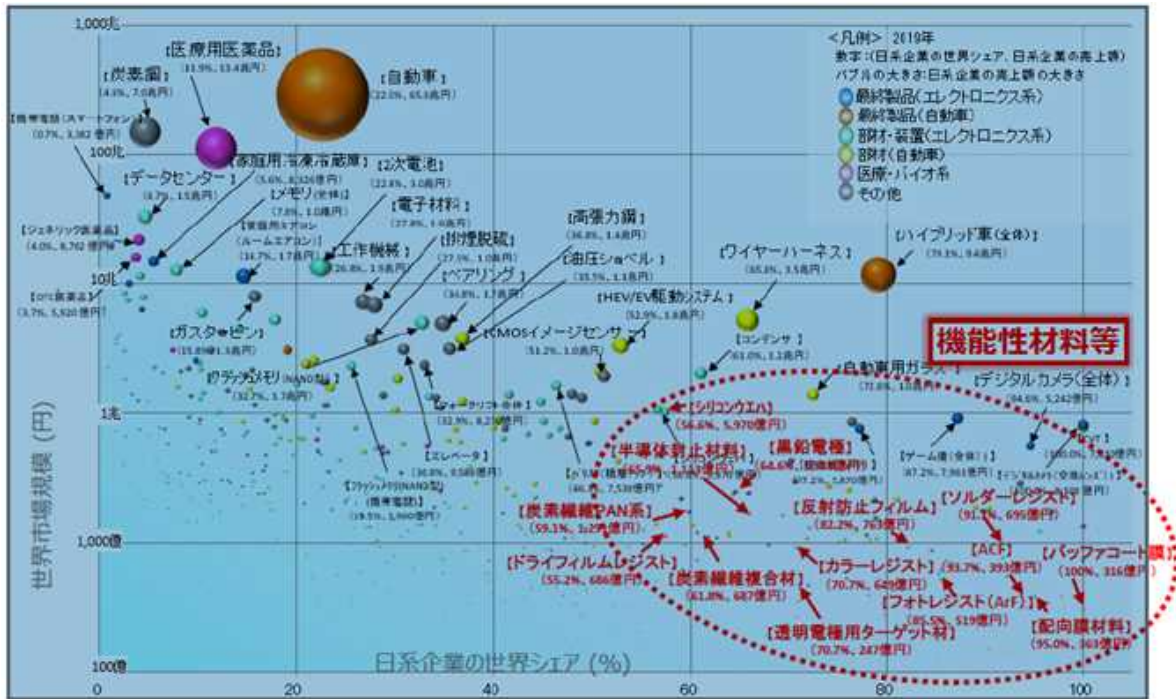


図 1-2 主要製品・部材の市場規模と日本企業の世界シェア (2019年)

(NEDO「2020年度日系企業のITサービス、ソフトウェア及びモノの国際競争ポジションに関する情報収集」調査結果報告のデータを基にTSC作成)

TSCが分析した各国の学術論文数の被引用比率(図1-3)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。

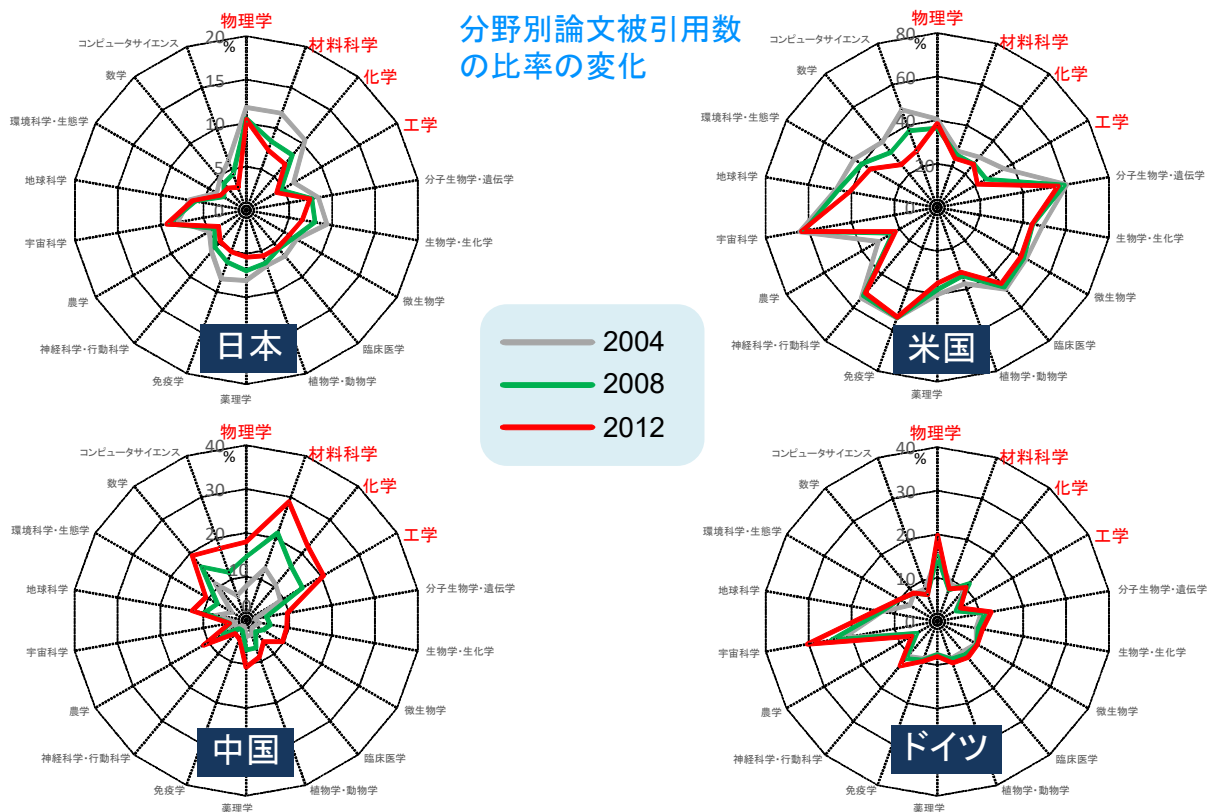


図 1-3 分野別の学術論文被引用数比率の変化（2004-2012 年）

（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。

事実、中間材の 2009 年から 2017 年における日系企業のポジション変化（図 1-4）を見ると素材分野において自動車用の部材以外は軒並みシェアを落としている。



図 1-4 日系企業のポジション変化（中間材、2009-2017 年）

（NEDO「平成 30 年度 日系企業の IT サービス、ソフトウェア及びモノの国際競争ポジションに関する情報収集」調査結果）

## 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。

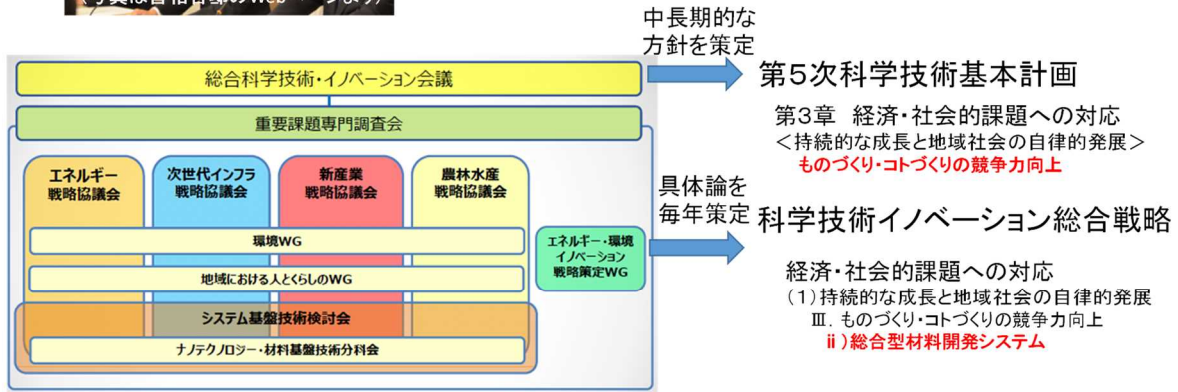
## ◆政策的位置付け



### ●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。

(写真は首相官邸のWebページより)



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	CPSI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 1-5 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 7 年間、事業規模約 138 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。また環境負荷の少ない機能性材料の普及や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 360 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) の第 1 期の中で岸 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」(第 1 期 2014~2018) を推進、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た。同第 2 期の中では三島 良直氏 (東京工業大学名誉教授、日本医療研究開発機構理事長) をプログラムディレクターとして「統合型材料開発システムによるマテリアル革命」(2019 年~) を推進、研究テーマの「逆問題 MI の実構造材料への適用」領域の中で CFRP 等の構造材料を対象としてマテリアルズインテグレーションによって構造材料開発におけるコストと時間を大幅に低減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 (その後伊藤 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~2020 年) を推進した。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た。

### ②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。その後、政府予算は打ち切られたが、プロジェクトは継続している。

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た。

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。素材分野のフォロワーから抜け出し市場のリーダーになることを目標とした。

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た。

## ◆ 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、ノースウェスタン大、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、フホルト大、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、中国工程院
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)

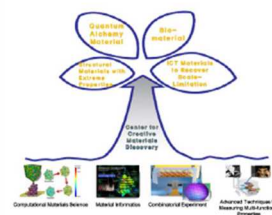
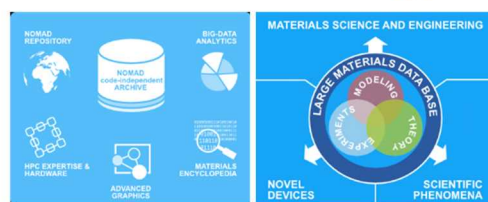
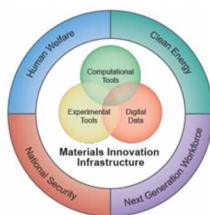


図 1-6 国外の研究開発動向



## 2. 研究開発マネジメントについて

### 2.1 事業の目標

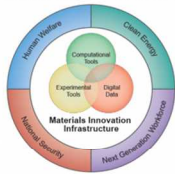
#### アウトプット目標

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～)



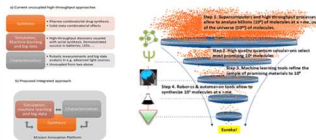
目標: 構造材料を対象としてシミュレーションや数学的アプローチを活用しながら「**構造材料開発の時間を一桁**(開発時間を90%短縮)短縮するのに役立つことを証明」

#### ● 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 [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。

## 研究開発項目 [4] 基盤技術等を活用した機能性材料の開発（助成）

### 【最終目標】

第 1 期で確立されたシミュレーション手法を個社での機能性材料開発に適用し、その有用性（試作回数・試作期間 1/20）を実証する。

### ・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4つの研究開発項目を実施した。

### ・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

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。

### ・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

・研究開発項目[4]基盤技術等を活用した機能性材料の開発（助成）

第1期の委託事業で中間目標を達成したシミュレーション手法（研究開発項目[1]1)～3)）をもとに、試作回数・試作期間 1/20 を可能とする課題を設定して実施する。

具体的な実施に当たっては公募の結果を踏まえ、委託事業においては表 3-2 の①～③に対応する研究項目で推進した。

### 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。

2.1 事業の目標で示した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。

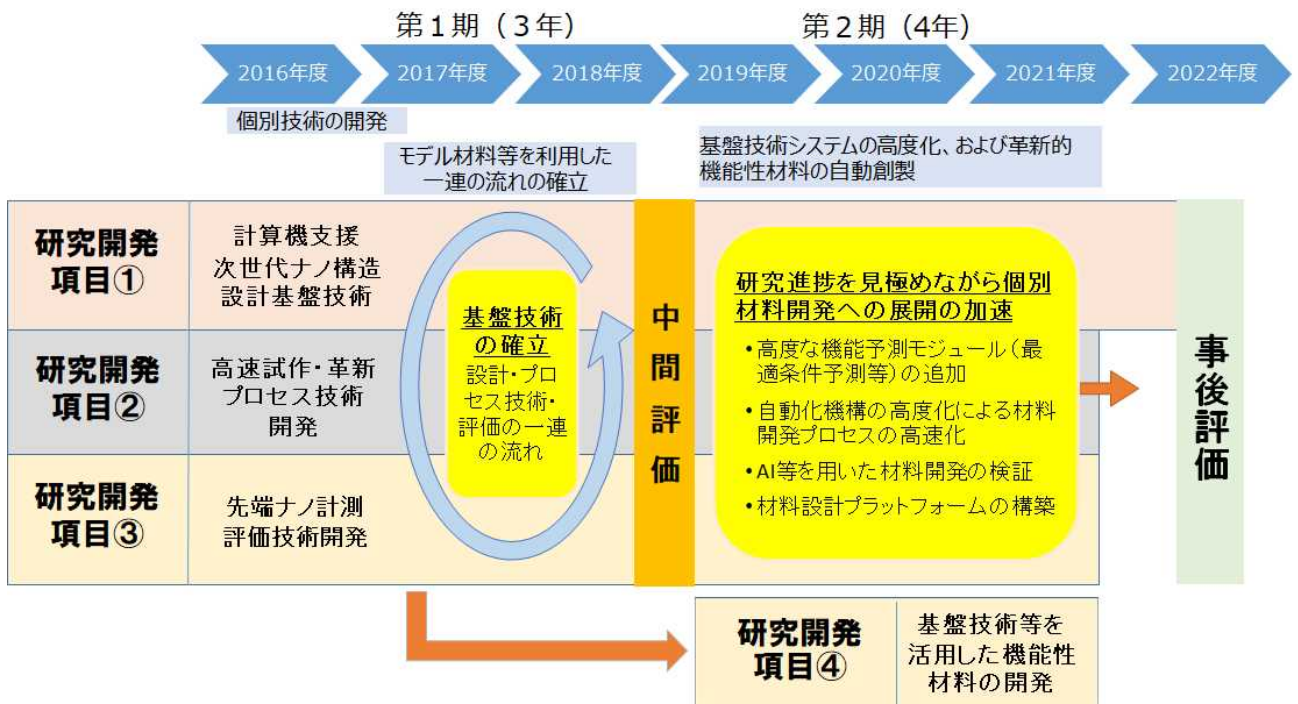


図 2-2 研究開発スケジュール

表 2-1 研究開発予算

研究開発項目	2016 (実績)	2017 (実績)	2018 (実績)	2019 (実績)	2020 (実績)	2021 (実績)	2022 (契約)	合計
①計算機支援次世代ナノ構造 設計基盤技術	360	1,194	1,198 (36)	1,323 (221)	1,523 (359)	1,401 (349)	208	7,207 (965)
②高速試作・革新プロセス技 術開発	408	535	731	513	408	746		3,341
③先端ナノ計測評価技術開発	431 (204)	834 (298)	583 (204)	233	291	282		2,654 (706)
④基盤技術等を活用した機 能性材料の開発（助成）				50	70	50		170
合計	1,199	2,563	2,512	2,119	2,292	2,479	208	13,372

事業実施者との契約実績額（助成事業はNEDO負担額）

( ) は、つくば集中研以外の研究開発項目[1]及び[3]の部分採択に係る予算（うち数）

2022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。

2019年度にも2018年度に行った調査結果から追加公募を行い、論文等から材料データを抽出し構造化するプロトタイプAI開発を対象に研究開発項目[1]を実施する物として旭化成(株)、住友化学(株)、積水化学工業(株)、東レ(株)、三井化学(株)、三菱ケミカル(株)、国立大学法人東京大学、国立大学法人奈良先端科学技術大学院大学、学校法人大阪電気通信大学、国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立開発法人物質・材料研究機構を採択した。

さらに、2019年度には第1期で確立されたシミュレーション手法を個社での機能性材料開発に適用し、その有用性（試作回数・試作期間1/20）を実証する目的で助成事業の公募を行い、研究開発項目[4]を実施する者として東レ(株)、日鉄ケミカル&マテリアル(株)を採択した。下記に体制図を示す。尚、体制図内の実施者名は、技術組合員の社名変更、登録研究員の異動に伴う実施者の変更等を反映した契約終了時の実施者及びその名称等である。

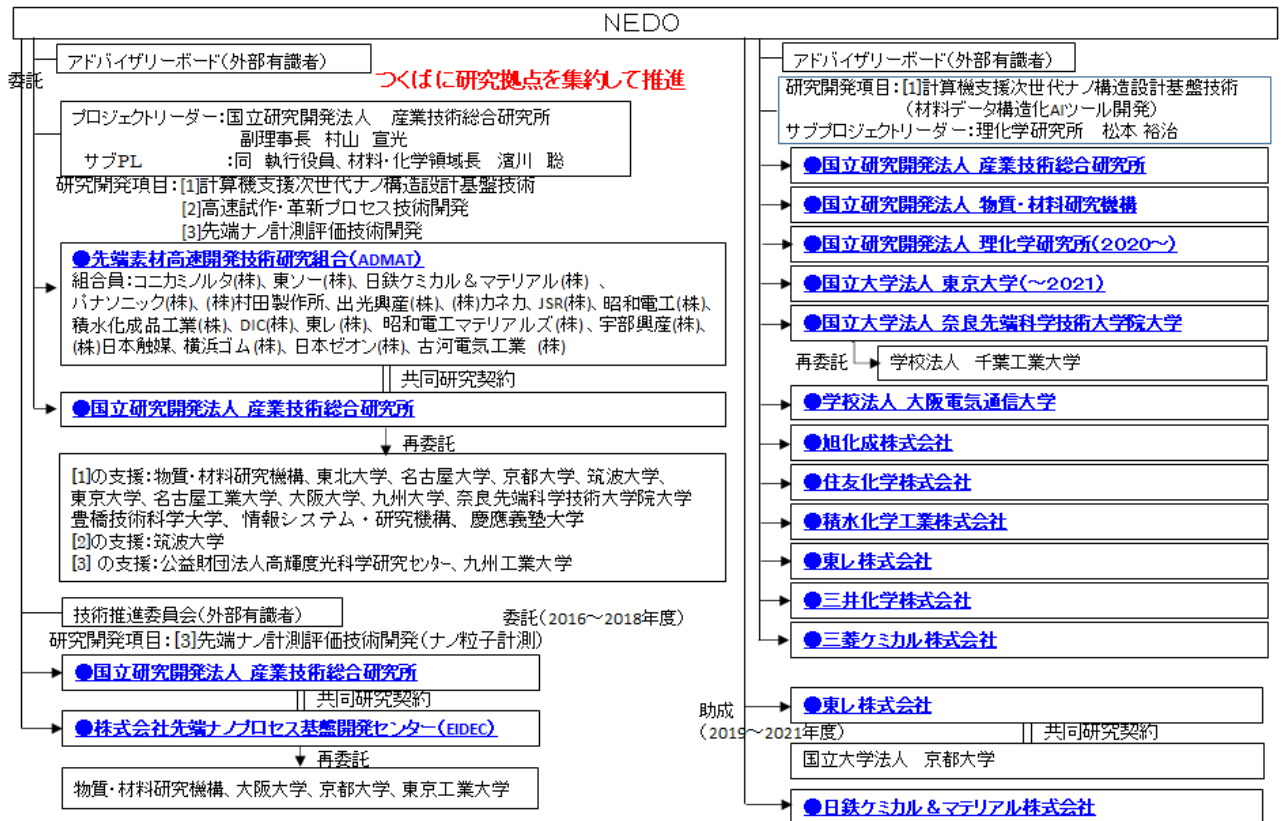


図 2-3 研究開発体制図

## 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、SPL、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 ・ 全体ミーティング	・PL、SPL、TL ・実施機関研究者	・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

●研究開発項目[1] [2] [3]アドバイザーボードにおける外部有識者メンバー（第1期）

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

●研究開発項目[1] [2] [3]アドバイザーボードにおける外部有識者メンバー（第2期）

大阪大学産学共創本部 教授 北岡 康夫 氏

日産化学株式会社物質化学研究所物質解析研究部 主席 石川 誠 氏

株式会社三菱総合研究所 研究理事 亀井 信一 氏

京都大学大学院工学研究科材料工学専攻 教授 田中 功 氏

株式会社クラレ研究開発本部知的財産部 主管 中田 博通 氏

●技術推進委員会委員における外部有識者委員（研究開発項目[3]）

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

●研究開発項目[1]アドバイザーボードにおける外部有識者メンバー（第2期）

早稲田大学理工学術院総合研究所 特任研究教授 西出 宏之 氏

東北大学国際集積エレクトロニクス研究センター 教授 金田 千穂子 氏

情報システム研究機構データサイエンス共同利用基盤施設ライフサイエンス統合データベースセンター 副センター長・教授 五斗 進 氏

北海道大学理学研究院化学部門 准教授 高橋 啓介 氏

九州大学大学院工学研究院応用化学部門 教授 田中 敬二 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、国内素材企業へ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

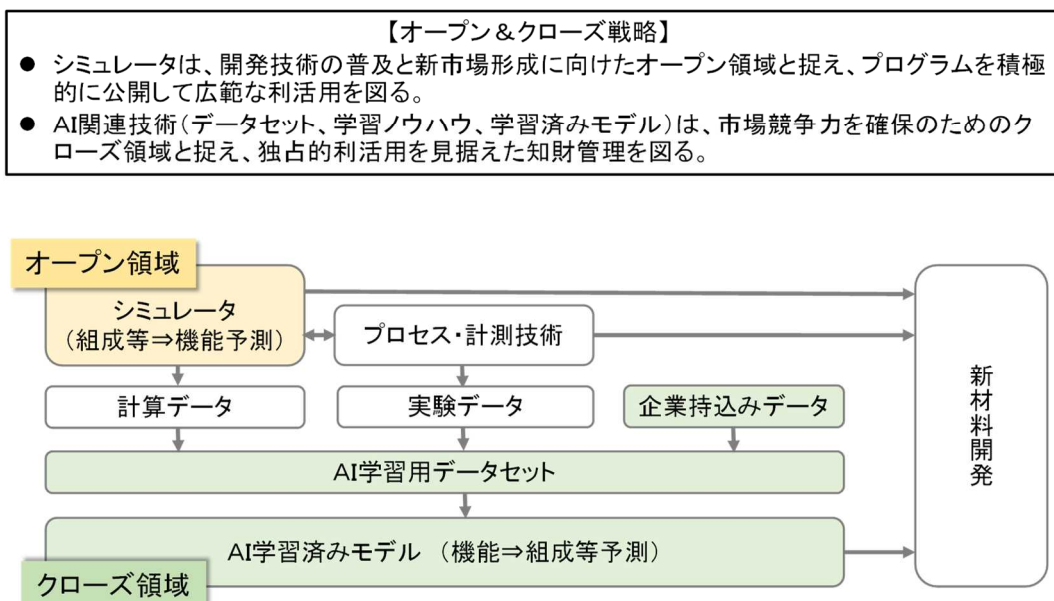


図 2-4 集中研究拠点におけるオープン&クローズ戦略

### 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。その結果を受けて2019年度に論文等から材料データを抽出し構造化するプロトタイプAI開発を研究開発項目[1]に追加して公募を行い、旭化成(株)、住友化学(株)、積水化学工業(株)、東レ(株)、三井化学(株)、三菱ケミカル(株)、国立大学法人東京大学、国立大学法人奈良先端科学技術大学院大学、学校法人大阪電気通信大学、国立研究開発法人産業技術総合研究所、国立開発法人物質・材料研究機構を実施者として採択した。

・助成事業の追加

当初は全期間を委託事業として実施する計画だったが、計算科学を用いた材料開発研究者の裾野を広げるという観点から、前半で確立したシミュレータを2019年度初頭に公開し、このシミュレータを活用した実際の材料開発を行う研究に対する助成事業を2019年度より実施することを経済産業省と確認。公募を実施し、

## 2.8 中間評価結果への対応

本プロジェクトは2018年度に中間評価を実施。以下指摘事項について対応した。

【1】各研究テーマにおいて大学や公的研究機関が果たす貢献内容をより明確に示し、集中研による一層のシナジー効果を期待する。→産官学参画メンバーの連携強化によって、シナジー効果がより一層発現するよう実施方針、再委託先の見直しを行った。

【2】データベースの公共性を鑑みながらデータの公開方法をよく吟味してほしい。→本プロジェクトのオープン&クローズ戦略を踏まえて再検討し実施計画書を見直し、データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムにおいて共有データとして利活用を進めることとした。

【3】成果の普及については、論文、研究発表、展示会への出展は適切であったが、特許出願は、やや少なめであり、今後成果と共に増えることを期待する。→プロジェクト後半は個別課題の進捗により、特許出願が増加した。

【4】 計算科学、プロセス技術、先端計測技術を相互に連携させながら、個別材料開発において、より高精度で広範囲な対象に適用出来るよう材料設計プラットフォームを継続的に発展させてほしい。→日本の素材産業の発展に資する「材料設計プラットフォーム」を整備し、これらの成果をプロジェクト終了後も共同研究等により広範な利用が可能な体制を構築した。

【5】 実用化に向けて具体的な運営体制やマイルストーンを示し、プロジェクト終了後にも国内企業が成果を継続的に利用できる仕組みを作ることが望まれる。→プロジェクト成果を終了後も有効に活用・発展できる体制を整えられるよう、定期的に進捗を確認し、データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアム、材料設計プラットフォームの運営体制を整備した。

【6】 長い目で見た展開を見据え技術育成・人材育成にも取り組んでほしい。→NEDO 特別講座の公募を行い、人財育成プログラムを開始した。

## 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2018年度、事後評価を第2期終了時期の2022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 研究開発項目[1][2][3]（担当：AIST、ADMAT）全体の成果

##### 3.1.1 研究開発項目[1][2][3]（担当：AIST、ADMAT）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】

本プロジェクトにおいては、表 3-1 のように中間目標（2018 年度）および最終目標を定めている。

表 3-1 本プロジェクトの目標

研究開発項目	最終目標および中間目標（2018 年度）
[1] 計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術	<p>【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。</p> <p>【中間目標（2018 年度）】 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。</p>
[2] 高速試作・革新プロセス技術開発	<p>【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。</p> <p>【中間目標（2018 年度）】 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。</p>
[3] 先端ナノ計測評価技術開発	<p>【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。</p> <p>【中間目標（2018 年度）】 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、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”または“<i>In situ</i>”で評価を可能とする計測手法を確立する。</p>

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、実施した。

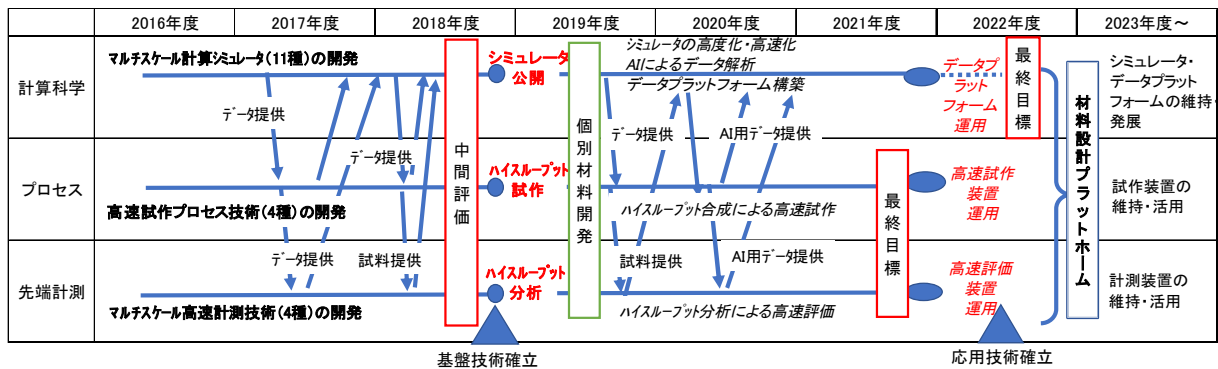


図 3-1 研究計画

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

全研究開発項目共通

⑭超先端材料超高速開発基盤技術に関する調査

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した。

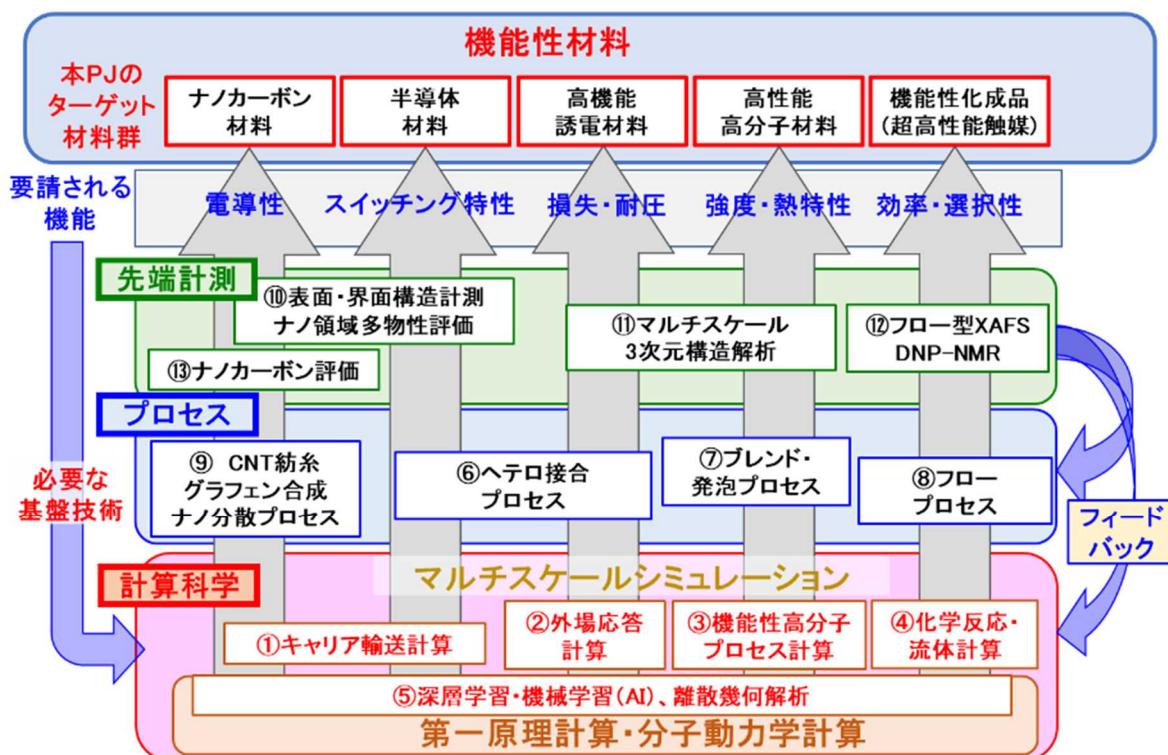


図 3-2 事業内容(①~⑬)と出口としての機能性材料の関係

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 3-3 に示すような個別材料開発課題を実施した。

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(①～⑬)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	日鉄ケミカル&マテリアル	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	異方性導電性フィルムの研究開発	昭和電工マテリアルズ	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	CNT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】

事業終了時において、各研究課題は表 3-4 のように最終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	最終目標および 中間目標(2018年度)	成果	達成度
<p>[1] 計算機 支援次世代 ナノ構造設計 基盤技術 (計算科学)</p>	<p>【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。</p> <p>【中間目標(2018年度)】 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。</p>	<p>モデル素材群の材料データを創出するために必要なマルチスケール計算シミュレータ群を開発し、それらとプロセス・計測実験により得られる実験データを活用する機械学習・データ科学ソフトウェアを開発した。更に、これらの成果を集約し、データレポジトリを収納・運用するためのデータプラットフォーム群を構築した。これらのプロジェクト成果をモデル素材群に活用し、その全てに対して試作回数・開発期間が従来の概ね 1/20 以下となる事を確認した。これらのプロジェクト成果を管理運営するため、データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムを設立し、2022年4月から活動を開始する。この技術を大きく普及するために、秘匿ニーズと共用ニーズの矛盾を解決する情報技術を開発し、データプラットフォームに備えるといった当初の計画を超えた成果もあげた。これも、コンソーシアムを通じて普及していく予定である。</p>	<p>◎</p>

<p>[2] 高速試作・革新プロセス技術開発 (プロセス)</p>	<p><b>【最終目標】</b> 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><b>【中間目標(2018年度)】</b> 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。</p>	<p>サンプルを精密に作製可能なプロセス手法を開発するとともに、ハイスループット装置および機械学習と組み合わせることで、従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間をほぼ 1/20 に短縮した。プロジェクト終了後は、データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムをとおして、材料設計プラットフォームの一部として開発したプロセス技術を広く普及させる予定である。</p>	<p>○</p>
<p>[3] 先端ナノ計測評価技術開発 (先端計測)</p>	<p><b>【最終目標】</b> 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><b>【中間目標(2018年度)】</b> 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、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”または“In situ”で評価を可能とする計測手法を確立する。</p>	<p>研究開発項目[2]プロセス等で試作される材料の構造をマルチスケールで測定できる計測機器群や構造と物性の相関が測定可能な計測機器群を開発した。また当初の計画のとおりにつまの装置では、“非破壊計測”、“In situ 計測”を実現するとともに、計測の高速化も達成した。これらの装置を用いてモデル素材群の計測・評価を行い、その結果を[1]計算科学、[2]プロセスにフィードバックすることにより、プロジェクト全体目標である「試作回数・開発期間の従来の 1/20 以下」に貢献した。プロジェクト終了後は、データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムをとおして、材料設計プラットフォームの一部として開発した計測技術を広く普及させる予定である。</p>	<p>○</p>



また、従来の材料開発と比較して試作回数・開発期間 1/20 を目標として、表 3-3 に挙げた個別材料開発課題に対して取り組んだ結果、表 3-5 のように最終目標を達成している。

表 3-5 個別材料開発課題の達成状況

研究開発テーマ名		成果	達成度
(1) 半導体材料			
1	高機能光学材料の研究開発	・サーモクロミックフィルムにて近赤外線 の制御幅 60%を実現 ・銀ナノ粒子の高速試作と、粒子分散材 料の光学特性制御に成功	○
2	有機半導体材料の研究開発	分子構造から結晶構造、有効質量を予 測するスキームを確立し、開発期間を短 縮	○
(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	計算科学&機械学習を活用した低誘電 材料の開発スキームを実証し開発期間 1/20 を達成した	◎
4	電場応答型高分子アクチュエータ材料の 開発	粗視化 MD から FEM までのマルチスケ ールシミュレーションで力学特性データを 蓄積、サロゲートモデル化による高速ス クリーニング手法を構築	○
5	有機・無機ハイブリッド誘電材料の研究開 発	有機および有機・無機ハイブリッド材料 に関して、誘電特性を評価するシミュレ ーション技術とデータ生成から候補材料 の絞り込みまでを自動で行うシステムを 開発し、高誘電率材料候補の絞り込み に成功	◎
(3) 高性能高分子材料			
6	複合系の反応設計の研究開発	シミュレータで添加剤の挙動が明確にな り、特性を説明する妥当な記述子の選択 を可能にした	◎
7	樹脂／無機フィラー複合材料の研究開発	材料・プロセス条件－フィラー分散構造 －材料特性の三者の相関解明に基づい た材料開発の有効性を実証	◎

8	機能性合成ゴム材料の研究開発	・機能性合成ゴム材料についてシミュレーションを用いた順方向予測技術を開発 ・本技術による候補材料の絞り込みにより最大で 1/19 の開発時間短縮を見込む	◎
9	フレキシブル透明フィルム(熱硬化性樹脂)の研究開発	AI 予測モデルの構築、固定化触媒の開発により開発期間を 1/27 に短縮可能であることを実証	◎
10	ナノ発泡断熱材料の研究開発	計算による気泡核剤の最適化と超高压プロセスにより、ナノ発泡材料の試作高速化に繋がった	○
11	スーパーナノコンポジット/アロイ材料の開発	オンライン/オンサイト計測で取得したプロセスと物性データを機械学習に取り入れた開発スキームを構築し、開発期間の短縮とモデル材の耐衝撃性目標値を達成	◎
12	革新分離材料の研究開発	分離膜の設計期間短縮に資するシミュレーション技術構築に成功	◎
13	異方性導電性フィルムの研究開発	シミュレーションデータベースを活用した複数目的に対する逆解析手法を開発	○
(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	ハイスループットフロー合成装置を開発し、既存のバッチ法に匹敵する活性を有する Pd コア Pt シェル触媒の連続合成に成功。さらに、新規コアシェル触媒発見のための MI 予測モデルを構築	◎
15	CO2を利用する有用化学品合成技術の研究開発	計算-計測-プロセスの協働でモデル反応の反応機構を解明し、得られた設計指針を基に、添加剤不要なアルケンのヒドロキシカルボニル化によるカルボン酸合成反応を新規に構築。環境調和性の高いフロー合成プロセスの実現につながる触媒反応の構築に短期間で達成	○
16	天然資源からゴム材料の研究開発	・ハイスループット装置群やデータ科学活用により従来の 1/22 の期間で、世界最高活性のエタノールからのブタジエン合成用触媒開発に成功 ・開発触媒により合成のバイオブタジエンからゴムを合成、タイヤを試作	◎

(5) ナノカーボン材料			
17	CNT複合材料の開発	CNT 複合材作製プロセスを確立し、機械学習による物性予測・逆問題解決を可能とした	◎
18	CNT 線材の開発	計算による予測や線材の網羅的解析により導電性に重要な構造因子を把握し、導電性向上の指針を示した	○
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	グラフェンの高スループット連続合成、h-BN の大面積合成、グラフェン高移動度、MoS2 の大面積合成、開発期間 1/20 短縮を達成	◎

事業内容および個別材料開発課題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 4 点を示す。

#### 1) マルチスケールシミュレータの開発と公開

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
- ・誘電率など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(拡張 OCTA)
- ・ファイラ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

図 3-3 にマルチスケールシミュレーションシステム適用例を示すが、これらの 9 種 11 本のシミュレータは、2019 年 4 月より順次公開され、国内産業における活用により、プロジェクト成果の実用化に大きく貢献した。一例として「汎用インターフェース(拡張 OCTA)」は延べ 740 件程度の利用(ダウンロード)が行われており、国内素材産業に広く普及していることが示される。

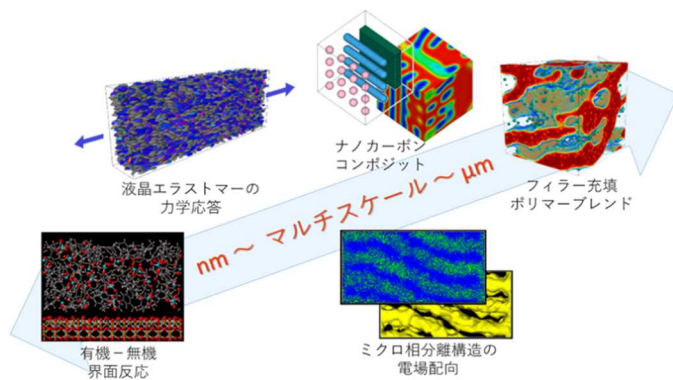


図 3-3 マルチスケールシミュレーションシステムの適用の例

### 【成果】

プレスリリース

・2019年4月1日「革新的機能性材料開発のためのマルチスケールシミュレータ群を開発 —国内産業による材料開発期間の短縮を目指して開発したシミュレータ群を公開—」

### 2) データプラットフォームの構築

データ駆動型材料設計実用化に向けて、シミュレーションや実験・計測機器から創出される材料データから高機能材料の高速開発を可能にするために必要なシステム基盤「データプラットフォーム」(DPF)を構築した。材料設計における秘匿計算実用化システムを有する本プラットフォームは、秘匿ニーズの高い企業データの高度連携情報処理が可能であり、企業機密情報の保持と関連産業の製造力強化のための情報技術利活用の両立を実現するものである。

このデータプラットフォームは、図 3-4 に示すように、高速試作・革新プロセス実験機器群、先端ナノ計測機器群、マルチスケールシミュレータ群から生成されるデータを各 DPF 内のデータベースとして格納する「データ生成・集積基盤」、これらのデータおよび各基盤ハードウェア等を管理する「データ管理基盤」、ユーザーに対してデータ解析環境等を提供する「データ解析基盤」、そして外部データ・機関連携のための「データ連携基盤」から構成される。

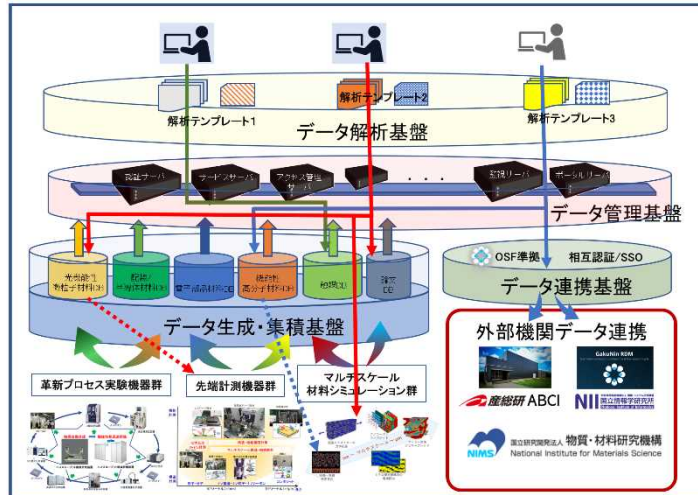


図 3-4 DPF の 4 つの基盤

本プロジェクトでは、この DPF を用いて、以下の 5 つの材料区分について DB 群を構築して、プロジェクト終了後はデータ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムを通じて国内企業による利用を推進していく。

- [1] 光機能性微粒子 DPF
- [2] 配線/半導体材料 DPF
- [3] 電子部品材料 DPF
- [4] 機能性高分子 DPF
- [5] 触媒 DPF

#### 【成果】

プレスリリース

・2021年11月25日「データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムの設立に向けて —高度なデータ解析技術が拓く新たな材料開発の世界へ—」

#### 3) 天然資源からゴム材料の研究開発

天然資源からゴム材料の研究開発において、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に取り組んだ。

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 3-5)。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。

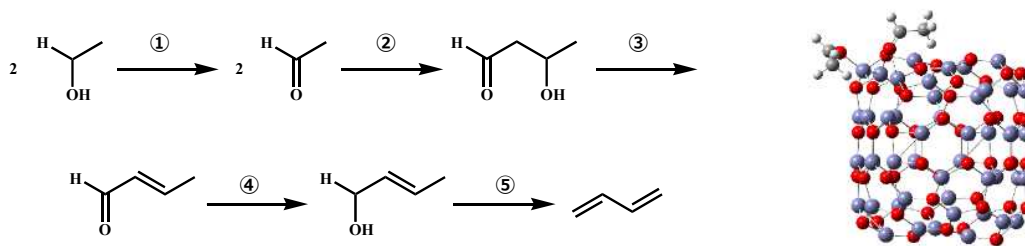


図 3-5 エタノールからブタジエン合成における反応経路

一方、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。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。

さらに、第一原理計算によるエタノールからのブタジエン合成の各段階の活性化エネルギーの計算より、反応を 2 段階(エタノール→アセトアルデヒド、エタノール/アセトアルデヒド→ブタジエン)に分けることでさらに活性を向上できることが分かった。そこで、2 段階反応装置の設計・製作、およびこれらの反応に用いる触媒を開発するため、約 50 種類の金属酸化物系触媒を導入したハイスループット触媒調製装置によって自動調製し、高速触媒スクリーニングを実施した(図 3-6)。その結果、最適な反応条件(プロセス条件)の探索を検討し、各段階で高い活性を示した金属酸化物系触媒を組み合わせることで、さらに高活性のブタジエン収率を示す触媒システムを開発することに成功した。



図 3-6 ハイスループット触媒調製装置とハイスループット触媒評価装置

次いで、本触媒システムを用いて合成したブタジエンを回収し、蒸留による精密精製、重合反応を行うことでブタジエンゴムの合成を行った。合成したブタジエンゴムは市販品と同等の性能であることが確認された。このブタジエンゴムを原料として用いた自動車用タイヤを試作し、全てが天然原料であるタイヤの製造に成功した。これにより、バイオエタノール原料からタイヤ製造までの一連の触媒反応プロセスの実証に成功した。

### 【成果】

特許出願 4 件

プレスリリース 2 件

- ・2021年8月10日「バイオマス由来のブタジエンゴムでタイヤを試作」
- ・2019年7月22日「バイオエタノールからブタジエンを生成する世界最高の生産性を有する触媒システムを短期間で開発」

#### 4) フレキシブル透明フィルム(熱硬化性樹脂)の研究開発

モバイル機器などの開発に欠かせないフレキシブル透明フィルムの設計に AI を活用して要求特性を満たすポリマーの探索を行った。まず、27 種類のフィルムを作成し、その原料の分子構造、配合比などの化学的な情報を「数密度 ECFP 法」、「クラス ECFP 法」など独自に開発した記述子を用いて説明変数に落とし込み、目的変数にはトレードオフの関係にあり並立の難しい物性である換算透過率、破断応力、伸びの 3 項目を選択し、その実測データを AI に学習させた。

さらに、複数の物性値を、偏差値概念を用いて1つの指標へ変換する技術を確認し、多数の説明変数(分子構造)データを用意して、AI に上記の 3 物性が等しい割合で最大となるフィルムの配合を予測させ、その配合の通りにフィルムを作成して物性値を評価した。同様に 27 種のフィルムのデータを実測した熟練研究員が、自己の知見に基づき作成したフィルムの物性値を AI の配合のものと比較した。(図 3-7, 3-8)

その結果、AI が予測した配合で作成したフィルムの物性値は、初期データである 27 種のフィルムの物性値を超えるだけでなく、比較実験によって熟練研究員が作成した 25 種類のフィルムの物性値よりも優れていることが判明した。

以上の結果より、並立しにくい物性を求める開発に AI を用いることは、研究者の知見のみに基づく実験に比べて実験回数を 25 分の 1 以下と大幅に削減できるだけでなく、研究者の経験知を超える開発も可能とすることを実証した。

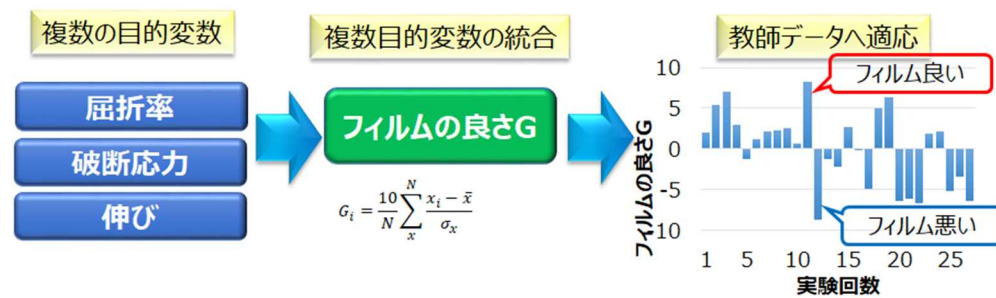


図 3-7 熱硬化性樹脂フィルムの複数物性の統合



図 3-8 AI による開発加速の検証

**【成果】**

特許出願 1 件、学術論文 1 件

プレスリリース

・2020/4/13 「AI を活用し、フレキシブル透明フィルム開発の実験回数を 1/25 以下に大幅低減 – 相反する複数の要求特性がある機能性材料開発への応用展開に期待 –」



### 3.1.2 研究開発項目[1][2][3]（担当：AIST、ADMAT）全体の実用化に向けた取り組み及び見通し

#### (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ーや 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」をいう。

この定義に基づく「実用化」を実現するために、以下のような戦略を立て取り組みを実施した。

#### (2) 成果の実用化に向けた戦略

本プロジェクトの主な成果として、以下があげられる。

(1) 計算科学・プロセス・先端計測の三位一体による革新的な材料基盤の構築

(2) 従来の材料開発と比較した、試作回数・開発期間の 1/20 への短縮

このうち(2)の成果に関しては、プロジェクトにおいて検討したモデル素材の開発期間短縮達成の過程において構築された技術を、プロジェクト終了後参画企業が企業内において適用を進め、工業的な実材料の開発において試作回数・開発期間の短縮を実現していく予定である。

一方(1)に関しては、第 3 章で報告した通り、計算科学・プロセス・先端計測の基盤技術に加えて、マルチスケールシミュレーター群、データプラットフォーム、高速試作・革新プロセス、先端ナノ計測の設備群、およびデータベース、AI 活用ツール(プログラム)、特許、ノウハウ等産総研が権利を持つものに加えて、知財集約対象とされた知的財産がすべて産総研に集約され、産総研により実施される。

プロジェクト終了後は、これらの成果物を活用し、産業界からの個別課題にオンデマンドで

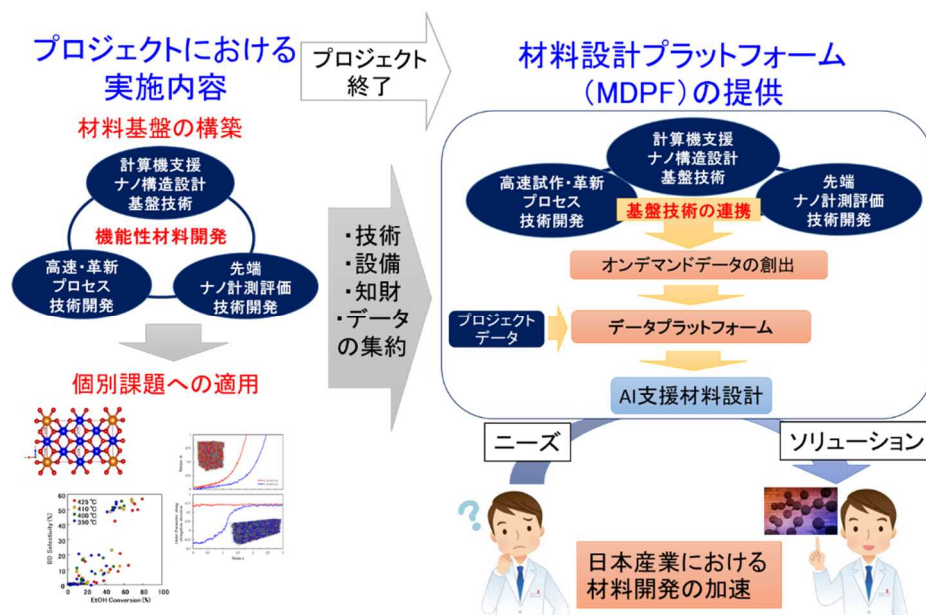


図 3-9 プロジェクト成果物を活用した MDPF 構想

対応し、データの創出と材料開発加速を実施する材料設計プラットフォーム(Materials Design Platform, MDPF)を構築し、国内素材産業の競争力向上に資する。図 3-9 にプロジェクトにおける実施内容と、それら成果物を活用した MDPF 構想の関係を示す。

さらにプロジェクトにおいて構築した技術を国内素材産業に普及させるための、人材育成に関しての取り組みも進めていく。

### (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した。

#### (1) 材料設計プラットフォーム(Materials Design Platform, MDPF)の整備

国内素材企業の材料開発のために、プロジェクトの研究開発成果を集約し、産総研において一元的に管理運用する環境として材料設計プラットフォーム(MDPF)という構想を提案した。その構想に基づき、計算科学・プロセス・先端計測各々の基盤技術により、以下のような成果物が MDPF に集約された。これらの MDPF はプロジェクト終了後、産総研の管理のもと、技術コンサルティング、共同研究等の枠組で産業界に提供していく予定である。

##### (a) マルチスケールシミュレーター群

図 3-10 に示すような、広範な時空間スケール、多様な材料・機能に対応したシミュレーター群を開発。プロジェクトにおいて各取材開発に活用するとともに、シミュレーターの普及・発展のために、2019 年度より随時公開し、拡張 OCTA などをはじめとして、すでに産業界において利用が進められている。

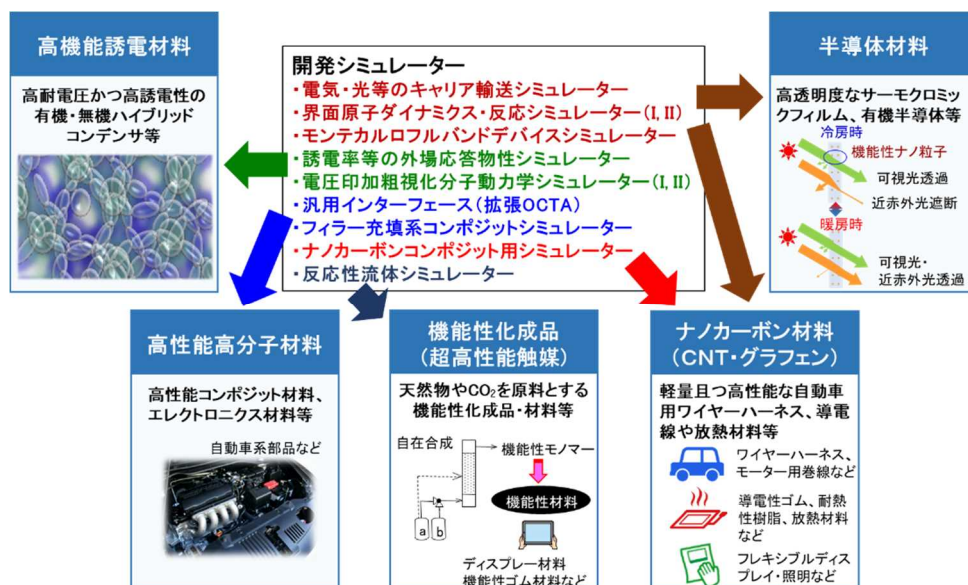


図 3-10 プロジェクトで開発されたマルチスケールシミュレーター

##### (b) 目的別高速試作・革新プロセス基盤技術

プロジェクトで進められた開発課題をコアにしながら、周辺領域に対する汎用性

も考慮して、ナノ粒子分散ポリマー、混練・発泡、ナノカーボン材料、触媒の 4 つの材料・プロセスを対象にし、高速試作・革新プロセス環境を構築した。図 3-11 に各プロセスにおいて整備された装置群を示す。各々の装置群は、コアとなる試作

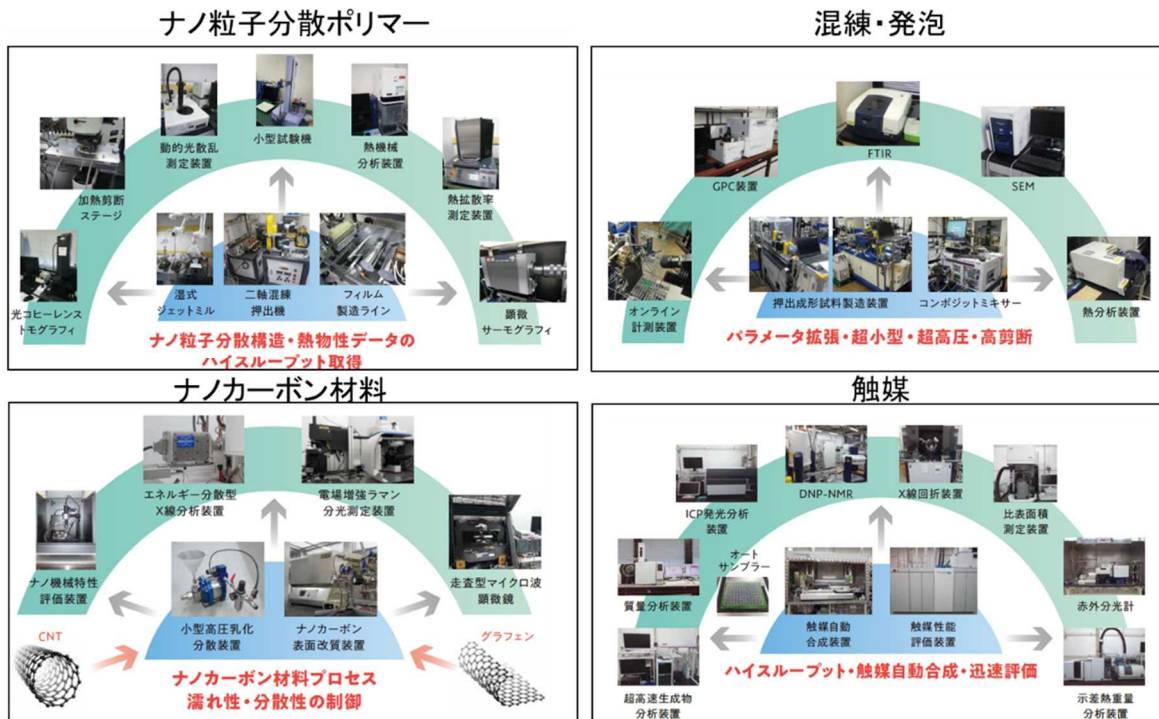


図 3-11 試作プロセス装置群

装置および周辺の評価・計測装置よりなり、試作－評価装置群の組み合わせにより、プロセス条件、評価結果等のデータが効率的に取得されて、後述するデータプラットフォームに蓄積されるように構成されている。

(c) 先端ナノ計測基盤技術

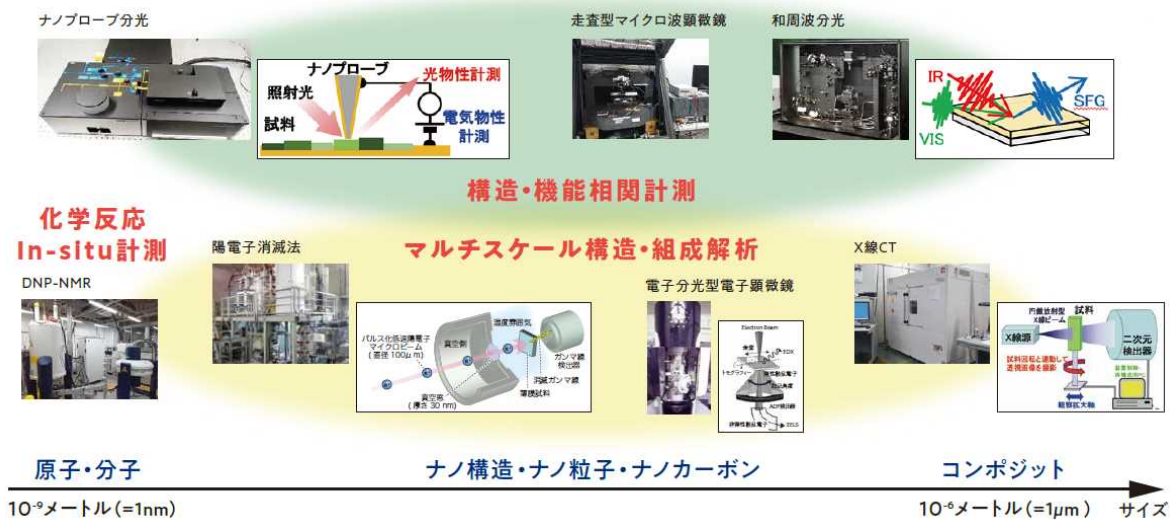


図 3-12 先端ナノ計測装置群

シミュレーション、試作プロセスを活用したデータ生成と、データと AI の活用による材料設計を進めていくうえで必要となる高品質の検証データを得るために、汎用的な計測装置に加えて、先端ナノ計測技術の構築、設備の整備を進めた。これらの技術および設備を MDPF に加えることにより、計算シミュレーション・AI 予測－試作－評価によるサイクルの質をより高めて、試作回数・開発期間の一層の短縮を実現する。図 3-12 に構築した先端ナノ計測基盤技術の概要を示す。

(d) AIST Materials Gate データプラットフォーム(DPF)の構築

シミュレーションやプロセス・計測機器から生成される材料データから、高機能材料の高速開発を可能にするために必要なシステム基盤「AIST Materials Gate データプラットフォーム」(DPF)を構築した。このデータプラットフォームは、第 3 章に示したように「データ生成・集積基盤」、「データ管理基盤」、「データ解析基盤」、「データ連携基盤」の 4 つの基盤システムから構成されると同時に、成果物である多数のデータセットを 5 つの材料領域に区分することにより構築したデータベースを提供することにより、プロジェクトの実用化を図る。

(2) データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムの設立

MDPF に整備された、マルチスケールシミュレーター群、高速試作・革新プロセス基盤、先端ナノ計測基盤、AIST Materials Gate データプラットフォームを活用し、産業界のニーズに基づいた確度の高いデータ駆動型材料開発を加速することにより、我が国の産業競争力を強化する目的で、産総研制度の枠組みで「データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアム(データ駆動コンソーシアム)」を 2022 年 4 月に設立した。

コンソーシアムでは主に以下のような事業を予定している。

- ① データ駆動型材料開発に関するセミナー及び技術交流会による最新情報の提供と会員の交流
- ② データ駆動型材料開発における個別課題に対応した技術コンサルティングの窓口及び共同研究のマッチング
- ③ MDPF に整備された DPF 利用サービスの提供と、チュートリアルによる実習及び人材育成
- ④ 外部データベースのワンストップ利用サービスの提供

加えて、プロジェクトの成果発信と MDPF の認知向上・普及啓発に向けた情報発信・共有や、コンソーシアムの目的を達成するために必要な事業を予定している。図 3-13 にコンソーシアムの位置付けを示す。

図に示すように、コンソーシアムの会員は一般 A/B および特別会員からなる。表 3-6 に会員種別を示すが、一般 A 会員及び特別会員はセミナー、技術交流会への参加、個別課題に対応した技術コンサルティング・共同研究の窓口に加えて、MDPF に含まれる AIST Materials Gate データプラットフォームにアクセスすることが可能で、プロジェクト成果物のデータベースを活用したデータ駆動型材料開発を実施することが可能になる。

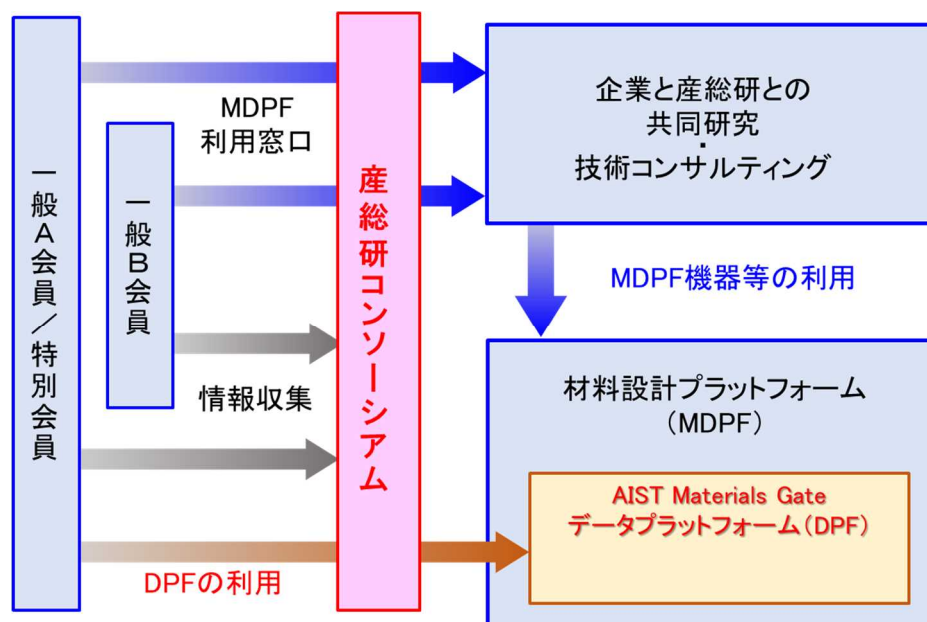


図 3-13 コンソーシアムの位置づけ

表 3-6 コンソーシアム会員種別

種別	一般 A 会員	一般 B 会員	特別会員
サービス内容	<ul style="list-style-type: none"> <li>● セミナー、技術交流会への参加</li> <li>● 個別課題に対応した技術コンサルティング・共同研究の窓口</li> <li>● <b>DPF 利用</b></li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● セミナー、技術交流会への参加</li> <li>● 個別課題に対応した技術コンサルティング・共同研究の窓口</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● セミナー、技術交流会への参加</li> <li>● 個別課題に対応した技術コンサルティング・共同研究の窓口</li> <li>● <b>DPF 利用</b></li> </ul>
参加資格	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 一般企業</li> <li>● ADMAT 参加企業</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 一般企業</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>● 大学、国研等の法人および個人</li> </ul>

(3) NEDO プロジェクトを核とした人材育成、産学連携等の総合的展開 データ駆動型材料設計利用技術者養成に係る特別講座の実施  
プロジェクト成果の実用化の一環として、2021 年度標記 NEDO 特別講座に採択され、本プロジェ

クトにおいて開発された技術や蓄積された研究事例等に基づいて、データ駆動型材料開発技術のための人材育成を実施する。

NEDO 特別講座では主に以下のような事業を予定している。

- ①人材育成の講座の実施
- ②人的交流等の展開
- ③周辺研究等の実施

#### (4) 成果の実用化の見通し

産総研を実施拠点とすることにより、多岐にわたる成果を集約し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先に挙げた AIST Materials Gate データプラットフォームの構築を含む MDPF の整備、コンソーシアムの設立を立案した。コンソーシアムに関してはプロジェクト期間中に事業内容、規約等の整備を終え、公開成果報告会や各種展示会、講演会で紹介を行い、さらに興味を持った企業・団体に対しては個別の紹介も進めている。その結果、プロジェクト参加企業はもとより、プロジェクトに参加していない企業からも入会申込が相次ぎ 2022 年 5 月時点で A 会員 27 社、B 会員 2 社、特別会員 1 機関、個人 78 名の参加が得られた。合わせて MDPF 環境全体に関しても、プロジェクト期間中から、すでにコンソーシアムその他産総研を窓口とする共同研究、技術コンサルティング等の制度による活用に関して多数の問い合わせがあり、産業界から期待されていることがうかがえる。

また NEDO 特別講座においては 2021 年度第 4 四半期より人材育成のための基礎講座を開講し、2022 年 5 月時点で、すでに 600 名程度の受講申込がなされている。

このような実用化の計画に対するプロジェクト期間中からの産業界の期待に基づき、プロジェクト終了後の実用化の見通しは十分に得られると期待される。

### 3.2 研究開発項目毎の成果（担当：AIST、ADMAT）

#### 3.2.1 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（①～⑤）

##### 【事業内容毎の目標と達成状況】

事業内容	最終目標 (2022年度9月末)	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	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	・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	・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逆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	マルチスケールシミュレーションにより、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ことにより、従来の試作回数・開発期間比で1/20の時間短縮を可能とするスキームを構築する	○

事業内容		最終目標 (2022年度9月末)	成果	達成度
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	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	<p>・機能性ナノ高分子材料の1つとして機能性合成ゴム材料の研究開発では、OCTAと拡張OCTA、及び関連するシミュレータを用いることで、対象組成を拘束した条件、もしくは、対象物性を決定した条件、などの目的に応じた条件の下で、計測の情報を用いた上で、材料候補の絞り込みを行うための順方向予測技術の開発が行え、プロセスの加速無しに最大で1/19の開発時間短縮を達成できた</p> <p>さらに、OCTAと拡張OCTA、及び関連するシミュレータを用いたシミュレーションにより、高分子データプラットフォームを構築し、2次元画像や3次元構造から特徴構造抽出する技術を用いて高次構造のデータ化が行え、目標を達成することができた</p>	○
	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	シミュレータ、スキームを用いた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	<p>・機能性高分子材料マルチスケールシミュレーションスキームを構築し、その適用によりポリマー溶液のレオロジー特性を考慮した相分離構造形成および生成した膜のファウリング特性、炭素膜の構造形成とガス拡散性、ポリマーブレンドの相分離構造と弾性率、無機粒子やナノフィラーの解砕・分散構造などの高次構造と熱拡散など、構造物性相関に資するデータの創出を行い、データプラットフォームの整備を行った</p> <p>さらに、機能性高分子材料に特徴的な支配因子・記述子を特定し機械学習への適用を実施することにより、適用した各課題に対して1/20を達成する試作回数・開発期間の短縮を可能にした</p>	○
④マルチスケール反応流体シミュレータの開発		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	触媒反応のためのシミュレーションを行い、そこから蓄積されたデータから反応に影響を及ぼす因子を特定することができた。エタノールからブタジエンの合成の触媒においては、表面の電荷、触媒を構成する原子間距離などが反応に大きく影響を及ぼすことが明らかになった	◎
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		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	<p>・高機能材料の高速開発を実現するAI解析技術の開発においては、(1)触媒実験データと計算シミュレーションデータを融合した機械学習計算により触媒収率を高精度予測するAI技術開発に成功、(2)マルチスケール材料シミュレータ間の連携を可能にする高精度機械学習ポテンシャル構築技術の開発に成功、(3)機械学習技術による計測スペクトルの自動高速解析技術の開発に成功などの成果をあげた</p> <p>・有機高分子材料の高精度物性予測・高速開発スキームの構築においては、(1)有機高分子材料高速物性予測技術の開発と多重物性最適化設計への応用を実現、(2)機械学習解析技術と実験データの融合により有機高分子材料高速開発を実現し、研究開発期間を1/27に低減することに成功した。また(3)有機高分子材料設計の逆問題ソルバの開発に成功し、(4)有機高分子材料データ解析の欠損データ処理技術の開発に成功し研究開発期間のおよそ1/22の短縮を実現した</p> <p>また高機能材料の高速開発を実現する基盤システムとしてデータプラットフォームシステムを構築し、その上に5つの材料群のDPFを構築した。さらに秘匿計算技術に基づく、データの共用と共有スキームを実現し、データプラットフォームシステムと統合し、秘匿性の高い企業研究開発の高速化に資するシステム基盤が構築された。その他、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を完了させ普及活動を行っている</p>	◎



【研究計画(線表)】

事業内容	2016年度				2017年度				2018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												
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												

事業項目	2019年度				2020年度				2021年度				2022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	第1四半期	第2四半期
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・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	モデル素材データ生成と分析、一部モデル素材へのAI等技術利活用の検討				材料探索スクリーニングの精度向上と候補材料絞り込み				順問題ソルバーとAI等技術を活用した材料設計				データプラットフォームへのモデル素材データ蓄積と構造化	
	モデル素材に特化したシミュレータの高度化、ユーザビリティの向上と高速化													
	モデル素材データ生成と分析				モデル素材のデータの蓄積				材料組成の予測					
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	モデル素材のデータ生成				データ追加と機械学習モデルの構築				支配因子の特定及び相反機能最適化				データプラットフォームへのモデル素材データ蓄積と構造化	
	モデル素材のデータの蓄積								シミュレーション&AIによる化学/高次構造の絞り込み					
	モデル素材構造の粗視化記述子検討				モデル素材構造の記述子抽出									
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	機能向上及び特徴構造の抽出								構造から物性の順方向予測				データプラットフォーム搭載に向けたモデル素材データの構造化	
	ファイラー分散プロセスのシミュレーションデータ蓄積								シミュレーション&AIによるファイラー分散プロセスの最適化				データプラットフォーム搭載に向けたモデル素材データの構造化	
	ファイラー分散構造の粗視化記述子検討				ファイラー分散構造の粗視化記述子抽出				ナノカーボンコンポジットの熱伝導性予測・実験的検証				データプラットフォーム搭載に向けたモデル素材データの構造化	
④ マルチスケール反応流体シミュレータの開発	高度化・ユーザビリティの向上、及びデータ蓄積				AIに必要なデータの蓄積・整備、最適な触媒構造及びフロー条件の探索				最適触媒構造の探索				データプラットフォーム搭載に向けたモデル素材データの構造化	
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	機械学習ポテンシャル・パラメータキャリブレーション技術、物性逆予測技術				高機能有機高分子パラメータ構築、物性逆予測技術の高度化				特性予測順方向シミュレーション高度化、高機能材料開発実用化				材料解析データプラットフォームのセキュリティー高度化	
	材料解析データプラットフォームプロトタイプ構築				材料解析データプラットフォーム構築・運用				材料解析データプラットフォーム実用化・完成					

## 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。これらの順問題ソルバを用いて構造・組成と機能がよく関連付けられた相関データを生成蓄積し、そのデータ解析による材料候補の直接絞り込み、あるいは生成データを学習データとして構築された AI を順方向予測に用いた順問題ソルバの加速や、所望の機能から材料の構造・組成を予測する逆予測ソルバを利用することで、従来の試作回数・開発期間比で 1/20 の時間短縮を目指す。また、順問題ソルバにより蓄積されたデータを実際に利活用し、そのデータ解析や、逆予測性を持つ AI により、所望の性能を持つカーボンナノチューブ線材、有機半導体材料、グラフェンといった有機・カーボン材料及びナノ粒子材料の設計指針を構築する。

開発したマルチスケールキャリア輸送シミュレータについては、共通基盤技術として、材料設計プラットフォーム(MDPF)の一部として本プロジェクト終了後も維持管理を行う。これらシミュレータはプロジェクトにおいて実施されたモデル素材以外の材料開発についてもコンソーシアムを通じて無償での利用・公開を前提とし、企業等による利用促進を図っていく。また、本プロジェクトにおいて得られたシミュレーションによる材料データと、これらデータを利用して構築された AI ツールを⑤で構築されるデータプラットフォーム(DPF)に蓄積し、関連する材料のデータ駆動型開発や、AI 解析ツール等の開発に利用できるよう維持・管理する。

#### ■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マイクロメートル長程度に引き上げた、第一原理電気伝導計算シミュレータ「拡張 CONQUEST」を開発した。さらに第一原理電気伝導計算データを学習データとし、与えられた組成と構造から電気伝導度を予測する深層学習モデルによる計算—AI 融合で順問題ソルバを加速する基盤技術を構築した。既往の材料形成と同時電気計測を、開発手法による仮想実験で再現し、その精度を検証した。また、マイクロマクロ階層連携を強化するために、マクロ側においては、バンドル群やフィブリル構造に代表される、配向性のある複雑構造を持った、配線材料の電気抵抗を予測するマクロスケールシミュレータ「抵抗回路網モジュール」の開発を完了した。これら開発シミュレータによりミクロな構造・組成情報から階層連携でモデル素材の電気機能を順予測する事が可能になった。光学応答・色機能に関しては、モデル素材である宿主材料に分散されたナノ粒子の光学応答計算シミュレータの開発を行い、任意の形状、粒径、組成のナノ粒子に対し、その光学応答だけでなく分散材料の視覚的色彩を予測する順方向予測計算シミュレータ(DDA 光学応答シミュレータ)を開発した。

開発シミュレータ等を用いて、カーボンナノチューブのマイクロレベルでのモルフォロジーと電気抵抗の相関データ、有機半導体分子の分子種・結晶構造とキャリアの有効質量の相関データと、遷移金属元素や酸化物半導体組成のナノ粒子に対する粒径・形状と光学応答の相関データ等を網羅的に生成し、それぞれ「配線・半導体 DPF」「光機能性微粒子 DPF」への蓄積を

行なった。DPF 格納の材料データの解析やデータ間の階層連携、生成データを学習データとした逆問題ソルバの利活用により、有機半導体材料のスクリーニング、所望の電気機能を持つカーボン材料の設計指針探索や、所望の粒径形状や色彩機能を実現するナノ粒子合成条件の絞り込みを実施した。上記のような順問題ソルバと、生成データ、逆問題ソルバの利活用により、プロセス・計測との連携で従来の試作回数・開発期間比で約 1/20 の時間短縮に成功した。また、本項目で開発、利用したシミュレータについては、MDPF において共通基盤技術としてマニュアルや入出力サンプルの提供といったユーザビリティの向上も含めた維持管理体制を整えた。

(主な成果・実施内容) 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、電流計算部分の並列化等による高速計算技法を導入、再委託先の物質・材料研究機構(NIMS)では、その電子状態計算基幹部分の高速化・高効率化を進め、電子-フォノン相互作用によるホッピング伝導からの伝導度の補正項も含め、大規模計算に適合するアルゴリズムを採用した計算シミュレータ(拡張 CONQUEST)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配線に関連して、バンドル群の電気特性を考える上でモルフォロジーの最小構成要素となる交差したカーボンナノチューブの接触構造に対し、網羅的にその接触抵抗を計算し、そのデータを DPF に蓄積した。またこの計算データを学習データとし、接触部位構造とその電気抵抗の相関を予測し、逆予測にも展開可能な回帰モデルを構築した。さらに、第一原理伝導計算と AI 技術を融合させ、原子レベルでの任意の組成と構造から電気伝導度を予測する深層学習モデルを構築し、計算-AI 融合による順問題ソルバの加速にも成功した。

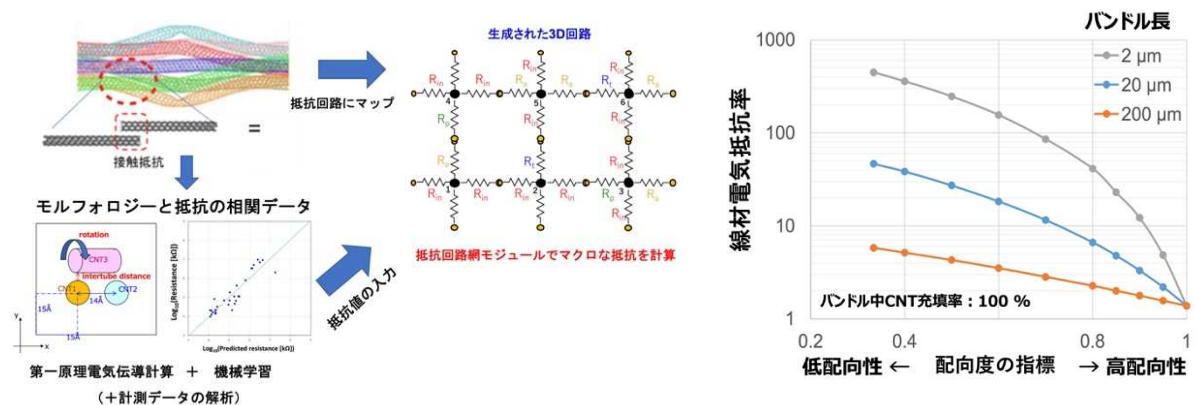


図 3-①-1-1 マルチスケール電気伝導計算の概念図と計算例

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配線の電気機能予測につなげるマルチスケール・階層連携のシミュレータ(抵抗回路網モジュール)を開発し、DPF のデータや AI より得られた電気抵抗値を入力としたマルチスケールシミュレーションを実施した。(図 3-①-1-1)。プロセス(事業内容⑨)と計測(事業内容⑬)実施結果との相互検証、計算パラメータへのフィードバックと、配線材料におけるモルフォロジーや配向性とマクロな電気抵抗の相関解析を、所望の電気機能を実現するカーボンナノチューブの構造や紡糸プロセスでのバンドル・フィブリル構造の絞り込みに用い、プロセス(事業内容⑨)計測(事業内容⑬)との連携により、約 1/20 の時間短縮に成功した。

また、従来シリコン半導体用に開発されていた TCAD デバイスシミュレータをモデル素材である有機半導体分子材料へ適用拡張するとともに、高移動度を持つ有機半導体材料絞り込みに向けて、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材料探索スキームの確立とその高精度化を再委託先の豊橋技術科学大学と協力する事により実施した。データ科学的手法等を用いた、移動度とキャリア有効質量の相関性の有無を検証後、モデル素材である有機半導体分子とその誘導体等に対し、その結晶構造を取得後に有効質量を網羅的に計算し、これらのデータを構造化し DPF へ収納した。また、上記の計算科学的手法の確立と計算データを利用し、所望の機能(高移動度)を持つ候補分子を絞り込み、実際に合成する材料の数を減らすことで、約 1/20 の時間短縮を実現した。同じくモデル材料のグラフェンについても、合成プロセスで生じる不純物ドーピング、ワーピングに対する電気伝導度を予測し、事業内容⑨⑬で実施された大面積グラフェンの合成とその機能計測のデータと合わせてデータ科学的な相関解析を行い、所望の移動度の実現に対して要求されるワーピング抑制を数値化し、プロセス条件の絞り込み加速に利用することで、開発期間の時間短縮に寄与した。

光学・色機能に関しては、誘電関数を介した階層連携モデルを採用した。バルク結晶系での組成・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、この誘電関数とナノ粒子の形状・粒径を入力として、ナノ粒子光学応答を計算する。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、離散双極子近似(DDA)による DDA 光学応答計算シミュレータを開発してそれを用いた。さらに得られた光学応答からナノ粒子分散材料の反射スペクトルや視覚的色彩予測といったシミュレータの機能強化も行なった。これらの開発シミュレータを利用し、遷移金属元素及び一部の酸化物金属半導体を組成とするナノ粒子の光学応答計算を網羅的に実施し、ナノ粒子の組成・形状・粒径及び分散媒質屈折率と光学応答の相関データを創出し、DPF へ蓄積した。モデル素材である調光ナノ粒子分散フィルム材料の色(光透過性)制御では、上記の順問題ソルバによるデータ解析により、所望の機能を実現するナノ粒子粒径の閾値を予測、材料設計指針を提示することで材料開発期間の短縮に成功した。

またモデル素材の Ag ナノ粒子粒径形状制御による色機能については、計算データを学習データとした回帰モデルによる順問題ソルバの加速に加え、記述子抽出手法とベイズ最

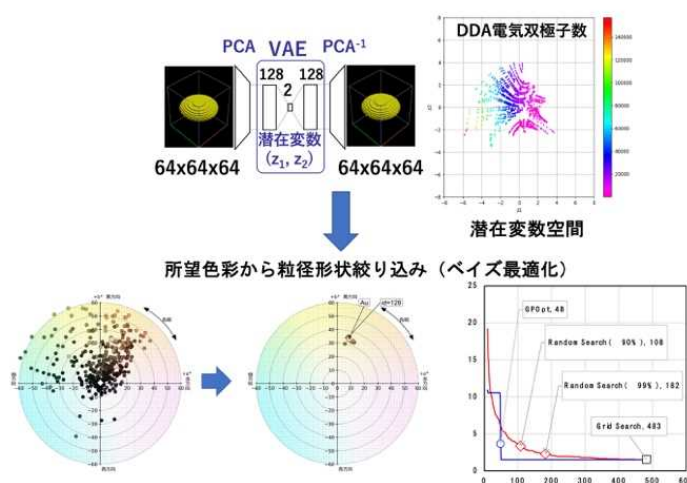


図 3-①-1-2 色機能を実現するナノ粒子粒径形状の絞り込み実施の概念図

適化を連結させた粒径・形状の絞り込み予測（図 3-①-1-2）、スパースモデリングを用いた光学応答から分散材中のナノ粒子の粒径形状分布を推定する分析手法といった、逆問題実施に向けたデータ駆動手法の利活用を進めた。また、これら AI 技術の利活用と、事業内容⑥実施によるハイスループットナノ粒子合成、分散溶液スペクトル計測データの連携により、これら手法の検証と、所望のナノ粒子粒径形状を実現する合成条件の逆予測を実施し（図 3-①-1-3）、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の基盤技術開発と、その利用による材料従来からの試作回数・開発期間比で約 1/20 の時間短縮を実証した。

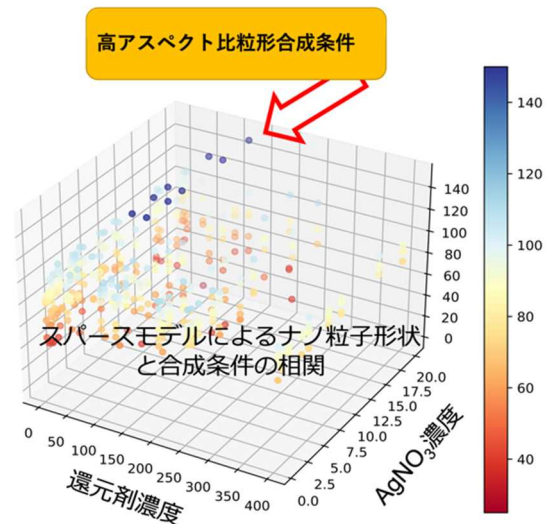


図 3-①-1-3 ナノ粒子粒径形状から合成条件逆予測実施例

## 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。

後半期においては、開発シミュレータのユーザビリティ向上を目指したプログラム開発を行い、シミュレーション結果をデータベースにシームレスに蓄積するためのプロトコルを確立した。また、開発したシミュレータを用いて、モデル素材である有機溶剤に添加する酸化防止剤の反応解析を行い、化学種により反応性が異なることを明らかにした。本研究により、通常の観測では得られない有機溶媒中の化合物の挙動や物性値を定量的に解析できるようになった。更に、有機溶剤の粘度を分子動力学のSLLOD法によって推算した。これにより、添加物を含む有機溶剤の特性を推算できることを確認し、機械学習を活用して分子構造から粘度推算でき、目標特性を設計できることが明らかになった。

(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。

後半期において、再委託先の名古屋工業大学で前半期に開発した HybridQMCLT を用いて、添加剤を含む液体とアモルファス基板に押擦りされる実際的な状況でのシミュレーションを実施した。添加剤の化学反応を促進する可能性がある様々な要因(高温化、擦り速度、基板の非一様性)をそれぞれに対応したシミュレーションによって検討した結果、基板を構成する元素の非一様性が、押擦り状況での添加剤分子の分解を特に促進することを見出した。さらに、有機/無機界面の相互作用が重要となる問題に対し、界面吸着特性の評価手法を確立した。特に、高い断熱性や光透過性などの特性が期待されるナノ発泡ポリマーにおいて、発泡核材とポリマーの相互作用を例に検討を行った。手順としては、まず密度汎関数法より求めたポリマー/核材界面の吸着曲線を表現できる力場関数を作成し、その力場を用いて古典分子動力学による界面の引き剥がし解析を行うことで、界面応力を算出した。核材の材料により応力の差が見られ、これにより、界面相互作用が重要となる材料選定において、計算科学から選定の指針を得ることが可能となった。

また、再委託先の筑波大学では、前半期に開発したシミュレータのユーザビリティ向上を目指して、ESM-RISM を複数の第一原理シミュレータにおいて利用可能とした。また、シミュレ



ータで計算した大量のデータをデータプラットフォームに供出するためのインターフェースも作成した。前者に関しては、第一原理シミュレーションプログラム CONQUEST および OpenMX に ESM-RISM を導入した。CONQUEST は密度行列最適化手法に基づくオーダーN 法第一原理シミュレーションプログラムであり、半導体デバイスや DNA など、100 万原子レベルの原子が集まった物質の機能・構造を計算することが可能である。また、OpenMX は原子局在基底を用いたオーダーN 法にも対応している第一原理シミュレーションプログラムであり、ベリー位相による電気分極率計算、ノンコリニア磁性や非平衡グリーン関数法による電気伝導計算等の拡張機能を備えている。これら二つのシミュレーションプログラムにおいて、ESM-RISM 機能を整備することにより前半期に開発した Quantum ESPRESSO と合わせて、小規模から大規模まで様々な計算対象を扱うことが可能となり、ユーザビリティの大幅な向上を図ることができた。後者においては、データプラットフォームへのデータ供出を行うため、Quantum ESPRESSO における ESM-RISM が算出するデータを XML 形式で出力するためのプログラム改修を行なった。Quantum ESPRESSO では通常は標準出力に計算データが記述されるが、XML 形式の出力が SQL や機械学習等でのデータハンドリングに優れている。Quantum ESPRESSO における XML I/O を管理する xmltools を ESM-RISM 対応となるよう改修し、データプラットフォームへのデータ供出プロトコルを確立した(図 3-①-2-1)。

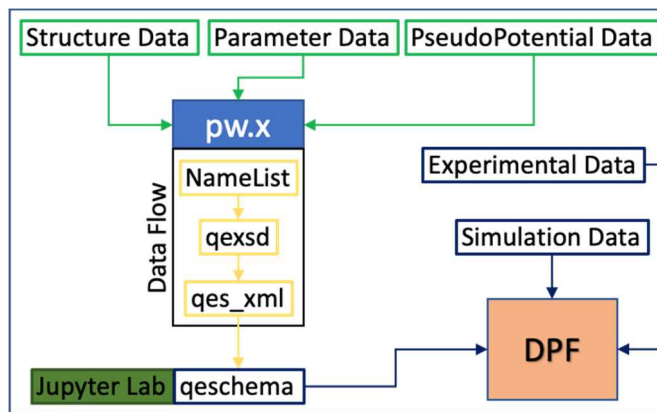


図 3-①-2-1 ESM-RISM を用いたデータ解析の流れ

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

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

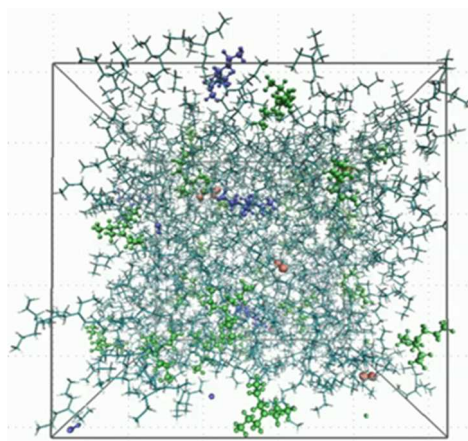


図 3-①-2-2 有機溶媒中の酸化防止剤と酸素の存在状態

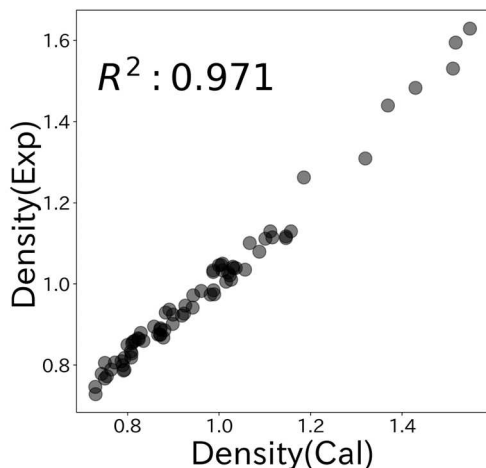


図 3-①-2-3 有機溶剤の密度推算

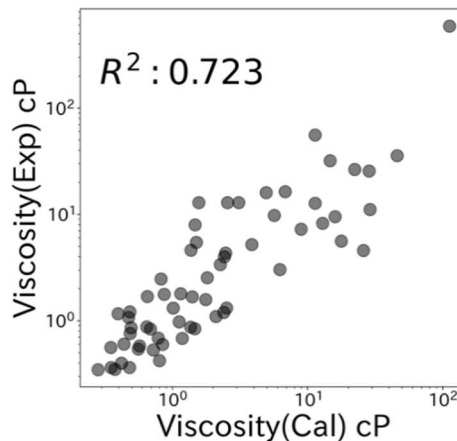


図 3-①-2-4 SLLOD 法による有機溶剤の粘度推算

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。

後半期においては、有機溶剤に添加する酸化防止剤の反応解析に逐次的に進行する酸化反応の解析により、酸化反応のシミュレータを活用し酸化反応抑制機構を解析した。図 3-①-2-2 のように分子動力学で有機溶剤とこれに混入した酸素及び酸化防止剤の状態を決め、反応を量子化学計算によって解析した。反応生成物量の経時変化を求め、酸化防止効果の継続性や溶剤の酸化劣化を解析した。

有機溶剤中の添加剤が金属表面に押し付けられた際の反応をバルクの状態を分子動力学で求め、金属表面を量子化学計算で解析し、金属表面への圧縮や剪断を解析できる界面反応シミュレータで解析した。理論計算で化学種により反応性が異なることが確認できた。

有機溶剤中の界面活性剤がミセルを形成したり、固体不純物が混入した際に表面に吸着し溶液中に分散したりすることを分子動力学で確認できた。これにより界面活性剤の有機溶媒中での挙動が明らかになった。

以上のシミュレータにより、通常の観測では得られない有機溶媒中の化合物の挙動や物性値を定量的に解析できるようになった。今後これらのパラメータを実験値と合わせて機械学習や AI で活用すれば、目的とする物性値を設計できると考えられる。

更に、分子動力学で有機溶剤の密度は推算でき、粘度も SLLOD 法によって推算できることを確認した(図 3-①-2-3,4)。以上の解析により、添加物を含む有機溶剤の特性を推算できることを確認した。更に分子構造の SMILES 表記から説明変数を出し、粘度の予測モデルを構築した。これにより分子構造から粘度設計が可能となった(図 3-①-2-5)。

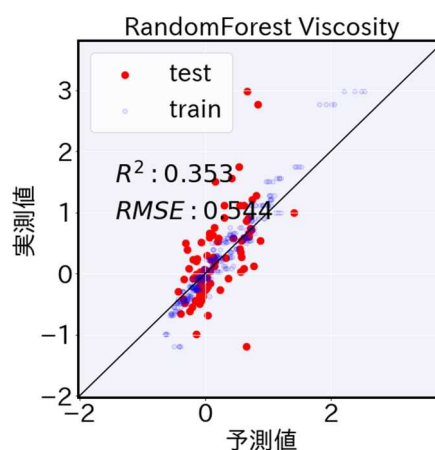


図 3-①-2-5 分子構造からの粘度推算

## 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

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。

#### ■研究開発の成果

(概要) 第一原理計算により複素誘電関数や光学伝導率を求める「誘電率等の外場応答物性シミュレータ」を開発し、第一原理電子状態計算プログラムパッケージ **OpenMX** の追加機能として公開した。開発したシミュレータを用いて、有機・無機材料の誘電特性と組成・構造の相関データ 510 件を創出した。さらに、得られた計算シミュレーションデータを収納した電子部品材料データプラットフォームを構築した。

この第一原理計算データと古典動力学シミュレーションを組み合わせることで電子分極、イオン分極、配向分極の寄与を考慮した誘電特性を評価するシミュレーション技術を開発した。これを用いて高誘電率を示し得る候補を絞り込むことに成功した。

また、上記の計算シミュレーションと AI を組み合わせることで、低誘電率・低誘電正接のポリイミド材料の絞り込みを行ない、材料試作を実施した。以上の手法により、従来の材料開発スキームに比べて 1/20 の時間短縮を達成した。

## (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。導出した手法を第一原理電子状態計算プログラムパッケージ OpenMX の追加機能として実装を行った。典型的な固体の誘電関数(周波数依存)を計算し、従来報告されていた結果をおおよそ再現した。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。以上の「誘電率等の外場応答物性シミュレータ」を、OpenMX Ver3.9 の一部として GNU General Public License (GNU-GPL)にて公開した(図 3-②-1-1)。

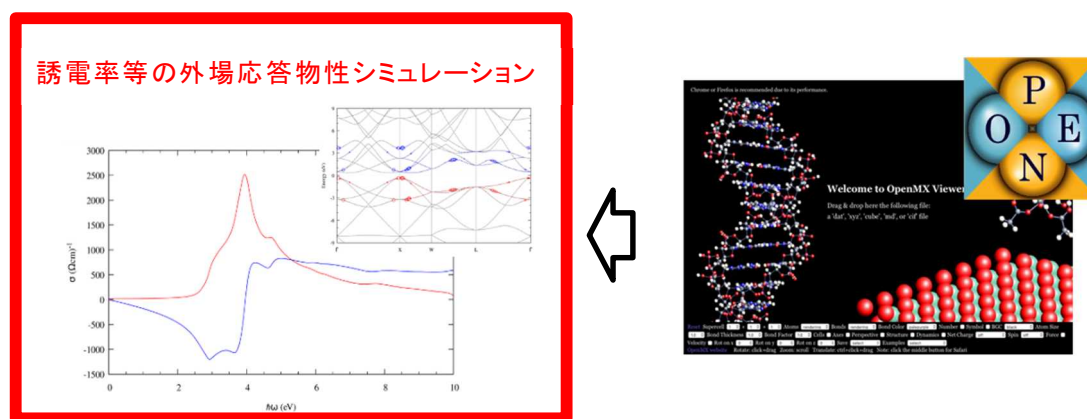


図 3-②-1-1 誘電率等の外場応答物性シミュレータを用いて計算した複素誘電関数の計算例。シミュレータは、OpenMX ウェブサイト([www.openmx-square.org](http://www.openmx-square.org))より取得可能。

開発したシミュレータを用いてモデル素材および関連材料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、GHz-PHz 領域を含む周波数依存の誘電特性を計算した。これにより、無機材料として、27 種類のドーパントを含むバナジウム酸化物、およびペロブスカイト型酸化物 60 件の計算を実行し、複素誘電関数、光学伝導度、バンドギャップ、電子状態密度の計算データを創出した。また、有機材料として、Khazana データベースに掲載の高分子材料 320 件と、後述のとおりポリイミド材料 100 件の計算データを創出した。創出したデータを蓄積するため、事業内容⑤と協力して、電子部品材料データプラットフォームを構築し、上記データを含む 510 件の第一原理計算データを収納した。

誘電率等の外場応答物性シミュレータを用いると、電子分極に由来した誘電特性を評価することができる。これに加えて、イオン分極と配向分極を考慮するため、事業内容②-2と協力して分子動力学シミュレーションを用いた誘電特性の評価技術を開発した。これにより、GHz-THz 領域の誘電率と誘電正接を計算シミュレーションにより評価することが可能になった。

高誘電率を示す有機高分子または有機・無機ハイブリッド材料の探索に際し、高分子材料に関して、その構造式のデータをもとに、高誘電率を示す候補の絞り込みを自動で行うシステムを開発した。まず、電子分極由来の誘電特性の周波数依存を計算するために、モノマー単位の構造式のリストから、主鎖方向に伸長した高分子の一軸配向モデルを自動で作成できるようにした。また、作成された高分子モデル群とそれらの構造式から記述子を自動生成し、そのリストを取得できるようにした。次に、作成されたモデル群から上記の OpenMX シミュレータのフォーマットに合わせた入力ファイルを自動作成し、シミュレーションを自動実行することで、電子分極由来の誘電特性を順次計算できるようにした。得られた誘電特性と記述子から、自動で機械学習を行う機能も実装した。その学習結果およびバッチベイズ最適化を用いて、与えられた構造式のデータリストから高誘電率を示す物質を効率的に探索できるようにした。この一連のシステムの概念図を図 3-②-1-2 に示す。

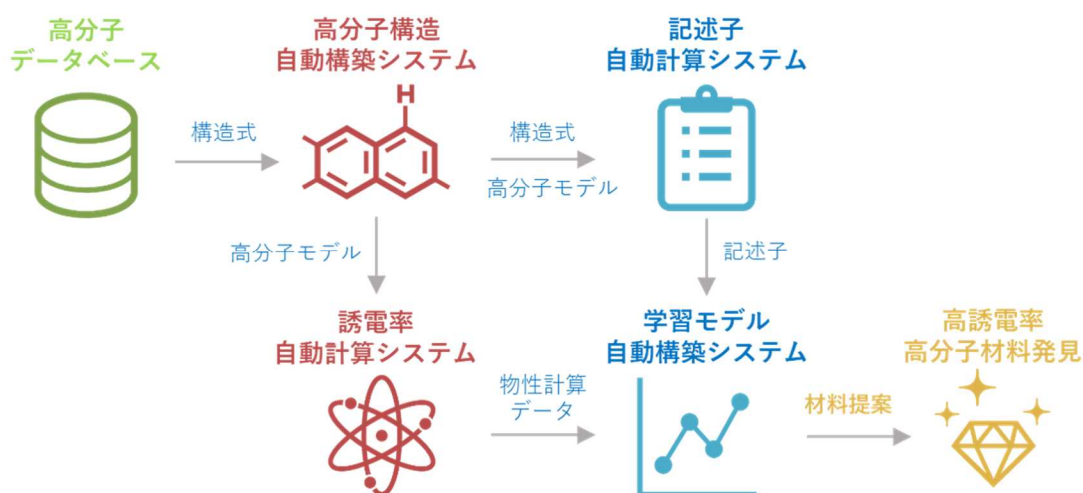


図 3-②-1-2 高誘電率を示す候補の絞り込みを行うシステムの概念図。

この一連のシステムで探索を行う上で、誘電率だけでなく、絶縁性に関わるバンドギャップなどの電子物性も考慮して候補を絞り込み、分子動力学シミュレーションから GHz 帯の誘電特性を得ることで、最終的に高誘電率を示し得る候補を絞り込むことに成功した。

本プロジェクトで開発された外場応答シミュレータを用いて、ポリイミドを対象に電子分極由来の誘電関数を計算し、100 件の計算データを蓄積した。電子分極由来の誘電率の計算結果は、実測と定性的な傾向が一致することを確認した。得られた計算データを教師データにして、本プロジェクトで開発された数密度 ECFP(ECFP: Extended Connectivity Circular Fingerprints)を説明変数としてガウス過程回帰を実施し、汎化性能の高い回帰モデルの構築に成功した(図 3-②-1-3)。また、分子動力学シミュレーションを用いて、イオン分極、配向分極由来の誘電特性の計算技術を開発した。得られた誘電特性の計算データに対して、化学構造記述子を用いた LASSO 回帰により説明変数の誘電特性への影響度について調査した。逆問題解析により誘電率、誘電正接に関する特徴的な支配因子を

抽出した。上述の電子分極、イオン分極、配向分極を考慮したマルチスケール計算科学、および機械学習の基盤技術を活用し、膨大な数の材料候補の中から低誘電率、低誘電正接を発現するポリイミドの材料探索を行い、試作評価を実施した。以上の手法により、従来の材料開発スキームと比較して 1/20 の時間短縮を達成した。

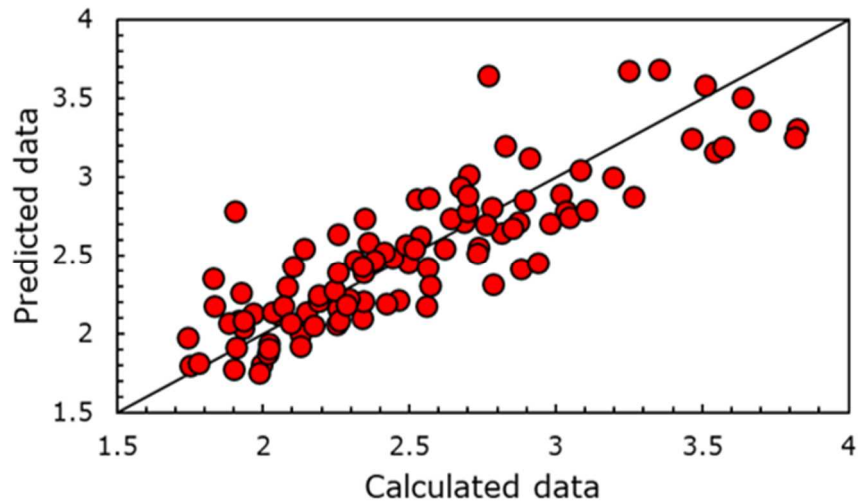


図 3-②-1-3 電子分極由来の誘電率を目的変数とした交差検証結果

## 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ー材料設計を実施することを最終目標とする。

具体的材料として、電歪ソフトマテリアルの開発を目標とし、モデル素材として液晶エラストマー系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。その際粗視化モデルの有次元化の手法を検討し、現実系の分子設計において、第一原理計算などの結果との定量的な対応を実現する。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ともに粗視化 MD シミュレーションと有限要素法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 MD 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。

同時に、組織構造から支配因子・記述子を抽出するため、機械学習による構造分類手法を開発し、マルチスケールシミュレーションにより得られたデータに基づいた機械学習に適用し、材料開発期間の短縮を実現する。

加えて有機・無機材料の誘電特性を予測し材料設計を行うことを目標とし、事業内容②-1と協力して分子動力学シミュレーションによるイオン分極と配向分極に起因する GHz-THz 領域の誘電率と誘電正接の予測技術を構築する。

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、実際のシミュレーションモデルの構築とシミュレーション結果、および事例検討を高度化・高速化するために構築された基盤技術に関して成果を報告する。

分子動力学シミュレーションによるイオン分極／配向分極に起因する誘電関数の予測の成果は事業内容②-1の項で述べたとおりである。

### (1) 液晶エラストマーの電歪挙動シミュレーション

高分子アクチュエーター材料として期待される材料の一つである液晶エラストマー(LCE)の電歪挙動を制御する分子設計のため、マルチスケールシミュレーションスキームを開発するとともに、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機械学習を実施し、材料設計を加速するため(a)-(f)の項目に関して研究開発を実施した。

- (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
  - (d) 機械学習による液晶エラストマーの特性予測
  - (e) 液晶エラストマーメソゲン分子設計
  - (f) 粗視化 MD と有限要素法との接続によるデバイス設計
- 以下に、各項目で得られた成果を述べる。

#### (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、LCE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。

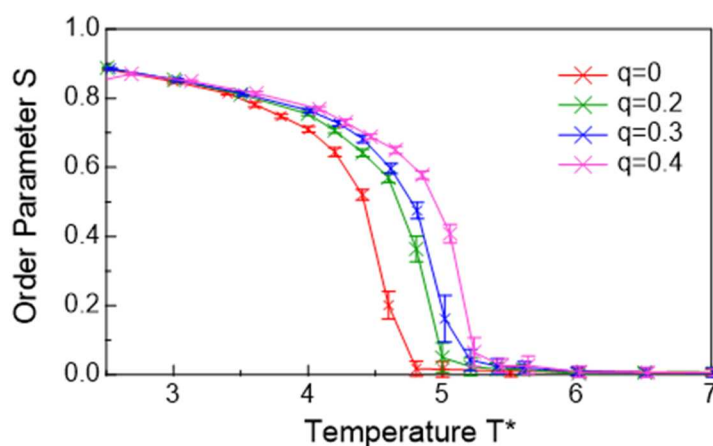


図 3-②-2-1 電荷を導入した液晶エラストマーモデルの相転移挙動



(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 LCE 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 LCE 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。

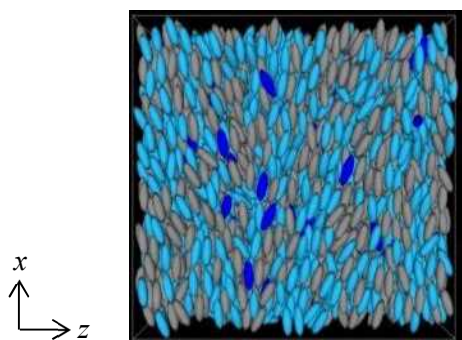


図 3-②-2-2 架橋した液晶エラストマーモデルのスナップショット

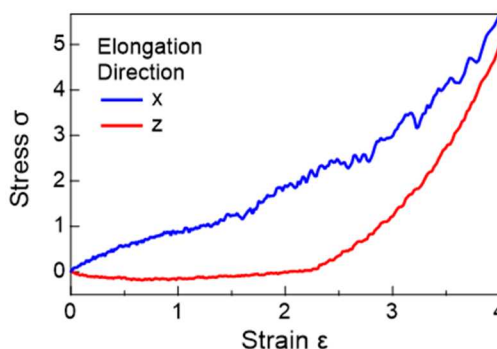


図 3-②-2-3 架橋した液晶エラストマーモデルの応力-ひずみ特性

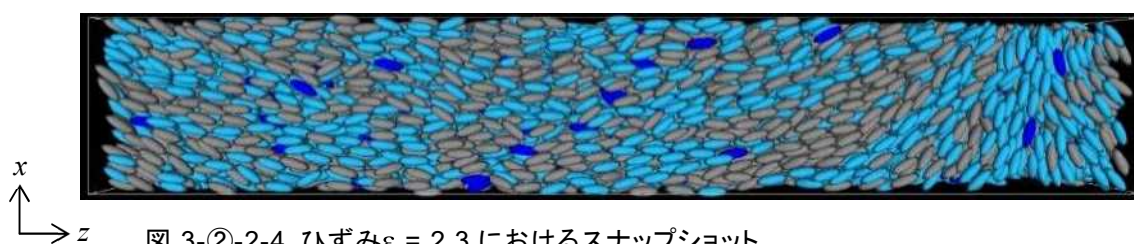


図 3-②-2-4 ひずみ  $\varepsilon = 2.3$  におけるスナップショット

$x$  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、伸長さ初期から応力が增大しており、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  $\varepsilon$  がおよそ 2.3 未満の領域では応力がそれほど増加せず、 $x$  方向の伸長さと比べ、非常に柔らかい性質が得られた。この  $\varepsilon = 2.3$  においては、図 3-②-2-4 に示すように大部分の GB 粒子が伸長さ方向である  $z$  方向に配向しており、伸長さにより GB 粒子が回転したことがわかる。このことから、 $\varepsilon < 2.3$  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が緩和されるため、伸長さ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、 $\varepsilon > 2.3$  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、伸長さに応じて応力が増大したと考えられる。このような伸長さ初期において応力が増大しない現象は、soft elasticity と呼ばれ、LCE 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。

以上では、剛直な GB 粒子のみで LCE をモデル化してきた。しかし、LCE には本来、アルキル鎖のような柔軟鎖も含まれる。そこでこの柔軟鎖を、等方的な相互作用を有する Lennard-Jones(LJ)ポテンシャルでモデル化し、LCE のより厳密なモデル化を試みた。具体的には、LCE の繰り返し単位の中に LJ 粒子を含め、GB 粒子と LJ 粒子数の比や、その接続位置を自在に

設定できるようにした。このモデルを用いて柔軟鎖が力学特性に及ぼす影響を解析するため、図 3-②-2-5 に示すような LJ 粒子数の異なるモデル 1、2 を作成し、力学特性を比較した。上記と同様に、液晶相発現温度において初期配向に対して水平(x)および垂直(z)方向にセルを一軸伸長させた際の応力-ひずみ特性を図 3-②-2-5 に示す。より LJ 粒子が多いモデル 2 では、モデル 1 に比べ、伸長方向に対する異方性が大きく表れ、特に z 軸伸長ではモデル 2 でのみ soft elasticity が観測された。これは、図中に示すように、LJ 粒子が少ない、すなわち柔軟部位が少ないモデル 1 では、側鎖の GB 粒子同士が密となり、GB 粒子の回転が阻害されるのに対して、より柔軟部位が多いモデル 2 では、伸長とともに GB 粒子の回転が誘起されやすいためであると考えられる。以上より、LCE において soft elasticity を得るための設計指針として、ネットワーク構造を介して接続された GB 粒子間に十分な柔軟構造を設ける必要があることが明らかとなった。

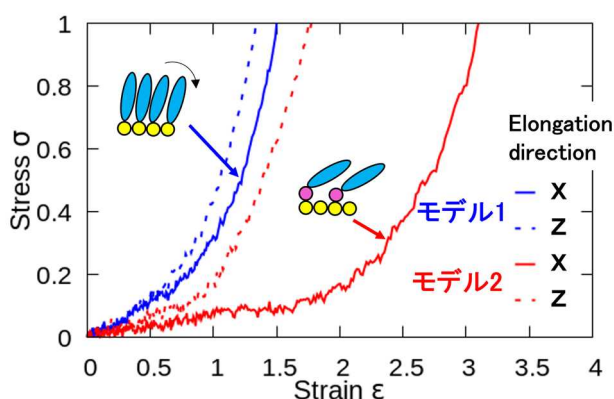


図 3-②-2-5 側鎖型液晶エラストマーの応力-ひずみ特性

次に、架橋密度が力学特性に与える影響について検討した。上記にて soft elasticity が発現したモデル 2 を基準に架橋分子数を 1.5 倍及び 2 倍にしたモデル 2-a とモデル 2-b を作成した。これらのモデルに対して、初期配向に対して垂直方向にセルを伸長させた際の応力-ひずみ特性を図 3-②-2-6 に示す。すべてのモデルにおいて soft elasticity が発現したが、その発現領域、すなわちひずみに対して応力が一定となるひずみの範囲とその応力値に着目した場合、架橋密度が大きいほど、ひずみの範囲は小さくなり、応力値は高くなった。また、両者の関係をプロットすると、図 3-②-2-7 のようになり、架橋密度に対して概ね線形の関係があることが明らかとなった。これは架橋密度の増加により、柔軟鎖部分がより小さなひずみで伸びきり、主鎖に比べて動きやすい側鎖 GB 粒子の回転もすぐに誘起されてしまうためであると考えられる。このように、soft elasticity が発現するひずみ幅や応力値は架橋密度を調節することによって設計できることが明らかとなり、実際の分子設計に直結する有意義な指針が得られた。

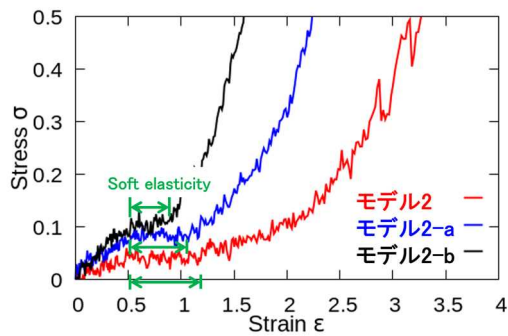


図 3-②-2-6 側鎖型液晶エラストマーの応力-ひずみ特性

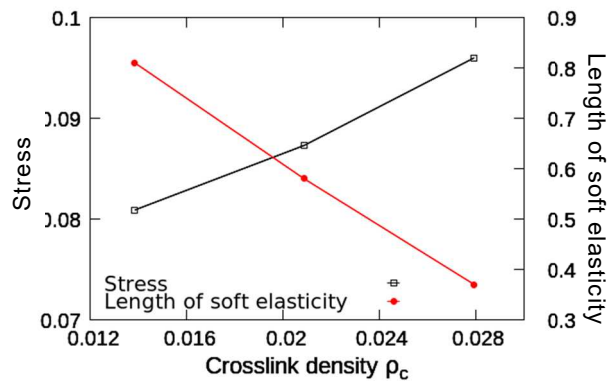


図 3-②-2-7 側鎖型液晶エラストマーの応力-ひずみ特性

(c) 電場印加下における圧電特性の算出

LCEは外場に応答して変形することが知られている。そこで、我々が構築した粗視化LCEモデルについて、外場として電場を印加した際の電歪特性について解析した。電場は、GB粒子の両端に設定した正負の電荷に、その符号に対応した向きの外力  $\mathbf{F}=q\mathbf{E}$  ( $q$ :電荷、 $\mathbf{E}$ :電場ベクトル)を与えることによってモデル化した。LCEの電歪特性の構造依存性を解析するために、前述した側鎖型と主鎖型の2種類のモデルの電場応答を解析した。まず側鎖型について、液晶相発現温度でセルの体積を一定に保ったまま、GB粒子の初期配向方向( $x$ )に対して垂直方向( $y$ )に電場( $E=0.7$ )を印加し、応力及びオーダーパラメータの時間変化を解析した(図3-②-2-8)。黒の実線で示されるオーダーパラメータは $x$ 軸配向を示す $-0.4$ から $0.8$ まで増加しており、これは電場印加方向に再配向したことを示す。青の実線は電場印加方向の収縮応力を示しており、これが時間とともに増大していることから、このシミュレーションではGB粒子の再配向により、電場方向に収縮する応力が働いていることが分かる。同様の現象が実験でも報告されており、この電場印加モデルが妥当であることが示された。また、この応力およびオーダーパラメータの平衡値の電場依存性を解析した(図3-②-2-9)。オーダーパラメータは $E=0.1$ 程度の小さな電場から増大し始め、 $E=0.5$ で電場方向へ再配向した一方、応力はその後も $E=2.5$ まで単調増加した。この $0.5 < E < 2.5$ におけるGB粒子の挙動を確認すると、電場方向への配向を維持しながら、電場増大による粒子の最適位置への移動が起きており、これが応力の増大に寄与していると考えられる。また、 $E > 2.5$ においてはGB粒子の移動はほぼ起きず、応力も増大しなかった。

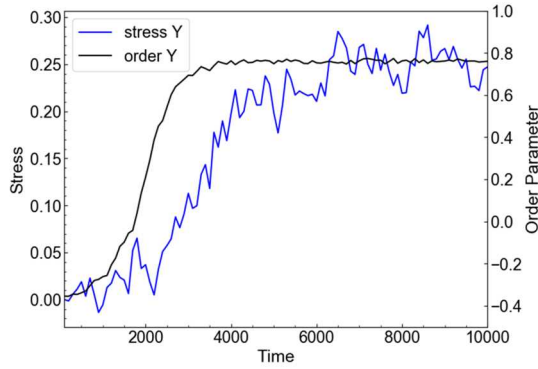


図 3-②-2-8 電場印加時の時間に対する応力及びオーダーパラメータ( $E=0.7$ )

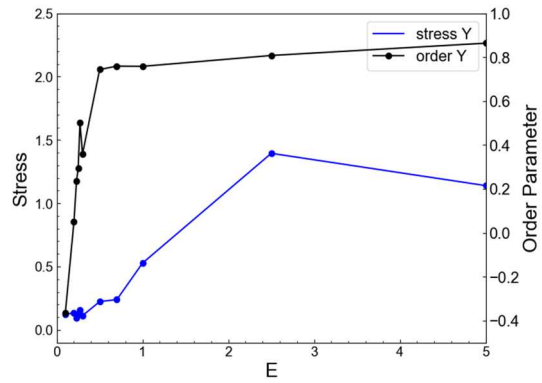


図 3-②-2-9 側鎖型液晶エラストマーの電歪特性

次に、主鎖型モデルの電歪特性について示す。初期配向方向(x)に対し、垂直方向(y)に電場印加した際の電場  $E=1.5$  における応力、及びオーダーパラメータの時間変化を図 3-②-2-10 に示す。主鎖型においても側鎖型と同様に GB 粒子の電場方向への再配向、および収縮応力の増大が確認できた。次に応力、およびオーダーパラメータの平衡値の電場依存性を図 3-②-2-11 に示す。こちらは側鎖型とは異なり、 $E=1.0$  付近までは応力、及びオーダーパラメータは変化せず、 $E>1.0$  で再配向および応力増大が観測され、側鎖型に比べると再配向には大きな電場が必要であることが明らかとなった。これは、主鎖型では GB 粒子が主鎖に埋め込まれているために、側鎖型に比べ動きづらく、再配向に大きな電場を要しているためであると考えられる。一方で、応力は  $E>1.0$  で単調に増加し続け、 $E=5.0$  では側鎖型の 2 倍程度の応力が得られた。これは、GB 粒子の動きが主鎖骨格の動きに直結するため、電場による GB 粒子への規制力が直接応力に反映されているためであると考えられる。以上より、低電圧駆動が望ましいか、大きな応力を得ることが望ましいかにより、側鎖型と主鎖型を使い分けることが有効であることが示された。

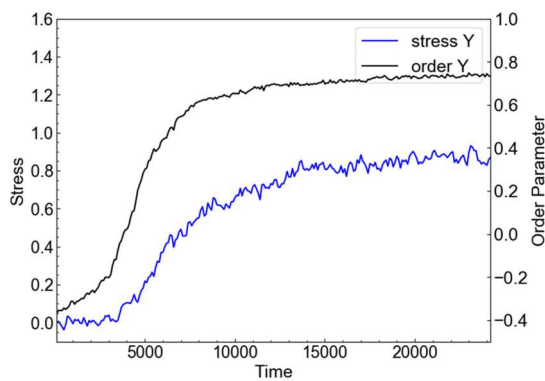


図 3-②-2-10 主鎖型液晶エラストマーの電場印加時の時間に対する応力及びオーダーパラメータ

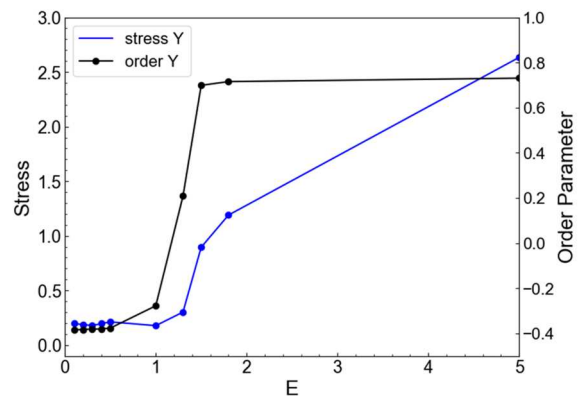


図 3-②-2-11 主鎖型液晶エラストマーの電歪特性

#### (d) 機械学習による液晶エラストマーの特性予測

上記にて開発された粗視化分子動力学シミュレーションモデルは、LCE の最も重要な物性である *soft elasticity* を再現し、その微視的特徴を明らかにした。その一方で、*soft elasticity* の算出は比較的高い計算コストを要求することも明らかになった。これはシミュレーションの多階層化による LCE 開発研究上のボトルネックとなりうる。そこで、138 種の互いに異なる分子構造をもつ LCE の応力-ひずみ特性および配向秩序-温度特性をデータベース化し、これに機械学習を援用することで、粗視化分子シミュレーションを実行することなく LCE の特性予測を行う手法を検討した。具体的には Quantitative Structure-Property Relationship(QSPR)の思想に基づき、138 種の分子構造から 33 種の記述子を抽出し、一方で応力-ひずみ特性および配向秩序-温度特性を目的変数として、教師付き機械学習を用いた回帰分析を行った。

図 3-②-2-12 は配向秩序-温度特性の回帰結果である。回帰精度は高い水準にあり(右図)、それが示す通り配向秩序-温度特性のデータベース値と回帰予測値はよく一致している(左図)。またこの回帰分析により、特性の予測に重要な役割を果たしている記述子が表 3-②-2-1 の通り明らかになった。具体的には「LCE 主鎖に含まれる Lennard-Jones(LJ)粒子(配向に関与しない球形粒子)の数」、「側鎖に含まれる LJ 粒子の数」、「架橋の長さ」、「メソゲン基間の間隔」の 4 つの記述子がそれぞれ 30%、29%、15%、12%の寄与率で合計 86%となり、この物性の大半を決定づけていることが示された。

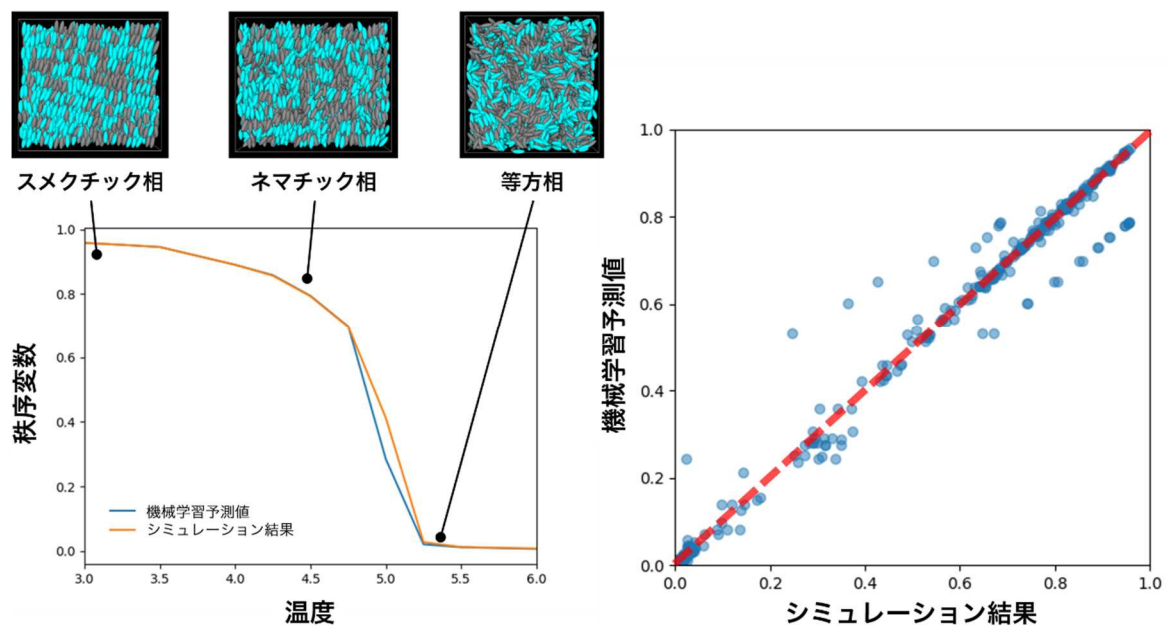


図 3-②-2-12 LCE 分子構造の液晶配向秩序-温度特性(左)、配向秩序-温度特性のデータベース値と回帰予測値との相関関係(右)

表 3-②-2-1 LCE 分子構造の液晶配向秩序－温度特性の回帰予測値算出における記述子の重要度ランキング

ランク	設計変数名	重要度
1	主鎖内LJ粒子数	0.30
2	側鎖内LJ粒子数	0.29
3	架橋長さ	0.15
4	メソゲン基間の間隔	0.12
5	メソゲン基アスペクト比	0.10
6	架橋内LJ粒子数	0.01
7	メソゲン基総数	0.01

図 3-②-2-13 は応力－ひずみ特性の回帰結果である。こちらも回帰精度は高い水準にあり(右図)、それが示す通り応力－ひずみ特性のデータベース値と回帰予測値は応力の上昇トレンドを含め一致している(左図)。この回帰分析が明らかにした 4 つの記述子は表 3-②-2-2 の通り「伸長前のメソゲン基の配向方向」、「LCE 鎖密度」、「架橋密度」、「メソゲン基間の間隔」であった。それぞれ 26%、18%、17%、9%の寄与率で合計 70%となり、物性の大半を決定づけていることが示された。

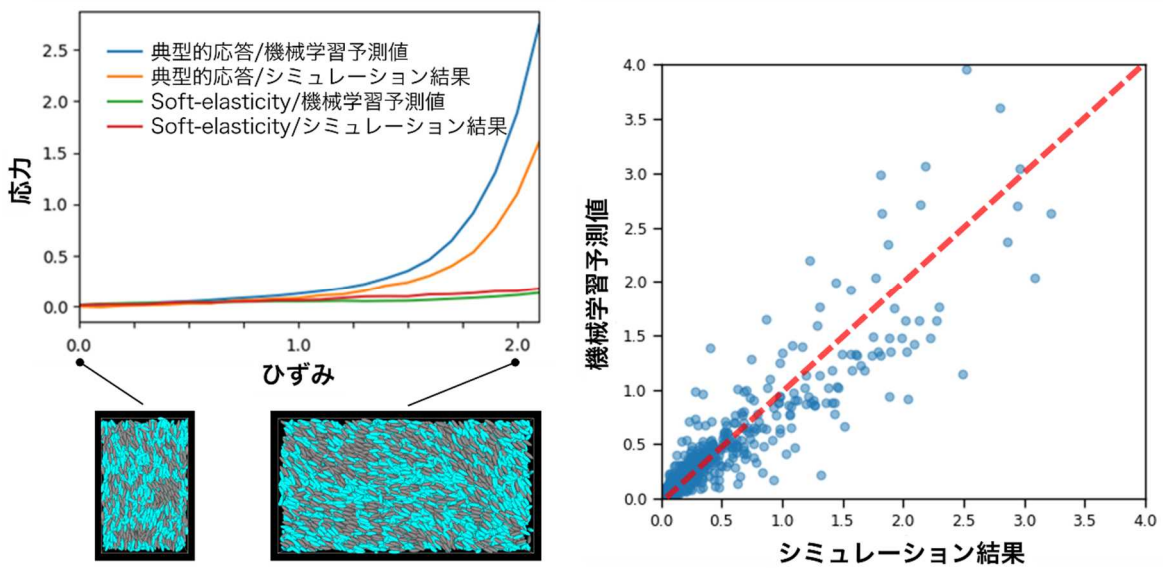


図 3-②-2-13 LCE 一軸伸長時の応力－ひずみ特性(左)、配向秩序－温度特性のデータベース値と回帰予測値との相関関係(右)

表 3-②-2-2 LCE 一軸伸長時の応力-ひずみ特性の回帰予測値算出における記述子の重要度ランキング

ランク	設計変数名	重要度
1	メソゲン基初期配向方向	0.26
2	ポリマー鎖密度	0.18
3	架橋密度	0.17
4	メソゲン基間の間隔	0.09
5	分子構造タイプ	0.08
6	等方-ネマチック相転移温度	0.07
7	架橋内LJ粒子数	0.07
8	伸張中の温度	0.05

以上のふたつの回帰分析に共通して重要視された記述子「メソゲン基間の間隔」は注目に値する。この記述子は温度変化による LCE の配向と外場応答による LCE の大変形の双方に影響を与えうるためである。例えば実際の LCE アクチュエーター材料開発において、まずはメソゲン基間の間隔に着目して分子構造を設計するという分かりやすい指針を立てることが可能であり、LCE 材料開発の高速化に寄与すると考えられる。上記に示した高い水準の回帰分析結果は、回帰の過程で構築された学習済 AI の可能性を示唆している。具体的には、粗視化分子シミュレーションの実行なしに LCE の配向秩序-温度特性および応力-ひずみ特性を予測する大きな可能性を持っている。これは LCE アクチュエーター材料にとって最も重要な特性である soft elasticity の予測を短時間で行える可能性を意味しており、多階層シミュレーションのボトルネック解消につながると期待される。

ここで利用した記述子および応力-ひずみ特性等のデータは事業内容⑤で整備されたデータプラットフォームに蓄積し、プロジェクト終了後、成果の実用化のために活用される。

#### (e) 液晶エラストマーメソゲン分子設計

我々が構築した粗視化 LCE モデルは、粒子自体には個々の原子の情報がない。また、応力値などの物性値も無次元化されているため、実際の分子設計や定量的な力学特性を議論するには、粗視化空間と全原子空間を紐づけ、物性値を有次元化する必要がある。この有次元化には、粗視化空間で無次元化された質量、長さ、相互作用エネルギーを対応する実分子から算出しなければならないが、相互作用エネルギーについては質量、長さのように分子構造を描いただけでは求まらない。LJ 粒子の場合は、Iterative Boltzmann Inversion (IBI) 法などといった汎用的な紐づけ手法が存在するが、GB 粒子の場合は、粒子形状が異方的であるがゆえに IBI 法などの汎用手法は用いることができない。そこで、我々は相転移温度に着目し、GB 粒子の有次元化を試みた。実分子の相転移温度  $T_{ni}$  は、論文やデータベースから容易に入手可能であり、粗視化計算でも算出可能である (図 3-②-2-14)。また両者には、ボルツマン定数  $k_b$ 、GB ポテンシャルの強さを表すパラメータを  $\epsilon_0$  として  $T^* = k_b T_{ni} / \epsilon_0$  の関係があるため、エネルギーの有次元化が可能であると考えられる。そこで我々は、論文やデータベースから液晶分

子についての相転移データを収集し、さらにそれらの分子構造について量子化学計算により安定構造を求め、質量、長さを求めることで、一つの GB 粒子に対して複数の液晶分子を抽出し、有次元化する環境を構築した。これにより、粗視化計算において算出した各種物性値を実際の分子構造と紐づけて有次元化することができ、分子構造のスクリーニングなど、候補材料抽出が可能となる。

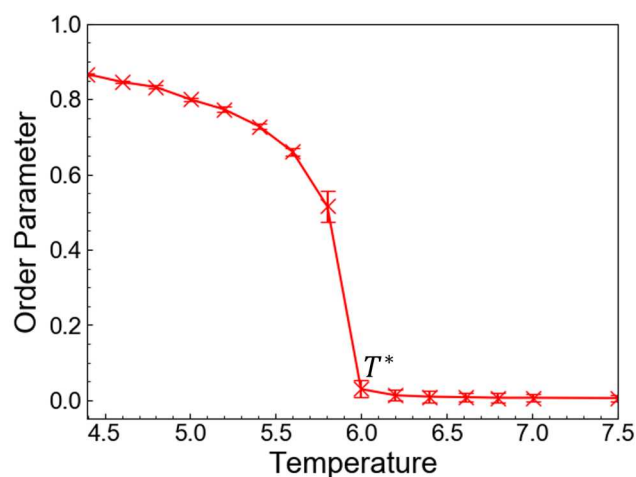


図 3-②-2-14 粗視化液晶エラストマーモデルの相転移

(f) 粗視化 MD と有限要素法との接続によるデバイス設計

電歪ソフトマテリアルのマクロな形状の設計までを含めたデバイスとしての開発を実現するために、粗視化 MD により得られる弾性および電歪挙動に基づいて有限要素法(FEM)計算を実施し、デバイスとしての変形挙動解析を行うためのスキームを開発した。粗視化 MD により得られる超弾性および配向依存性を再現するため、分子鎖の回転とそれにより生じるひずみをモデル化し、非線形弾性構成式と組み合わせることで、高分子材料特有の非線形弾性挙動を予測可能とした(図 3-②-2-15)。さらに電歪構成式の外部電場対する応答を、粗視化 MD で得られる電歪関係を直接表現するように発展させ、初期配向場を持つ材料や複雑形状材料にも適用可能とした。これにより、複雑かつ実践的な液晶エラストマーの超弾性・電歪連成問題を、FEM により解析すること可能とした。その結果図 3-②-2-16 に示すような内部配向の違いに起因する複雑な変形挙動や、複雑形状モデルの電場印加時の変形を解析することが可能になった。



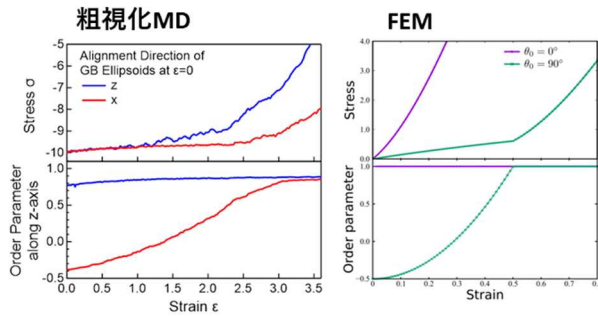


図 3-②-2-15 粗視化 MD(右)と構成方程式(左)による応力-ひずみ特性

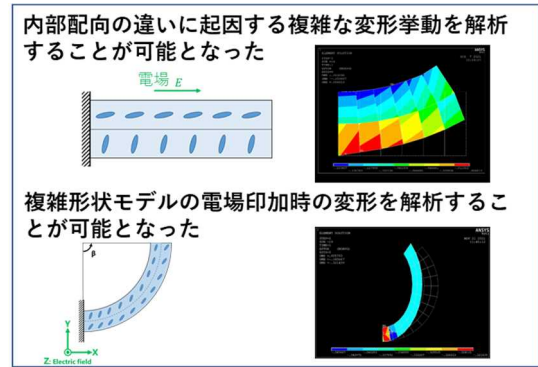


図 3-②-2-16 粗視化 MD-FEM 連携によるデバイスの変形挙動解析の例

## (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た基盤技術の構築のために、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対の電極を配置し、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誘電率  $\epsilon$  の印加電圧および電荷量依存性を図 3-②-2-17 に示す。電荷量が多い場合 ( $q = 1.0$ ) 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、シリンダー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 3-②-2-18 に各々の分子鎖の構造を示す。

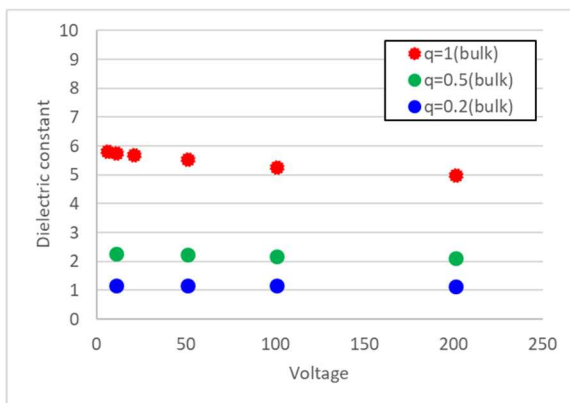


図 3-②-2-17 系の誘電率の印加電圧依存性

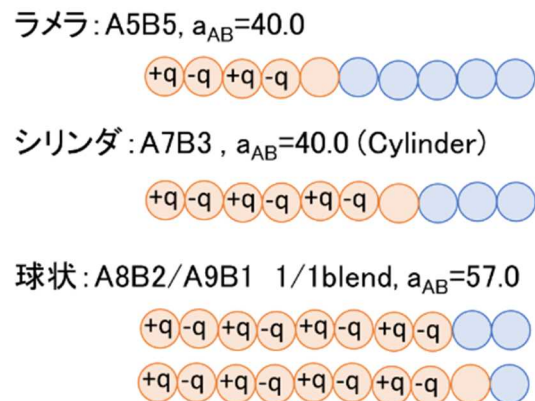


図 3-②-2-18 ブロックコポリマーの構造

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 3-②-2-19 に示す。この結果、電場と垂直方向に配向させたラメラ(A)およびシリンダーでは、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ーに構造を変化する

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。

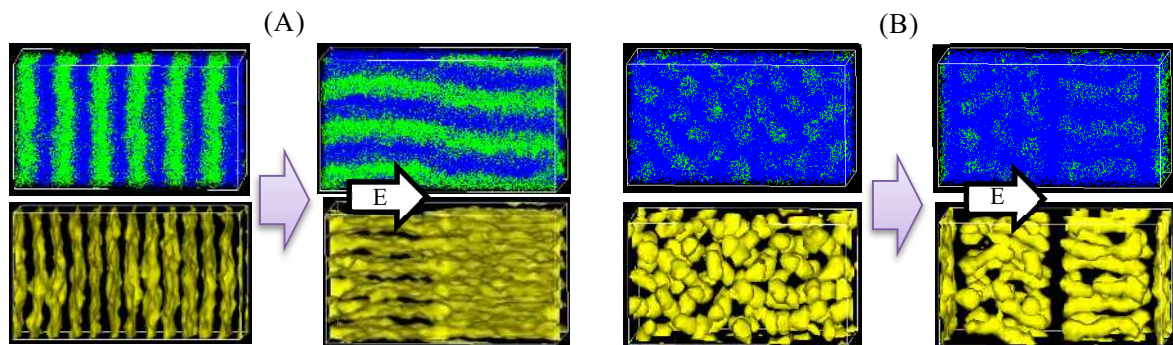


図 3-②-2-19 電圧印加におけるマイクロ相分離構造の変化  
(A)ラメラの配向変化( $V = 30$ )、(B)球からシリンダーへの配向変化( $V = 50$ )

### (3) 機械学習による構造分類手法の開発

LCE の外場印加に伴う組織構造の変化は非常に複雑であることが知られており、一次構造や架橋密度、高次構造の調整による局所的な組織構造の制御によって、マルチモーダルな変形を実現した LCE アクチュエーターも報告されている。同様のことを *in silico* で行うためには (1)および(2)のみでは不十分である。すなわち、局所的な組織構造の精密な抽出を起点とした物性の理解が必要である。これを実現するために、機械学習を用いた局所構造分類手法 (ML-LSA: Machine Learning-aided Local Structure Analyzer)を開発した。ML-LSA は既存のミクロな分子構造に関する記述子 (原子の配座など)とマクロなモルフォロジー (結晶性/非結晶性など)を結びつける線形回帰とは一線を画する。より鋭敏な局所構造分類を可能とするために、局所秩序パラメータ(LOP: Local Order Parameter)のみを記述子とする。LOP は既存の秩序パラメータとは異なり、1 個の原子や分子に対して秩序度を付与する試みである。近年その有効性が様々な局所分子構造解析によって示されている。LOP は様々な形で定義することが可能で、現時点で ML-LSA には 13 種の定義関数が実装されている。これらの定義関数から 100 万種以上の LOP とそれらの組み合わせを試すことが原理的には可能だが、人間の手で実行することは困難である。ML-LSA とは、この膨大な LOP とその組み合わせの中から局所構造分類を最も精度よく行う LOP を

自動で探索する手法である。図 3-②-2-20 に ML-LSA による局所構造分類フローを示す。はじめに、材料が変形中にとりうる局所構造のモチーフを複数 ML-LSA に入力する。このとき、LOP を計算するために各モチーフの 3 次元分子構造から局所分子集団  $L_i$  がごく単純な規則 (ある粒子から見て一定の距離以内にある他の粒子を同集団とみなすなど) によって抽出される。一方で、各  $L_i$  には対応するモチーフの名前  $n_i$  がタグ付けされる。次に、各  $L_i$  に対して LOP が計算される。この LOP は局所構造記述子として記述子行列  $D$  に格納される。一方、各  $n_i$  は構造名ベクトル  $n$  に格納される。その後、機械学習が実行される。具体的には、 $n$  を目的変数とした教師付き機械学習により、 $Dw = n$  を満たす演算子ベクトル  $w$  を

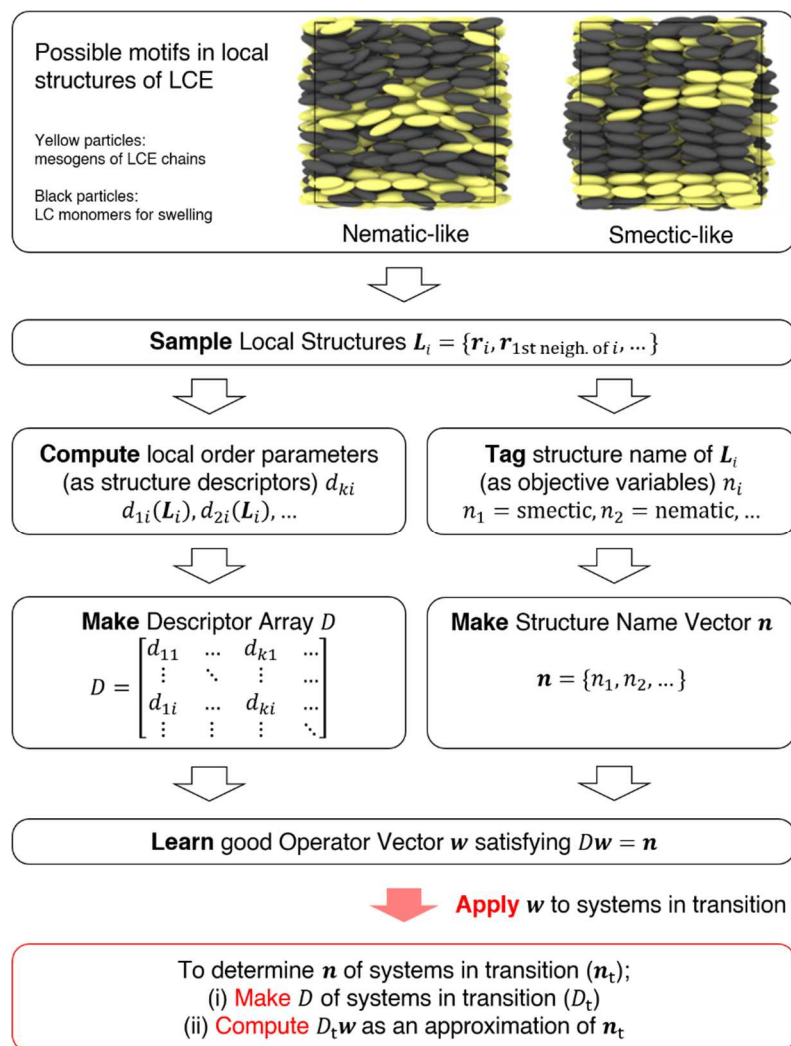


図 3-②-2-20 ML-LSA による局所構造分類フロー

決定するのである。得られた  $w$  はそのまま学習済 AI として使用可能で、変形中の局所的な組織構造に対して  $D$  を別途計算し ( $D_t$ )、これに  $w$  を作用させることで ( $D_t w$ )、局所構造がどの構造モチーフに属するかを言い当てることができる。一方  $w$  を要素分解することで、どの LOP が局所構造分類に役立っているかを特定することも可能である。

ML-LSA を用いた LCE 構造転移中の局所構造分類結果を図 3-②-2-21 に示す。右下図の青色の粒子はスメクチック様の局所構造に属すると判定

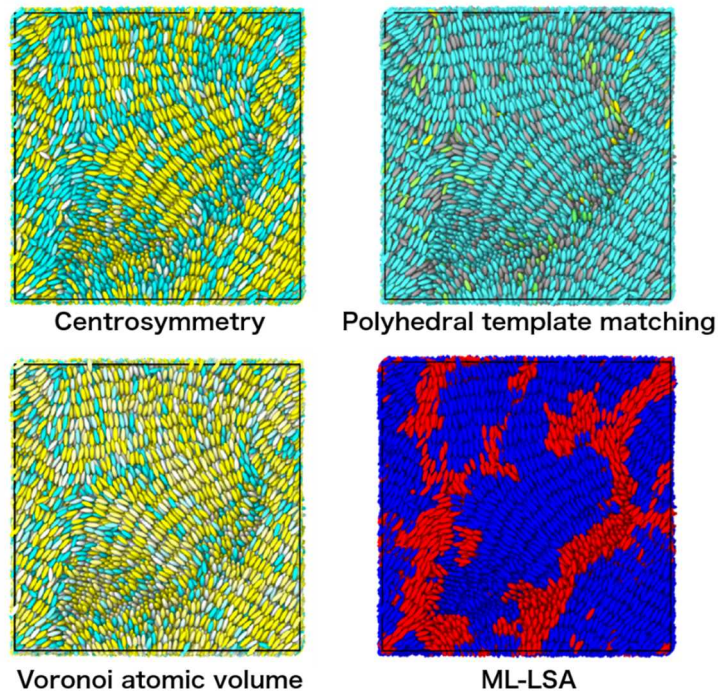


図 3-②-2-21 ML-LSA による LCE 局所構造分類結果

されたメソゲンまたは膨潤用液晶分子、赤色の粒子はネマチック様の局所構造に属すると判定されたメソゲンまたは膨潤用液晶分子である。比較のために、広く知られている既存手法による分類結果も示した。黄色は秩序度が高いと判定された粒子、水色は秩序度が低いと判定された粒子である。既存手法では秩序度の高い局所構造が判然としない一方、ML-LSA は青色の領域がスメクチック様の構造を持っていることが明らかである。このように、ML-LSA は LCE 局所構造の精密分類に成功している。

LCE の soft elasticity における構造転移メカニズムに関して、Cybotactic Cluster (CC) と呼ばれるスメクチック様の短距離秩序構造の関与を示唆する解析結果が複数報告されている。しかしながら、CC の存在自体が一種の仮説であり、その物理像の多くが不明であった。これはよりシンプルな 1 軸性液晶のネマチック(N)ースメクチック(Sm)相転移現象においても同様である。すなわち、N-Sm 相転移は弱い 1 次相転移として知られており、X 線で測定可能な転移前ゆらぎが CC であると考えられてきたが、CC の形状の詳細、CC の相転移ダイナミクスにおける役割、そして CC と弱い 1 次相転移との関係は未解明であった。そこで、N-Sm 相転移に対して ML-LSA を適用することにより、CC の観測を試みた。具体的には、(i) N 相を急冷する分子動力学シミュレーションを実行し N-Sm 相転移中の分子構造を入手した。このとき発生する局所的な Sm 状構造に対して十分に信頼性の高いクラスター統計が可能な分子数として、100 万液晶分子からなる分子系を用いた。(ii) N 相と Sm 相の局所構造モチーフ(それぞれ 1700 液晶分子程度のサイズ)を学習した学習済 AI を ML-LSA によって作成した。(iii) 学習済 AI を相転移中の分子構造に作用させることにより、転移中の局所的な Sm 状構造を精密に捕捉した。以上 (i)~(iii) の手順を模式的に図 3-②-2-22 に示す。学習済 AI が補足した局所的な Sm 状構造に対するクラスター統計から、Sm 臨界核に先行して発生する Sm 状の短距離秩序をもつ特徴的なサイズの準安定クラスターを発見した(図 3-②-2-23)。この準安定クラスターは非古典的な 3 段階の核生成現象を引き起こすことで、Sm 核生成速度を大幅に加速していることがわかった

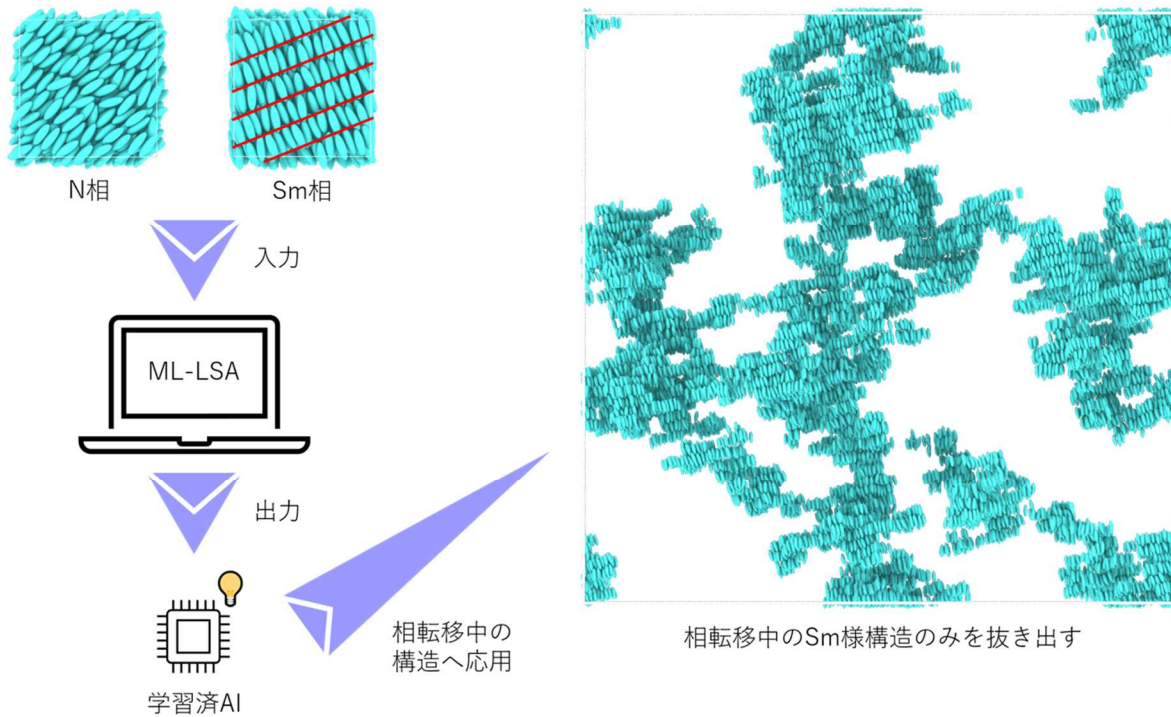


図 3-②-2-22 N-Sm 相転移現象観察スキームの模式図

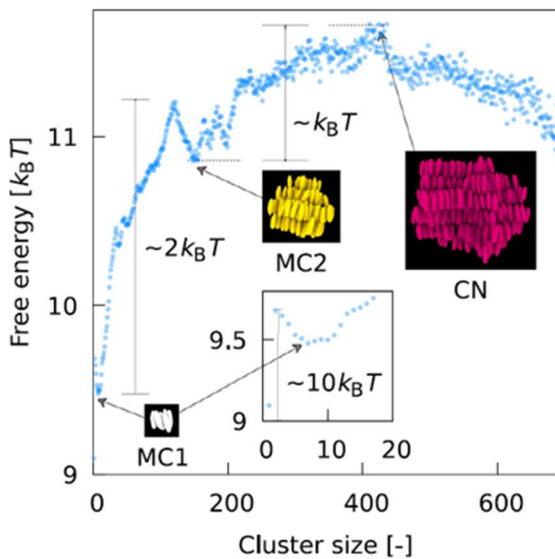


図 3-②-2-23 準安定クラスター(MC1, MC2)と臨界核(CN)のサイズと自由エネルギー

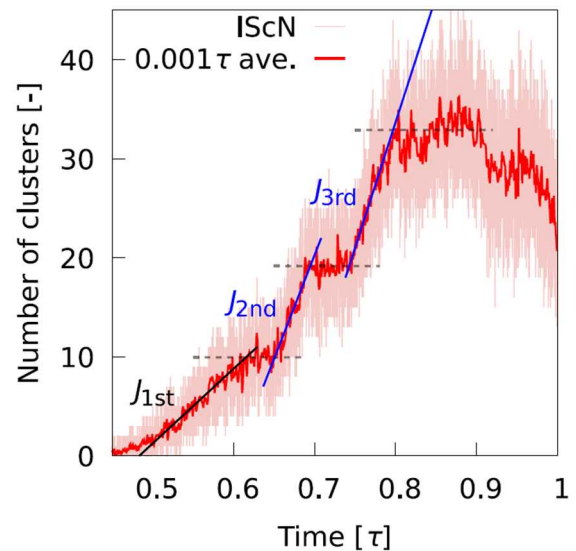


図 3-②-2-24 準安定クラスターが引き起こす 3 段核生成

(図 3-②-2-24)。核生成速度の加速は自由エネルギー障壁の低減を意味しており、弱い 1 次相転移に対する CC の役割が説明できた。以上の発見は N-Sm 相転移の深い理解のみならず、LCE における soft elasticity の物性解明および精密制御を達成するための重要な知見となると考えられる。また N-Sm 相転移現象の観察に用いたスキームは、物理学・材料科学・工学・生物学などの幅広い研究分野における種々の転移現象の解明に大きな進展を与えるものである。

### 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

#### ③-1 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、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、

- (a)大規模化に向けたプラットフォームの改修
- (b)高次構造の観測画像の解析ツールの開発
- (c)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。

一方で、後半 3 年間では、拡張 OCTA を用いてデータ作成のためのシミュレーションを進めるにあたり、ユーザビリティの向上に関わる開発が必要となった。具体的には、入力、及び出力に関係するユーザビリティ向上のためのツールとして、下記が必要と考えた。そこで、下記の3つをユーザビリティの向上に関わる開発として後半 3 年間の開発目標とした。

- (d)SUSHI、KAPSEL のためのファイラーの初期座標生成機能
- (e)KAPSEL のシミュレーション結果であるメッシュ情報の可視化機能
- (f)実験やシミュレーションで得られた類似構造の作成機能

データ駆動型材料開発に取り組む際に必要となる高分子用のデータプラットフォーム(DPF)の構築について、拡張 OCTA、及び OCTA を用いて取り組むことも目標とした。その際に、キーとなるのが、高次構造における特徴量抽出であり、高次構造中の構造データ抽出について、目標とした。さらに、事業内容⑦⑪等のプロセス・計測と連携した研究としても、データや画像を拡張 OCTA に取りこみ活用することにより、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ことを目標とする。

事業項目	2016年度				2017年度				2018年度			
		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
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	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			
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	→								→			
事業項目	2019年度				2020年度				2021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
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	機能向上及び特徴構造の抽出								構造から物性の順方向予測			
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	→								→			

図 3-③-1-1 事業内容③-1 における研究計画。上段は前半 3 年間分、下段は後半 3 年間分の計画を示す。

また、個別材料開発課題として、フィラー充填ゴムブレンドをモデル材料としてシミュレーションを用いた順方向予測の研究に取り組んだ。ゴム材料は、高分子(ゴム)、フィラー、架橋剤、配合薬品からなるナノコンポジットであり、複数の要求特性を満たすために複数のゴムのブレンドして用いることが多い。フィラー充填ゴムブレンドの性能指標である力学物性は、ゴムの相分離構造、フィラーの分散状態などの複合因子により決められると考えられている。既存の材料より高性能な材料を開発するためには、これらの因子と物性との関係を明らかにし、最適な材料設計をするための設計指針を得ることが必要となる。フィラー充填ゴムブレンドの構造と物性の関係についてはこれまでも研究がなされているが、ゴム相分離構造とフィラーの分散構造のいずれも非常に複雑な 3 次元ネットワーク構造であるため、未解明な部分が多い。この課題に対し、シミュレーションを用いた順方向予測技術が有効と考えられる。多数の構造とシミュレーションによる物性値からなるデータセットを構築し、機械学習で構造と物性の相関を解析するもので、ここから得られる材料設計指針により、従来のもより効率的な材料開発が可能になると期待される。本研究では、シリカを充填したスチレン・ブタジエンゴム(SBR)とイソプレンゴム(IR)のブレンドゴム加硫組成物を対象とした順方向予測技術の開発と材料設計指針の獲得を目標とした。

## ■ 研究開発の成果

### (1) 拡張 OCTA の開発

拡張 OCTA の開発テーマでは、目標に挙げたプロジェクト前半の 3 つのツール(課題)、及び後半の 3 つツール(課題)の合計 6 件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。また、拡張 OCTA を適用した成果については(g)に記す。

#### (a)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 1 億メッシュレベル)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。

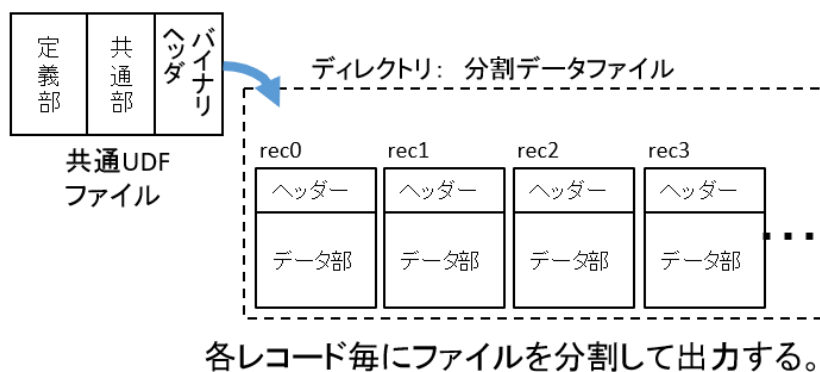


図 3-③-1-2 分割バイナリ UDF ファイルの仕組み

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・フィ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。



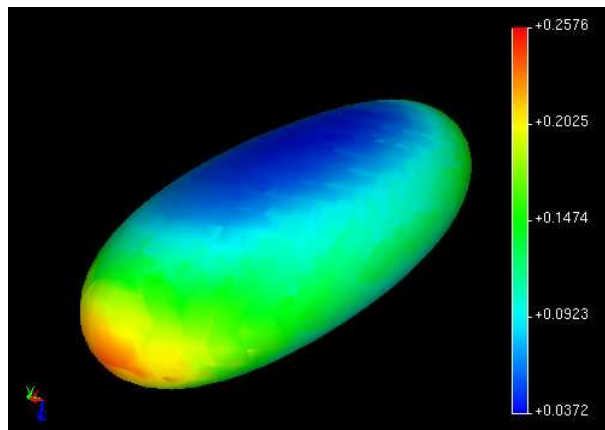


図 3-③-1-3 界面の平均曲率の結果の描画例

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。

#### (b)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ィ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。

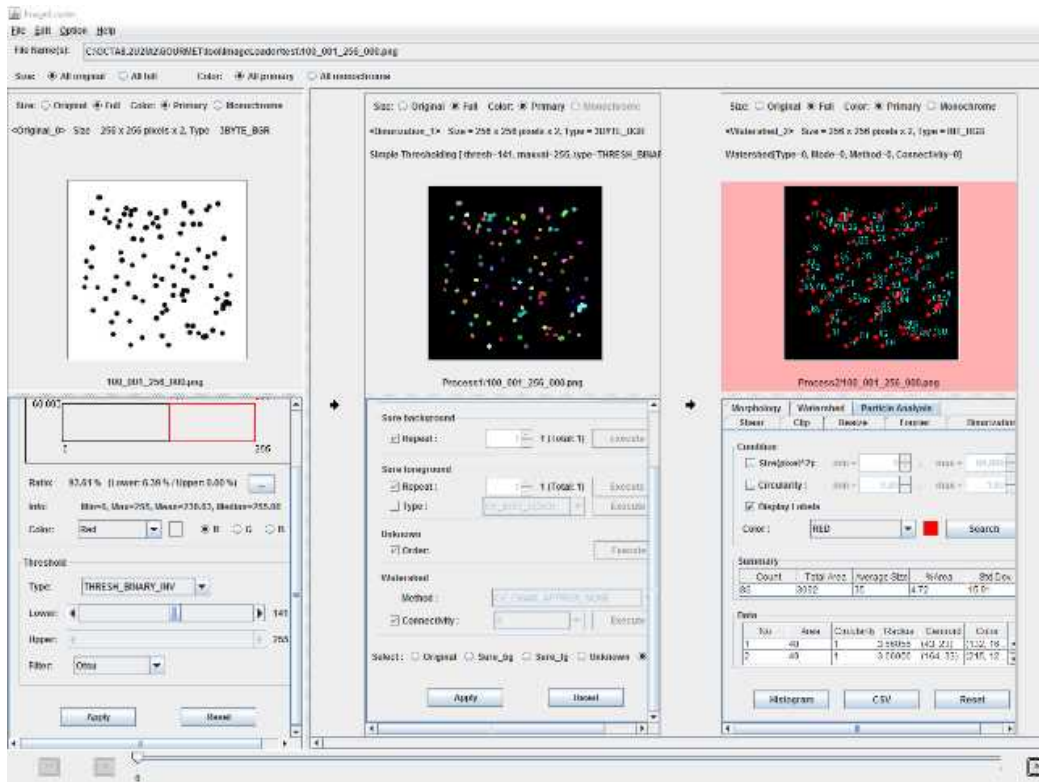


図 3-③-1-4 ImageLoager のキャプチャ画面

### (c)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ない場合に多く遭遇し、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 TensorFlow 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 TensorFlow 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 TensorFlow のパラメータ設定も GUI で行い、Execute ボタンで Scikit-learn や TensorFlow 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。

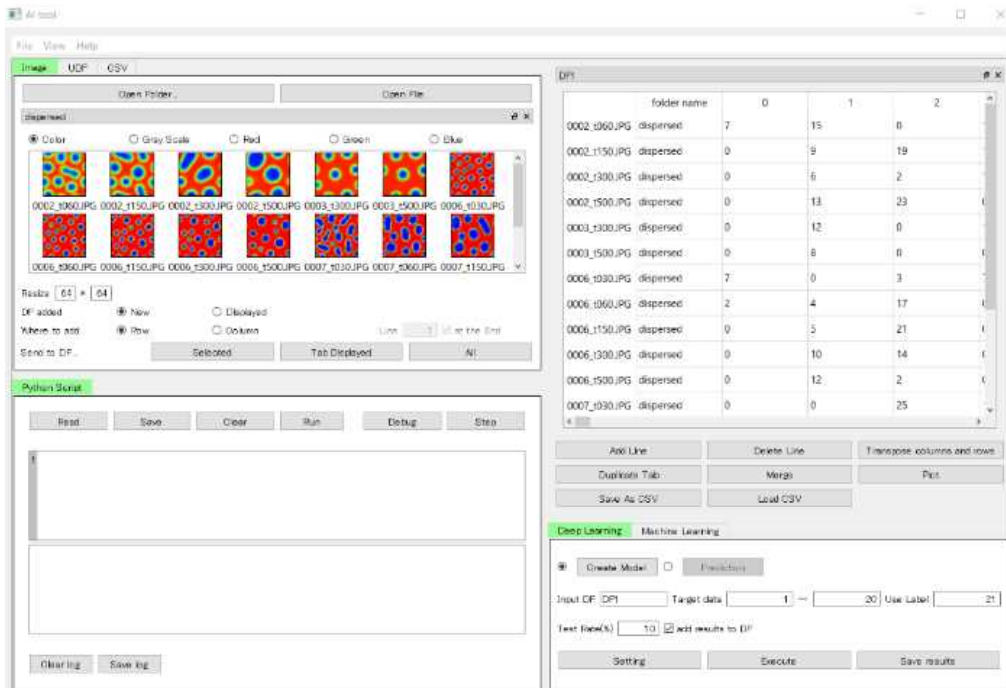


図 3-③-1-5 Alttool のキャプチャ画面

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。

#### (d)SUSHI、KAPSEL のためのフィルターの初期座標生成機能

事業内容③が対象とするソフトマテリアル材料におけるモデル素材として、フィルター充填材料が複数のテーマで挙げられている。フィルター充填構造を作成する際には、フィルターが凝集した高次構造を様々に変えて用意し、シミュレーションに対応させる必要がある。また、フィルター充填構造を用いたシミュレーション結果を用いてデータ解析させるためには、相互に比較可能な大量な構造を機械的に作成する必要がある。この必要性にこたえるために、事業内容③-1 では、初期座標生成機能である FillingParticleTool を開発した。

図 3-③-1-6 に、生成時の設定画面と生成された構造の画面を表す。左図の Create 画面では、フィルターの形状をタブで選択し、図のように直方体を選ぶ場合には、フィルターを構成する粒子の 3 つの軸方向の粒子数、さらに、このフィルターを置く位置の原点、セルサイズ、充填条件、粒子半径、結晶格子タイプ、等を設定し、OK ボタンを押すことで、粒子生成処理を開始し、粒子の生成処理が終わると粒子および枠形状が描画画面に表示されるようになっている。さらに、得られた構造に対して、フィルターを平行移動や回転させるなど移動させて、所望の位置に粒子を配置できるようにできる。さらに、この構造を File メニューの Write KAPSEL file を選び、KAPSEL の初期構造として書き出すことが可能となっている。また、SUSHI のオブスタクルの粒子としても、書き出すことも可能となっている。

本機能により、事業内容③におけるフィルター充填のテーマの研究の初期構造として用いること

が可能となり、プロジェクトにおいて活用した。

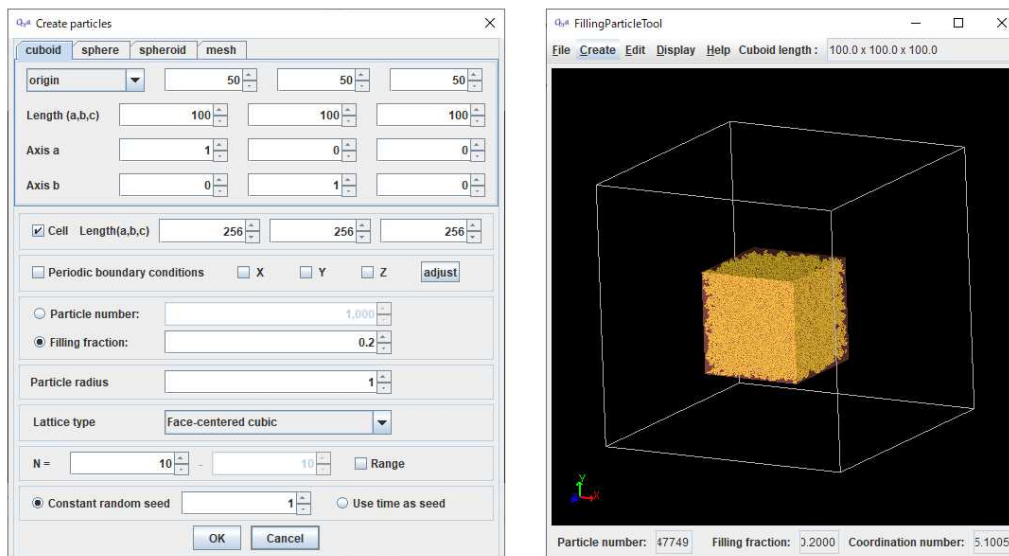


図 3-③-1-6 FillingParticleTool のキャプチャ画面。左図は Create 画面、右図は、構造生成した画面を示す。

#### (e)KAPSEL のシミュレーション結果であるメッシュ情報の可視化機能

超超プロジェクトでもファイラーを分散させたソフトマテリアルのモデル材料の研究がすすめられているが、そのファイラー充填材料のシミュレーションに、京都大学で開発された OCTA にも同梱されている KAPSEL、およびこの KAPSEL を超超プロジェクトで拡張した拡張 KAPSEL が使われている。この KAPSEL の結果の表示は、著者らのオリジナルのプログラムのプログラムでは、商用ソフトウェアの AVS で可視化するようになっていた。一方で、著者らによって、OCTA で結果を可視化する際の簡易の可視化プログラムも公開されていたが、十分な可視化機能は含まれていなかった。そこで、KAPSEL、及び拡張 KAPSEL を利用する際のユーザビリティ向上のため、拡張 Gourmet で動かすことが可能な可視化機能を開発した。

図 3-③-1-7 に、KAPSEL の UDF ファイルを Gourmet 画面で開き、右クリックにより、今回開発した可視化機能を示すアクションの選択画面を表す。1 から 5 まで選択可能となっており、1 では情報のみの出力になるが、2 では断面コンター描画を、3 では界面等の等値面描画を、4 では各メッシュ点を描画させる散布点描画を、5 では速度ベクトル描画を行うことができるようになっている。図 3-③-1-7 の右図では、4 の散布点描画を行った結果を示す。さらに、描画面面の中で、COGNAC や SUSHI 等で装備されていたピックアップ機能も付与されており、特定の粒子に関する情報も別途可視化することも可能とした。

従来は、簡易的な描画しか行えていなかったところに対して、結果の可視化という結果のポスト処理機能を追加することで、KAPSEL を用いたシミュレーションとデータ作成について、ユーザビリティが向上した。

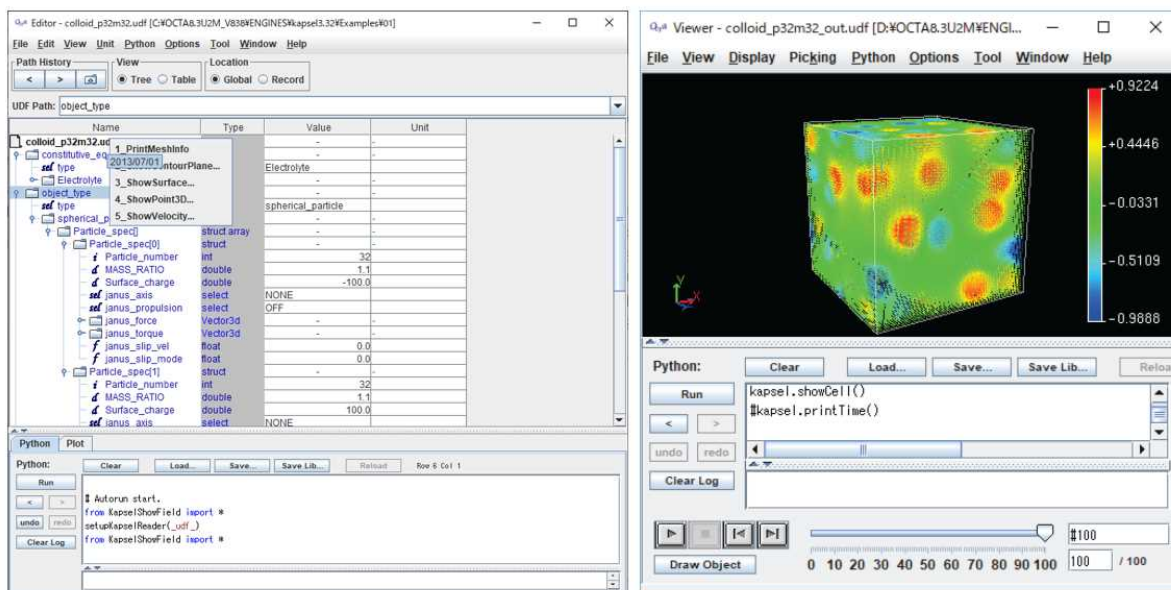


図 3-③-1-7 KAPSEL メッシュ情報可視化機能のキャプチャ画面。左図は Gourmet におけるアクション選択画面、右図は、可視化した画面を示す。

#### (f) 実験やシミュレーションで得られた類似構造の作成機能

データを構築する際には、実験やシミュレーションで得られた結果に沿った似かよった高次構造を多く生成させてシミュレーションする必要がある。一方で、このような機能を持つシミュレーションに関するツールは、なかなか存在せず、最終的にデータを構築して、データ駆動型材料開発を目指す超超プロジェクトにおいて、特に拡張 OCTA を利用する際の高次構造の生成は非常に重要なテーマである。実験では、相分離構造やフィルター分散構造については、電子顕微鏡や原子間顕微鏡などを用いることで求めることが可能であり、また X 線や中性子の散乱を用いれば、数ナノスケールの構造由来の散乱パターンを求めることができる。このような実験結果を用いて、類似した構造を生成するためのツールとして、PatternMatchingStructureGenerator を開発した。

図 3-③-1-8 に、PatternMatchingStructureGenerator を稼働させた際のキャプチャ画面を示す。ここでは初めに、2 次元のフィルター分散画像を取り込み、それを基に 1 次元の確率密度関数を計算させる。その確率密度関数を基に、ランダムにフィルターを 2 次元、もしくは 3 次元で分散させるようにモンテカルロ法で生成させ、設定させた数の類似構造を得られるようにしている。なお、ここではその 1 つを可視化させている。確率密度関数は、自ら編集することも可能であり、広い分散のものから、密度分布が 2 つのピークを持つものなど、自由に設定可能である。その確率密度関数を用いて、最小と最大の粒子サイズを設定した中で、様々な大きさの粒子をモンテカルロ法により充填させて、粒子数、充填率、2 次元もしくは 3 次元での判定、等の判定条件の下で、確率密度関数に合わせて、構造を生成できている。

本機能はシミュレーションによりデータを生成させる際に用いられ、本機能を用いることで、フィルター分散における様々な高次構造を生成することに成功している。

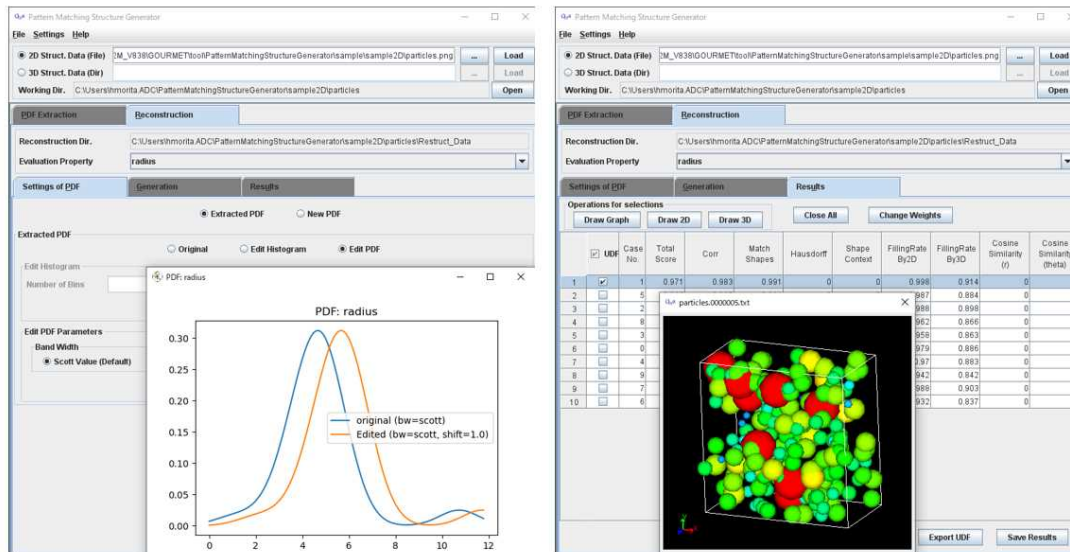


図 3-③-1-8 PatternMatchingStructureGenerator におけるキャプチャ画面。左図は確率密度関数をプロットした描画画面、右図は、フィルター分散構造を生成させた結果の可視化画面を示す。

### (g) 拡張 OCTA の適用事例

拡張 OCTA を用いてプロジェクトで開発したデータプラットフォーム(DPF)に掲載するデータ作成に関わる適用研究を進めた。具体的には、「構造から物性の順方向予測」を進めるにあたり、ソフトマテリアル材料では避けて通ることができない課題である高次構造の解析に適用した。

図 3-③-1-9 は、拡張された OCTA のプラットフォームを用いて、事業内容⑦で検討した発泡シミュレーションの結果におけるデータ化の結果を示す。発泡シミュレーションでは、どのような条件であれば、どのようなサイズの気泡がどれくらい生成したのかをデータとして得たい。そこで、拡張 OCTA のプラットフォームを用いることで、気泡界面を描画させ、その界面構造における各界面で覆われた構造体の体積や界面積を求めることができるようになった。結果として、発泡シミュレーションでは、核剤とポリマーの相互作用パラメータ、体積の膨張速度、及び核剤の数を振って計算を行ったが、それぞれの条件の際の気泡サイズのヒストグラムをデータ化し、DPF に掲載するデータとした。

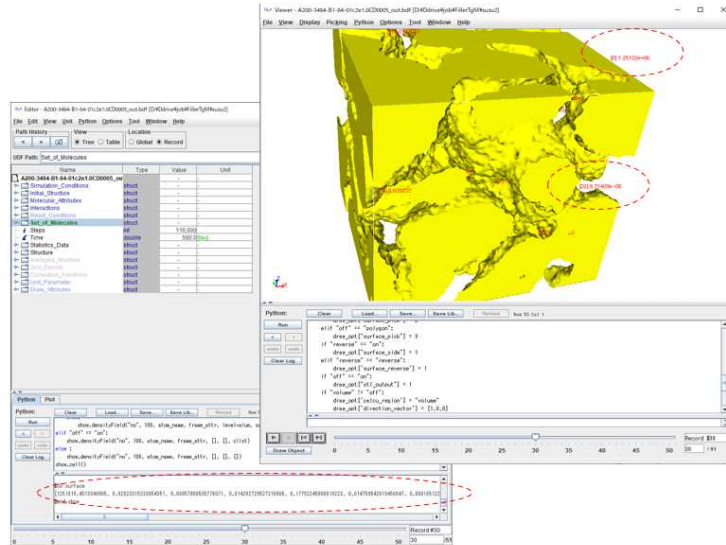


図 3-③-1-9 拡張 OCTA のプラットフォームを用いた気泡サイズ解析のスナップショット

再委託先である東北大グループは、拡張 OCTA の開発に加わり、研究を実施した。拡張 OCTA の適用事例の 1 つであるコンポジット系におけるシミュレーションについて、平均場等の場の理論を適用した研究に取り組んだ。具体的には、平均場の影響下でのビーズスプリング鎖をモデルとしたさまざまな形状のフィラーのモデル化及びモンテカルロ法を用いたシミュレーションを通じて、フィラーによる伝導性等に係るパーコレーション挙動の解析を実施し、フィラーの形状によらないユニバーサルなパーコレーション挙動について明らかにした。

OCTA、及び拡張 OCTA を用いて、機能性高分子 DPF として、下記の内容のデータを構築した。(カッコ内には、データ件数、及び計算方法もしくはシミュレータを示す。)

○相溶性、界面相互作用と高次構造との相関データ

- ・高分子-無機フィラー間相互作用 (15 件、シミュレータ: 第一原理・MD)

各種無機物に接触した PMMA オリゴマーの引き離しエネルギー

- ・フィラー分散構造 (140 件、シミュレータ: 拡張 KAPSEL)

フィラーとマトリックスポリマー間の相互作用を変えた際のフィラー分散構造

- ・ポリマーブレンド相分離構造 (1 万件、シミュレータ: SUSHI)

分子鎖長・ブレンド比・相互作用を変えた際の相分離構造

- ・発泡構造 (125 件、シミュレータ: COGNAC)

核剤数・発泡倍率・核剤-ポリマー間相互作用を変えた際の発泡構造

○高次構造と物性との相関データ

- ・熱拡散係数 (フィラー分散系: 2000 件、ポリマーブレンド系: 270 件、FEM 法)

各種フィラー分散、ポリマーブレンド構造に対して行った熱拡散計算の結果

- ・線形弾性率 (合成ゴム系: 770 件、ポリマーブレンド系: 270 件、FEM 法)

各種フィラー充填ポリマーブレンド系、ポリマーブレンド

構造に対して行った線形弾性変形計算の結果

- ・応力-ひずみ挙動 (1300 件、拡張 COGNAC)

液晶に関わるパラメータを変えた際の応力-歪曲線の結果

## ○分子構造と動的粘弾性の相関データ

### ・動的粘弾性(30件、PASTA)

絡み合い点の数を変えた緩和弾性率の計算結果。

これらのデータは、事業内容⑤で整備されるデータプラットフォームに蓄積し、プロジェクト終了後における成果の実用化において、活用していく予定である。

## (2) 機能性合成ゴム材料の研究開発

本研究の目標を達成するため、下記に示す3つの課題に取り組んだ。

### (a) フィラー充填ゴムブレンドの FEM シミュレーション用モデル開発

#### (b) 機械学習とデータセットの拡充

#### (c) 構造物性相関図による材料設計指針獲得

それぞれの内容について以下に述べる。

### (a) フィラー充填ゴムブレンドの FEM シミュレーション用モデル開発

フィラー充填ゴムブレンドにおいて、ゴムのブレンド比を変えた時の物性値は一般に単純な加成性を満たさず複雑な振舞いを示すことが知られている。その原因は、ブレンド比を変えた時にゴムの相分離構造が変化すること、ゴム種によりフィラーの充填量が増加することによるものと考えられる。例として、図 3-③-1-10 にシリカ充填 SBR/IR ブレンド試料の AFM 像を示す。SBR と IR が相分離しており、シリカが一方の相に多く充填されていることが分かる。

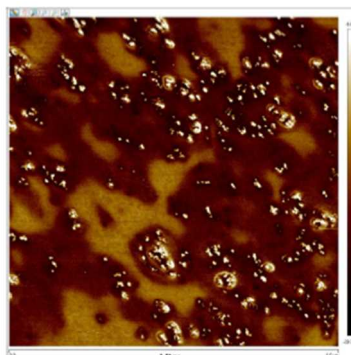


図 3-③-1-10 SBR/IR/シリカ試料の AFM 像(産総研計測グループ)

フィラー充填ゴムブレンドの力学物性シミュレーションには、フィラー充填ゴムに対し広く用いられている有限要素法(FEM)を用いた。本研究の計算対象は SBR/IR/シリカの 3 元系であるが扱いが複雑になるので、簡単化のため各相に分配されたフィラーは均一に分散していると仮定し、相中におけるフィラーのモルフォロジーは考慮しないこととした。一方、ゴムの相分離構造は考慮し、各相に分配されたフィラー量に対応するパラメータを与えることでフィラー分配の効果を取り入れた。本モデルは、ゴムの相分離構造とフィラーの分配の両方を考慮したフィラー充填ゴムブレンドの FEM シミュレーション用モデルである。

本モデルによる FEM シミュレーションの検証のため、高分子の典型的な相分離構造を表す球、シリンダーおよび三次元周期最小局面を界面に持つ構造 6 種(gyroid、D-surface、tD-surface、P-surface、I-WP、neovius)を用意した。これらのモデル構造を図 3-③-1-11 に示す。



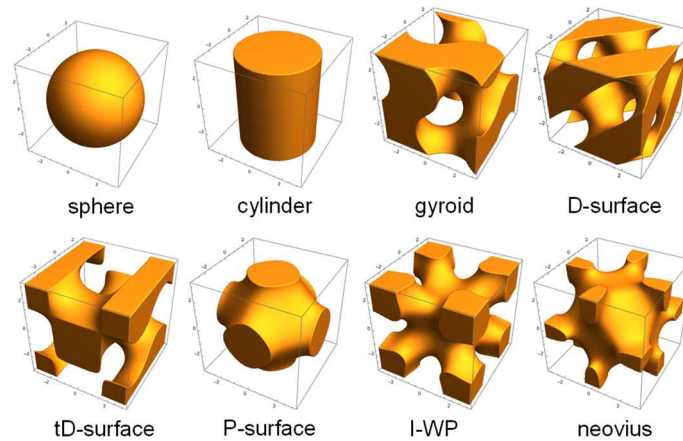


図 3-③-1-11 相分離モデル構造

SBR/IR/シリカ系におけるシリカの分配比を求めるため、産総研計測グループの電子分光型電子顕微鏡で STEM-EDX トモグラフィー観察を行った。データ解析の結果、SBR 相と IR 相のシリカの分配比は 10:1 と算出された。上記相分離モデル構造に対し SBR と IR の組成を変えた構造データを作製し、シリカ分配比として実験で得られた 10:1 および比較用の 1:1 の場合の入力データを用意して、FEM による物性計算を行った。その結果、SBR/IR/シリカ系における物性値の組成に対する複雑な挙動は分配比 1:1 では説明できず、シリカの各相への分配の偏りが原因であることが確認された。また、物性値はモルフォロジーにより大きく変化することから、相分離構造も物性値を決定する重要因子であることがわかった。さらに、シミュレーション結果を実験値と比較することで、実測の物性値に近いシミュレーション値を与えるモデル構造を絞り込むことができた。

#### (b) 機械学習とデータセットの拡充

上記モデルによるファイラー充填ゴムブレンドの FEM シミュレーション結果を用いた順方向予測を行うため、200 個の構造データを用意し線形弾性率計算を行った。これらのデータに対し、ゴムのブレンド比、シリカの分配比から算出した各ゴム成分中のファイラー量、3 次元相分離構造から抽出した構造パラメータ(中心線長さ、界面積など)を説明変数とし、シミュレーションで得られた弾性率を目的変数として機械学習による回帰を行った。200 個のデータのうち 150 個をトレーニングデータとしてランダムフォレストで学習し、残りをテストデータとして予測した結果、シミュレーション値と予測値の決定係数は 0.92 と高い値を示した。このとき、SBR 中のシリカ量、SBR 相の中心線長さの重要度が高いことがわかった。同様に 400 個の構造データを用意し、一軸伸長シミュレーションにおける 50%変形時の応力 (M50)、粘弾性シミュレーションにおける 1%変形時の損失正接 ( $1\% \tan \delta$ ) について順方向予測を行った。決定係数は、それぞれ、0.86、0.94 であった。例として、図 3-③-1-12 に弾性率のシミュレーション値と予測値のプロットを示す。

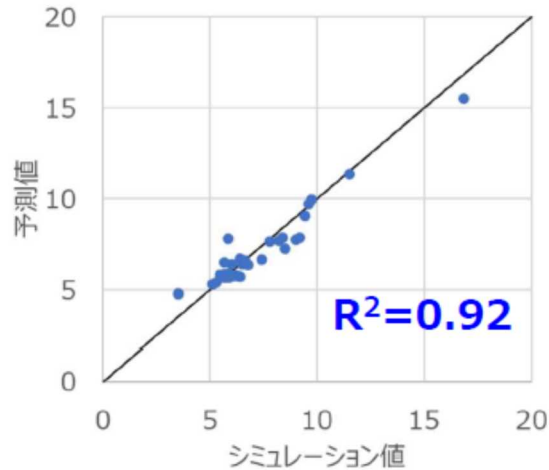


図 3-③-1-12 弾性率のシミュレーション値と予測値

ここまでの順方向予測はデータ数が十分とは言えないことから、データセットの拡充を行った。FEM シミュレーションの入力データである 3 次元の相分離構造を作製する方法として、空間に球をランダムに配置する方法を用いた。この方法の有利な点は、逆解析により所望の物性値や構造特徴量を持つ相分離構造を構築できることである。球をランダムに配置する方法は簡単に多数の構造を作ることができるが、順方向予測におけるパラメータ空間内でデータが偏ってしまう懸念がある。逆解析を使って所望の物性値や構造特徴量を持つ相分離構造を構築することで、質のよいデータセットを作製することが可能となった。この方法で作製したデータセットについて、データプラットフォームへの登録を行った。

### (c) 構造物性相関図による材料設計指針獲得

機械学習による各種解析から物性向上の要因となる構造因子を求めることができる。本研究では、SHAP (SHarpley Additive exPlanation) を用いた解析を行った。SHAP は、協力ゲーム理論のシャープレイ値を機械学習に応用したもので、各説明変数が予測値に対してどのような貢献をしたか理解することができる。この解析により、フィラー充填ゴムブレンドの各種物性について、構造特徴量と物性との関係を明らかにすることができた。例えば、M50 値を大きくするためには、SBR 相が連続相であることが重要との知見が得られた。

これらの結果を材料開発に生かすためには材料設計指針を得る必要があるが、構造特徴量から直感的に 3 次元構造に結び付けるのが難しいことから工夫が必要である。フィラー充填ゴムブレンド加硫配合物作製においてゴムのモルフォロジーが重要な指標となるので、モルフォロジーへの落とし込みができればよいと考えられる。そこで、M50 値を計算した構造データについて、構造特徴量の値によって 5 つの相分離構造に分類した。横軸を SBR と IR の組成比とし、分類されたモルフォロジーごとに M50 値の中央値と外れ値を除いた最大値と最小値を値域の上下限として縦軸にプロットした。このようにして作成したグラフを図 3-③-1-13 に示す。

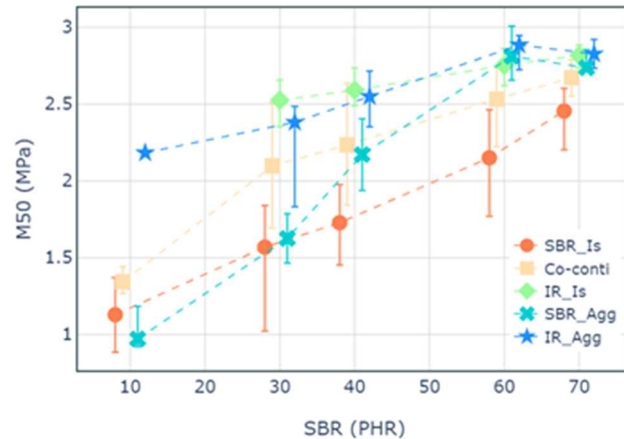


図 3-③-1-13 シリカ充填ゴムブレンドの構造物性相関図

図 3-③-1-13 は、ゴムの組成比ごとに各モルフォロジーについて物性値の振れ幅がどの程度であるかを示す構造物性相関図で、材料設計指針を与えるものである。例えば、ゴムブレンドの組成が決められた系について M50 値を大きくしたい場合、図 3-③-1-12 より SBR が海で IR が島になる構造がよいことが分かる。また、組成比を問わず M50 を特定の値(例えば 2MPa)にしたい場合、組成比により異なる構造が候補として挙げられるので、その中から構造のコントロール性や他の物性も考慮することで最適な構造を選択することができる。このように、構造物性相関図を活用することで候補を絞り込むことができるので、材料開発期間を大幅に短縮することが可能になると期待される。

本研究では先に掲げた 3 つの課題に取り組み、それぞれの課題を達成した。これによりファイラー充填ゴムブレンドの順方法予測技術が完成し、材料設計指針を得ることができた。今後は、本プロジェクトの成果を、高機能合成ゴム材料の開発に活用できると考えている。

### 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、革新分離膜設計への適用を主な目的として(1)高分子-溶媒相分離構造予測および(2)炭素膜の構造・ガス透過性予測技術を構築する。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る混合自由エネルギーの定量的な予測や界面張力、吸着自由エネルギーの予測を行うことにより、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およびファウリング性能の向上に資することを目標とする。炭素膜の構造・ガス透過性予測においては、高分子を前駆体とする炭素膜生成プロセス、炭素膜中の低分子透過性の予測技術を構築し、低コストかつ省エネルギーなガス分離法の開発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、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のものから、シリカ( $\text{SiO}_2$ )、アルミナ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )等の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、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

##### (a)相分離シミュレーション技術

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東京大学・東北大学と協力し行った。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。NIPS の相分離構造に大きく影響を及ぼすと考えられる親和性と拡散性について、化学的な詳細の劣化

を防止するため、全原子分子動力学シミュレーションから求めた物理量を濃度依存パラメータとして動的 SCF 計算に反映する手法を検討した。

まずは、PVDF/NMP/水間の親和性を定量化するため、図 3-③-2-1 (a)の熱力学サイクルに従い分子挿入したときの自由エネルギー差を **Bennett Acceptance Ratio (BAR)**法で求め、これらを用いて混合自由エネルギーを算出する方法を開発した。本技術の計算精度の検証のため、図 3-③-2-1 (b)の様に PVDF/NMP 溶液に水を少しずつ加えていったときの混合自由エネルギーを算出して曇点を予測したところ、実験値とよく一致した。しかし、誤差が積算する高濃度側での混合自由エネルギーの計算精度がやや落ちることが、本手法の課題であった。そこで、従来の BAR 法による少量の分子挿入を用いた自由エネルギー計算ではなく、多量の(非)溶媒分子を置換するという新規の自由エネルギー計算方法を開発することで、混合自由エネルギーの予測精度のさらなる高精度化に成功した。また(非)溶媒と高分子の自己拡散・相互拡散係数を全原子分子動力学シミュレーションにより求め、PVDF/NMP/水の拡散性の違いを定量化した。

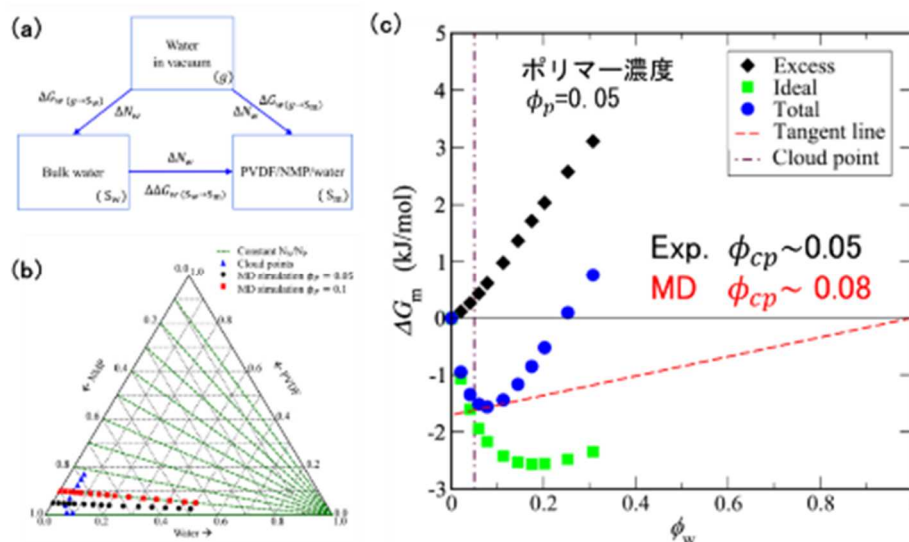


図 3-③-2-1 (a)PVDF/NMP/水系の混合自由エネルギー計算時の熱力学サイクル、(b) PVDF/NMP/水の濃度変化、(c) PVDF/NMP/水系の水の体積分率変化に対する混合自由エネルギー変化

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、親和性を表す相互作用( $\chi$ )パラメータと拡散性を表す易動度について濃度依存性を表現できるように機能拡張した。この拡張 SUSHI に対して、全原子分子動力学シミュレーションにより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  $\chi$  パラメータと、自己拡散係数の変化を定性的に再現するように決めた易動度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した。ポリマー溶液(PVDF/NMP)に水を接触させた状態から動的 SCF シミュレーションを実施したところ、通常の濃度依存パラメータがないシミュレーションでは NIPS で見られる多孔構造が形成されずラメラ構造が形成されるだけであった。濃度依存パラメータを導入した動的 SCF シミュレーションでは、NIPS における細孔形成を再現することに成功した(図 3-③-2-2)。

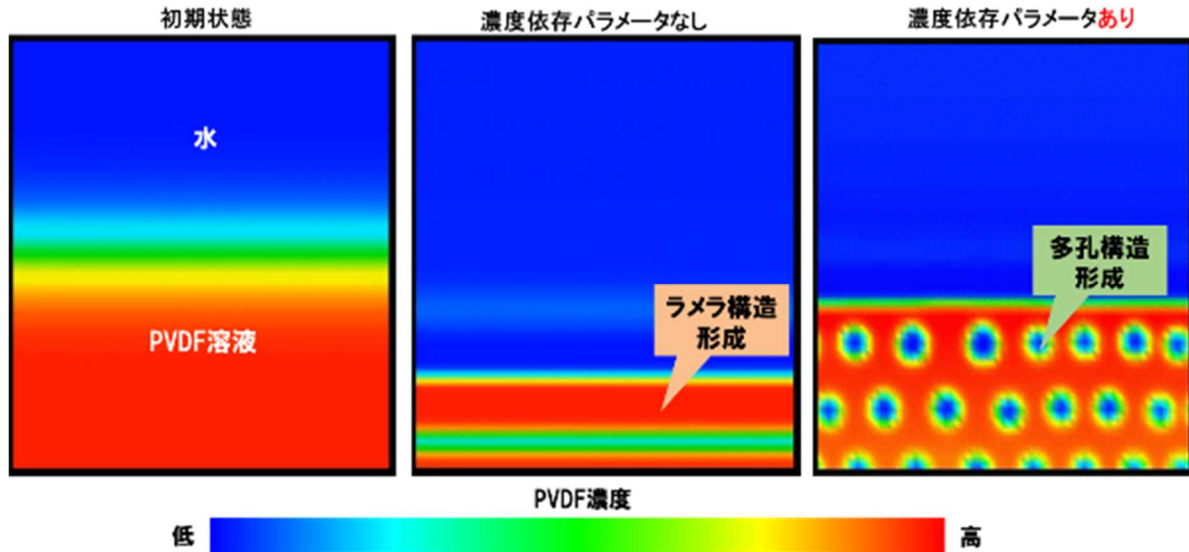


図 3-③-2-2 ポリマー溶液(PVDF/NMP)と水を接触させたときの動的 SCF シミュレーションで得られる構造

(b) ファウリング性予測

NIPS で作成された分離膜の主な用途として水処理膜があり、この用途での最も重要な課題としてファウリングが挙げられる。マクロなファウリング現象とマイクロな表面構造に基づく分離膜の設計コンセプトとの相関の明確化が容易ではないため、コンセプト実証は試行錯誤的に進めざるを得ず、開発期間の長期化の一因となっていた。そこで、分子レベルの膜表面構造とファウリング性の関係を予測する技術を、再委託先の東京大学と開発した。

ファウリングは、処理水中に存在する有機物などが膜に吸着し目詰まりを起こす現象であることから、吸着性の指標である静的接触角により膜のファウリング性が一般的に評価される。そこで、表面のマイクロ構造が物性に与える効果を分子論的に解明するため、全原子分子動力学シミュレーションによる高分子表面のマクロな接触角を定量的に予測する手法を開発した。従来、分子動力学シミュレーションを用いた高分子表面の接触角の定量的予測は、①実材料の複雑性が欠如した表面モデルを用い、②シミュレーションと実験の液滴サイズ差を考慮していなかったために困難であった。①の課題を、表面結晶化度の考慮と表面モデルへの熱運動の取込みにより克服した。モデル材料である PVDF は半結晶性高分子のため現実の表面は結晶と非晶が混合しており、表面結晶化度を考慮する必要があるため、経験的な物理モデルである Cassie 方程式を用いた混合表面接触角の推算法を着想した。また、熱運動での振動に耐える厚みを表面モデルに持たせ、表面モデルの下にはばねで固定された壁を配置することで、熱運動による表面構造緩和の取込みを実現した。また②の課題を、ナノ液滴の接触角と、液滴と表面との接触面の半径の逆数との間に存在する直線関係である修正 Young の式を利用することで克服した。

PVDF フィルム上の水、NMP およびそれらの混合溶液の接触角を予測することで本技術の有用性を検証したところ、実験値に対して相関係数  $R=0.99$  という非常に高い相関を示した(図 3-③-2-3(b))。さらに、Young の式より PVDF と液滴との固/液界面自由エネルギーを算出したところ、液滴中の NMP 濃度増加とともに界面自由エネルギーは減少し、80wt%以上では負に

なった(図 3-③-2-3(c))。負の界面自由エネルギーは、相分離して界面を形成するより混合した方が有利であることを意味し、NMP が PVDF の良溶媒である事実と整合した。

さらに、モデルファウラントを用いて膜表面構造にどのように吸着し安定化するかを評価する技術も併せて開発した。モデルファウラントと膜間の距離を拘束し、ファウラントが受ける平均力から吸着自由エネルギーを評価する。本技術の検証のため、PVDF 結晶表面へのモデルファウラントである界面活性剤分子の吸着自由エネルギープロファイルを算出した(図 3-③-2-4)と  
 ころ、結晶表面でファウラントが安定化し、結晶内部に少しでも入ると PVDF の斥力を強く受け不安定になるという、物理的な直観と矛盾しない結果が得られた。

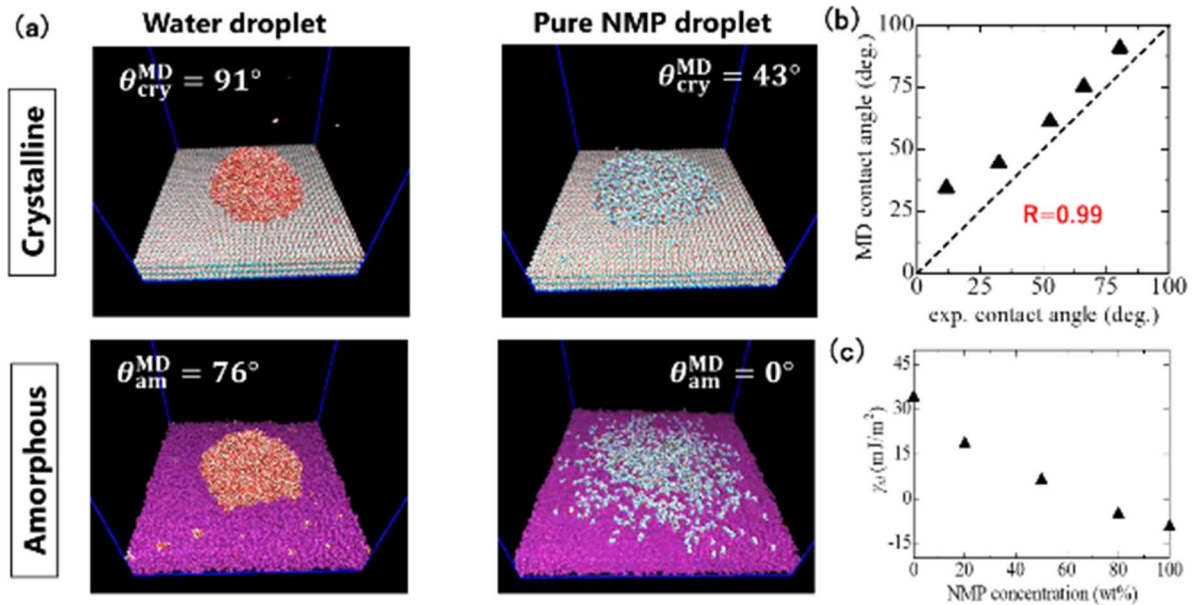


図 3-③-2-3 (a)接触角シミュレーション最終構造、(b) 本技術により得られた接触角と実験値の比較、(c) 固液界面自由エネルギーの NMP 濃度依存性

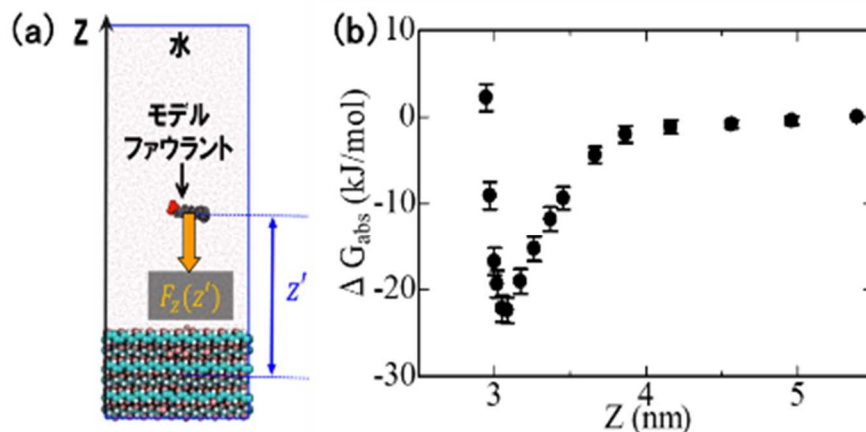


図 3-③-2-4 (a)PVDF 結晶表面へのモデルファウラントの吸着シミュレーション模式図(b)吸着自由エネルギー変化

### (c) 高分子溶液のレオロジー物性予測の高度化

上述の NIPS 相分離では、ポリマー溶液のレオロジー物性 (= 粘度や動的弾性率等) が相分離構造形成に重要な影響を及ぼす。ただし、ポリマー溶液のレオロジー物性を実測するのは容易ではなく、過去の文献データも限定的である。一方、分子動力学(MD)シミュレーションを用いてレオロジー物性を予測する場合、対象とするポリマーの分子量が大きいと、計算負荷が膨大になってしまう。そこで今回、再委託先の名古屋大学と共同で、ポリマー鎖のからみあい点の運動からポリマー溶液のレオロジー物性を高速に予測する計算技術の開発に取り組んだ。具体的には、名古屋大学で開発された NAPLES (New Algorithm for Polymer Liquid Entangled and Strained) とよばれる粗視化分子シミュレーション技術をベースに、分離膜に用いられるポリマー材料とプロセス条件に適用できるように技術拡張を実施し、予測精度の高度化を試みた。以下に成果概要を示す。

まずは、分離膜に用いるポリマーの分子構造と NIPS 相分離の界面を考慮できるように、NAPLES の操作変数を拡張した。具体的には、界面での分子間のからみあい減少によるスリップを考慮した新規の境界条件を開発した。(図 3-③-2-5)

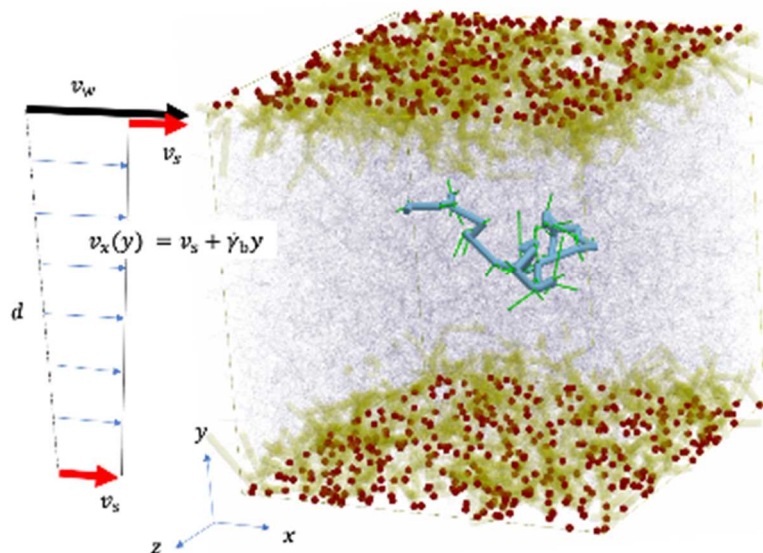


図 3-③-2-5 2つの界面に挟まれたポリマーのための境界条件。黄色と赤で示されるポリマーは界面に存在する異種のポリマー。中央に青で示されるポリマーは界面でのスリップに影響されて運動する。青のポリマーの周囲の細線は他の多数のポリマーを示す。

次に、分岐ポリマーおよび従来検討例がなかったポリマーのレオロジー特性を NAPLES で高精度に予測できるかを検証した。図 3-③-2-6 は対称、非対称の星形分岐高分子の伸長粘度を計算したものである。星形分岐高分子は分岐高分子の中ではもっとも単純なクラスであり、NAPLES を用いれば線形粘弾性は高精度に予測できることはすでに示されていた。ここでは非線形粘弾性(伸長粘度)が予測できることが示された。星形高分子の非線形粘弾性の理論またはシミュレーションでの予測は世界初である。これに加えて、二酸化炭素から重合可能なグリーンポリマーとして利用が増えている poly-propylene-carbonate(PPC) に対する検討も行なった。実験とシミュレーションで PPC のレオロジー特性を調べたところ、双方の結果が定量的に一致した(図 3-③-2-7)。まだ 1 例であるものの、NAPLES を用いれば、新規ポリマーのレオロジー特



性を高速かつ高精度に予測できることが示唆された。

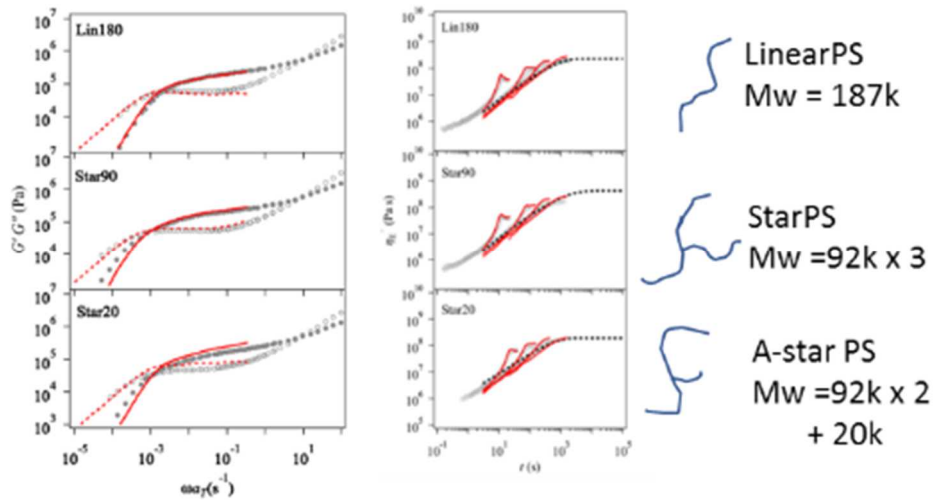


図 3-③-2-6 異なる分岐構造を有するポリマーのレオロジー物性予測：左)粘弾性、中央)伸長粘度、右)ポリマー鎖の模式図。赤色の線がシミュレーション結果、灰色の点が実験データを示す。

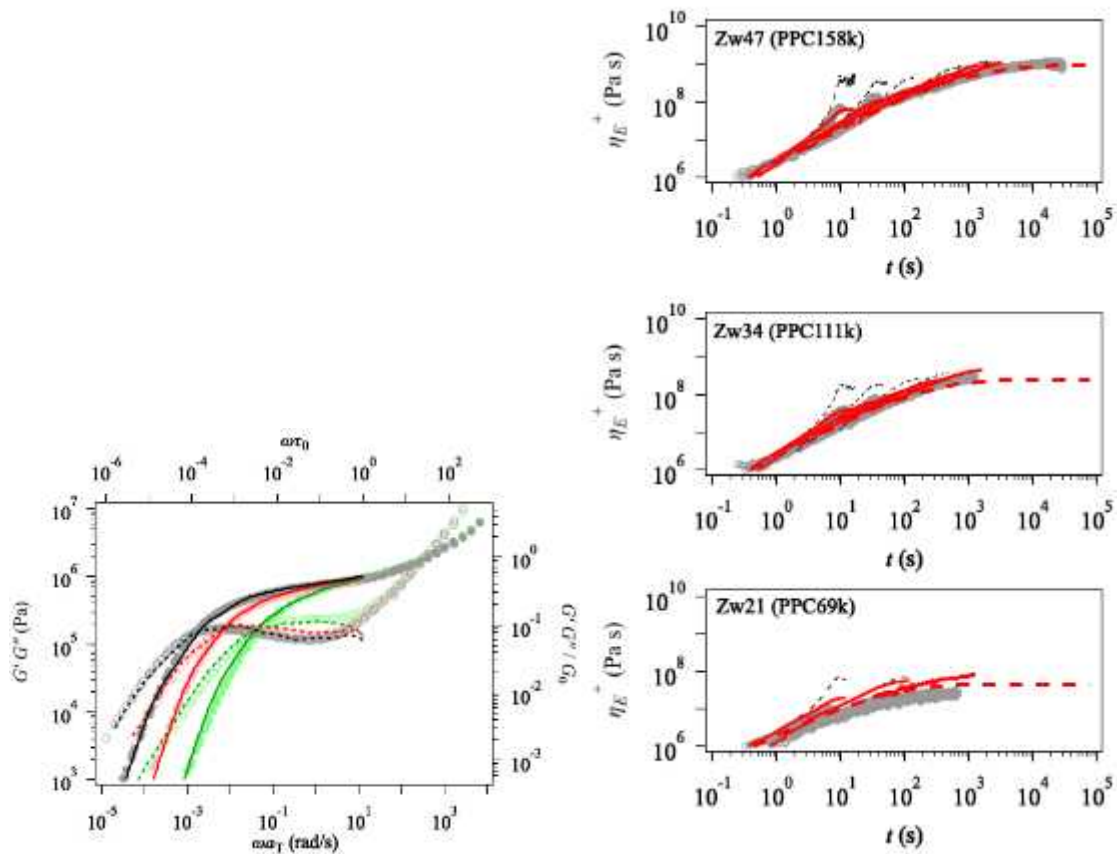


図 3-③-2-7 分子量の異なる PPC に対するレオロジー物性予測：左)線形粘弾性、右)伸長粘度。

## (2) 炭素膜の構造・ガス透過性予測

低コストかつ省エネルギーなガス分離法として、高分子を前駆体とする炭素膜を活用した膜分離技術が注目されている。この炭素膜による気体分離は分子ふるい的だと考えられているものの、分子論レベルの詳細までは明らかにされていない。炭素膜の焼成温度は 1000°C以下とグラファイトよりもはるかに低く、元の高分子とグラフェン構造の中間的な構造をしていることから、実験的にガス分離メカニズムを解析することが困難である。そこで、高分子を前駆体とする炭素膜の構造作成およびガス透過性の予測技術を、炭素膜の前駆体として一般的に用いられる BTDA-DAPI (Matrimid®)をモデル材料とし、再委託先の東京大学と開発した。

まず、高分子前駆体の特徴を残した炭素膜をモデリングするため、ReaxFF (Reactive Force Field)と呼ばれる結合の切断・組み換えを扱うことのできる反応力場を用いた分子動力学シミュレーションを導入した。単純に ReaxFF を実行するのみだと、発生する多量のガス分子の残存が炭素膜の形成に大きく影響を与えることがわかった。そのため、中性ガス分子の引抜きと圧縮を行うことで、実験の膜構造解析結果と矛盾のない炭素膜構造を得ることに成功した。構造の検証には、XPS による元素比と炭化度、XRD による動径分布関数・構造因子を用いた。シミュレーションできる時間は数 ns と非常に短いため、現実よりも温度を上げ炭化反応を加速する必要がある。2100K~3000K において BTDA-DAPI を 2ns 焼成するシミュレーションを実施し、実験と比較を行った。図 3-③-2-8 は XPS とシミュレーションで得られた炭素膜の元素比を示しており、今回の計算条件では 2700K 以上で焼成すると概ね実験の炭化度に達することがわかった。また図 3-③-2-8 に、XRD とシミュレーションの最終構造から、動径分布関数および構造因子を取得して比較したところ、BTDA-DAPI 炭素膜に特徴的な構造を再現できていることがわかった。

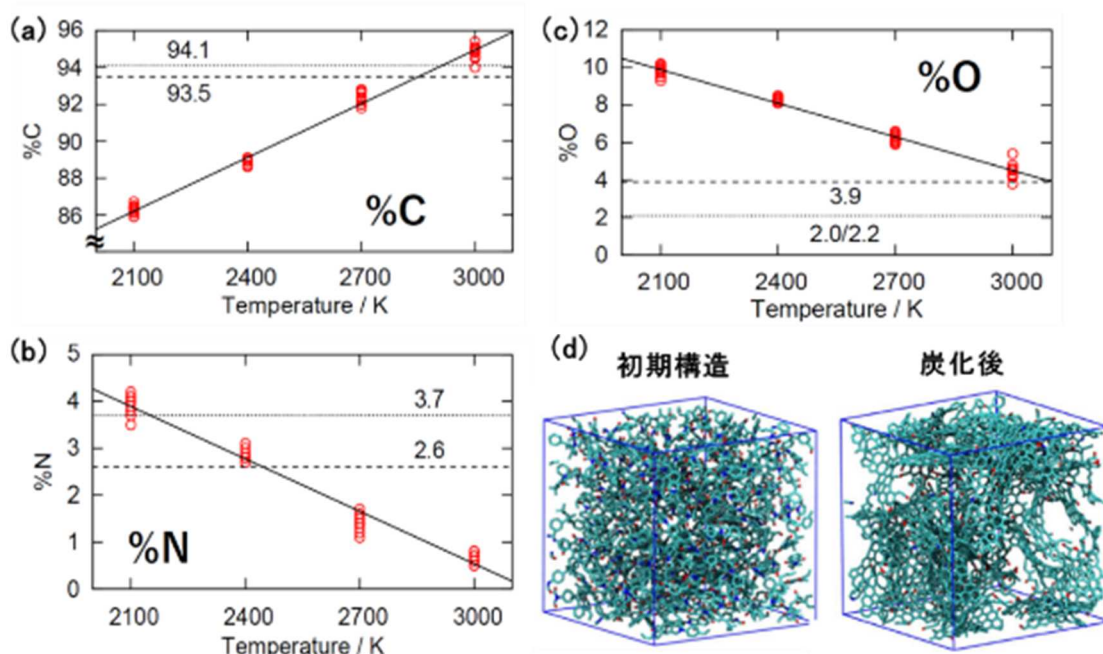


図 3-③-2-8 (a)-(c) 炭素膜に含まれる炭素/窒素/酸素原子の割合、破線は文献値(*Ind. Eng. Chem. Res.* 2002, **41**, 367–380.)、点線は本 PJ で取得した実験値、(d) 3000K における BTDA-DAPI の反応力場分子動力学シミュレーションの初期構造と最終構造のスナップショット

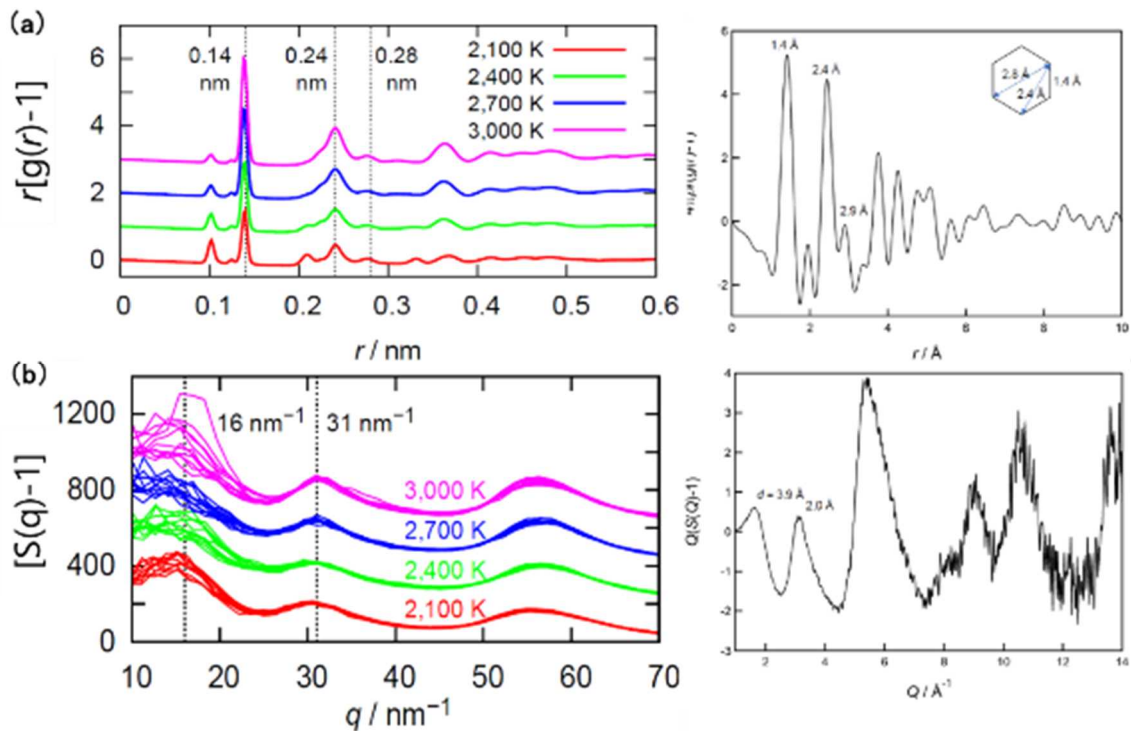


図 3-③-2-9 XRD とシミュレーションから得られた BTDA-DAPI 炭素膜の(a)動径分布関数、(b)構造因子

次に、ReaxFF で得られた炭素膜中のガス分子拡散を解析する技術を構築した。ReaxFF のままガス分子を挿入して拡散性を解析すると、①未反応のラジカルなど不安定な構造がガス分子と反応する、②通常の古典力場の 10 倍以上の計算コストがかかるという問題があった。そのため、ReaxFF の構造をもとに、反応が起こらない古典力場へ切り替える手法を考案した。不安定なラジカルなどを安定な構造に変え、ReaxFF で算出される結合次数をもとに結合タイプを決定することで、古典力場を再アサインした。これにより、問題①および②が解決され、図 3-③-2-10 のように ReaxFF の炭化シミュレーションで得られた炭素膜中のガス拡散性を評価することが可能となった。

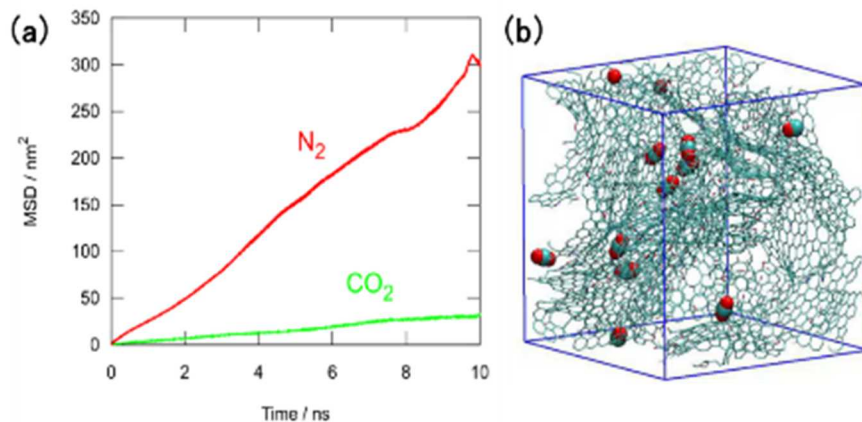


図 3-③-2-10 (a)炭素膜中の N<sub>2</sub> および CO<sub>2</sub> 分子の拡散挙動(ガス分子の平均二乗変位)、(b)ReaxFF で得られた構造に古典力場をアサインし、ガス分子を挿入した状態のスナップショット

### (3) 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(4)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 3-③-2-11 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。

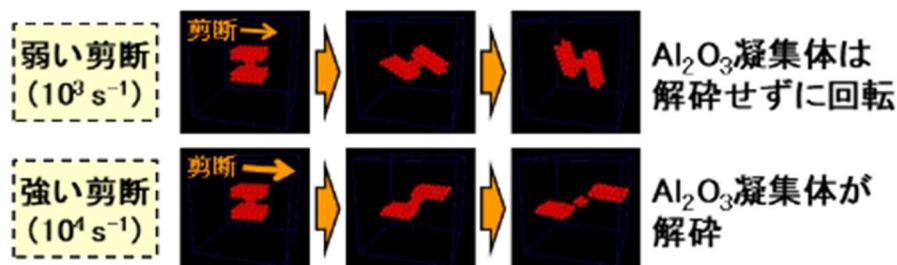


図 3-③-2-11 Hamaker ポテンシャルによる PMMA 中の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  凝集粒子のせん断流動下における解砕挙動

#### (b) 実験との比較検証

ポリマーコンポジット材料を熔融混練法によって作製する場合、混練の初期には図 3-③-2-11 のようなフィラー凝集粒子の解砕が起こり、その後、粒子が樹脂中に分散する。この分散過程に注目し、コンポジットシミュレータによる計算結果と事業内容⑥の実験結果との比較検証を行った。

図 3-③-2-12 のように 1 辺が 3200 nm の立方体型シミュレーションセルの中に直径 200 nm の球状粒子をランダムに 391 個配置し、PMMA 樹脂中に  $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラー粒子を 5 vol% 分散させたコンポジット材料のモデルとした。粒子間に Hamaker ポテンシャルを拡張した相互作用を設定した。この時、粒子間に働く引力の最大値  $N_{\text{max}}$  を 20.9、5.22、1.31、0.326 pN の 4 種類とした。混練時に発生する熔融 PMMA のせん断流動の速度を 1000、2000、3000、4000  $\text{s}^{-1}$  の 4 種類とし、計 16 種類の条件に対して検証を行った。各条件に対して図 3-③-2-12(a)のように  $t_{yx}$  方向のせん断流動を 12 ms 付与し、コンポジット材料中の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子の分散挙動をシミュレートした。

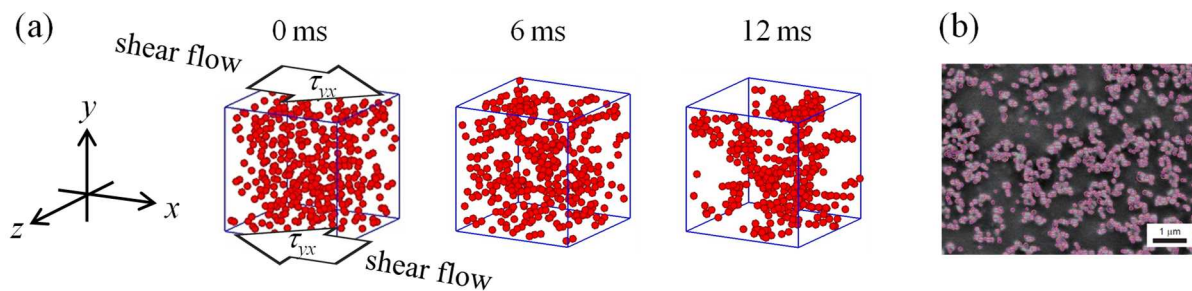


図 3-③-2-12 (a)溶融 PMMA のせん断流動下における  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子の分散挙動。せん断流動の速度を  $2000 \text{ s}^{-1}$ 、粒子間の引力最大値を  $20.9 \text{ pN}$  とした場合。(b)PMMA 樹脂/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラーコンポジット材料の表面電子顕微鏡画像。紫色の丸印は、画像解析によって認識された  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子。

シミュレート後、セルの  $z$  方向に対して 16 枚の  $xy$  切断面を  $200 \text{ nm}$  間隔で取得した。同様に 16 枚の  $xz$  切断面と  $yz$  切断面を取得し、計 48 枚の切断面を得た。切断面上の  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子の座標を読み取り、二次元動径分布関数を評価した。せん断流動を発生させてから  $10\text{-}12 \text{ ms}$

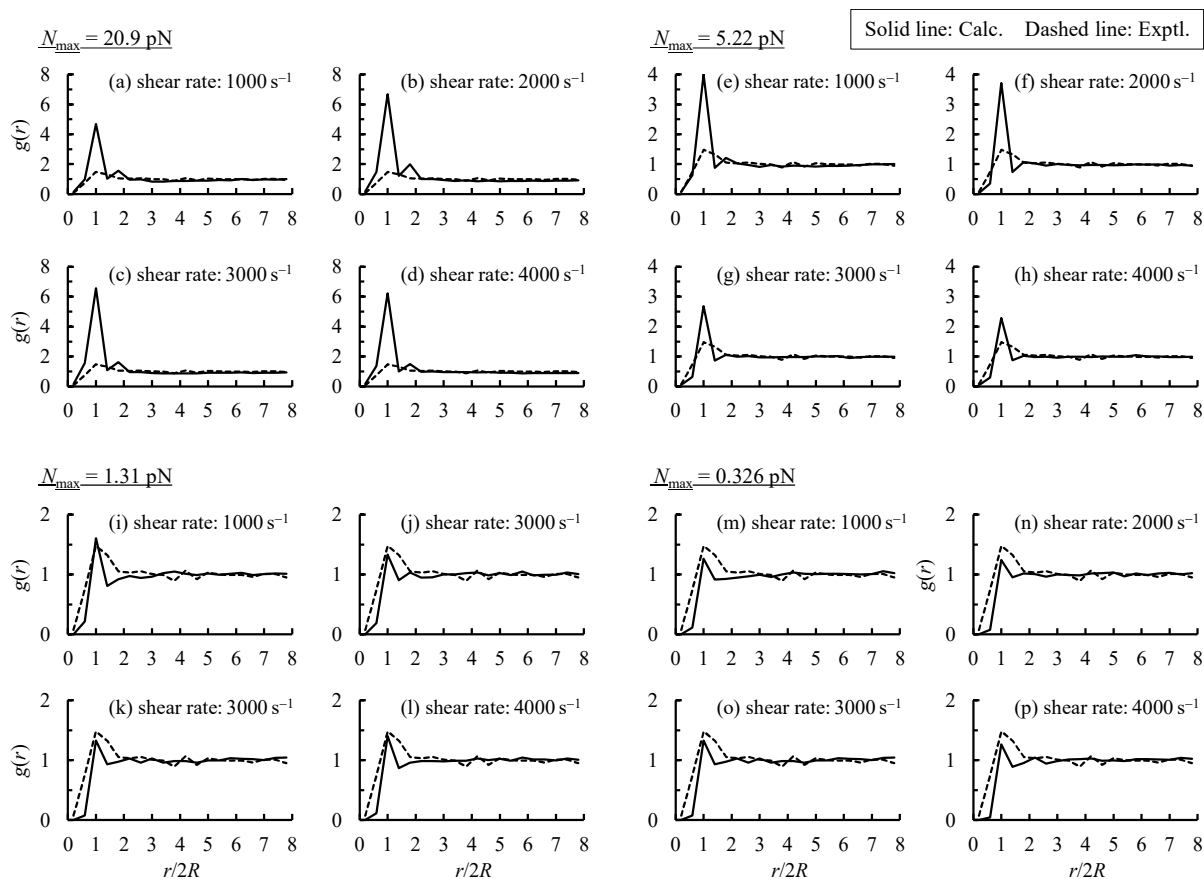


図 3-③-2-13 コンポジット材料中に分散した  $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラー粒子の二次元動径分布関数。実線はコンポジットシミュレータによる計算結果、破線は実験結果。16 種類のグラフ全てで  $r/2R = 0.2, 0.6, 1.0, \dots, 7.4, 7.8$  における  $g(r)$  の値をプロットした。(a)-(d)  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子間に働く引力の最大値  $N_{\max}$  を  $20.9 \text{ pN}$  とした場合。(e)-(h)  $5.22 \text{ pN}$  とした場合。(i)-(l)  $1.31 \text{ pN}$  とした場合。(m)-(p)  $0.326 \text{ pN}$  とした場合。

の過程に注目し、この過程に対して 200 点の動径分布関数を評価し、平均化した関数を図 3-③-2-13 に実線で示した。

事業内容⑥において PMMA 樹脂と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラー粒子のコンポジット材料を試作した。材料表面の電子顕微鏡画像を撮影し、図 3-③-2-12(b)のように画像解析によって粒子の座標を読み取った。複数の画像から読み取られた  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子の座標を二次元動径分布関数に変換し、図 3-③-2-13 に破線で示した。

本検証では、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子間に働く引力の最大値  $N_{\max}$  を 20.9、5.22、1.31、0.326 pN としたが、これらの値は、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子表面に形成される PMMA 樹脂界面相の厚さを 1.25、2.50、5.00、10.00 nm とした場合に対応する。PMMA 樹脂と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラーのコンポジット材料においては、界面相の厚さが 5-10 nm 程度になることが知られているため、 $N_{\max}$  を 1.31 及び 0.326 pN とした場合の動径分布関数が実験と一致すれば、コンポジットシミュレータは実験を再現すると言える。図 3-③-2-13 に示されているように、 $N_{\max}$  を 20.9 及び 5.22 pN とした場合の動径分布関数は、コンポジットシミュレータと実験とで大きく異なる。一方、1.31 及び 0.326 pN とした場合は、両者が十分に一致する。以上の結果から、コンポジットシミュレータによって材料中のフィラー粒子分散構造を適切に予測できることが検証された。なお、 $N_{\max}$  を 20.9 及び 5.22 pN とするのは、PMMA 樹脂と  $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラーのコンポジット材料としては不適切であるが、樹脂あるいはフィラーの種類を変えた場合には適切となることもある。このような場合の粒子分散構造の予測には、図 3-③-2-13(a)-(h)の動径分布関数が参考になる。

### (c)熱拡散シミュレーションとの連携による材料・プロセス条件設計

熱拡散シミュレーションとコンポジットシミュレータとの連携により、「材料・プロセス条件－フィラー粒子分散構造－熱拡散率」の三者を関連付けた材料開発研究を実施できた。その例を以下に記す。

図 3-③-2-14(a)のように 131072 個の立方体型メッシュを  $64 \times 64 \times 32$  の形状に並べた構造モデルを用意し、ランダムに選択された 26214 メッシュ(20 vol%)を  $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラー成分、残りの 104858 メッシュ(80 vol%)を PMMA 樹脂成分としたコンポジット材料モデルを作成した。このモデルに対して有限差分法による熱拡散シミュレーションを実施し、厚さ方向( $z$  軸方向)の熱拡散率を計算した。このシミュレーションには OCTA パッケージの MUFFIN エンジンを使用した。

コンポジット材料中のフィラー粒子が形成するネットワーク構造を数値データとして取り扱うために分散構造の記述子を導入した。その 1 つがフィラー粒子凝集塊体積である。これは、図 3-③-2-14(b)の模式図のように、面接触によって連結した  $\text{Al}_2\text{O}_3$  成分メッシュを 1 つの凝集塊と定義し、メッシュ数(この模式図では 5)を体積とするものである。コンポジット材料中の全ての凝集塊に対して体積を評価し、その平均値を凝集塊体積平均値記述子とした。

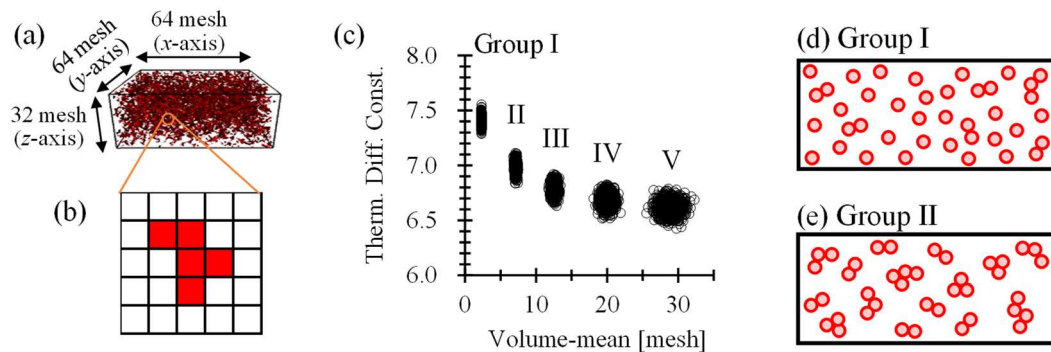


図 3-③-2-14 (a)熱拡散シミュレーションに用いたメッシュ構造モデル。(b)フィラー粒子凝集塊の模式図。(c)熱拡散率－凝集塊体積平均値プロット(熱拡散率は、PMMA 樹脂を 1、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラーを 75 とした場合の相対値)。(d) Group I に属するコンジット材料中のフィラー分散構造の模式図。(e) Group II に属するコンジット材料中のフィラー分散構造の模式図。

5000 種類のコンジット材料モデルに対して、シミュレーションから得られた熱拡散率を縦軸、凝集塊体積平均値を横軸としたプロットを図 3-③-2-14(c)に示した。プロットには 5 つのグループが現れたため、Group I-V と名付けた。このプロットから、凝集塊体積平均値が小さくなるほど熱拡散率が高くなる傾向にあることが明らかになった。つまり、図 3-③-2-14(d)の模式図のような個々の凝集塊が小さい分散構造のほうが、図 3-③-2-14(e)のような個々の凝集塊が大きい分散構造よりも熱拡散率が高くなることが明らかになった。

コンジットシミュレータとの連携を意図し、一次粒子配位数を導入した。これは、コンジット材料モデルの中で 2 つの  $\text{Al}_2\text{O}_3$  成分メッシュが面接触することを配位と定義し、その数を評価したものである。例えば、図 3-③-2-14(b)の模式図においては、配位数 1、2、3 のメッシュがそれぞれ 3、1、1 個となる。材料モデル中の全ての  $\text{Al}_2\text{O}_3$  成分メッシュに対して一次粒子配位数を評価し、その平均値を一次粒子配位数平均値記述子とした。図 3-③-2-14(c)のプロットに現れた 5 個のグループに対して、各グループに属するコンジット材料モデルの一次粒子配位数平均値記述子の値の範囲を評価すると、Group I は 1.17-1.22、II は 1.91-1.95、III は 2.21-2.17、IV は 2.29-2.34、V は 2.39-2.44 となった。

コンジットシミュレータによるシミュレーション結果に対しても一次粒子配位数平均値記述子を評価した。 $\text{Al}_2\text{O}_3$  フィラー濃度が 20 vol%となるモデルを作成し、粒子間に引力最大値が 1.31 pN となる Hamaker ポテンシャルを拡張した相互作用を設定した上で溶融 PMMA 樹脂のせん断流動下のフィラー粒子分散過程をシミュレートした。得られた粒子分散構造に対して一次粒子配位数平均値記述子を評価したところ、せん断流動の速度を 1000、2000、3000、4000  $\text{s}^{-1}$ とした場合にそれぞれ 1.2、1.0、1.1、1.0 であった。したがって、図 3-③-2-14(c)のプロットにて高熱拡散率の Group I (一次粒子配位数平均値が 1.17-1.22)に属するコンジット材料を得るためには、せん断流動の速度が 1000  $\text{s}^{-1}$ となるプロセス条件にて材料を試作すべきことが明らかになった。以上のように、熱拡散シミュレーションとコンジットシミュレータとの連携により、「材料・プロセス条件－フィラー粒子分散構造－熱拡散率」の三者が関連付けられ、高熱拡散率のコンジット材料を開発するためのプロセス条件設計を実施できた。

(d)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。そこで差分陰解法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。

(e)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 3-③-2-15 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ー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。

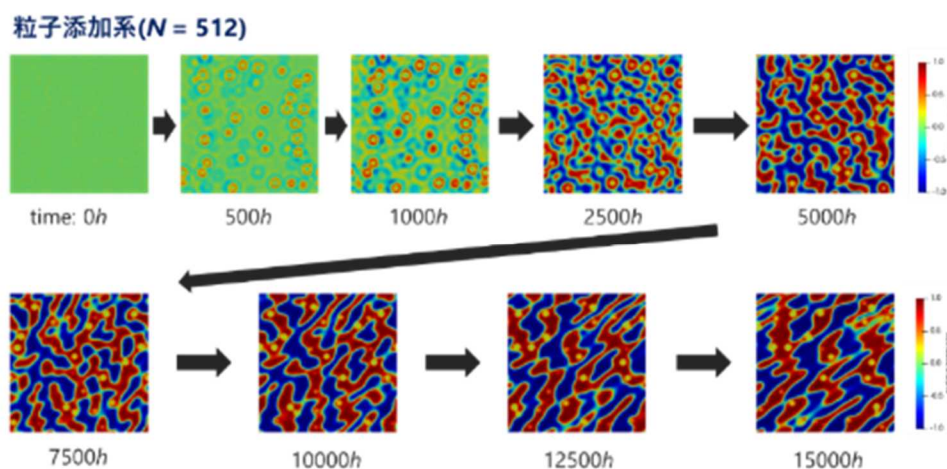


図 3-③-2-15 せん断流動下におけるフィラー充填系混合液体の相分離挙動。

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。



(f) 拡張 KAPSEL の高機能化

前記の機能拡張に加えて、拡張 KAPSEL の高機能化として、再委託先の京都大学と協力して液液二相流体中のマイクロスイマー系への拡張(図 3-③-2-16)、公開のための包括的技術文書(KAPSEL マニュアル)の作成を行った。

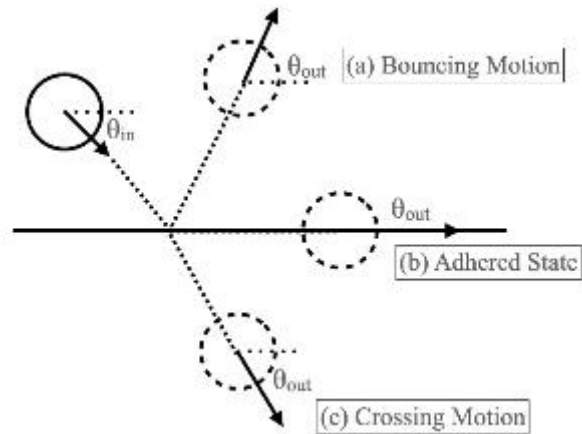


図 3-③-2-16 液液二相流体界面近傍におけるマイクロスイマーの運動。スイマーの性質により 3 つの泳ぎ方が現れる

(g) 深層学習による粒子周りの流体流れ予測

粒子が分散した流体のシミュレーションの高速化を目的として、粒子周りの流体流れを予測するための深層学習モデルを構築し、基礎的検討を行った。ここでは、KAPSEL で用いられている Smoothed Profile 法により得られる以下の 2 つの 2 次元流れを対象とする。

i. 固定された多数の粒子周りの定常流れ

固定された多数の粒子周りの定常流れの予測を行った。ここで構築した深層学習モデルは、画像のセグメンテーション分野で広く利用されている U-Net と同様の構造を持ち、粒子の配置をフィールドデータとして入力すると粒子周りの流体流れが出力される(図 3-③-2-17)。本学習モデルによる予測の結果を図 3-③-2-18 に示す。図中、左から、入力の粒子配置、シミュレーションで求めた真の流れ場(速度の絶対値)、予測された流れ場(速度の絶対値)、その差(絶対値)を示す。ここで示す結果は、学習には用いていない未知の粒子配置における予測結果であるが、精度良く流れ場を得られることが分かった。

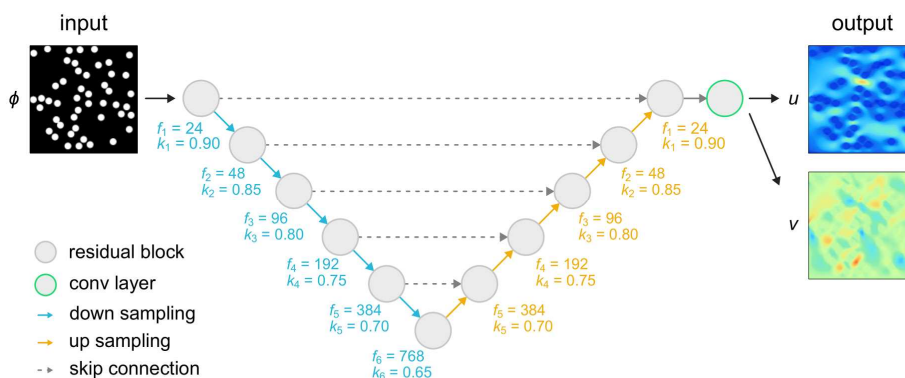


図 3-③-2-17 固定された多数の粒子周りの定常流れを予測する深層学習モデル

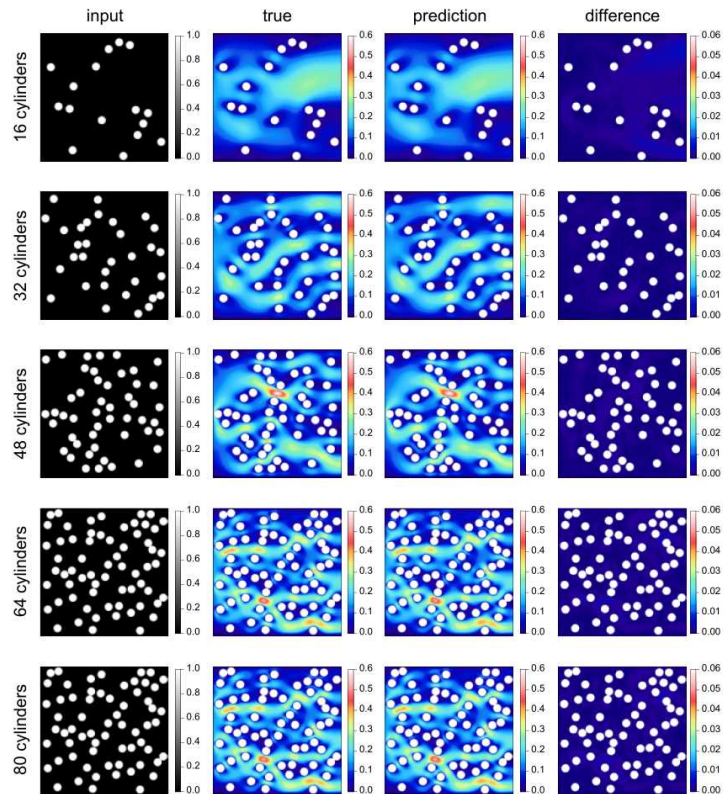


図 3-③-2-18 固定された多数の粒子を過ぎる定常流れ予測の結果。左から、入力の粒子配置、シミュレーションで求めた真の流れ場(速度の絶対値)、予測された流れ場(速度の絶対値)、その差(絶対値)を示す。

ii. 強制運動を伴う多数の粒子に駆動された定常流れ

粒子が強制運動されることで駆動する定常流れの予測を行った。ここで構築した深層学習モデルは、粒子の配置だけでなく粒子の速度も入力として与えられ、粒子周りの流体流れが出力される(図 3-③-2-19)。予測結果を図 3-③-2-20 に示す。図中、左の 3 列は入力データ(粒子配置、粒子の速度の  $x$  成分及び  $y$  成分)であり、残る 3 列は、左から、シミュレーションで求めた真の流れ場(速度の絶対値)、予測された流れ場(速度の絶対値)、その差(絶対値)である。これらは学習には用いていない未知の粒子配置・速度における予測であるが、精度良く流れ場を求められることが分かった。

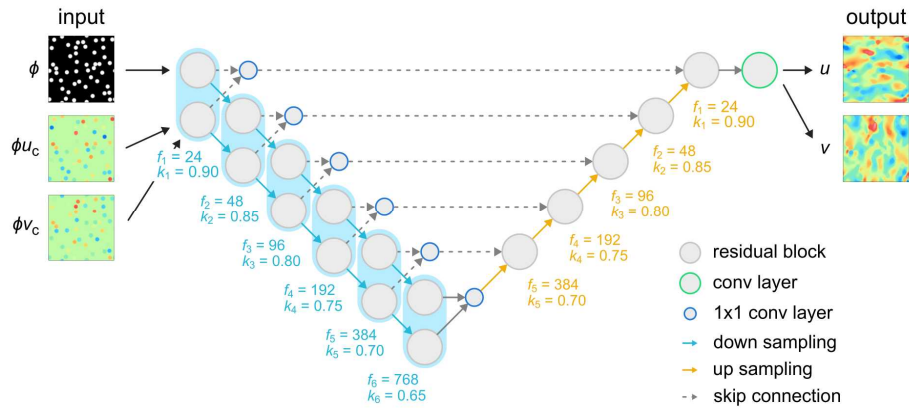


図 3-③-2-19 強制運動を伴う多数の粒子に駆動された定常流れを予測する深層学習モデル

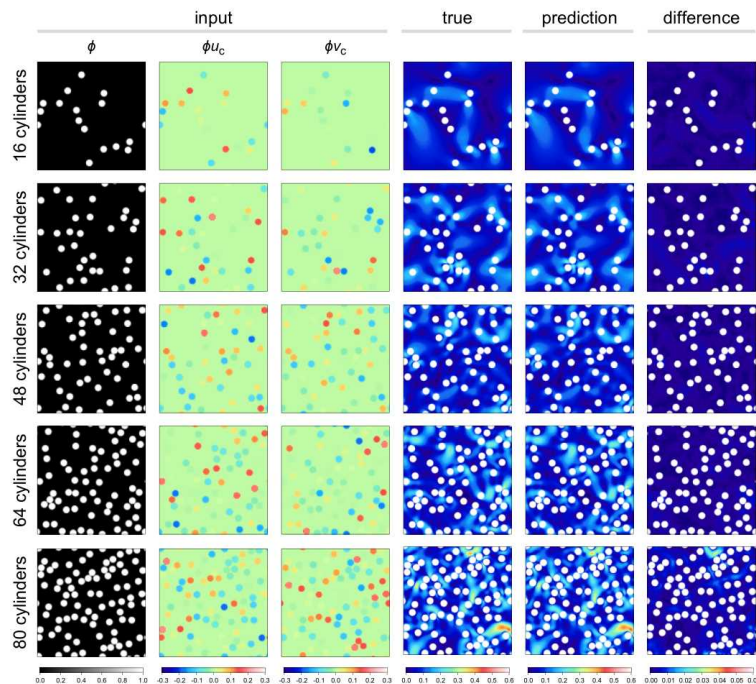


図 3-③-2-20 強制運動を伴う多数の粒子に駆動された定常流れ予測の結果。左の 3 列は入力データ(粒子配置、粒子の速度の x 成分及び y 成分)であり、残る 3 列は、左から、シミュレーションで求めた真の流れ場(速度の絶対値)、予測された流れ場(速度の絶対値)、その差(絶対値)である。

本研究では、予測された流れ場において粒子にかかる流体力などの物理的観点から検証が行われ、その精度が確かめられた。深層学習は学習に時間がかかるものの予測は短時間でできるため、シミュレーションの高速化に有用であると期待される。

#### (4) ナノカーボンシミュレータ

##### (a) フィラー充填系の相分離構造をシミュレートする基本機能

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 3-③-2-21 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。

#### 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

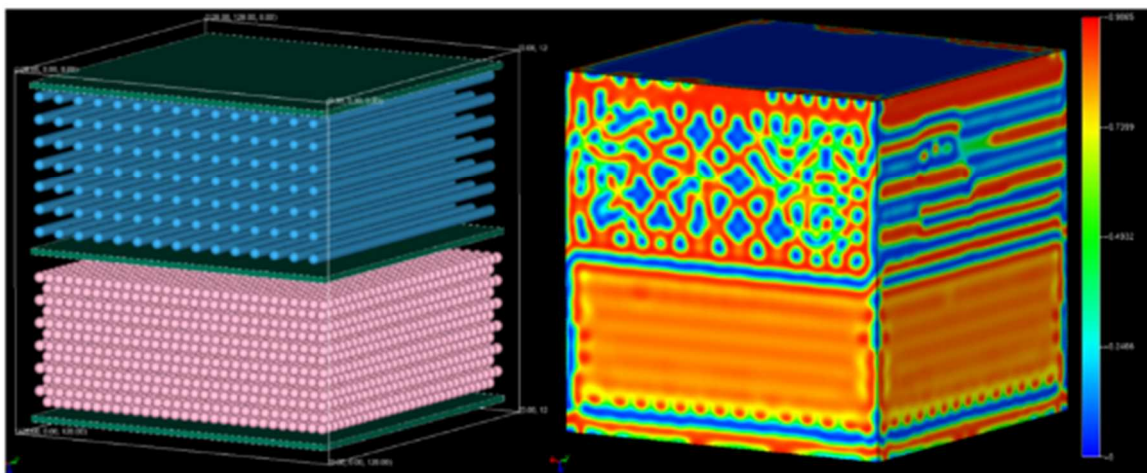


図 3-③-2-21 0～2 次元フィラーの充填構造とその周りのジブロックコポリマーの相分離構造

(b) ナノ粒子を取り扱う機能

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。

(c) 定常拡散方程式を計算する機能

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。定常拡散方程式は次のようになる。

$$\nabla \rho(\mathbf{r}) \nabla V(\mathbf{r}) = 0 \quad (1)$$

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum \rho_i \phi_i(\mathbf{r}) \quad (2)$$

$$\mathbf{I}(\mathbf{r}) = \rho(\mathbf{r}) \nabla V(\mathbf{r}) \quad (3)$$

ここで  $\mathbf{r}$  は位置ベクトル、 $\rho(\mathbf{r})$  は局所的な導電率、 $V(\mathbf{r})$  は局所的な電圧、 $\rho_i$  は成分を混合系とした場合の成分  $i$  の導電率、 $\phi_i(\mathbf{r})$  は局所的な成分  $i$  の体積分率、 $\mathbf{I}(\mathbf{r})$  は局所的な電流である。もし熱伝導の場合であれば、導電率→熱伝導率、電圧→温度、電流→熱流で考えればよい。よって、数学的な計算方法は共有できる。境界条件は、定常状態を解くので電圧については電極表面では NEUMANN 条件 (鏡面) となる。これらの計算は有限差分法で解くこととした。具体的には大規模な連立一次方程式を解くことになる。その解法には Jacob 法を利用した。Jacob 法には連立一次方程式用の大規模行列の対角項の要素 (全てのグリッド点に対応する対角項) の値を求める前処理計算が必要になる。しかし、3次元のような大規模な系ではこの前処理計算に非常に時間がかかる。そこで、この前処理計算を高速化するのに OpenMP を

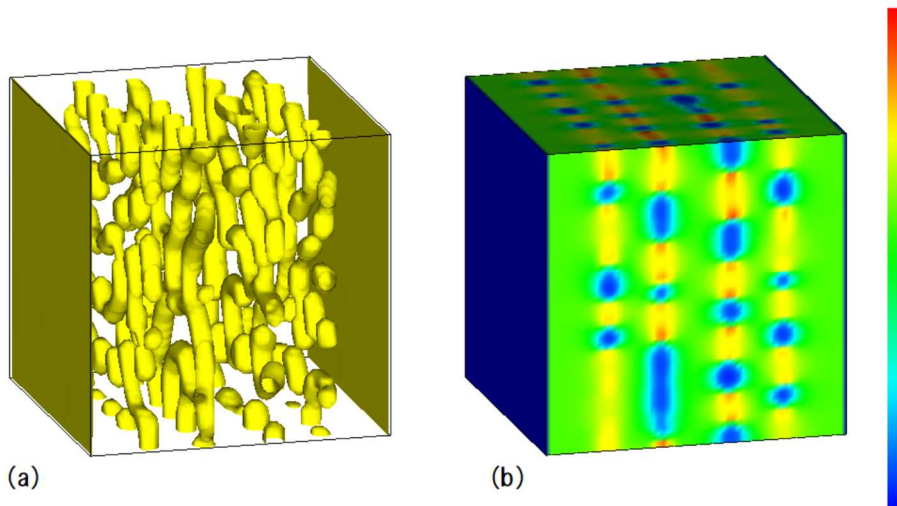


図 3-③-2-22 ジブロックコポリマーのマイクロ相分離構造と定常電気伝導における電流  
電極に挟まれたブロック比  $f=0.1$ 、 $\chi N=80$  のジブロックコポリマーのマイクロ相分離構造における定常  
電気伝導の計算結果、システムサイズは 322 で、(a)マイクロ相分離構造の等値面。左右が電極平面  
でマイクロ相分離構造は平面の影響を受けている。(b)マイナー成分の導電率を  $1/1000$  とした場合の  
伝導電流。マイナー成分では低い値となる。

利用した共有メモリ型並列計算をすることにした。内部的には行列の積を利用して必要な対角要素を求める計算をスレッド並列して分割したのである。この方法によりポリマーの相分離構造に対する定常拡散方程式を解くことができるようになった。

(d) ナノカーボンシミュレータの機能強化 3成分相図の描画機能の追加

SOBAの機能向上としてOCTA/POTAGEもPythonでラップした。Pythonでラップしたことにより、OCTAに実装されているポリマーDBとの連携が簡易にできるようになり、実ポリマーの原子団寄与法によるFlory-Hugginsの相互作用パラメータの計算の自動化とそれに続く三角相図の実行が簡易になった。スクリプトを実行するとポリマーDBに登録されているポリマー名のリストが出力される。その中から3つの成分を選択し、鎖長、温度を入力すると三角相図が出力される。

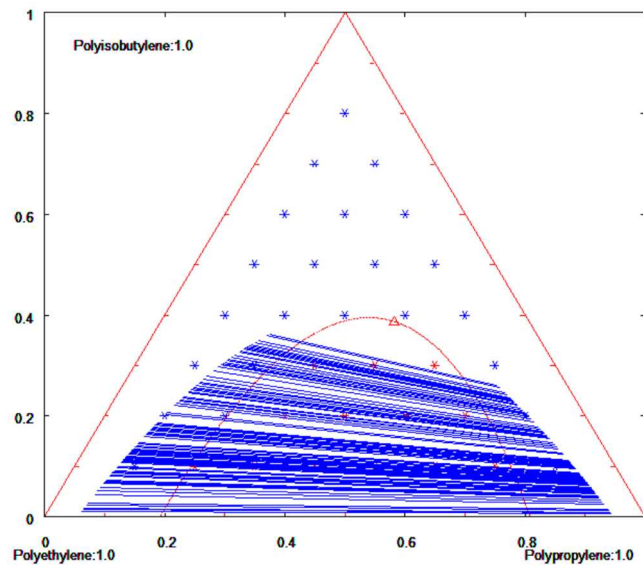


図 3-③-2-23 ポリマー3成分系の三角相図の一例

赤い曲線がスピノーダル曲線、青い直線がタイライン、タイラインの先端をつないだものがバイノーダル曲線である。

#### 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し、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。後半期においては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、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。

##### ■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。プロセスグループと連携し、触媒活性データおよびシミュレーションによる触媒の化学・物理的データを生成し、得られたデータを基に機械学習による解析を実施することで、触媒活性に影響を及ぼす因子を特定し触媒開発時間の 1/20 を達成した。

(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

再委託先の慶応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。触媒的に二酸化炭素固定化反応等の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。特に触媒活性種の特定と触媒反応に用いられる各種添加剤の役割を分子レベルで解明し、新規触媒開発を加速化することができた。

##### (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。

特に流路内複雑構造シミュレーション手法においては、並列計算の高度化及び各種チューニングを行い、マクロ・メゾ・マイクロの3スケール複雑構造からなる多孔質体ならびに織物複合材料内部における流動現象を、高速・高精度・大規模にマルチスケール解析する手法を確立した。

### (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。計算と実験とのインタープレーにより、複数の金属酸化物を組み合わせることで高活性な触媒を開発することができた。反応機構を計算によって解析したところ、ZnO が反応の最初の部分を加速化する触媒として機能していることが確認された。一方 ZrO<sub>2</sub> は反応の最終ステップを加速することがわかり、二つの触媒を組み合わせることで、従来性能を上回る触媒の開発に成功した。

一方、プロセスグループと連携し、複数の金属酸化物による触媒活性データ、また第一原理分子動力学シミュレーションによる金属酸化物の化学・物性データを生成し、MDPF/DPF の構築を行った。金属酸化物表面の電荷の情報を含む、酸・塩基性等の重要な物性データを獲得した。構築したデータベースを基に機械学習を行い、触媒活性の予測モデル構築と触媒活性への寄与が大きい触媒の物性を明らかにし、これにより触媒候補群のスクリーニング時間の1/20を達成することができた。

### (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 3-④-1)。このような構造をもつ触媒をコアシェル触媒と呼ぶ。

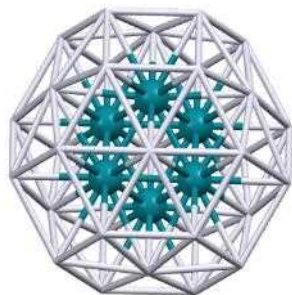


図 3-④-1 Ru<sub>6</sub>@Pt<sub>32</sub> のコアシェル構造。内側のシアン部分が Ru



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  $Pt_mM_n$  ( $M = Ru, Rh, Os, Ir; m+n = 38 \text{ and } 55$ ) 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された。

また、計算でコアシェル構造を持つことが予測される金属の組み合わせに対して、実際に実験と計算を行い高活性のコアシェル触媒の開発に成功した。第一原理計算で、Pd-Pt, Ni-Pt, Co-Pt 等のコアシェル触媒が関与する酸素還元反応の反応機構を精密に計算し、従来の触媒より高い活性を示すこと、特にコア金属からの電荷の移動によって表面の白金の活性が向上されることが明らかにした。MPDF/DPF にはコアシェル触媒の構造、軌道エネルギーの情報、触媒活性情報を収録し触媒活性の支配因子の特定を、AI を用いて活用できるよう整備した。

## 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

深層学習・機械学習等の AI 技術を用いて絞り込み率 1/40、正答率 50%以上の推定予測を実現する逆問題ソルバを開発する。マルチスケール計算シミュレータを用いて順問題解を本プロジェクトで導入した計算クラウド上で大量に生成し、その計算シミュレーションデータを深層学習・機械学習、離散幾何解析を用いた解析技術を用いて分析する事により、高い逆問題予測性を持つ AI 技術を構築し、それを用いて所望の性能を持つ材料の設計を行い、高機能材料開発の高速開発を実現する。一方、材料データプラットフォームシステムを完成させ、シミュレーションデータや実験データを用いた実用化技術を確立し、材料設計プラットフォームとして運用する。

### ■研究開発の成果

#### (1) 高機能材料の高速開発を実現する AI 解析技術の開発

##### (a) 触媒実験データと計算シミュレーションデータを融合した機械学習計算により触媒収率を高精度予測する AI 技術開発に成功

事業内容④と連携し、高効率触媒分子設計を可能にする AI 技術の開発に成功した。複数の触媒の収率測定データなど過去の実験データを参照して得られる計測データ群と、量子化学計算に基づく収率計算を融合し、高精度収率予測手法を確立した、そして未計測の候補分子絞り込みを可能にし、触媒設計の高速化を実現するシステム開発に成功した。また、少数の学習データから収率を予測する技術開発にも成功した。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り、本データ解析スキームを拡張させ化学反応機構解析の高速化が実現される。



図 3-⑤-1 触媒インフォマティクスに関する AI 技術の概要

(b)マルチスケール材料シミュレータ間の連携を可能にする高精度機械学習ポテンシャル構築技術の開発に成功

第一原理計算と古典シミュレーションを橋渡しする高精度機械学習ポテンシャル構築技術を開発し、現実系シミュレーションに適用可能とする実用化拡張に成功した。そして、有機高分子および界面・表面、アモルファス等の高精度シミュレーションを実現した。また、機械学習ポテンシャル構築においては、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極めて有効であることを実証した。本技術は、高精度高速順方向シミュレーション技術として統合することにより、有機高分子及び物質の表面・界面での材料特性の高精度予測が可能となり、高速材料スクリーニング技術として実用化される。

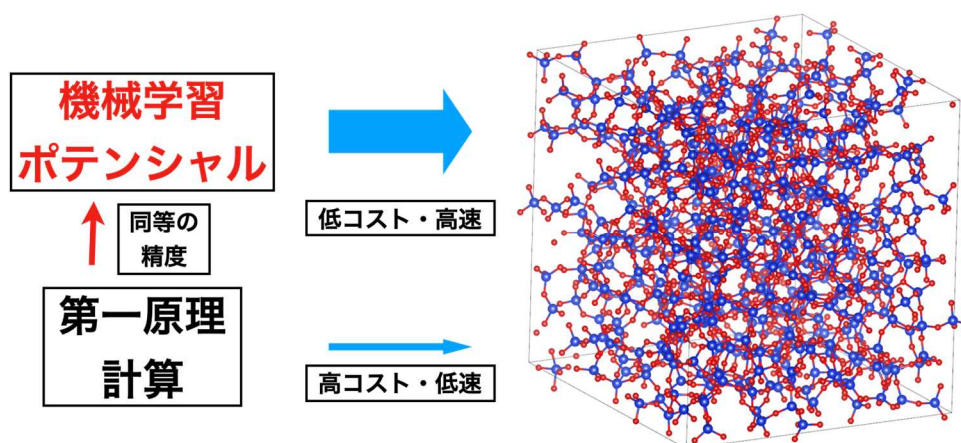


図 3-⑤-2 機械学習ポテンシャルに関する AI 技術の概要

(c)機械学習技術による計測スペクトルの自動高速解析技術の開発に成功

大量に取得された計測データを自動高速解析可能にするスペクトルのピーク推定 AI システム開発に成功した。この技術により、スペクトルデータ解析スピードが従来の解析に比べ 200 倍超高速可能になった。さらに、スペクトルの多重フィッティング技術開発への拡張を行う等、実材料データへ適用可能な技術として確立した。

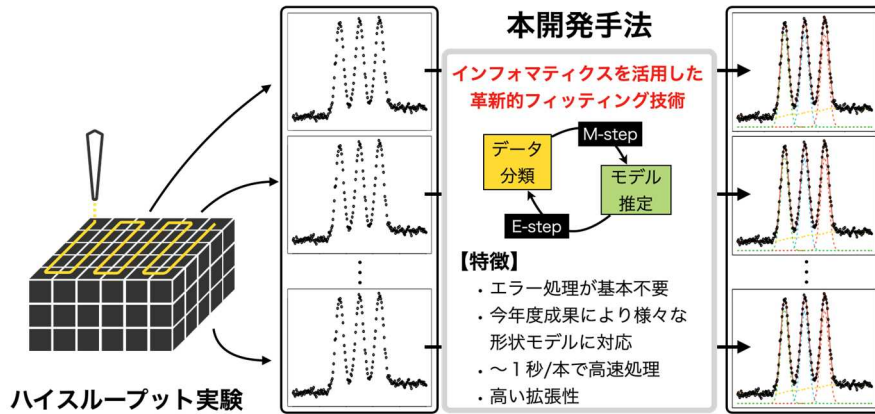


図 3-⑤-3 スペクトルの高速自動解析に関する AI 技術の概要

## (2) データプラットフォーム構築

シミュレーションや実験・計測機器から創出される材料データから高機能材料の高速開発を可能にするために必要なシステム基盤「データプラットフォーム」(DPF)を構築し、プロジェクト終了後、材料設計プラットフォーム構想の下、データ駆動型材料設計実用化に向けて運用を開始する。材料設計における秘匿計算実用化システムを有する本プラットフォームは、秘匿ニーズの高い企業データの高度連携情報処理が可能であり、企業機密情報の保持と関連産業の製造力強化のための情報技術利活用の両立を実現するものである。

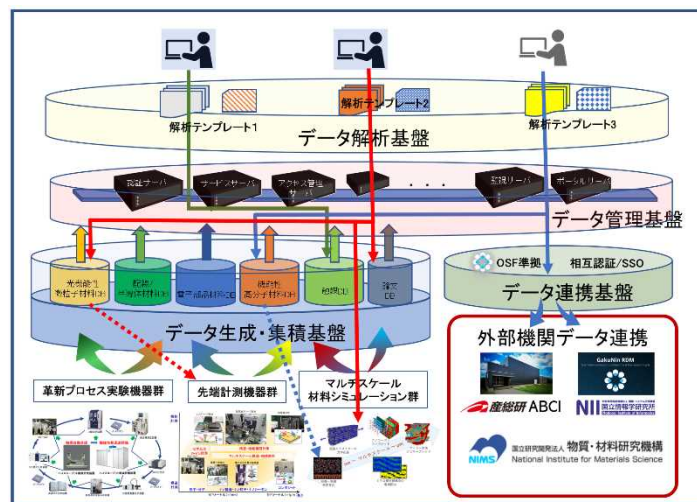


図 3-⑤-4 DPF の 4 つの基盤

このデータプラットフォームは、高速試作・革新プロセス実験機器群、先端ナノ計測機器群、マルチスケールシミュレータ群から生成されるデータを各 DPF 内の DB として格納する「データ生成・集積基盤」、これらのデータおよび各基盤ハードウェア等を管理する「データ管理基盤」、ユーザーに対してデータ解析環境等を提供する「データ解析基盤」、そして外部データ・機関連携のための「データ連携基盤」から構成される。

プロジェクト終了の時点で、データ生成・集積基盤においては、つくばセンター内の基幹光ファイバー網を利用した高速ネットワークで、各種実験機器とストレージサーバや DPF サービスサーバ群が繋がれ、創出されるデータの自動格納・DB 化等により効率的なデータ管理・処理が可能になっている。データ管理基盤においては、最先端のサーバ仮想化技術、高セキュリティ技術等を用いて構築された管理サーバ群が、データ取得・ストレージ・解析等の各種サービス提供サーバをセキュアかつロバストに管理・運用し、データ解析基盤における高品質な材料データ解析サービスを可能にしている。データ解析基盤においては、物理化学的な解析や情報学的な解析等を組み合わせた解析のみならず、1つの物質に対する各種データの統合的な解析を可能にする連携サービス等が提供される。データ連携基盤においては、外部データ利用のための共通認証基盤利用のためのサービスを提供し、DPF 内データと外部データの共用解析を実現する。また所内外の機関ネットワークのためのゲートウェイサービスを提供し、材料設計における国内連携基盤の高度化に貢献する。

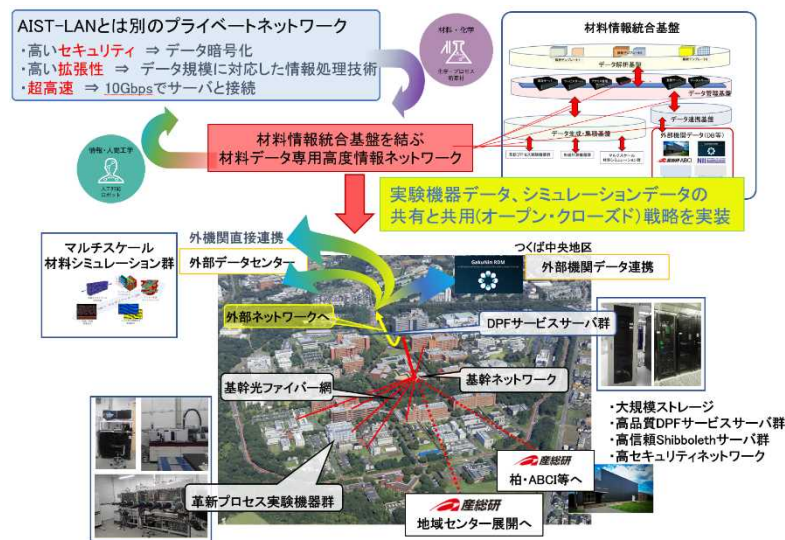


図 3-⑤-5 DPF 基盤と DPF ネットワーク。つくば中央地区における高速試作・革新プロセス実験機器群、DPF サービスサーバ群、マルチスケールシミュレータ群の概要

本プロジェクトでは、この DPF を用いて 5 つの材料区分について DB 群を構築した。

[1] 光機能性微粒子 DPF

粒子、形状を制御した微粒子・ナノ粒子の光学応答予測、分散光学機能等の予測を目的として、ナノ粒子の第一原理計算、古典電磁気学手法による光応答計算等によるデータを基にした DPF。

[2] 配線/半導体材料 DPF

ナノカーボンや有機材料をチャネル材料とする線材、複合デバイス材料設計、高移動度の有機分子半導体材料探索を目的として、ヘテロ接合や低次元性材料の電気伝導キャリア輸送物性予測、部分ユニット間構造複合材料の電気伝導度、結晶構造探索と計算による有機分子半導体移動度の物性予測データを基にした DPF。

[3] 電子部品材料 DPF

高分子機能材料、無機誘電材料を対象として複素誘電率や誘電体伝送損失予測を目的として、密度汎関数法によるナノ粒子シミュレーション計算データを基にした DPF。

[4] 機能性高分子 DPF

高分子の相溶性、界面相互作用と高次構造の相関予測、高次構造と物性相関予測、分子構造と動的粘性相関予測を目的として、拡張 OCTA や第一原理計算等による各種高分子物性データを基にした DPF。

[5] 触媒 DPF

触媒構造、反応生成物の系統的自動評価を目的として、ハイスループット合成装置による触媒自動合成データ、ハイスループットフロー反応評価装置による触媒活性データ、ハイスループット対応分析装置による分析データ等を基にした DPF。

各種実験・測定データは、DPF へのデータ格納処理される過程において、データの分類・構造化等が行われ、個別 DB データとしてのみならず、データの相互連携可能な形として保存されている。例えば、触媒関連の測定データや実験データは、まずそれぞれの機器ごとのデータとして格納され、つくばセンター内の基幹光ファイバー網を通してデータストレージサーバへ転送され、データ構造化を行い DB 化され、これら DB 間の連携関係とあいまって高付加価値化されたデータとなって DPF データとなる。プロジェクト終了の時点で、このデータ間の関係を再構築しながら更なる触媒開発に利用される等の高付加価値化サイクルが実行され、高機能材料の高速開発が実現する。

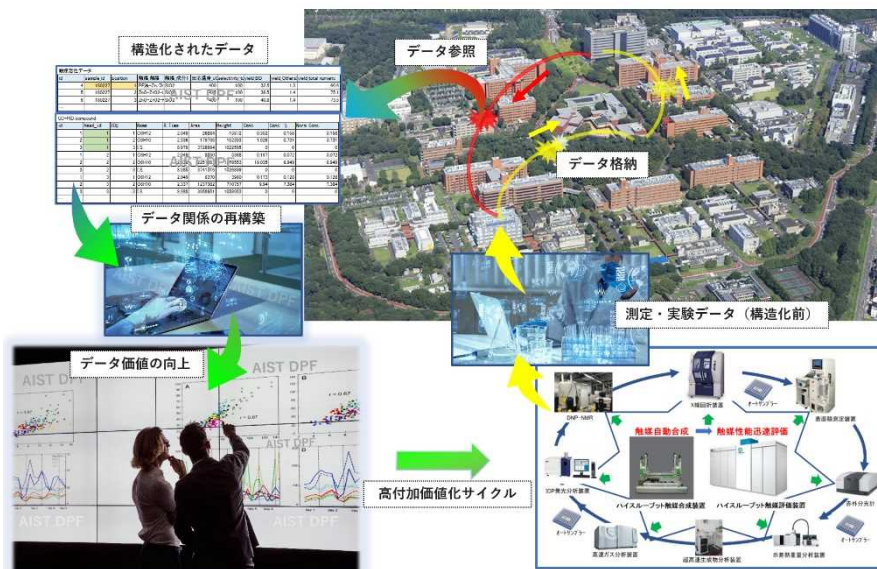


図 3-⑤-6 触媒 DPF の活用事例、および触媒開発用ハイスループット装置のデータの高付加価値化サイクル

材料開発では、高機能な材料になると実験・計算データが少なくなり、他の分野で有望と期待されている AI 関連技術を適用することが難しいことがある。そこで、企業等の秘匿ニーズの高いデータに対してもデータの共有を可能にする戦略が求められる。本プラットフォームでは、プロジェクト終了の時点で、「データを共有しないが共用する」戦略の実用化のはじめとして、材料データの秘匿計算システムを実装しサービス提供を開始する。併せて連合学習サービスの提供、暗号化によらない高セキュリティストレージの実現等、秘匿ニーズの高い材料データに対する高セキュリティソリューションを提供し、企業等連携に資するシステムが実現された。

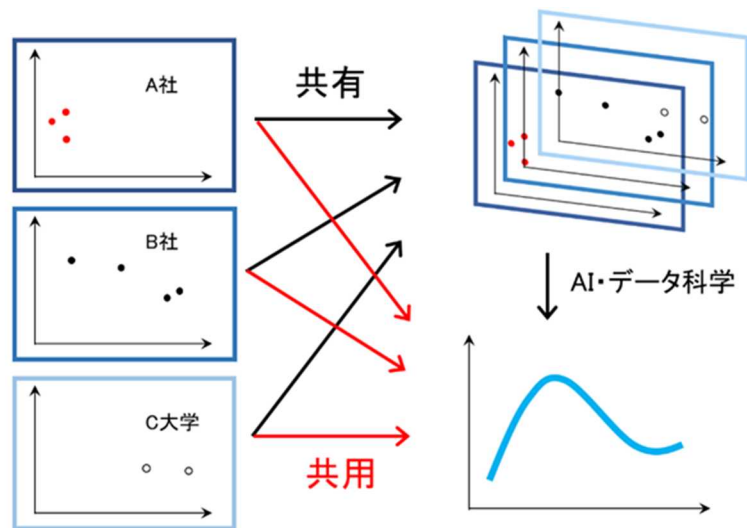


図 3-⑤-7 データを共有しないが共用するイメージ

### (3) 有機高分子材料の高精度物性予測・高速開発スキームの構築

#### (a) 有機高分子材料高速物性予測技術の開発と多重物性最適化設計への応用を実現

有機高分子材料に対する構造記述子「数密度 ECFP 法」、「クラス ECFP 法」を開発し、ベイズ最適化法と組み合わせた AI 解析技術を適用することにより、少ないデータ数と少ない実験回数であっても、目標物性を有する熱可塑性樹脂を探索できる設計スキーム開発に成功した。さらに、熱硬化性樹脂フィルムに要求される複数の物性値を、偏差値概念を用いて1つの指標へ変換する技術を確認し、上記設計スキームと融合することによりトレードオフ関係にある複数物性を同時に最適化することが可能な、多重物性最適化設計技術の開発に成功した。

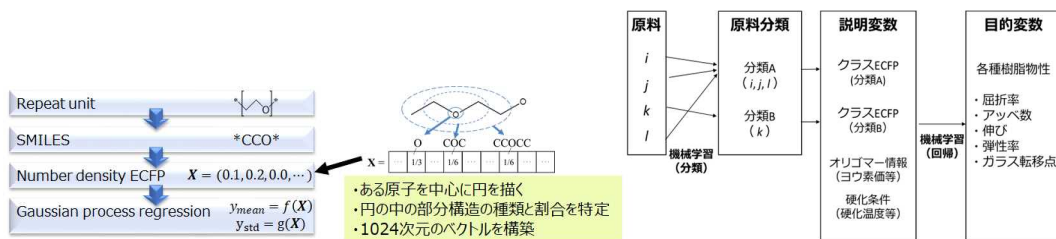


図 3-5-8 (左)数密度 ECFP 法、(右)クラス ECFP 法(アリルエステル樹脂の例)によるモデル構築

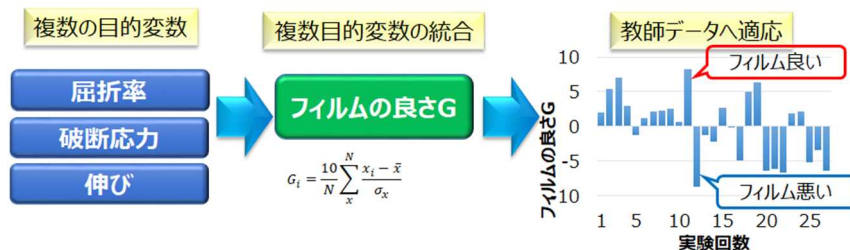


図 3-5-9 熱硬化性樹脂フィルムの複数物性の統合

#### (b) 機械学習解析技術と実験データの融合により有機高分子材料高速開発を実現

事業内容⑧によって生成された熱硬化性樹脂のデータをもとに、フィルム物性を予測する AI モデルを構築し、上記の複数物性の同時最適化技術と組み合わせることで、目標物性を有するフィルム作製の高速化に成功した。本技術開発により、実験研究者が 25 回試行して作成したフィルムを上回る性能のフィルムを1回で作製することに成功し、試行回数を少なくとも 25 分の 1 に低減する成果を得た。また、課題⑧にてフローリアクターによる熱硬化性樹脂の反応時間短縮に成功した。これらの結果より従来の研究開発手法と比較して研究開発期間を 1/27 に低減することに成功した。



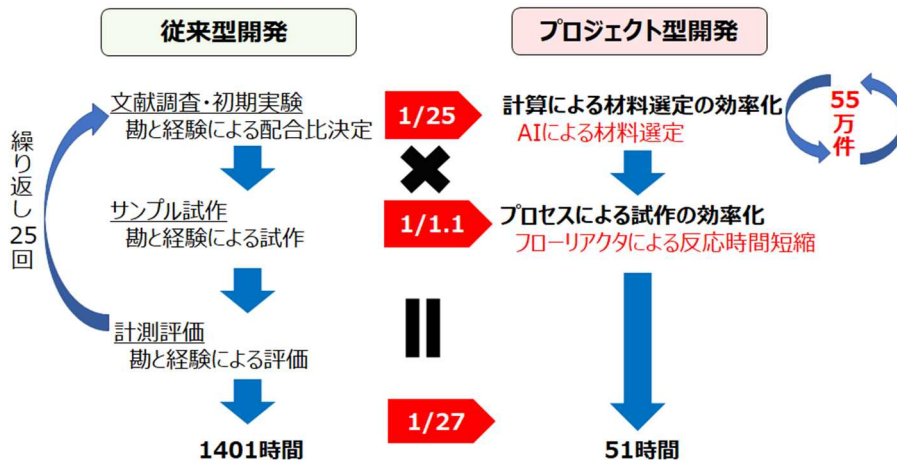


図 3-⑤-10 従来型開発とプロジェクト型開発の開発期間比較

(c)有機高分子材料設計の逆問題ソルバの開発に成功

異方導電性フィルムの配合組成および物性データを基に、その組成比を逆問題的に高精度予測可能な予測スキームの開発に成功した。本スキームでは、配合組成データの原材料を表すビットベクトルに対するクラスタリングからデータのサブセットを抽出することで、過学習を抑えた材料物性予測モデルを構築した。本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高精度予測が可能となり、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、数億通りの組成組合せの中から既存のパレートフロント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を可能にした。本開発技術により、十分なデータがあり高精度なモデル構築が実現可能な領域であれば、異方導電性フィルムに代表される機能性材料の開発期間をおよそ 1/22 に短縮可能である事を見出した。

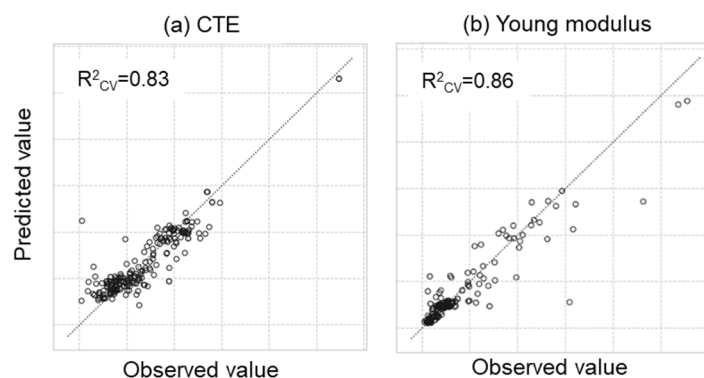


図 3-⑤-11 異方導電性フィルムデータの解析結果 (機械学習モデルには Gradient boosting decision tree を用いた。)

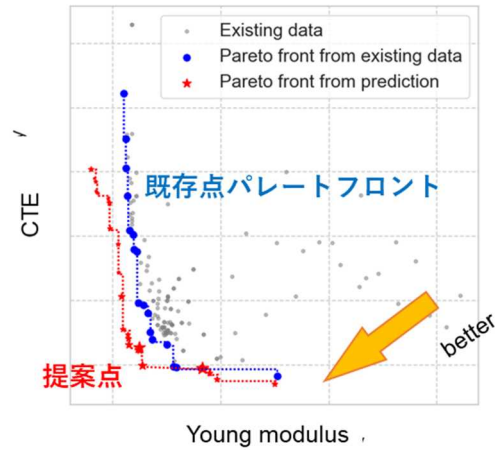


図 3-⑤-12 学習済みの機械学習モデルからパレートフロントを探索した結果

(d)有機高分子材料データ解析の欠損データ処理技術の開発に成功

混合ガウスモデルを拡張することにより、データに欠損値を含む場合の順解析、逆解析技術の開発に成功した。高分子材料の界面相互作用エネルギーと比誘電率のデータを用いた解析計算において、欠損データの有無にかかわらず高精度な逆解析が可能な有機高分子材料データ解析の欠損データ処理技術を開発した。図中の青色のバーは欠損がないデータに対して混合ガウスモデルを用いた場合の結果を、赤色のバーは目的変数の 50%を欠損させたデータに対して開発手法を用いた場合の結果を表す。黒色の破線はそれぞれの説明変数の学習データにおける最小値、平均値、最大値を示す。開発手法により、目的変数に欠損が生じている場合においても、欠損がない場合と同様の逆解析結果が得られていることがわかる。

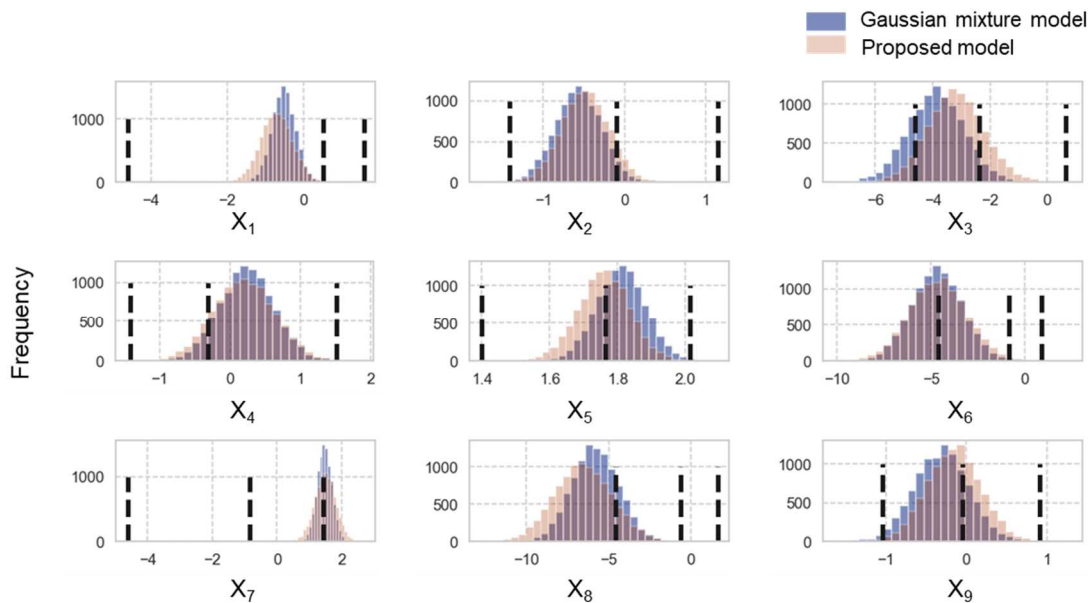


図 3-⑤-13 比誘電率および対銅界面相互作用エネルギーを目的変数とした高分子データの逆解析によるサンプリング結果

#### (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

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高機能トポロジカルデータ解析ソフトウェア HomCloud を発展・普及させるために HomCloud Windows 版を完成し配布・普及活動を行った。一方、HomCloud と 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し、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、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の提案に成功した。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。

また、パーシステントホモロジー法の応用事例をまとめ、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。

### 3.2.2 研究開発項目[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	最終目標 (2021年度末)	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	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	・分散性の高いナノ粒子を用いた光学機能材料開発における組成、粒径、形状、分散状態等の制御を可能とする基盤技術開発とその利用によるサーモクロミックフィルムや金属ナノ粒子の高速試作により、従来の試作回数・開発期間比で約1/20の時間短縮を検証した また、③-2で開発されたフィラー充填系コンポジットシミュレータによって得られるフィラー分散構造が実験と良好に一致することを実証した ・フィラー分散構造と熱伝搬特性の相関データを取得する技術基盤を構築し、透明高熱伝導コンポジット材料を試作した	○	
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	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ラ、光透過性ナノ発泡断熱材料を試作する	・ポリマー系コンポジット材料について、小型装置の開発、機械学習によるプロセス最適化、オンライン/オンサイトの計測技術の開発により、高速試作のためのプラットフォームを構築し、運用した ・ポリマー系コンポジット材料の作製を従来と比べてプロセス部分で5倍以上高速化する試作プロセスを確立した また、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・高耐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した	○	
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	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	二酸化炭素を利用した有用化成品合成・機能性ゴム原料の合成・高機能コアシェル型金属ナノ粒子触媒の量産合成・熱硬化性フィルム素材製造について、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の開発に成功し、さらに、選択性と効率性を両立したハイスループット触媒プロセスシステムを構築することで、従来法と比べて10倍以上高速化する各種自在合成技術を確立した	◎	
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	シミュレーションや計測による予測に基づいたCNT構造及びドーパントを用いたCNT線材を作製することが可能なプロセス技術を確立する	高導電率を発現すると予想される2nm径のCNTから成るCNT線材に対し、気相法による高収率ドーピングプロセスを確立した	○
	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	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	・プラズマCVDによる原子層グラフェンの高スループット連続合成技術(基材巻取り速度100mm/sec)を開発 ・h-BNの大面積(5cm角)合成技術を開発 ・グラフェンの高移動度(20,000cm <sup>2</sup> /Vs)を実証 ・MoS <sub>2</sub> の大面積合成技術の開発と発光デバイスの試作 ・高スループットのグラフェン合成技術開発を基盤とし開発期間の1/20短縮を達成	◎
	3.CNT複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発	機械学習等で予測される物理・構造特性を有するCNT膜・複合材の組成・製造が可能となるプロセス技術を確立する	キャパシタ応用などが期待されるCNT膜および高分子とのCNT複合材料作製プロセスを確立し、電気伝導特性、比表面積、キャパシタ特性などの機械学習による予測、および逆問題解決の例示に貢献した	◎

【研究計画(線表)】

事業内容	2016年度				2017年度				2018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													
1. CNT線材作製プロセスに関する基盤開発					紡糸によるCNT線材作製				長尺化検討				
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					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				
3. CNT複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発					高分子マトリクス中へのCNTと各種ファイバーの分散試料の作製				ファイバー改質によるモルフォロジー制御技術の確立				

事業項目	2019年度				2020年度				2021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	ハイスループット合成及びデータ蓄積				プロセスの更なる高度化				ナノ粒子合成・分散ポリマー材料試作プラットフォーム			
⑦ ポリマー系コンジット材料プロセスに関する基盤技術	装置の改良及び試作高速化				材料機能強化の検討				ポリマー系コンジット材料試作プラットフォーム			
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	ハイスループットフロー反応評価装置によるデータ蓄積				データベース化及び触媒・樹脂の設計指針の検討				ハイスループット合成・評価システム			
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	試作と評価				抵抗回路モデル用構造データ蓄積				CNT線材作製用データプラットフォーム			
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	転写法の高度化及びデータ蓄積				グラフェン合成の高速化及び積層技術のデータ蓄積				ハイスループットグラフェン合成プラットフォーム			
3. CNT複合材料作製プロセスに関する基盤技術開発	表面改質技術の高度化と形状の因子の検討				表面改質技術の量産化検討と三元系複合材料の物性評価				所望の物性を発現するファイバー表面改質技術の確立			

## 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高機能光学材料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、短時間試作を可能とするナノ粒子合成技術を開発する。さらに、構築した基盤技術を用いてプロセスデータを蓄積し、ナノ粒子の構造・機能やナノ粒子分散フィルムの光学特性設計に関わる種々のプロセスパラメータの特定を行う。加えて、事業内容①-1 電気・熱等のマルチスケール伝導計算シミュレータや事業内容②-1 で開発した第一原理外場応答シミュレータの検証と高度化に貢献し、高機能光学材料開発の高速化を目指す。高機能光学材料のモデル材料には、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 ( $\text{VO}_2$ ) ナノ粒子と、粒径、形態、組成による光学特性制御を可能とする金属ナノ粒子を選択した。

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。

最終目標は、分散性の高い均一ナノ粒子の合成プロセスや解砕・混練・分散プロセスの一体化等によってナノ粒子を分散させた樹脂フィルムのプロセス速度を従来比5倍とする。また、モデル材料としてのナノ粒子を分散させたフィルムについて、使用環境下での評価が可能なプロトタイプのフィルムの試作を行うことで、従来の試作回数・開発期間比で1/20の時間短縮を実証する。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) ナノ粒子合成から機能性フィルム化の高速製造プロセス技術

#### (1)-1 二酸化バナジウムナノ粒子

##### (a) 機能性酸化物ナノ粒子の高速合成技術の開発

機能性酸化物ナノ粒子のモデル素材として、サーモクロミック特性を有する二酸化バナジウム ( $\text{VO}_2$ ) を用いた。ナノ粒子の合成方法としては、原子レベルからボトムアップで合成することができ、ナノ粒子合成に適した水熱合成法に着目し検討した。

一般的な水熱合成法では、反応溶液を金属圧力容器内の封入し温度を上げることで反応を進行させる。通常の加熱方法により反応溶液の温度を上げる場合には、熱伝導により周囲温度が合成容器に伝わり、主に対流によって容器内の反応溶液の温度が上昇する。この方法

では、溶液の温度を急速に上昇させることが困難であり、溶液温度が空間的に不均一になることから、準安定相の形成や不均一な核生成が進行するといった欠点がある。そのため、熱安定相であるサーモクロミック特性を示す VO<sub>2</sub> ナノ粒子を水熱合成するには、高温下で 6~24 時間程度の結晶化時間を要し、粒子径の揃った小径のナノ粒子の合成は困難であった。

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による高速製造プロセスを構築し(図 3-⑥-1)、原料溶液及び装置合成条件が生成物への影響確認を行った。検討の結果、急速高温加熱プロセスを実現し、かつ該プロセスに適合した合成反応処方を検討することで、粒子径 30 nm 以下、粒径分布 20 %以下の VO<sub>2</sub> ナノ粒子の短時間合成に成功した(図 3-⑥-2)。また、得られた粒径 30nm 以下となったナノ粒子の X 線回折による結晶性評価から、従来加熱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示され(図 3-⑥-3)、特に、連続式水熱合成法においては結晶化時間を約 1/5000 に短縮化できたことを確認した。以上から、マイクロ波加熱法および連続式水熱合成法により、機能性酸化物ナノ粒子の合成時間を大幅に短縮できるだけでなく、粒子径が揃い、粒子径の小さいものが得られることを見出した。

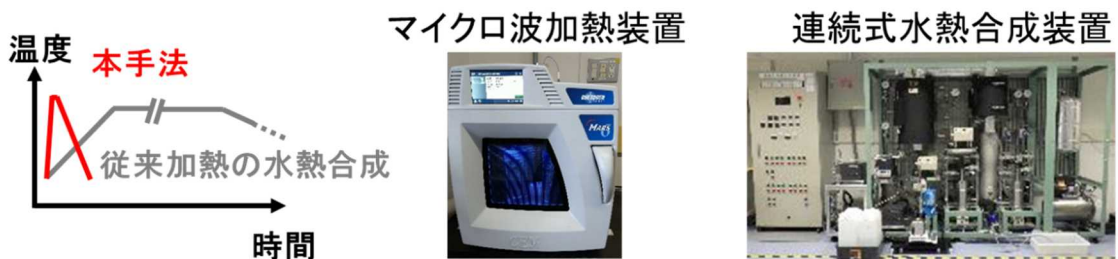


図 3-⑥-1 構築したナノ粒子の高速製造プロセスの特徴、  
検討に使用した合成装置であるマイクロ波加熱装置と連続式水熱合成装置

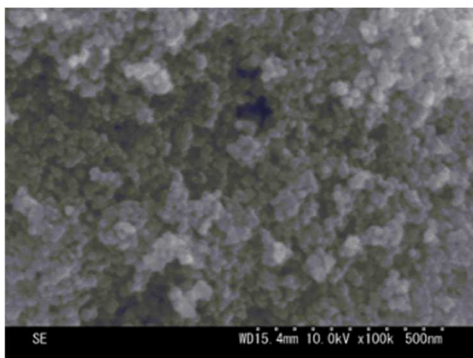


図 3-⑥-2 連続式水熱合成装置で作製した  
ナノ粒子の電顕写真

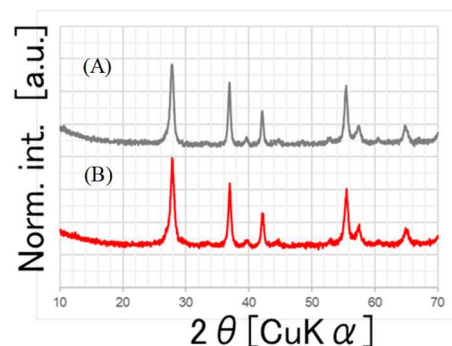


図 3-⑥-3 粉末 X 線回折による  
ナノ粒子の結晶性評価結果

(A)従来加熱の水熱合成品、(B) 連続式水熱合成品

#### (b) ナノ粒子分散フィルム試作プロセス基盤の構築

研究開発項目[1]のシミュレータ開発と連携した、検証プロセス構築を目指した。連携するのは、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、事業内容①-1 で開発した電気・熱等のマルチスケール伝導計算シミュレータ、および離散双極子近似 (DDA) による DDA 光学応答計算シミュレータである。これらシミュレータを用いたナノ粒子材料の光学・色機能の順方向予測に対応するため、ナノ粒子合成時における組成・構造制御および分散フィル

ム中でのナノ粒子均一分散制御を目標とし、プロセス検討を行った。

組成・構造制御として、合成時における異種元素の添加合成を検討した。異種元素例として、今回開発した合成手法を用いてタングステン(W)を添加した VO<sub>2</sub> ナノ粒子合成について述べる。W を添加し合成した VO<sub>2</sub> ナノ粒子の X 線回折パターンを示す(図 3-⑥-4)。従来加熱の水熱合成では、5 原子%程度でサーモクロミック特性を示す目的の結晶相以外の別の結晶相も形成された。一方で、マイクロ波水熱合成法及び連続式水熱合成法では、5 原子%や 10 原子%を添加しても、別相として分離せずに、混晶が形成された。以上から、今回開発したナノ粒子の高速合成技術は、所望の元素の高濃度添加にも有効であることを検証できた。

一方、分散フィルム中でのナノ粒子の分散・凝集については、量産適性の高い塗布方式によるフィルム化を検討した。水熱合成によって得られた VO<sub>2</sub> ナノ粒子は、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基材同等の 1 % 以下に改良できる条件を見出した(図 3-⑥-5)。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、高分散を保持した VO<sub>2</sub> ナノ粒子分散フィルムの試作を実現した。

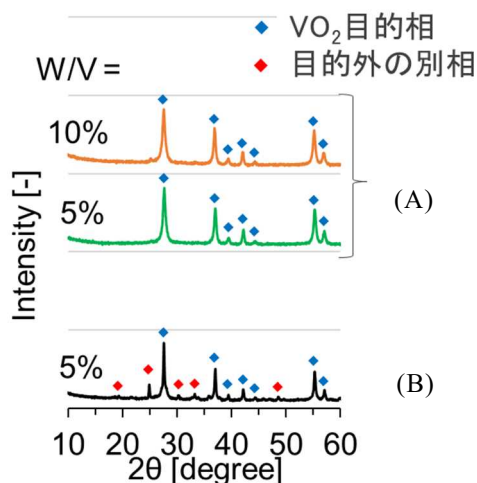


図 3-⑥-4 W 添加 VO<sub>2</sub> ナノ粒子の  
粉末 X 線回折評価  
(A) 連続式水熱合成品  
(B) 通常加熱の水熱合成品

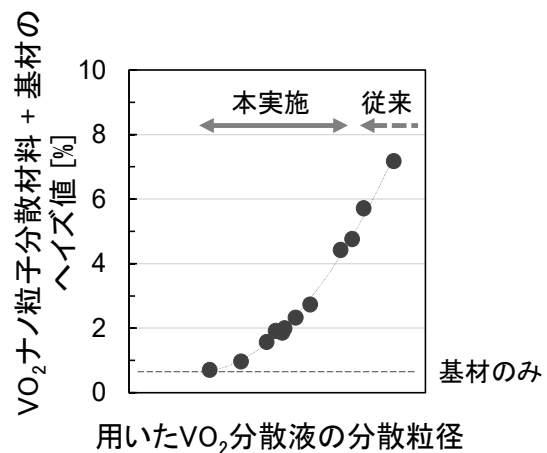


図 3-⑥-5 用いた VO<sub>2</sub> 分散液の分散粒径と  
フィルム時のヘイズの関係

### (c) 開発期間短縮能の評価

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、従来困難であった VO<sub>2</sub> 粒子毎の光学特性評価を実現した(先端計測との連携)。

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  $k$ )を見積もることで、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た（計算科学との連携）。さらに、計算科学によって得られたナノ粒子の組成・形状・粒径及び分散媒質屈折率と光学応答のデータ解析により、光学機能向上を実現するナノ粒子粒径等の閾値を予測、材料設計指針が提示された。

これら取り組みから、従来型開発 (Tt) とプロジェクト型開発 (Tp) の比較により、ナノ粒子材料の光学・色機能について開発期間短縮能の試算を行った(図 3-⑥-6)。ここでは、計算・計測・プロセスの三位一体の開発をプロジェクト型開発と定義する。試算の結果、約 1/20 の開発期間短縮されたと見積もられた。これは、プロジェクト型開発では、従来型開発に比べ、計算科学による材料・目標領域の選定が可能となることで試作回数が削減し、約 1/4 の期間短縮に貢献するためである。さらに、試作時間に関しても、高速プロセス、ナノ領域物性計測が約 1/5.6 の期間短縮に寄与するためである。

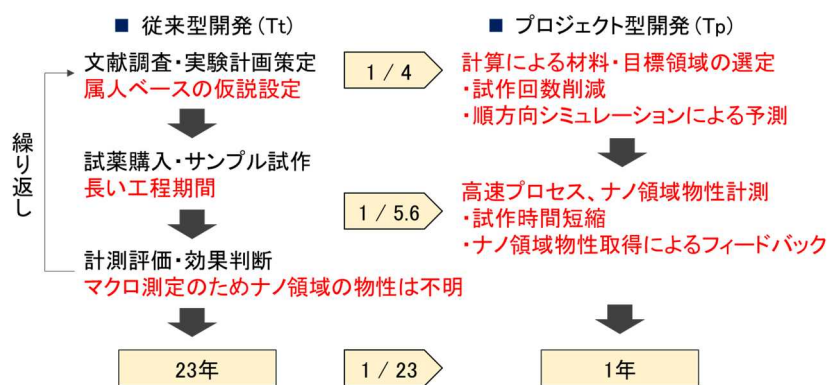


図 3-⑥-6 開発期間短縮の試算

この開発期間短縮の試算を実証するため、計算科学によって提示された材料設計指針の内、小粒径化による光学機能向上予測について試作検証を行った。水熱合成によって得られた粒子径 30nm 以下かつ高い結晶性を両立した VO<sub>2</sub> ナノ粒子を用い、高分散な分散液とし、透明樹脂フィルムの表面に塗布したサーモクロミックフィルムを作製し、10°C と 90°C で分光透過率を測定した(図 3-⑥-7)。VO<sub>2</sub> ナノ粒子が絶縁体相である 10°C に比べて、金属相である 90°C では近赤外光域全域 (780~2000 nm)にわたって透過率が減少しており、サーモクロミック特性が発現していることが確認できた。さらに、波長 1250 nm における 10°C と 90°C との透過率の差(調光幅)は 60 %であり、VO<sub>2</sub> を用いたサーモクロミック方式のスマートウィンドウの研究分野において従来よりも大きな値を示した。以上から、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の基盤技術開発と、その利用による材料従来の試作回数・開発期間比で約 1/20 の時間短縮を実証した。

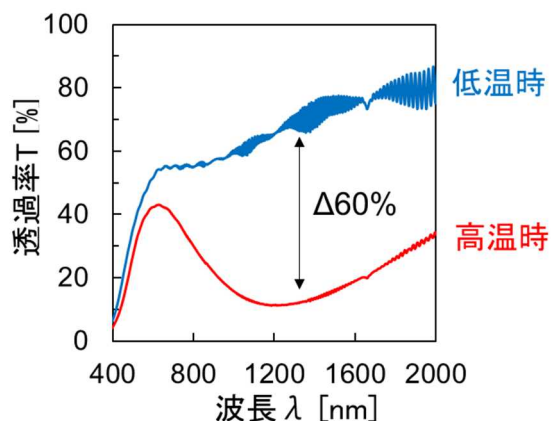


図 3-⑥-7 VO<sub>2</sub> ナノ粒子の分散液を塗布した樹脂フィルムの 10 °C と 90 °C での分光透過率

## (1)-2 金属ナノ粒子

プロジェクトの前半期でモデル材料として銀(Ag)ナノ粒子を選択し、合成時間短縮を図ることを目指し、フロー式の合成装置(図 3-⑥-8)を開発し、液相還元法による検討を行った。従来の液相還元法による分散性の高い Ag ナノ粒子の合成において、数分程度の短時間合成のためには  $10^{-3}\text{M}$  程度の希薄な原料濃度条件という制約があった。一方で  $10^{-1}\text{M}$  以上の濃厚な原料濃度条件での合成のためには、1~24 時間の反応時間や、特殊な反応場が必要であり簡便に高速かつ高濃度で試作を行うことは出来なかった。そこで、フロー合成装置を用い、分散剤濃度や原料濃度、反応温度などの合成条件を検討することにより、原料濃度  $3 \times 10^{-1}\text{M}$  の条件で、反応時間 2 分という従来法に比べて 1/30 以下の時間で分散性の高い Ag ナノ粒子を製造する手法を開発した。得られたナノ粒子を動的光散乱法(DLS)により評価すると平均粒径 42nm、多分散指数 20%以下であることを確認した(図 3-⑥-9)。SEM 観察の結果、生成した粒子は球状であること、粒径が 15~30nm 程度であることを確認した(図 3-⑥-10)。加えて、条件を操作することにより粒径を精密に制御できた。さらに、合成した Ag ナノ粒子を用いたコンポジットフィルムの光学特性は、従来法で合成したそれと同程度であった。

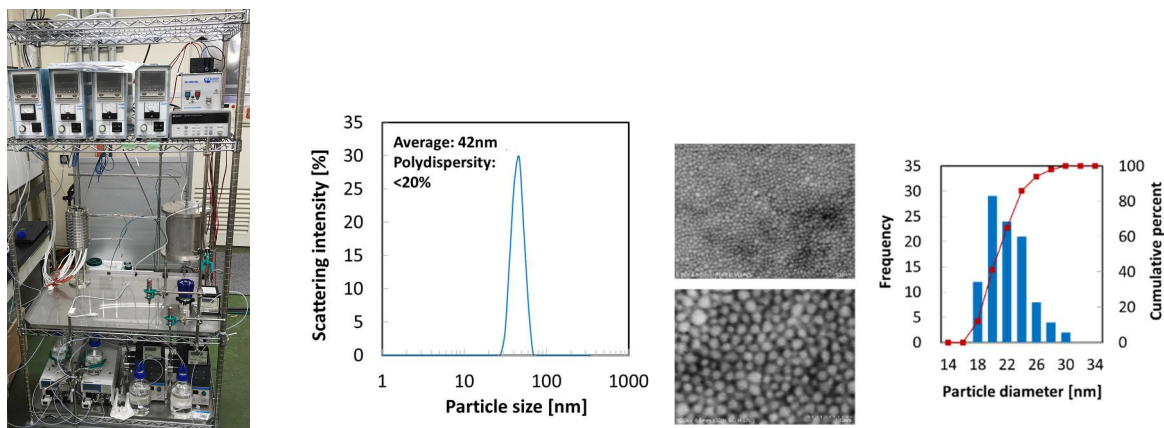


図 3-⑥-8 開発したフロー装置 図 3-⑥-9 DLS 測定結果 図 3-⑥-10 SEM 像および粒径分布

光学特性に対する粒径、形状等各因子の影響度を解析するために、同じくプロジェクト前半期に開発された電気、光等のキャリア輸送シミュレータの機能の一つである、Mie 散乱理論に基づく光学応答計算を適用し、その結果と実験値の比較を行ったところ、Ag ナノ粒子の光学応答スペクトル形状は、粒径よりもアスペクト比の変化に対しより大きく依存することが分かった。また、透過暗視野光学顕微鏡による個別粒子の観察から、粒子の凝集状態が光学特性に大きく影響を与えることが分かった。これらの結果から、積極的に Ag 粒子の光学特性を制御するには、粒径だけでなく粒子形状や凝集状態の制御が必要であることが示唆された。

プロジェクトの後半期では、Ag 粒子を用いて、より広範に光学特性を変化させるための粒子開発の高速化に関する検討を行った。具体的には、球状ではなくアスペクト比の大きくなるプレート状の Ag ナノ粒子合成を対象とし、吸収スペクトルのピークが 700nm 以上の長波長となる分散液の調整を目的とした。プレート状の粒子合成にはシードとなるナノ粒子の合成と、その後の結晶成長過程の制御が不可欠である。そのためには、シード、原料、還元剤、分散剤などの濃度や種類の効果を検討し、重要なパラメータを見極めることが不可欠であるが、膨大な条件における実験が必要となる。また、結晶成長過程を緻密に制御するためには反応の遅い条

件での検討が不可欠でありバッチ式の合成法が有効である。そこで、自動分注装置(図 3-⑥-11)によるハイスループット実験、プレートリーダー(図 3-⑥-12)による高速スペクトル測定、および取得データを用いた機械学習を組合せた方法について検討を行った。



図 3-⑥-11 自動分注装置



図 3-⑥-12 プレートリーダー

自動分注装置を用いて、原料、還元剤、分散剤などの濃度(量)を変化させた実験を行った。665 条件の実験とプレートリーダーによるスペクトル測定が 3 日間で実施できた。実験後のマイクロプレートの写真(図 3-⑥-13)から明らかなように、様々な光学特性を有する粒子分散液を合成できた。

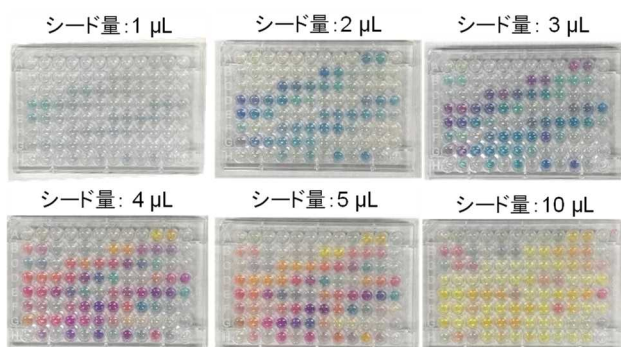


図 3-⑥-13 実験後のディープウェルの写真

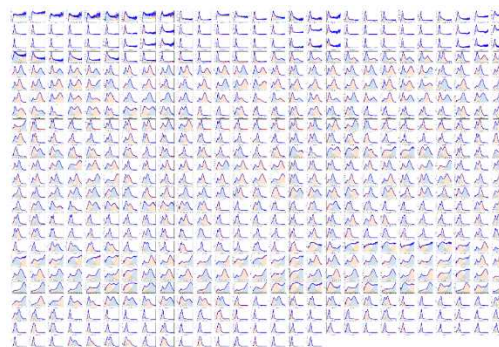


図 3-⑥-14 測定スペクトルとフィッティング結果

測定したスペクトルに対してピークフィッティングを行い(図 3-⑥-14)、スペクトルの形状を表すパラメータを目的変数に、合成パラメータを説明変数として、サポートベクトルマシンでモデルを構築した。プレートの中心波長や強度などを目的変数、シードの量や原料などの濃度を説明変数として機械学習を行うことで、合成パラメータとスペクトルの関係を解析した。構築したモデルから予測される結果は、実測結果と良い一致を示していた。また、モデルを用いることにより、ピークが 700nm 以上の長波長側となる分散液が得られる実験条件を推定することも出来た(図 3-⑥-15)。

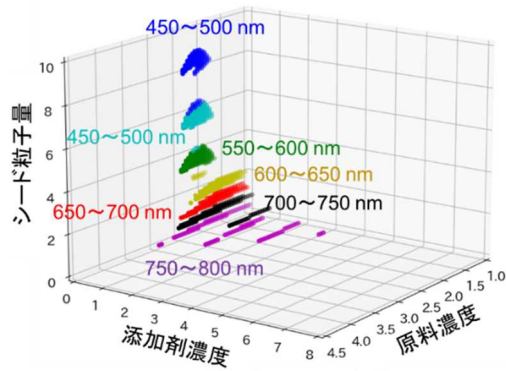


図 3-⑥-15 機械学習により構築したモデルによる合成条件の予測結果

得られた知見と手法を発展させ、原料濃度や分散剤種、添加剤種などの合成条件を探索したところ、 $10^{-1}$ M 程度の濃度で所望の光学特性を示すプレート状 Ag ナノ粒子を合成できる条件を見出し、さらに  $10^{-1}$ L $\sim$ 1L 程度の反応へスケールアップすることに成功した。これによりコンポジットフィルムの作成が可能な量のプレート状 Ag ナノ粒子を得ることが出来た。検討期間は従来法で同様の開発を行う場合に比べて約 1/5 に短縮できたと見積もられる。

また、本検討で得られたプレート状 Ag ナノ粒子の形状を AFM で精密に測定し、得られた形状情報と、後半期に機能強化したナノ粒子光学応答シミュレータ(事業内容①-1)による計算データを比較し、粒子形状と光学特性との相関解析と、その検証を行うことができた。プロセスによる実験データと光学特性の収集、計測による形状の精密測定、計算による光学物性と形状の相関解析、そして、大量の計算データを利用した機械学習による実験候補の絞り込みや光学特性からの粒径分布の予測を加えることで、開発全体として期間を約 1/20 に短縮できることを実証した。



図 3-⑥-16 金属ナノ粒子の自動フロースクリーニングシステムと回収液

さらに、プロジェクトを通じて、フロー式金属ナノ粒子合成装置のプラットフォーム化を見据えた研究を実施した。光学特性制御のための金属ナノ粒子分散液の開発において、上述のとおり比較的遅い反応の制御にはバッチ式の自動分注装置による検討が有効である。一方で、金属の粒径や、複数の金属を含む系における組成や構造(コアシェル化など)の高度制御において、比較的早い反応の制御にはフロー式の装置が有効である。そのため、原料、還元剤、分散剤などの濃度や流量といったプロセスパラメータを自動制御するとともに、オンラインで計測

したスペクトルデータと流量や圧力といったプロセスデータを自動で蓄積することが可能なプログラムを作製し、このプログラムとマイクロキサーやマイクロリアクターを組み込んだ自動フロースクリーニングシステムを開発した(図 3-⑥-16)。実際にモデル物質として金ナノ粒子の合成を選択し、本システムを用いたデータ取得と機械学習を組合せることで、吸収スペクトルのピーク波長が短く、ピーク強度が高い条件の探索をデータ駆動で進めることが可能であることを実証した。

## (2) ナノ粒子解砕・分散技術

### (a) 無機フィラーの易分散化技術の開発

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、ボールミル処理等他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

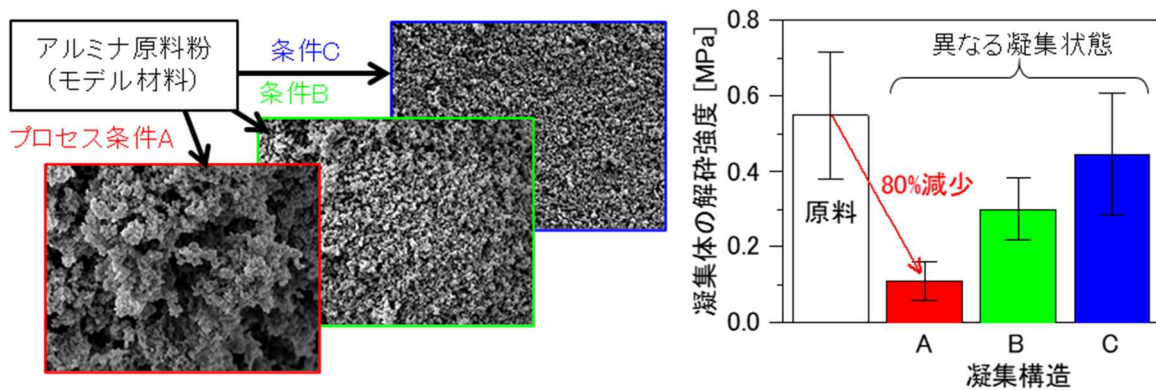


図 3-⑥-17 種々のプロセスで作成したアルミナ凝集体の微細構造と解砕強度

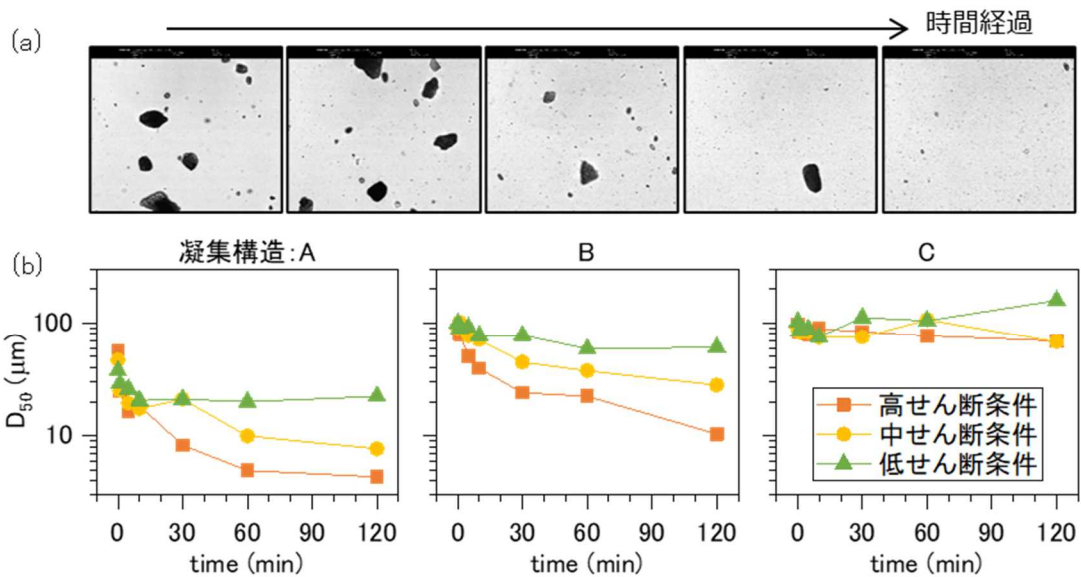


図 3-⑥-18 (a) 加熱せん断ステージによるアルミナ凝集体の解砕挙動の観察例

(b) 画像解析から得た粒度分布の経時変化

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。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 3-⑥-17 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。

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メチルメタクリレート(PMMA)中に分散していく様子を直接観察した(図 3-⑥-18(a))。時間とともに大きな凝集体が次第に減少し、PMMA マトリッ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 3-⑥-18(b))。凝集体の解砕強度を低減させることにより、PMMA 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、などが確認された。

(b) ポリマー中のフィラー分散状態に関する溶融混練シミュレータとの比較検証

事業内容③-2 で開発されたフィラー充填系コンポジットシミュレータ(拡張 KAPSEL)の検証として、コンポジット中でのフィラーの分散状態の比較を行った(図 3-⑥-19)。シミュレーション

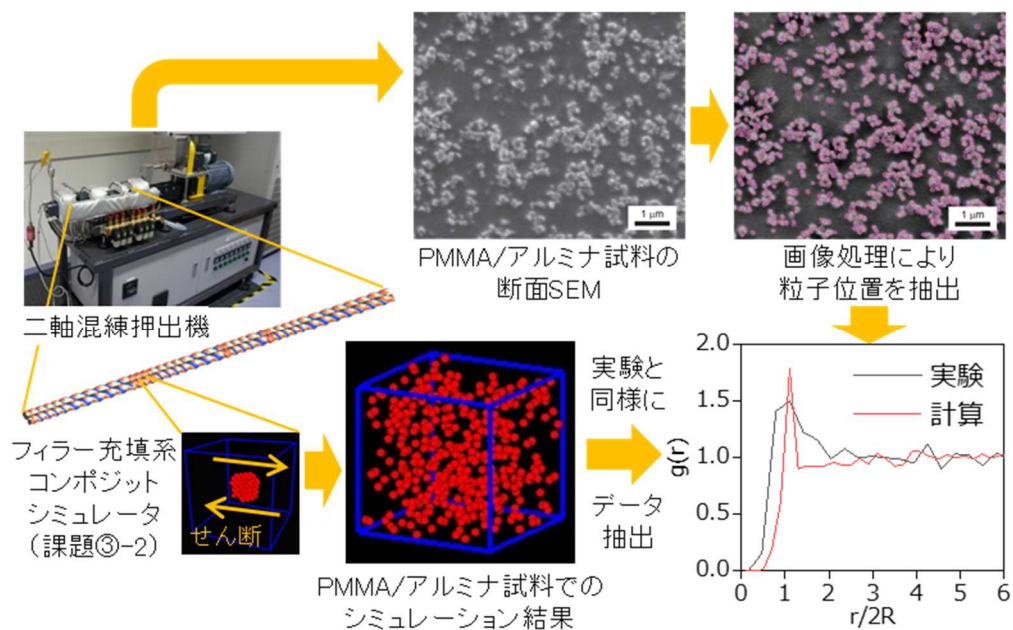


図 3-⑥-19 分散フィラーの動径分布関数  $g(r)$ に関する実験とシミュレーションの対比

技術の詳細は事業内容③-2 にて述べられている。二軸混練押出機を用いて、PMMA と凝集構造制御アルミナの溶融混練を行い、得られたコンポジット試料中のフィラー分散状態を断面 SEM 観察により評価した。画像処理により SEM データから粒子位置を抽出し、二次元動径分布関数  $g(r)$ を求めた。シミュレーションデータから実験と同等の動径分布関数を評価したところ、溶融混練時に付加されるせん断速度およびアルミナ粒子表面に形成される PMMA 界面層の厚さとして妥当な値を設定した計算結果と、実験結果が良好な一致を示すことが確認され、開

発されたシミュレータによって材料中のフィラー分散構造を適切に予測できることを検証した。

### (c) フィラー分散状態－熱伝導特性相関データ取得基盤の構築

高熱伝導フィラーをポリマー中に分散させた放熱材料開発では、フィラーの分散状態が材料の熱伝搬特性に大きく影響すると考えられる。前項までで、コンポジット製造プロセスと、得られるフィラー分散構造の関係性が得られている。フィラー分散構造と熱伝導特性の関係性に関するデータを実験的に高速に取得する手法を確立することで、構造～特性の関係性を明らかにし、材料開発の加速につなげることに取り組んだ。フィラー分散構造の評価手法として、前項ではコンポジット材料の断面 SEM 像から 2 次元的な情報を取得した。しかしながら、熱伝導特性との相関を検討するためには、3 次元的なフィラーの分散構造を把握することが重要と考えられる。一般的な熱伝導フィラーの大きさはサブ～数十マイクロメートル前後であり、コンポジット材料としてサブ～数ミリメートル程度の範囲の空間データが求められる。電子線をプローブとする電子顕微鏡で 3 次元的な空間データを得ることは不可能ではないが、破壊的観察になること、データ取得に多大な時間を要すること、等の課題がある。そこで、非破壊で高速に 3 次元的なフィラーの分散構造を評価する手法として、光コヒーレンストモグラフィ(OCT)法を検討した。

熱伝導フィラーを高濃度に含む熱伝導性コンポジット材料は、通常、ポリマーとフィラーの屈折率差が大きいいため、光学的に不透明である。高熱伝導性でありながら、光学的に透明性の高い材料は、高付加価値熱伝導材料としても期待される。また、光学的にフィラー分散構造を観察可能なモデル試料として、フィラー分散構造～熱伝導特性相関に関する研究上も重要である。本研究では、アルミナに近い屈折率を有する高屈折率ポリイミド中にアルミナを分散させた透明高熱伝導材料を開発した(図 3-⑥-20(a))。本材料は 30vol%のアルミナを含んでも高い透明性を有し、かつ、ポリマー単体と比べて(巨視的に)約 4 倍の熱伝導率を示す。

本試料を OCT 法により観察すると、ポリマーとフィラーの微小な屈折率の差から界面での反射光が検出され、フィラーの 3 次元的な分散状態を非破壊で比較的短時間に得ることができ、試料位置により異なるフィラーの分散状態データを取得することができた(図 3-⑥-20 (b))。

フィラー分散構造データと同等の空間分解能で熱伝導特性を評価するため、顕微サーモグラフィを利用した微視的熱伝搬特性評価システムを構築した。本システムでは、黒化処理した試料の片面をレーザーパルスにより短時間(数ミリ秒)加熱し、その後の裏面の温度上昇挙動をサーモグラフィで取得する。温度プロファイルから微視的な熱拡散率の分布を得ることができた(図 3-⑥-20 (c))。位置により、数十%程度も熱拡散率が異なることが確認され、微視的な熱伝導特性を評価する重要性が示唆された。このように、3 次元的なフィラー分散構造と、対応する空間分解能での微視的な熱伝導特性の分布情報を得ることのできる、高付加価値熱伝導材料の開発基盤を構築した。

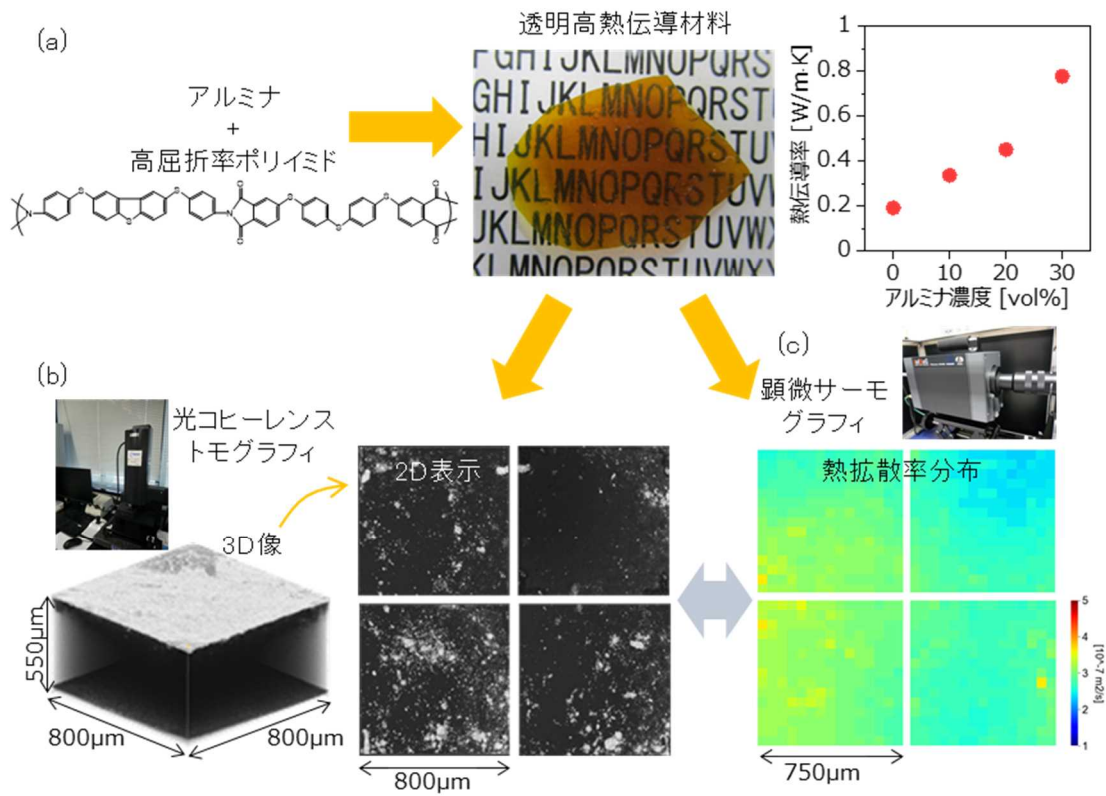


図 3-⑥-20 透明高熱伝導材料を用いたフィラー分散構造と熱伝導特性のデータ取得



## 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、

- (1) 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
- (2) 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、(1)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、(2)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。作製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 開発した小型装置群の概要

課題	(1)スーパーエンブラ系ナノコンポジット	(2)発泡ポリマー
装置	小型熔融混練装置	小型発泡成形装置
主な構成	二軸高せん断熔融混練装置+IR 温度センサー+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>二軸高せん断熔融混練装置</li> <li>スクリー径 15 mm、L/D = 90、</li> <li>最大使用温度 400°C、</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		

これらの装置について、上記(1)(2)の研究を推進し、その結果を踏まえて産総研データプラットフォーム(DPF)のデータ蓄積を主目的とした超小型熔融混練装置、超小型発泡成形装置を新たに作製した。表 3-⑦-2 に超小型熔融混練装置、超小型発泡成形装置の概要を示す。

これらの超小型装置群においては、希少サンプルへの対応、オンラインでの各種計測機器類とのマッチングなどを考慮し、さらなる小型化に努めた。また、小型装置群での経験を踏まえて、制御および計測プログラムの改造、超小型発泡成形装置における極微量粉体フィーダーの設置など、ユーティリティの向上を行った。一方、小型化に伴うスクリー強度の制約の問題から、回転数や最大圧力などのスペックは小型装置群より低下している。これら超小型装置群はデータサーバーとの通信のための高速回線設置スペースへ配置した。

作製した超小型装置群を用いて、プロセスの高度化、DX化とオンライン分析の強化、データ解析に関する検討を行った。従来の押出成形プロセスの研究では、装置内の可視化や特殊センサーの利用などによりポリマーの状態を把握しようとする試みがなされていたが、汎用性に乏しく、普及していない。本事業では、押出機から吐出されたポリマーのストランドの分析を試みた。ストランドは表 3-⑦-3 に示すように、ポリマーの物性についての情報を数多く含み、作業者の“勘と経験”の範囲で活用されている。また装置に特殊な機器やセンサーを必要とせず汎用性が高い。一方、ストランドの情報は、定量化しにくい、相互の情報が複雑に関連、ノイズが多い、といった特性から情報のデータ化、共有化が難しく、従来は活用されていなかった。この特徴は、機械学習によるデータ処理への適性があるため、汎用性の高い方法で情報を収集し、データ化し、プロセスのデータと一体化して分析することを試みた。

表 3-⑦-2 開発した超小型装置群の概要

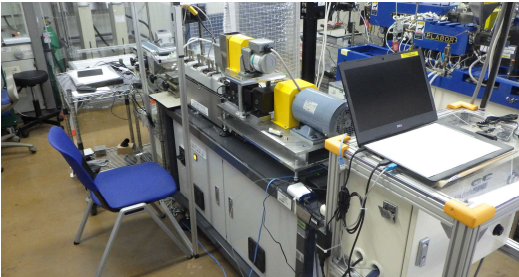


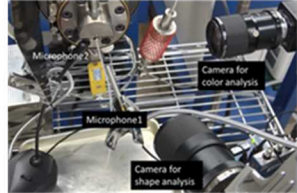
課題	(1)スーパーエンブラ系ナノコンポジット	(2)発泡ポリマー
装置	超小型熔融混練装置	超小型発泡成形装置
主な構成	二軸高せん断熔融混練装置	タンデム型発泡押出装置(二軸+単軸) + 高圧発泡ガス供給装置+微量粉体フィーダー
主な仕様	・二軸高せん断熔融混練装置 スクリー径 8 mm、L/D = 60、 最大使用温度 500℃、 最高スクリー回転数 500 rpm	・二軸押出機 スクリー径 10mm、L/D=50 ・単軸押出機 スクリー径 15 mm、L/D = 50 最大圧力 50 MPa
写真		

表 3-⑦-3 ポリマーのストランドの状態に内包される情報とその収集

分類	状態			関連する物性の例造	
	形状	繋がっている	ちぎれている		粘度
まっすぐ		ねじれている		混合状態	異物
膨れる		縮む	膨れて縮む	ガス溶解量	発泡構造
太い		細い		粘度	異物
色	均一	ムラがある	階調がある	組成(熱分解)	分散状態
	薄い	濃い		組成(熱分解)	分散状態
光沢	光っている	くすんでいる		表面構造	発泡構造
煙	出ている	出していない		組成(熱分解)	組成(揮発起因)
におい	なし	弱い	強い	組成(熱分解)	組成(揮発起因)
音	なし	破裂音		ガス溶解量	発泡構造

本研究では、ストランドの“見た目”と“音”の活用を試みた。“見た目”については、リアルタイムで流れるポリマーのストランドの幅を計測し、あわせて色調を RGBHSV の各要素に分解して記録する Python プログラムを開発した。例として、超小型熔融混練装置を用い、ポリカーボネート(PC)樹脂に市販銀ナノ粒子インクを混練した系での検討例を示す。インクの添加により粘度が低下し、ストランドが切れやすくなるのがストランド検出の問題であったが、上記の色情報を実際のストランドの記録映像を用いて教師あり学習させ、サポートベクトルマシンにより予測することにより、ストランドの切れを色情報のみから 90%以上の確率で検出できることを確認した。これによりデータ全体からストランドの色が正しく測定されている場合のデータを、実画像の確



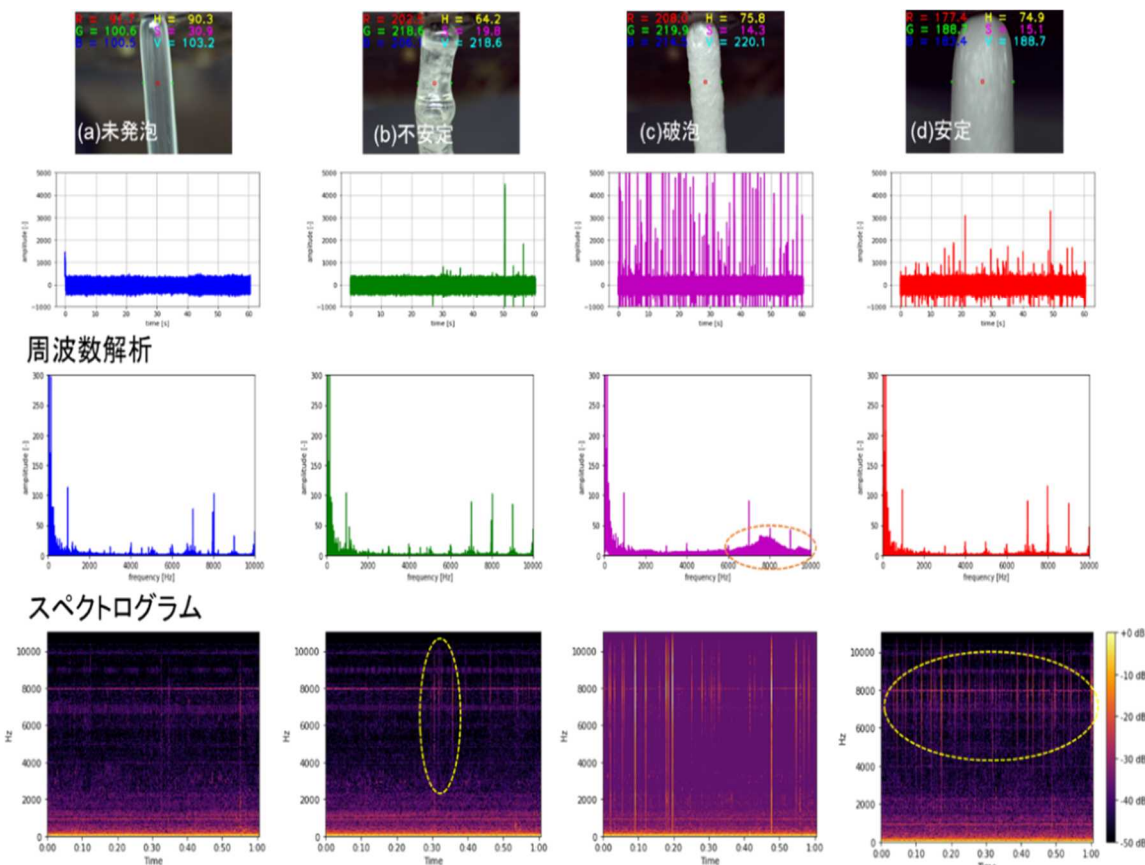


図 3-⑦-3 CO<sub>2</sub>によるPSの発泡時の画像と音の解析例

また、プロセスデータと、画像から得た色調およびストランド幅の相関を図 3-⑦-4 に示す。プロセス操作の過程における不透明化、発泡倍率の増大などが、連続的に検出できていることがわかる。

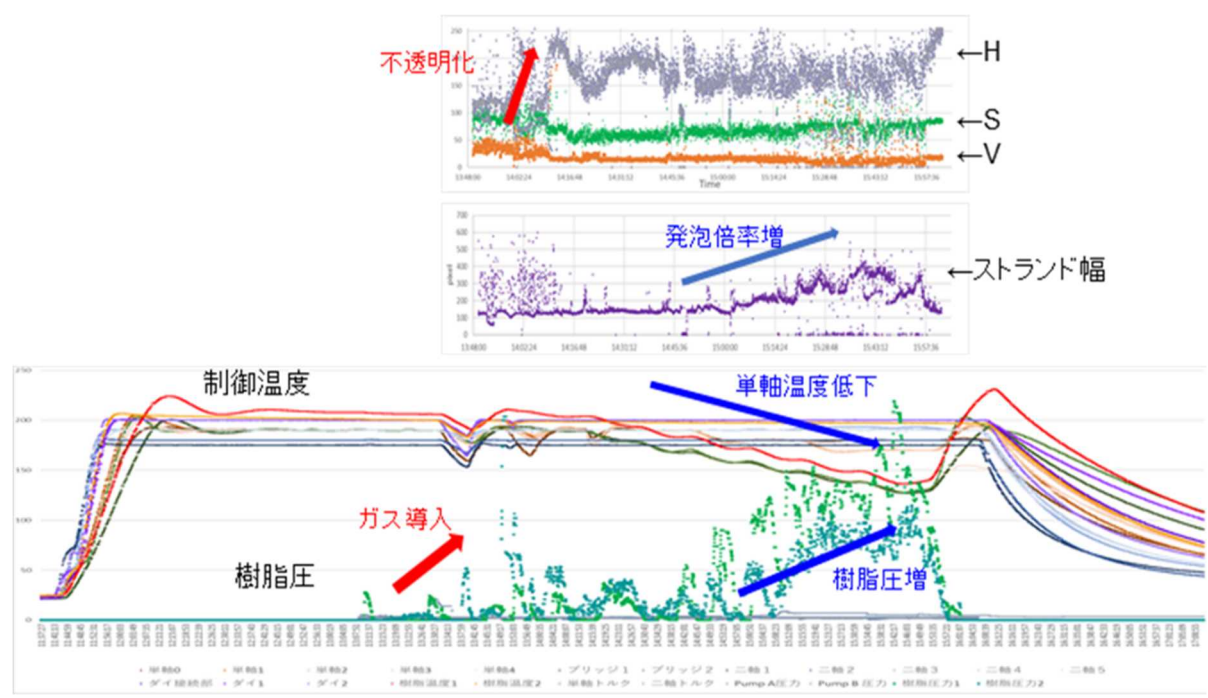


図 3-⑦-4 PS 発泡時のプロセスデータおよび色調(HSV)、ストランド幅の相関例

オンライン、オンサイトでの評価が難しいものとして、ポリマーブレンドやコンポジットの分散構造がある。現状では試料を切断後電子顕微鏡観察する等の手間のかかる手法しかなく、開発のボトルネックとなっている。また、得られる情報が局所的で、全体的、平均的な情報は得にくい。そこで、微粒子等が分散したポリマー内の構造サイズを、非破壊で広域的かつ迅速に評価する手法を開発した。この手法は、ポリマー試料を並進移動させつつレーザー光を照射し、散乱光の強度の時間変化を測定して、その自己相関関数から構造サイズの情報を得るものである。図 3-⑦-5 に原理、装置と、平均径の異なるアルミナ粒子を分散したエポキシ樹脂についての測定結果を示す。得られた相関長は粒子径や粒子間距離を反映して変化し、アルミナ粒子が分散したポリマー内の構造サイズの情報を非破壊で広域的かつ迅速に得ることができた。

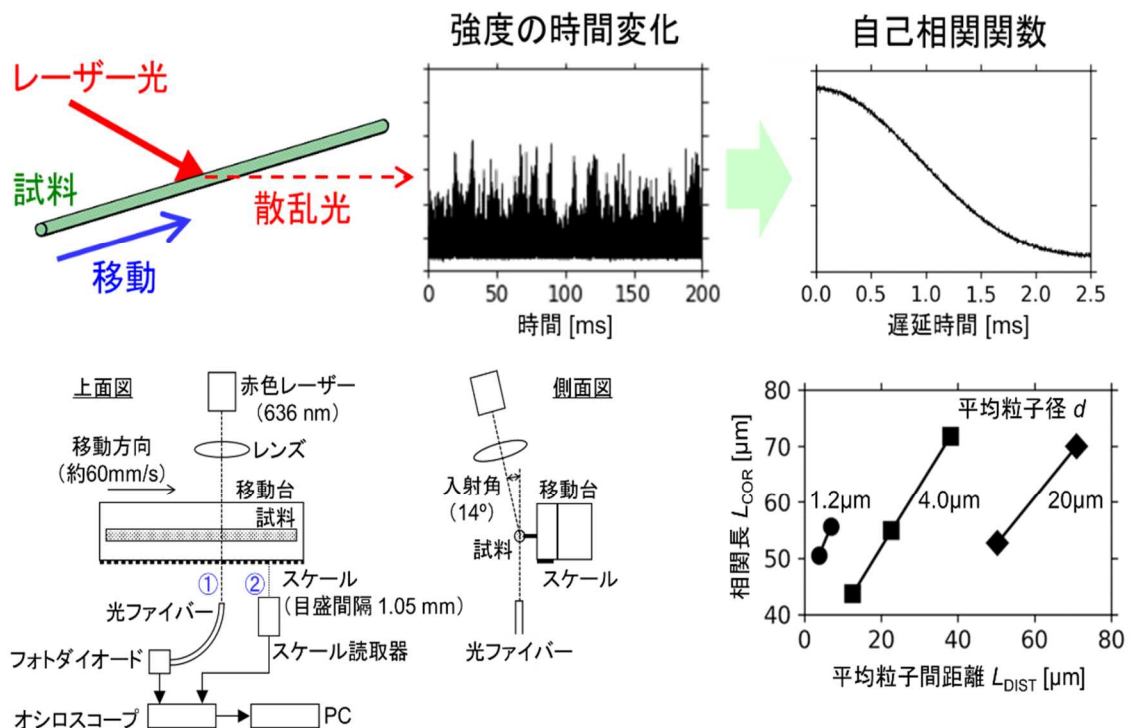


図 3-⑦-5 散乱光強度の時間変化を利用した分散構造の測定

超小型装置群のプロセスデータにポリマーや装置の情報を追加した CSV ファイル、および同時に取得した画像や音声のファイルのセット(図 3-⑦-6)については、機能性高分子 DPF へ収録するためのフォーマットを作製し、代表的な 10 例程度について収録予定である。



### (1) 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 3-⑦-7 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(赤丸は耐溶剤性に劣る組成)。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製を行い、シャルピー衝撃試験等によって耐衝撃性を評価した。試験片作製のため射出成形装置を新たに導入した。図 3-⑦-8 に作製した耐衝撃性試験片と引張測定の実例を示す。

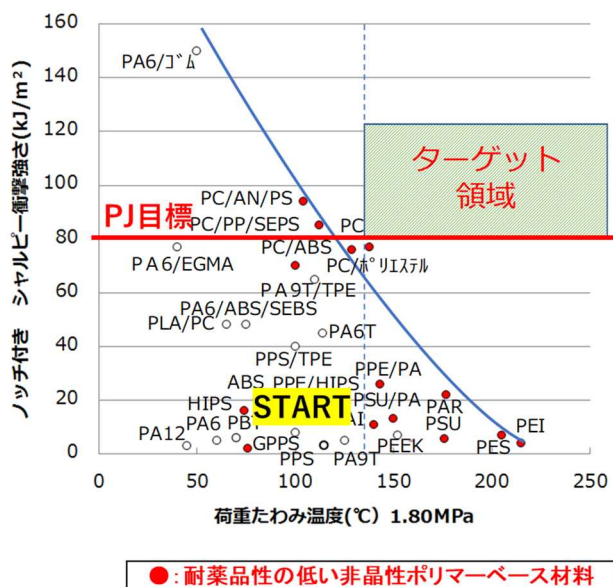


図 3-⑦-7 代表的なポリマーブレンド/アロイの荷重たわみ温度とシャルピー衝撃強さの相関

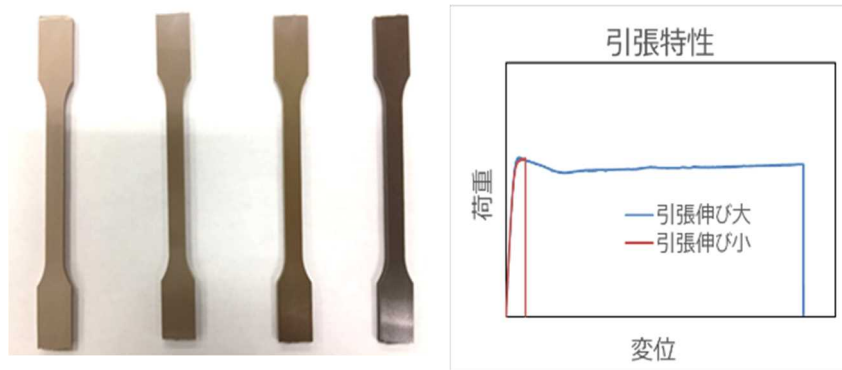


図 3-⑦-8 耐衝撃試験用試験片と引張り特性の測定例

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った。図 3-⑦-9 に装置の概要を示す。

多岐に渡るプロセス変数を効率的に最適化するため、ポリフェニルサルファイド(PPS)にエチレン-グリシジルメタクリレート(EGMA)系エラストマーをブレンドした系について、耐衝撃性の向上を目的変数として、プロセス、組成の最適化のため機械学習の検討を行った。表 3-⑦-4 に



機械学習の変数の概要を示す。

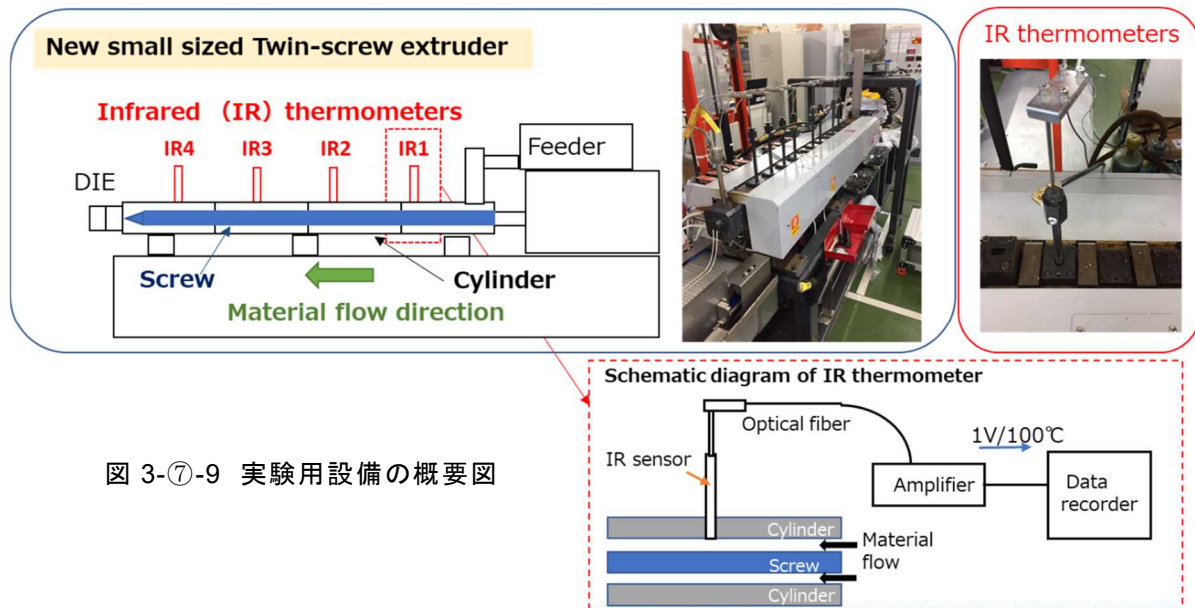


図 3-⑦-9 実験用設備の概要図

表 3-⑦-4 PPS/EGMA ブレンド試作における機械学習の変数の概要  
130条件の異なる PPS/EGMA ブレンド試料を試作評価⇒データセットを作成

パラメータ種	項目	条件範囲
制御変数	X1 エラストマー種	3 水準 GMA・MA変性量の差
	X2 エラストマー配合比率(wt%)	5 水準 2~20wt%
	スクロウ回転数(rpm)	12 水準 150~5000rpm (2000rpm以上は従来装置では不可)
計測変数	押出トルク(A)	なりゆき
	樹脂圧力(MPa)	なりゆき
	樹脂温度(°C) (シリンダー内4ヶ所 IR1~IR4)	なりゆき
パラメータ種	項目	測定条件
物性変数	溶融粘度(Pa・s)	フローテスター
	Xn エラストマー分散径(μm)	SEM画像解析
	y シャルピー衝撃値(kJ/m <sup>2</sup> )	ISO179-1

「シャルピー衝撃値」を目的変数として設定

検討結果の一例を以下に示す。シャルピー衝撃値の決定において重要な因子をランダムフォレストのアルゴリズムを用いて算出した結果を図 3-⑦-10 に示す。エラストマーの分率が高いのは当然として、IR 温度センサー1(IR1)の温度がシャルピー衝撃値の決定において重要な因子となっていることがわかる。図 3-⑦-11 にエラストマー配合量、IR1 温度とシャルピー衝撃値の相関を示す。

ランダムフォレスト回帰分析 Importanceの出力例

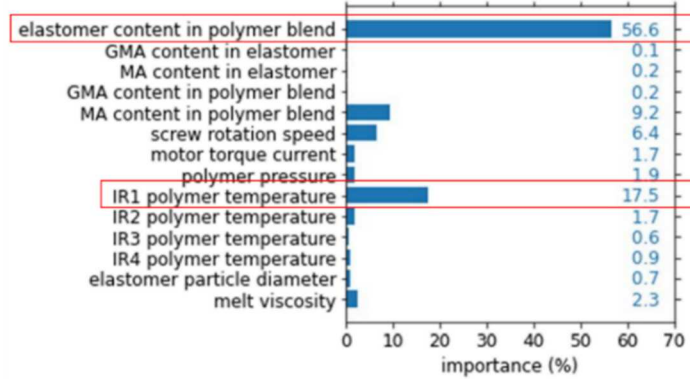


図 3-⑦-10 シャルピー衝撃値を目的変数としたランダムフォレスト回帰分析

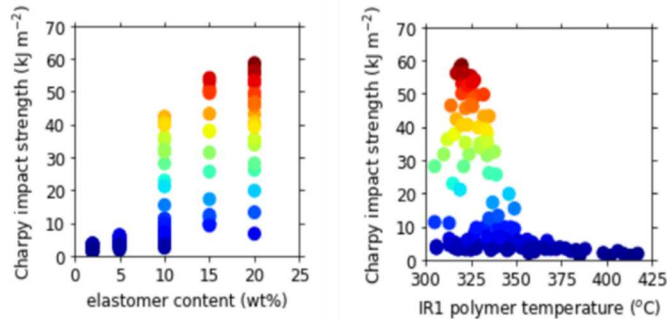


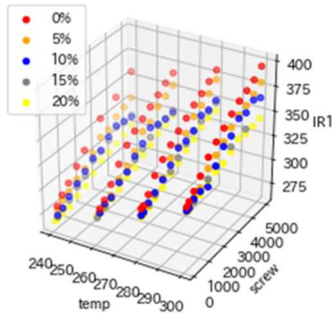
図 3-⑦-11 エラストマー配合量、IR センサー温度とシャルピー衝撃値の相関

混練時の各種プロセス条件について、相互の相関を俯瞰した結果、第 1 主成分とスクリーウ回転数、IR1 温度の相関が高いことがわかった。これらの結果を踏まえて、シャルピー衝撃値の向上を目的としたプロセスの改良を行った。IR1 温度の調整について、シリンダーの設定温度とスクリーウ回転数を制御変数として、その関係をプロットした結果、およびその結果をサポートベクトルマシン(SVM)で回帰分析した結果を図 3-⑦-12 に示す。回帰分析の結果を用いることで、シリンダーの設定温度と回転数で IR1 を予測して制御できることがわかる。すなわち、解析結果は IR1 のソフトセンサーとして応用可能である。

樹脂温度と制御変数（シリンダー設定温度・スクリーウ回転数）の関係

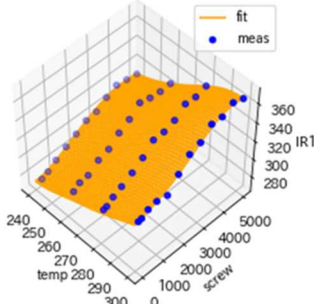
IR1 温度(°C)を、シリンダー設定温度(°C)とスクリーウ回転数(rpm)に対してプロット  
エラストマー配合比率により色分け

エラストマー配合量



IR1温度はシリンダー設定温度とスクリーウ回転数の関数

SVM 回帰分析結果  
エラストマー配合量：10%



バレル温度の制御でなりゆきのIR1温度を制御  
⇒ソフトセンサーとしての応用

図 3-⑦-12 樹脂温度と制御変数の関係とそのサポートベクトル回帰

この結果を踏まえて、シリンダーの設定温度を、樹脂温度が最適ゾーンとなるように調整し、回転数とシャルピー衝撃値の相関を検討した結果を図 3-⑦-13 に示す。調整後の条件でもっとも高いシャルピー衝撃値が得られていることがわかる。以上より、機械学習を用いた解析にて、適切な操作条件を予測し、実際に性能の高い材料が得られる、という一連の開発プロセスを実証することができた。図 3-⑦-14 にシャルピー衝撃値を指標としたプロジェクト目標の達成状況を示す。耐衝撃性向上に大きく寄与する押し出し条件を特定し、シャルピー衝撃値で 76~87kJ/m<sup>2</sup>と、開発目標を超える耐衝撃性を持つ材料を開発した。

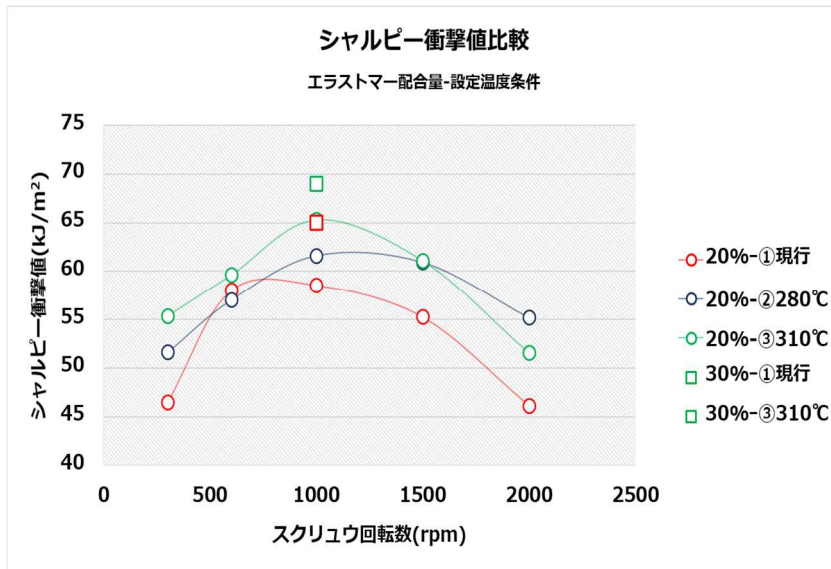


図 3-⑦-13 予測した条件におけるスクリー回転数とシャルピー衝撃値の相関

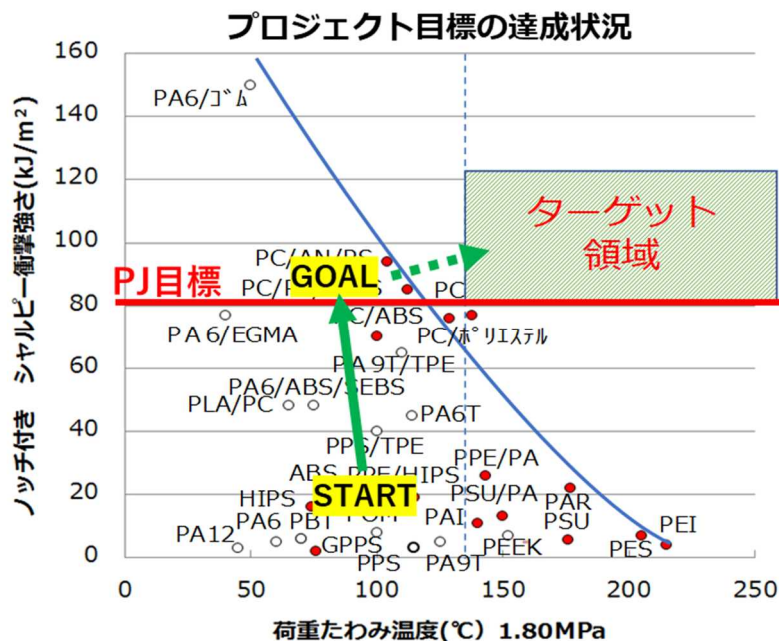


図 3-⑦-14 耐衝撃値を指標としたプロジェクト目標の達成状況

分光計測評価を活用した開発期間短縮についても検討を行った。混練中の熱劣化について、熱反応による蛍光物質の生成や結晶性の低下をラマンスペクトルで検出した例を図 3-⑦-15 に示す。生成物をオンサイトのラマンスペクトルで簡便に評価する手法を開発した。

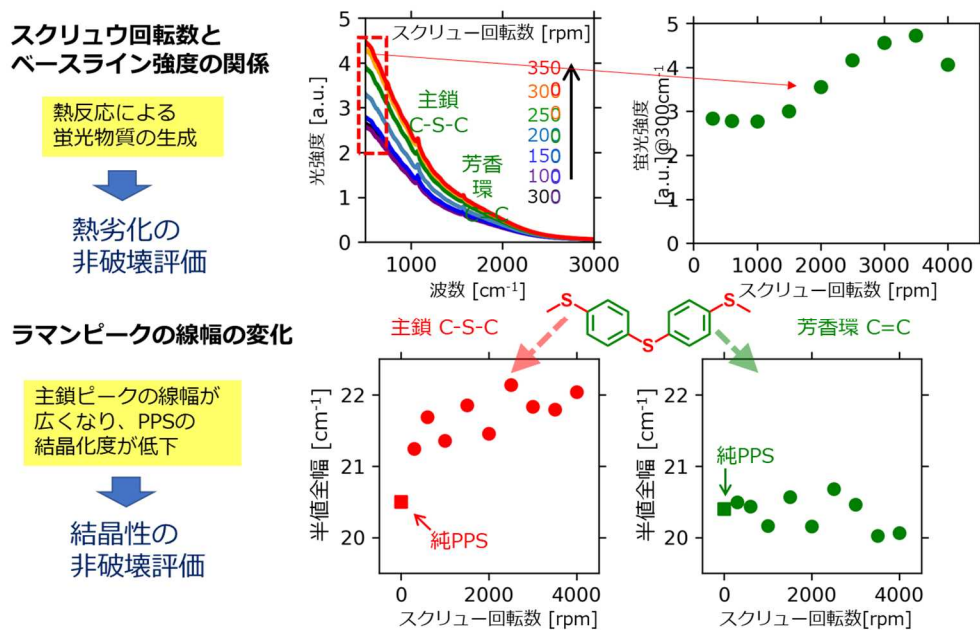


図 3-⑦-15 ラマンスペクトルによる PPS 樹脂の熱劣化の検出

また、PPS に分散したエラストマーの分散径を、近赤外拡散反射を用いて、非破壊で迅速に評価する手法を開発した(図 3-⑦-16)。従来は割断した試料を溶媒でエッチング後、SEM 観察等で評価する手法で行っており、処理に長時間を要していた。開発した手法により評価したエラストマーの分散径は、従来法の評価値と一致しており、評価法として有効なことがわかった。

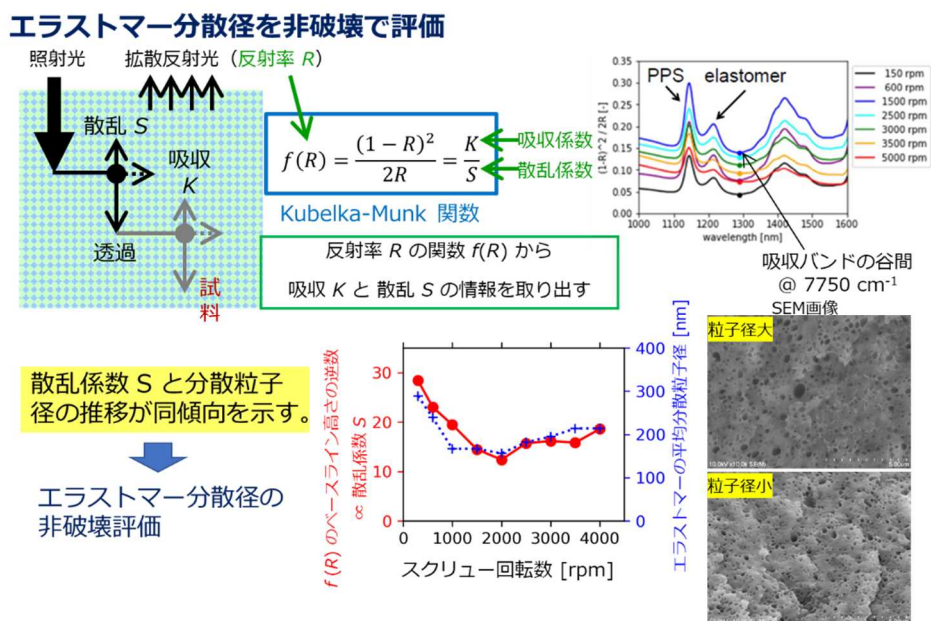


図 3-⑦-16 近赤外拡散反射計測によるエラストマー分散径の非破壊評価

以上の結果を踏まえて、本プロジェクトにおける、開発期間短縮の効果を推定した。結果を以下に示す。データセット作製の条件水準に依存するが、従来方式に比べて開発期間は 1/8 から 1/32 に短縮できる見込みとなった(図 3-⑦-17)。開発期間短縮の概略を図 3-⑦-18 に示す。なお本テーマの特性から、計算は工数を考慮した推算で行った(末尾に記載)。

**$T_p/T_t = 1/8 \sim 1/32$  (データセットの条件水準により変動)**

開発の流れ(従来の方式と超超プロジェクトで開発した方式(以降超々方式)の比較)



図 3-⑦-17 本プロジェクトの成果によるポリマーブレンド開発の研究期間短縮効果

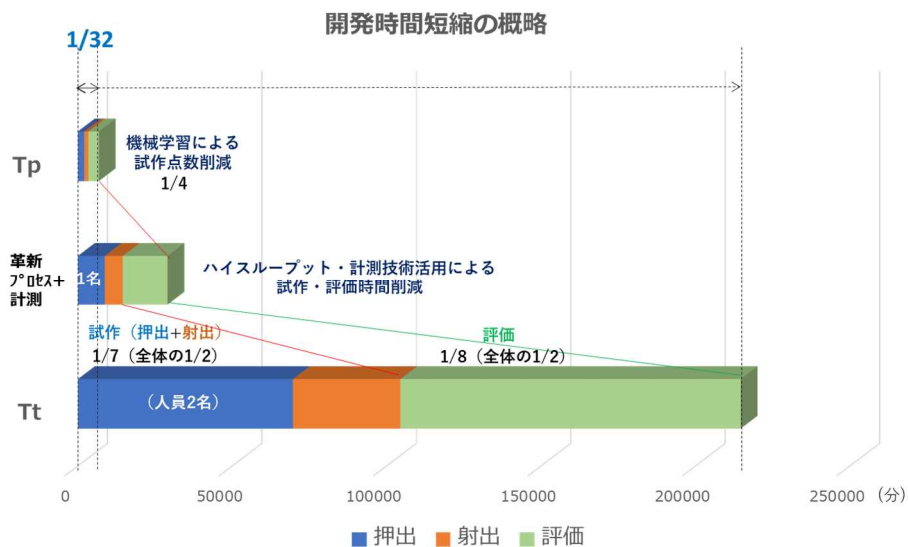


図 3-⑦-18 本プロジェクトによる開発期間短縮の概略

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は事業内容③-2 で行われる機能性高分子 DPF に収録するシミュレータ開発に提供した。またプロセスデータについて図 3-⑦-6 の CSV ファイルの様式によるデータセット 10 件を DPF に収納した。

## (2) 発泡ポリマー

本項目では環境調和型の二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)を発泡ガスに用い、高い空隙率と微細な気泡径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光透過性断熱材などを目的として、世界的な開発ターゲットとなっている。図 3-⑦-19 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。

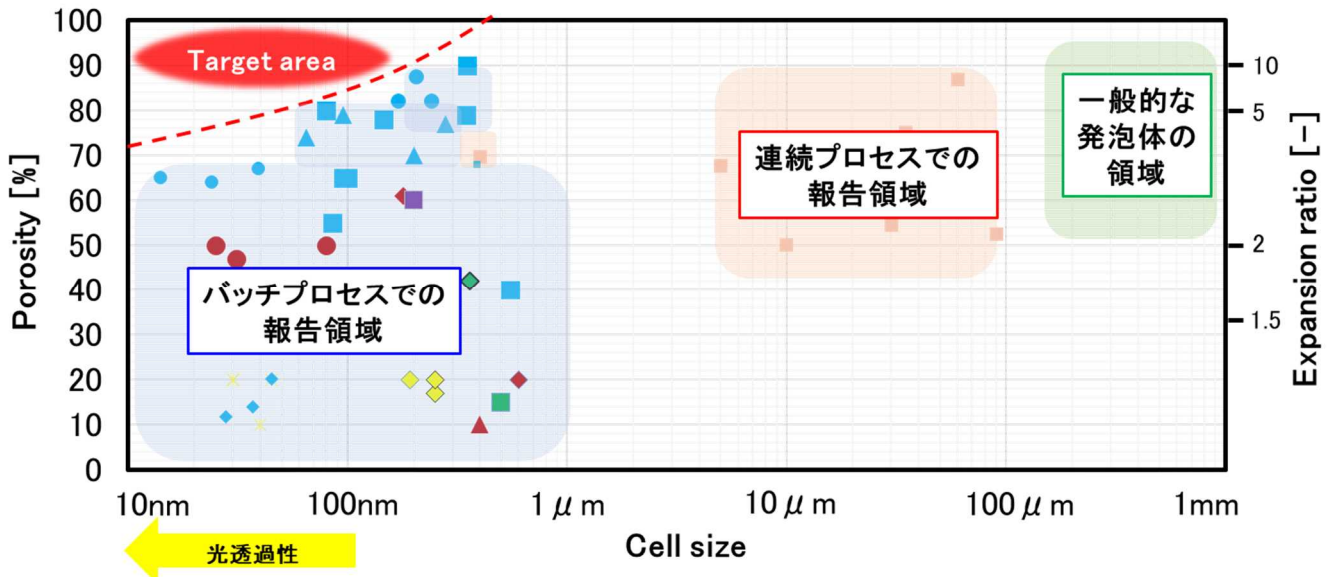


図 3-⑦-19 気泡径と空隙率を指標とした発泡ポリマーの開発マップ

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 からの二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)による発泡試験を安全に行うための改造を 2019 年までに行った。図 3-⑦-20 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)での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 3-⑦-21 に作製した発泡体の微細構造の一例を示す。

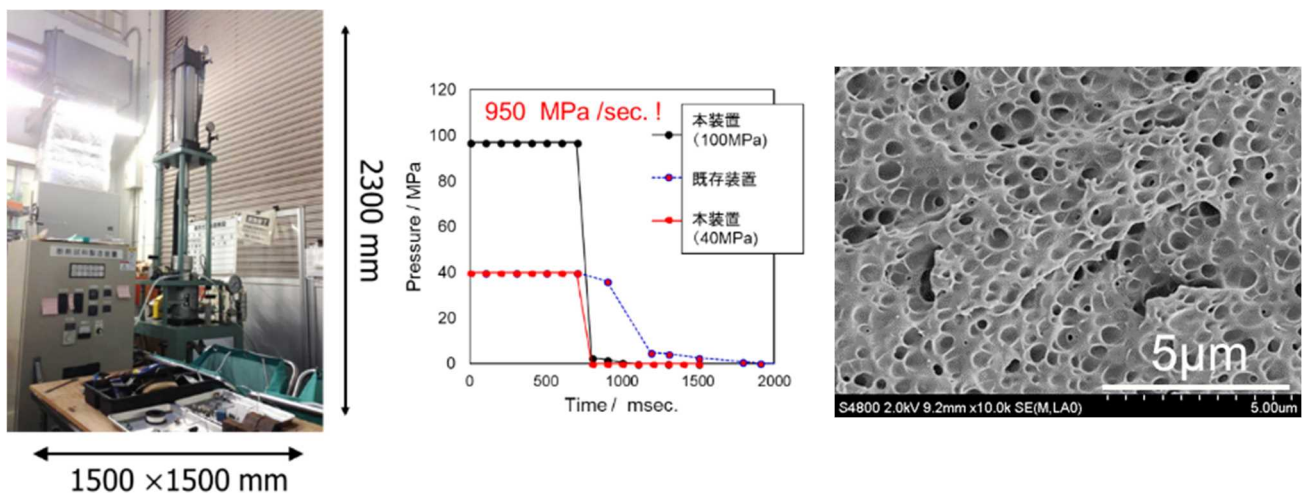


図 3-⑦-20 バッチ発泡用の装置写真および減圧速度の測定

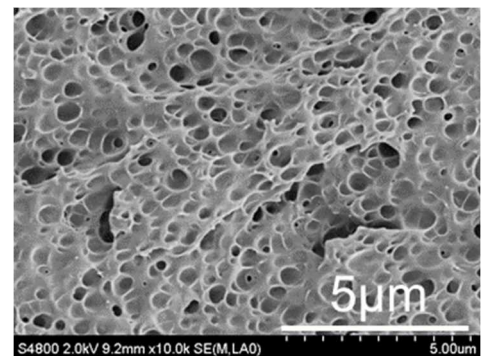


図 3-⑦-21 バッチ発泡で作製した PMMA 発泡体の微細構造の例

検討の結果、100MPa では高い CO<sub>2</sub> の溶解度は得られるものの、この圧力領域では減圧時にジュールトムソン効果による温度変化がプラスとなり、ポリマーの温度低下に時間がかかることが分かった。図 3-⑦-22 に概要を示す。温度変化が緩やかだと、ガラス転移温度以下になるのに時間を要し、この間気泡が成長してしまうため、急減圧の効果が相殺されることになる。そこで核生成と気泡成長を分割して制御するため、流動性のないガラス状態の温度条件でガスを溶解させ、ガラス転移点以上の温度とすることで発泡を起こす 2 段発泡法を適用した。1 段発泡と 2 段発泡の微細構造の比較結果を図 3-⑦-23 に示す。2 段発泡では 1 段発泡の 1/6 の気泡径、約 50nm となり、光透過性を示した。発泡倍率は 2.1 倍であった。

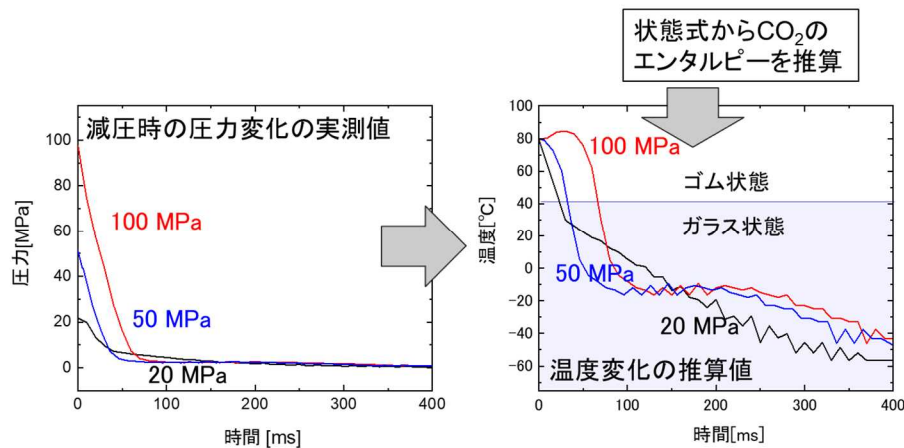


図 3-⑦-22 バッチ発泡の際の容器内の圧力変化(実測値)および温度変化(推算値)

	1段発泡	2段発泡
圧力	100 MPa	100 MPa
減圧速度	2 GPa/s	1.8 GPa/s
温度	80 °C	20°C(溶解)→50°C(発泡)
SEM画像		
平均細孔径	0.28 ± 0.10 μm	0.049 ± 0.012 μm








図 3-⑦-23 1 段発泡および 2 段発泡で作製した PMMA 微細発泡体の比較

光透過性の断熱材料を目指すためには、発泡倍率が十分ではなく、ポリマーへのガス溶解量を増大する必要があるが、CO<sub>2</sub> の場合すでに装置の制約が大きく、これ以上の実用的な高圧化は難しい。そこで、ポリマーに対する溶解度の大きな冷媒系のガスに着目した。最近、地球温暖化への影響が少ないハイドロフルオロオレフィン類(HFO)が開発されており、これの利用が考えられるが、HFO はポリマーへの溶解度や物性に関する知見がまだ不足している。そのため、規制対象のフロンではあるが、既往のデータが多い HCFC-22 をモデルとし、HFO の 1 種である HFO-1234ze(E)と合わせて検討を行った。図 3-⑦-24 にガスの化学構造と、ポリマーに対する溶解度の例を示す。HCFC-22 のデータより、これらのガスのみでは可塑性が進みすぎて発泡に適さないこと、また、高圧条件下での分解挙動が不明なことから、CO<sub>2</sub> との混合系での

発泡実験を行った。

ガス		
CO <sub>2</sub>	99.99995 % purity Iwatani Corp. (Japan)	
HCFC-22 (chlorodifluoromethane)	99.9 % purity Takachiho Chemical Industrial Co., Ltd (Japan)	
HFO-1234ze(E) (trans-1,3,3,3- tetrafluoropropene)	Solstice®ze Honeywell International Inc. (Charlotte, USA)	

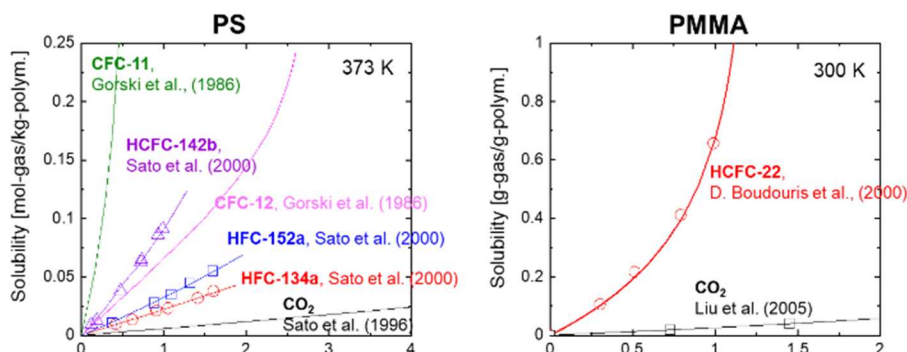


図 3-⑦-24 発泡ガスの化学構造と、ポリマーに対する溶解度の例

CO<sub>2</sub>-(HCFC-22)混合系のバッチ発泡(80°C、40MPa)で作製した PMMA 発泡体の空隙率および平均気泡径に及ぼす HCFC-22、HFO-1234ze(E)の分率の影響を図 3-⑦-25 に示す。添加により空隙率がいったん減少した後に増大する傾向が共通して見られた。HCFC-22 を添加した場合は気泡径の増加に伴い空隙率が増加するのに対し、HFO-1234ze(E)を添加した場合は気泡径がほぼ一定のまま空隙率が増加した。

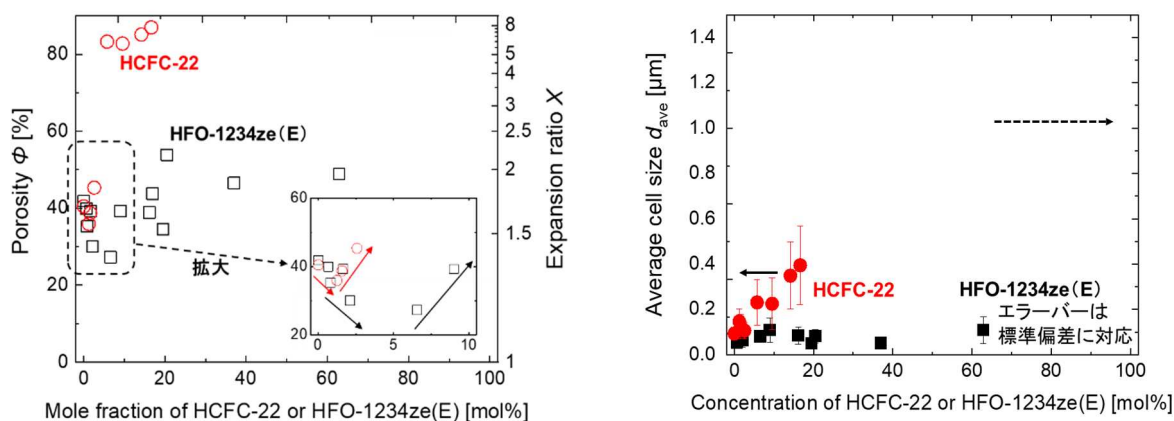


図 3-⑦-25 PMMA 発泡体の空隙率および平均気泡径に及ぼす HCFC-22、HFO-1234ze(E) の分率の影響



電子顕微鏡像より求めた気泡数密度と HFO-1234ze(E)の分率の相関を図 3-⑦-26 に示す。気泡核生成密度の極大を示すガス組成が存在するが、これは可塑化がある程度進むまでは核生成が促進され、過剰に可塑化されると気泡の合一が増加するためと考えられる。

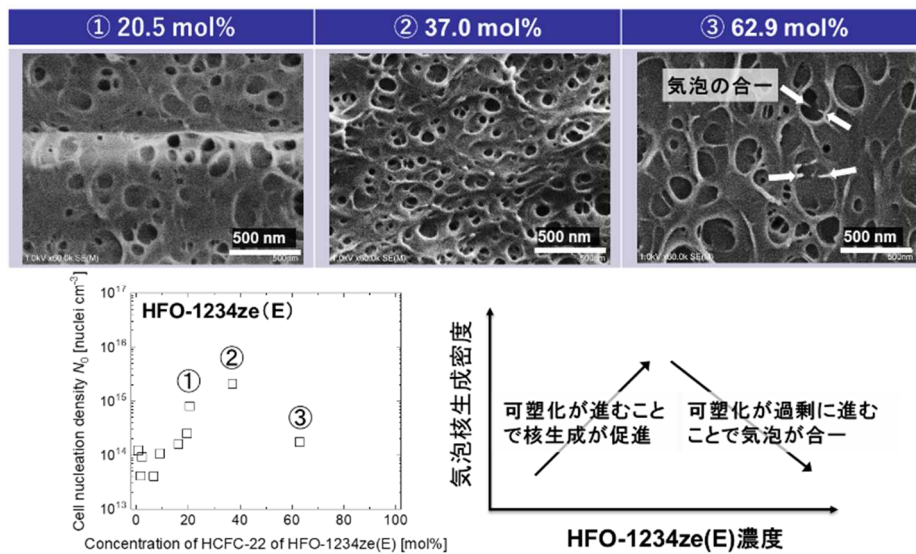


図 3-⑦-26 気泡数密度と HFO-1234ze(E) の分率の相関

また、ポリマー内部の粗大気泡が HCFC-22、HFO-1234ze(E)の添加量増大と共に減少して、構造が全体的に均質になることが確認された(図 3-⑦-27)。これは、HCFC-22、HFO-1234ze(E)ポリマーのネットワークが膨潤し、減圧の際に分子量の小さい  $\text{CO}_2$  が抜けやすくなることで、表面近傍のガラス化と内部へのガス残存がともに少なくなり、均質な構造になったものと考えられる。

#### CO<sub>2</sub> + HFO-1234ze(E)混合系

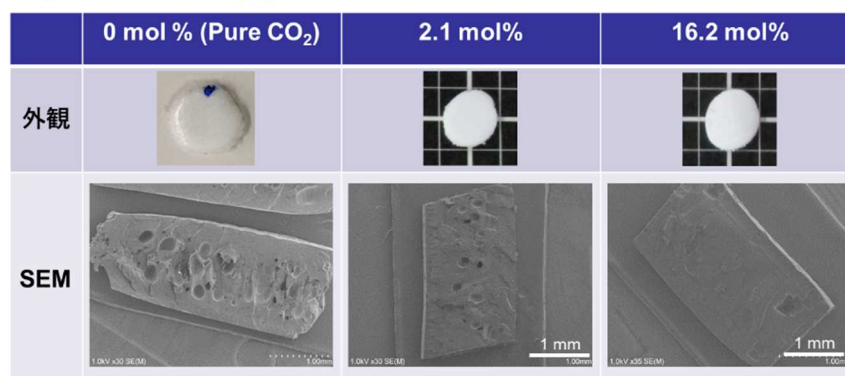


図 3-⑦-27 CO<sub>2</sub>-HFO-1234ze(E)混合系における粗発泡の減少

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⑪-2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、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⑪-2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。2019年度までに平均気泡径5 $\mu\text{m}$ 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た。図3-⑦-28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。その後さらに改良を進め、シミュレーションにより選定した核材を添加することで、最終的に空隙率75%、平均気泡径700nmの発泡ポリマーを連続製造することに成功した(後述)。

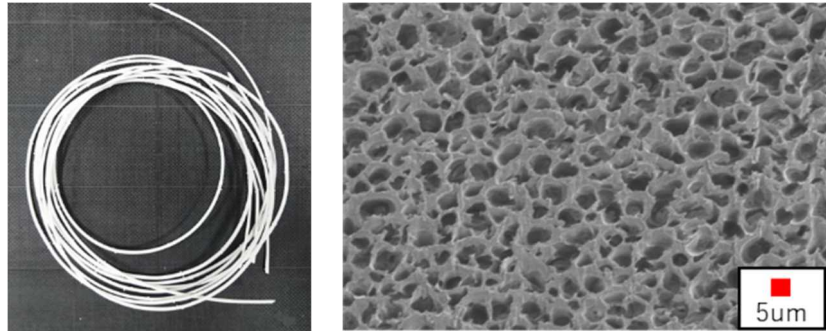


図 3-⑦-28 連続製造により作製した発泡体とその微細構造の例

計算科学を活用した開発の例として、微細な発泡体を得るための、発泡核材の開発について検討を行った。核材は、発泡の微細化に有効な添加物であるが、その開発は試行錯誤的であり、時間を要していた。本研究では、事業内容③-2と連携して行った粗視化MDによる発泡シミュレーションの結果(図3-⑦-29)から、ポリマーと核材の親和性が微細化に有効である可能性が見いだされており、この観点に基づいた核材開発を行った。

計算科学を活用した開発の例として、微細な発泡体を得るための、発泡核材の開発について検討を行った。核材は、発泡の微細化に有効な添加物であるが、その開発は試行錯誤的であり、時間を要していた。本研究では、事業内容③-2と連携して行った粗視化MDによる発泡シミュレーションの結果(図3-⑦-29)から、ポリマーと核材の親和性が微細化に有効である可能性が見いだされており、この観点に基づいた核材開発を行った。

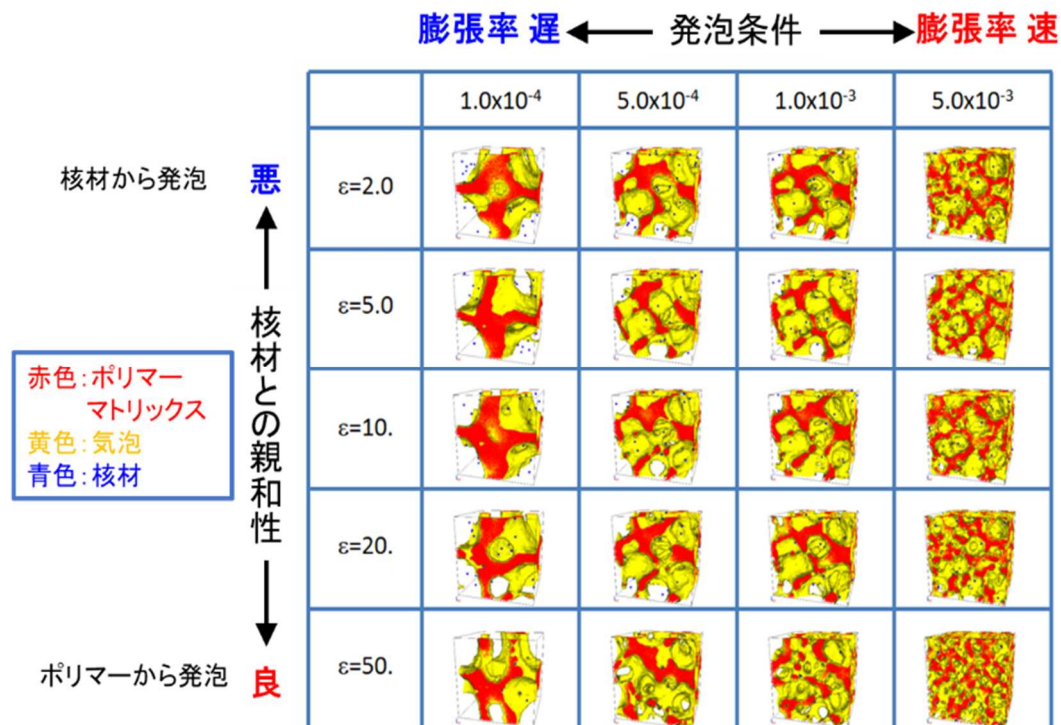


図 3-⑦-29 ポリマーと核材の親和性、膨張速度をパラメータとした発泡構造のシミュレーション例

核材とポリマーの相互作用を推定するため、事業内容③-2 との連携により、核材表面とポリマーとの相互作用を、量子化学計算と古典分子動力学計算により評価し、その相互作用から核材とポリマーに働く応力を算出して比較した。図 3-⑦-30 に核材種表面とポリマー分子(オリゴマー)の MD 計算のスナップショットの例と、相互の距離と応力の計算例を、図 3-⑦-31 に金属、金属酸化物などの化学種表面からポリマー分子を引きはがす場合の応力積分値の比較例を示す。なお、これらのデータの一部は DPF に収録した。

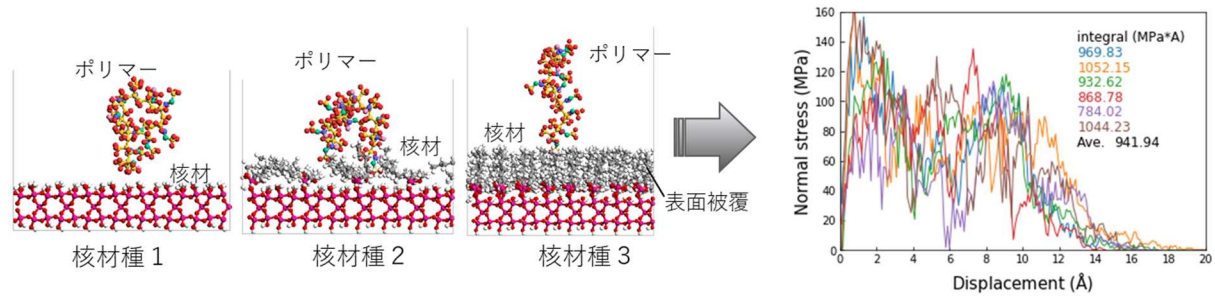


図 3-⑦-30 核材種表面とポリマー分子(オリゴマー)の MD 計算のスナップショットと、相互の距離と応力の計算例

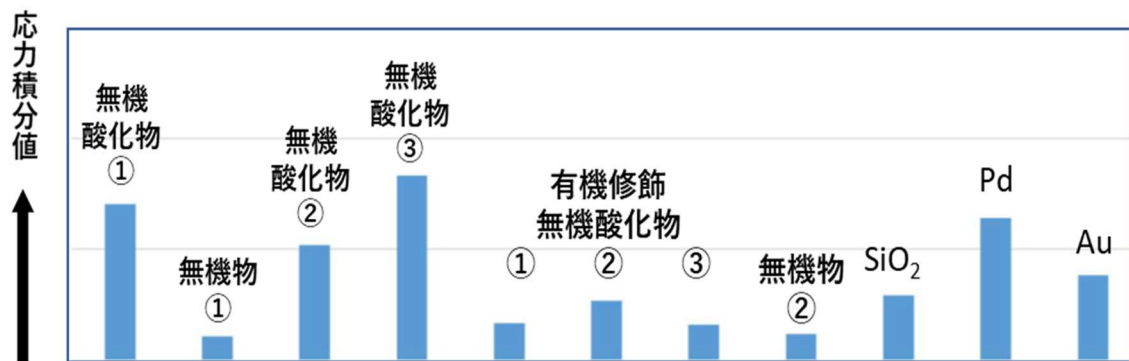


図 3-⑦-31 核材種表面からポリマー分子を引きはがす場合の応力積分値の比較例

いくつかの試料については実際に発泡試料の作製まで含めた検討を行った。錯体含浸法で Pd ナノ粒子を高分散添加した系では、錯体の配位子の影響により分子量の調整は困難であったが、未修飾のシリカを核材として添加した系に比べ、微細で均質な発泡構造を確認した。

また、表面修飾シリカ系の核材については、異なる 2 種類の有機基で修飾したシリカについて、上記の手法で応力値を計算したところ、部分的に修飾したシリカで、核材表面にポリマー分子が引っかかるような場合に、応力積分値が高くなり、応力が極大になる修飾率がある可能性が見いだされた(図 3-⑦-32, 33)。

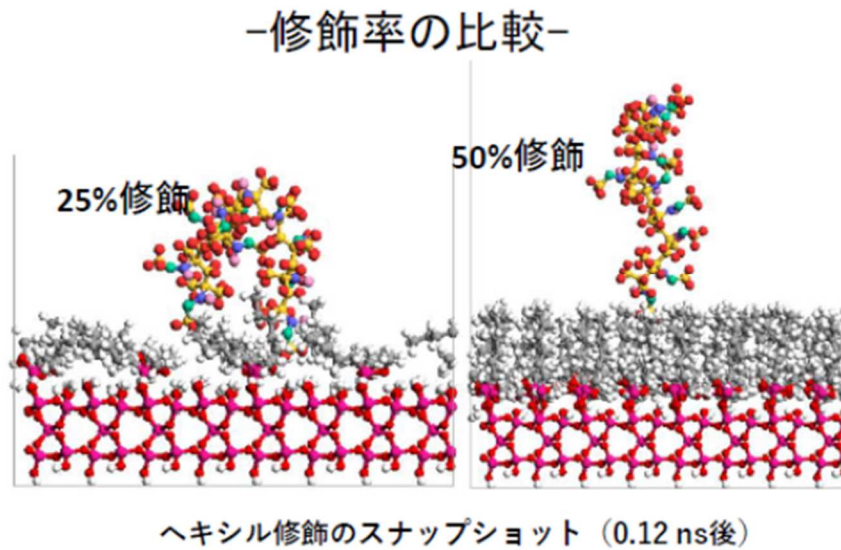


図 3-⑦-32 部分的に表面を修飾したシリカから PMMA 分子を引きはがす際の MD 計算のスナップショットの例

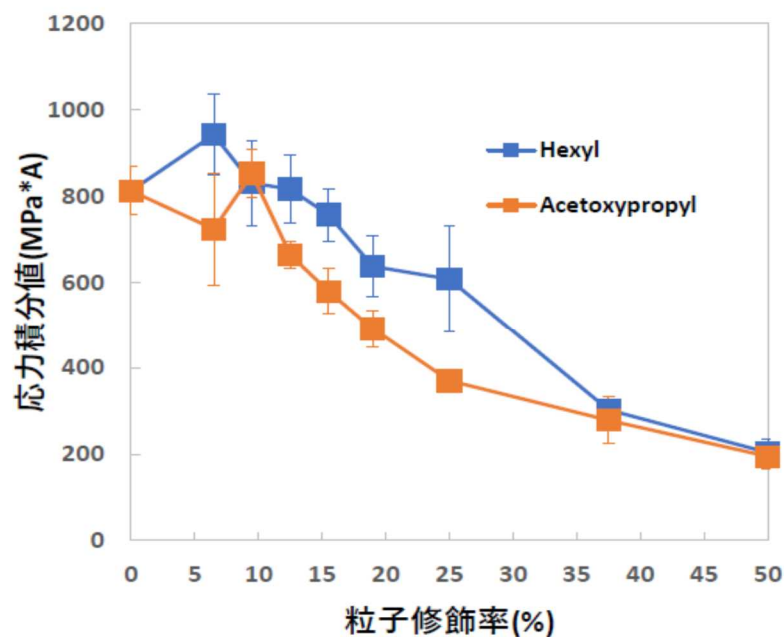


図 3-⑦-33 シリカ粒子の有機基による表面修飾率と計算による引きはがし応力積分値の相関

実際にシランカップリング剤でシリカ粒子表面の修飾率が異なるシリカナノ粒子を作製し、これをポリマーに混合して、CO<sub>2</sub> によるバッチ発泡を行い、SEM 写真による気泡径の比較を行った。計算上、応力が大きい修飾率のシリカ粒子を用いた場合、平均気泡径が小さく、また気泡数密度が大きくなる傾向がみられた(図 3-⑦-34)。シリカ粒子の分散状態の影響も含んではいないが、計算結果と矛盾せず、定性的に一致した結果が得られることを実証した。

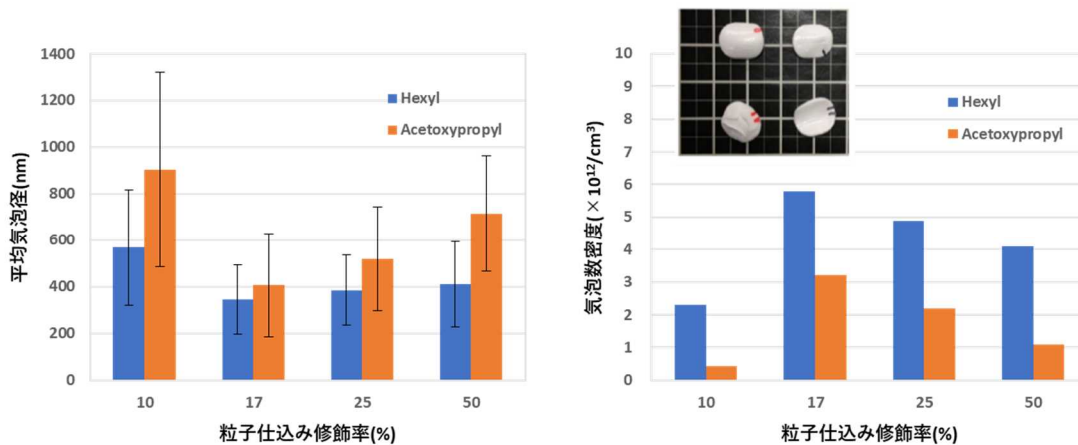


図 3-⑦-34 表面修飾したシリカ粒子の表面修飾率(仕込み)と平均気泡径、および気泡数密度の相関

開発したシリカ核材を前述の押出成形プロセスに導入して、発泡微細化の検討を行った。最適化の結果、連続プロセスにおいて世界トップレベルの微細発泡体(気泡径約 700nm, 空隙率 75%)の作製に成功した。図 3-⑦-35 に連続製造プロセスで製造した発泡体の本プロジェクトにおける進捗と合わせて示す。

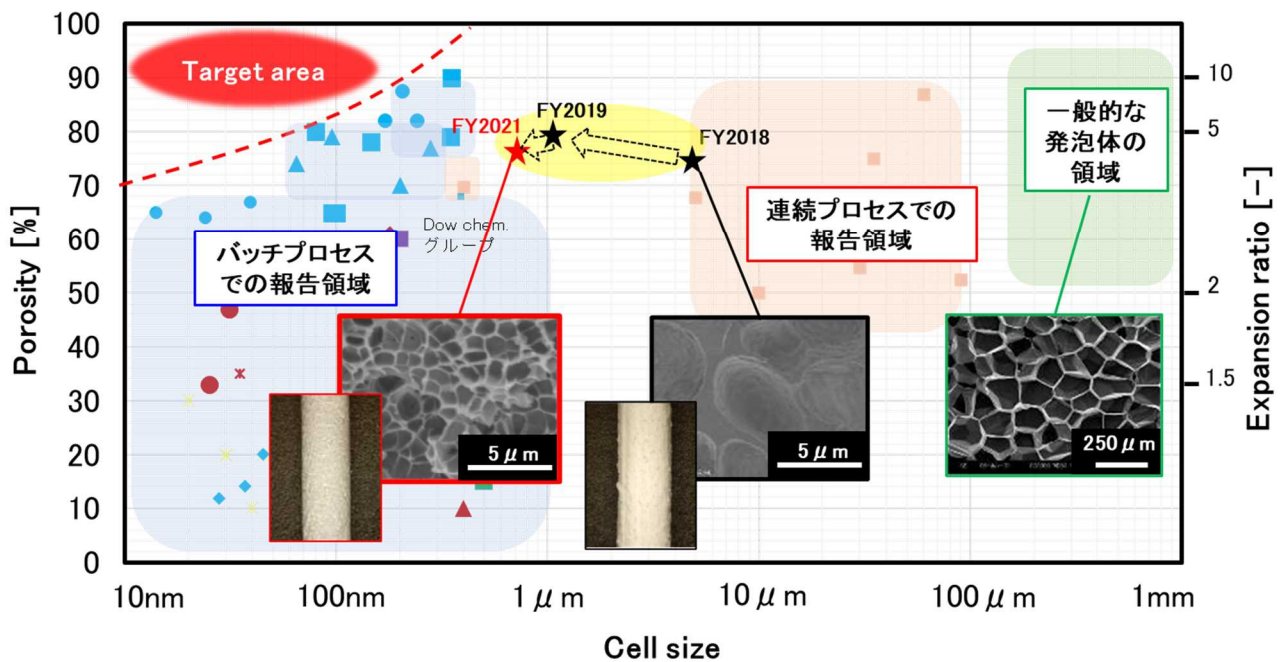


図 3-⑦-35 核材を使用して連続製造により作製した PMMA 発泡体の平均気泡径と空隙率の相関、および本プロジェクトにおける連続製造プロセスの進捗

以上の開発結果を踏まえて、新規発泡材料開発における、開発期間短縮の効果を検証した。図 3-⑦-36 に従来方式と本プロジェクト(超々方式)による開発期間の比較例を示す。核材の絞り込みを計算科学で行い、小型発泡押出装置の使用により時間、工数を減らし、オンライン評価や X 線 CT(事業内容⑩)などの計測技術を活用することでプロセスのみで約 1/5、全

体で約 1/10、試作サイクルと工数で比較した場合に約 1/20 の試作高速化が可能であることが見込まれる。図 3-⑦-37 に本 PJ によるプロセス部分の開発期間短縮の概要を示す。

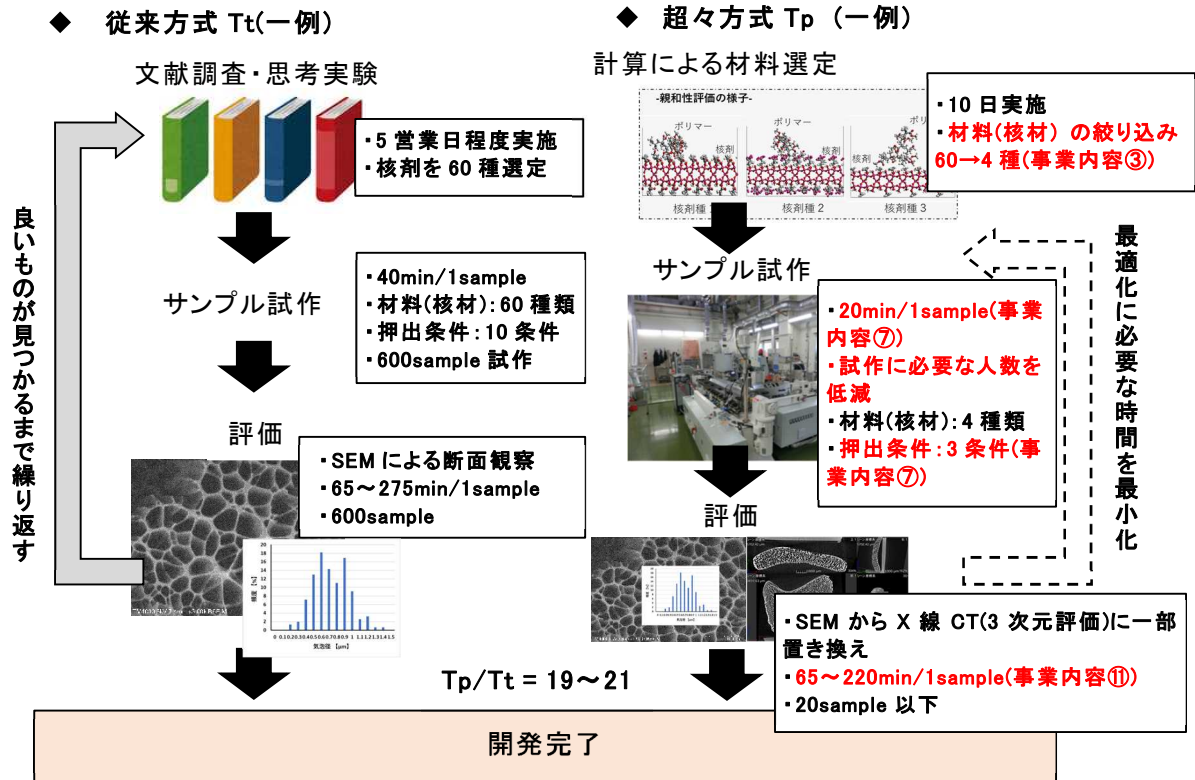


図 3-⑦-36 従来方式と本プロジェクト(超々方式)による開発期間の比較例

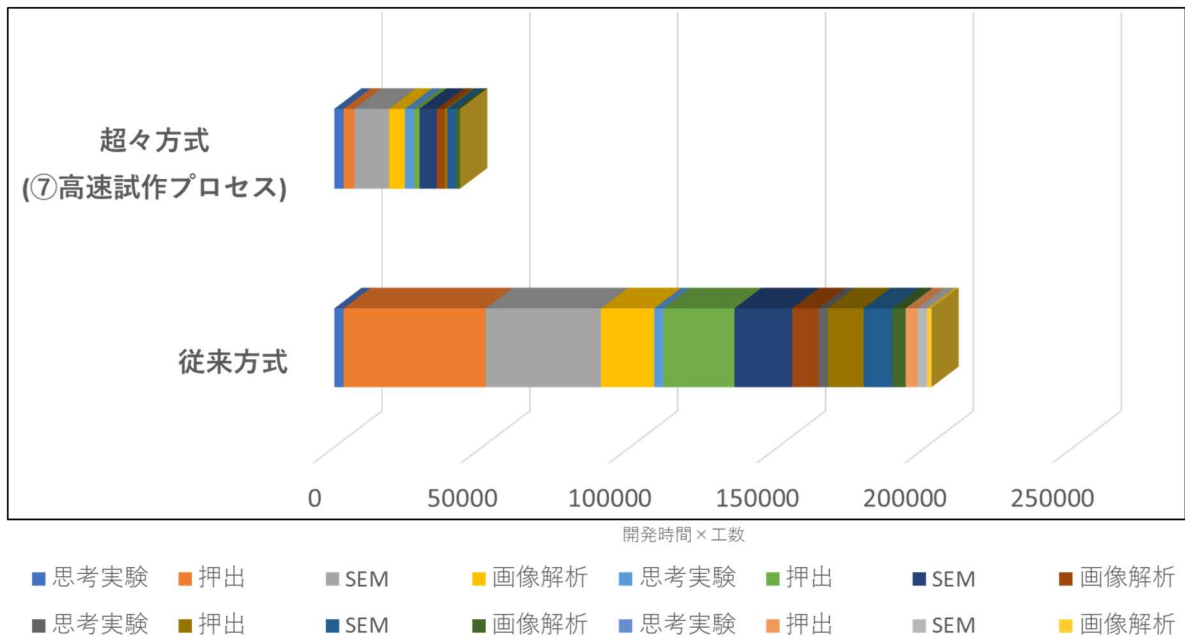


図 3-⑦-37 本 PJ によるプロセス部分の開発期間短縮の概略

付記 ポリマープロセスにおける開発期間短縮の算出について

プロジェクト共通の開発期間短縮の計算式は下記の通りである。

$$T_t = \{K_1 + N_1 T_1\} + \{K_2 + (N_1 N_2) T_2\} + \dots + \{K_n + (N_1 N_2 \dots N_n) T_n\} \quad (\text{式 3-⑦-1})$$

$$T_p = \{S_1 + (N_1^* P_1)(T_1 R_1)\} + \{S_2 + (N_1^* P_1)(N_2^* P_2)(T_2 R_2)\} + \dots \\ + \{S_n + (N_1^* P_1)(N_2^* P_2) \dots (N_n^* P_n)(T_n R_n)\} \quad (\text{式 3-⑦-2})$$

本項目では上記の式での計算が十分実態を反映していないと考え、下記の拡張式を提案した。具体的には、

- $T_t$ ,  $T_p$  の単位を所要期間(日)ではなく、工数(人・日)とする。
- (合成→混合→成形→評価)のようなサイクルを、複数回回すタイプの製造プロセスに対応させる。

このため、工程の実験に必要なとなる人数を考慮した。

$$T_t = \sum_{k=1}^m [\{K_1 + N_1 T_1 W_1\} + \{K_2 + (N_1 N_2) T_2 W_2\} + \dots + \{K_n + (N_1 N_2 \dots N_n) T_n W_n\}]_k \quad (\text{式 3-⑦-3})$$

$$T_p = \sum_{k=1}^m [\{S_1 + (N_1^* P_1)(T_1 W_1 R_1)\} + \{S_2 + (N_1^* P_1)(N_2^* P_2)(T_2 W_2 R_2)\} + \dots \\ + \{S_n + (N_1^* P_1)(N_2^* P_2) \dots (N_n^* P_n)(T_n W_n R_n)\}]_k \quad (\text{式 3-⑦-4})$$

ここで、 $W_i$  は各工程の実験に必要なとなる人数である。

本項目における試作高速化の計算は、この式を用いて行った。

## 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の設計を行う。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。

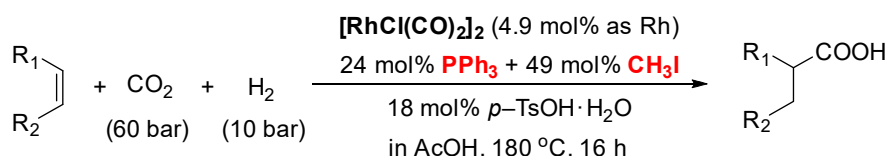
- (1)CO<sub>2</sub>を利用する機能性化学品製造
- (2)金属ナノ粒子コアシェル触媒の合成
- (3)天然資源を利用したゴム材料への変換
- (4)構造を制御した機能性樹脂の合成技術

2021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。

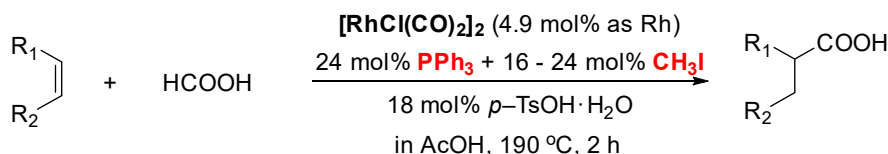
### ■研究開発の成果

#### (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> または、近年 CO<sub>2</sub> と H<sub>2</sub> から合成可能になりつつあるギ酸 (HCOOH) 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。



W. Leitner et. al., Angew. Chem. Int. Ed., 2013, 52, 12119.



J.-P. Simonato, J. Mol. Catal. A Chem., 2003, 197, 61.

図 3-⑧-1 CO<sub>2</sub> または HCOOH を原料とするカルボン酸合成

高機能分子触媒と高効率な反応の設計(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することで、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た。これにより、触媒反応機構の解析系を構築することに成功し、(固定化)触媒及びフロー合成反応の設計が可能となった。

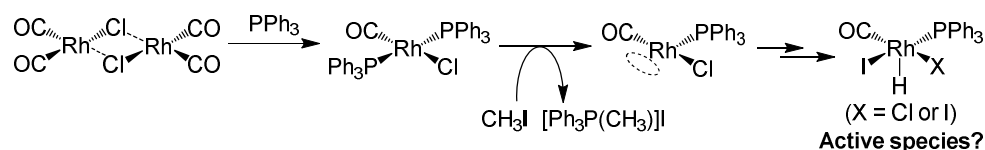


図 3-⑧-2 プロモーターの役割と触媒活性種の生成過程

フロー合成反応の設計では、構築した解析系を使用し、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、HCOOH をカルボニル化剤として使用することで、シクロヘキサンの副生を抑制し、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。この結果から、本反応は前段で CO<sub>2</sub>/H<sub>2</sub> から HCOOH または CO/H<sub>2</sub>O へ変換し、後段で、アルケンのヒドロキシカルボニル化を行う直列二段のフロー合成プロセスにすることで、水素化による副生成物を抑制しつつ、カルボン酸が高収率で得られるプロセスとなる(図 3-⑧-3)。

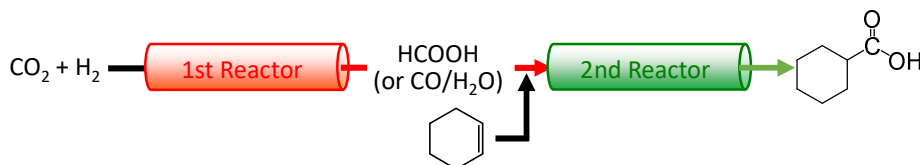


図 3-⑧-3 フロー合成プロセスの設計の一例

次に、フロー合成プロセスの課題を明らかにする目的で、解明された触媒活性種の生成過程に基づき、[RhCl(CO)<sub>2</sub>]<sub>2</sub>を原料する固定化触媒の合成と、固定化触媒を使用したフロー合成法によるカルボン酸合成を検討した。その結果、P 系配位子を有する SiO<sub>2</sub> 系固定化担体を使用する Rh 系固定化触媒の合成に見込みを立てることができた。

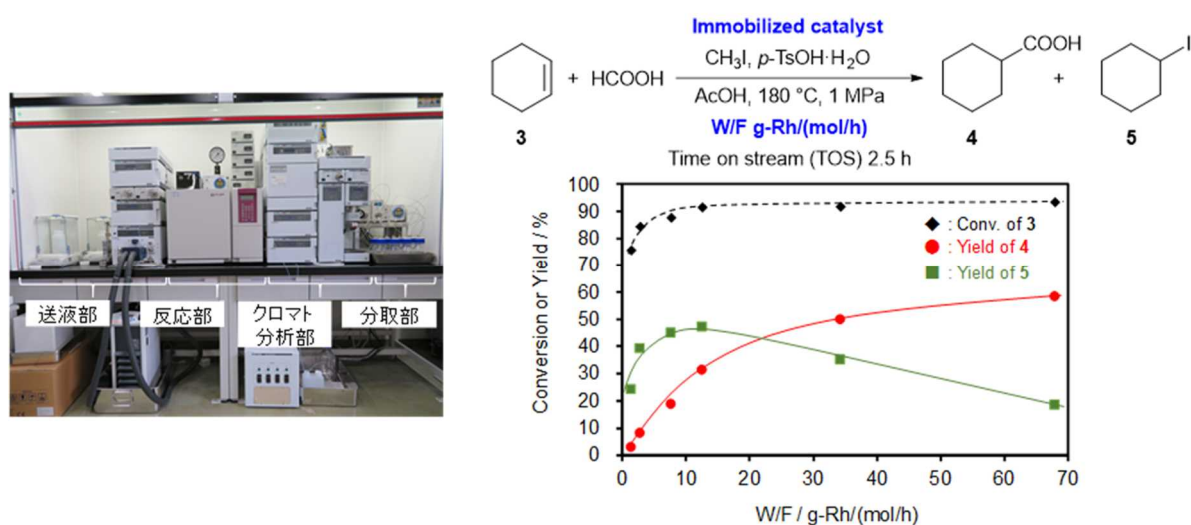
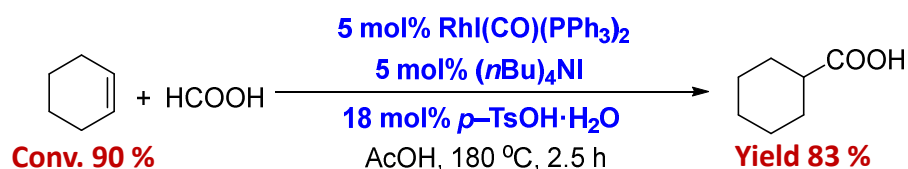


図 3-⑧-4 高温・高圧反応用フローリアクター装置(左)、及び Rh 系固定化触媒を使用したフロー法による HCOOH によるアルケンのヒドロキシカルボニル化(右)

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/導入を行い (図 3-⑧-4, 左図)、フロー合成法による固定化触媒を使用したカルボン酸合成に成功した (図 3-⑧-4, 右図)。また、この時、ヨードシクロヘキサンの副生が多く、副反応の抑制などの課題があることを明らかにした。

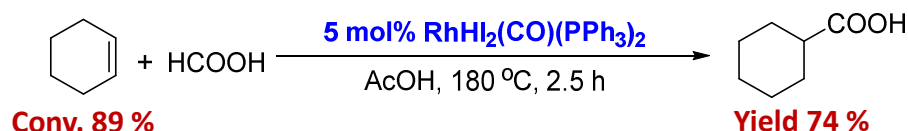
そこで、高効率なフロー合成プロセスの構築のため、触媒の設計指針に基づき、より高効率かつ環境調和性に優れた Rh 錯体触媒の開発に取り組んだ。最初に、ヨウ化物イオンの重要性に着目し、ヨウ化物イオンを配位子として含むロジウムヨード錯体触媒と、添加剤としてもヨウ化物イオンを含む 4 級アンモニウムヨード塩を使用する新規の触媒系を開発した。この触媒系では、環境に有害で取扱いに注意を要する PPh<sub>3</sub> や CH<sub>3</sub>I 等の添加剤を必要とせず、また、加える添加剤の量も既存の系が Rh に対し大過剰必要だったところを 1 当量にまで削減し、環境調和性を大きく改善することに成功した。

開発触媒 1 : RhI(CO)(PPh<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 触媒 + R<sub>4</sub>NI + *p*-TsOH·H<sub>2</sub>O



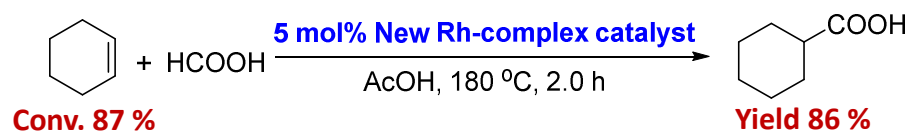
次に、この触媒系の活性種、中間体について調査した結果、ロジウムヒドリドヨード錯体を經由して本反応が進行しているということを明らかにすることができた。実際に、この触媒を使用することで添加剤を一切使用することなく、カルボン酸を合成することに成功した。

開発触媒 2 : RhHI<sub>2</sub>(CO)(PPh<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 触媒



さらに、P 系配位子として、従来技術で使用される単座の PPh<sub>3</sub> に変えて、二座の P 系配位子を使用したロジウムヒドリドヨード錯体を開発し、添加剤を一切使用することなく、86%の高収率でシクロヘキサンカルボン酸を合成することに成功した。さらに、本反応は、環状・非環状の種々のアルケンにも適用可能であり、対応するカルボン酸を自在に合成できることも明らかにした。

開発触媒 3 : 二座 P 系配位子を含む新規 Rh 錯体触媒



以上の結果から、添加剤を一切必要とせずに、アルケンのヒドロキシカルボニル化によるカルボ

ン酸の合成に成功したことで、今後、より高効率で環境調和性の高いフロー合成プロセスの実現につながる、非常にシンプルで高効率な触媒反応系を構築することに成功した。高度な環境調和型製造技術を実現するためには、高機能な固定化触媒と高効率なフロー合成プロセスの両方が必要であると考え、適切な分子触媒を設計／合成し、分子触媒を担体に固定化した固定化触媒を使用することで、フロー法によるアルケンのヒドロキシカルボニル化が進行することを実証できたことは、30年以上も前に見出された本反応の技術レベルを短時間で飛躍的に向上させる結果であると言える。

## (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)。

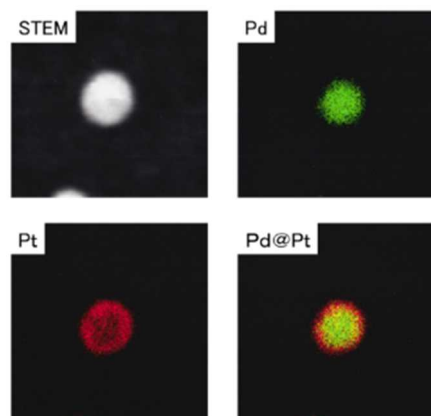


図 3-⑧-5 コア-シェル合成用フローリアクター

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、その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。

コア-シェル型触媒のフロー合成に関しては、合成したナノ粒子を基材に固定する担持工程もフロー化したプロセスを構築し、Pd@Pt/炭素触媒を全工程フロープロセスで合成することに成功した。本合成法に関する特許を1報出願した。しかし、XAFS等の各種分析の結果、得られた触媒のPtシェルは平均して0~数原子層の不均一な構造であることがわかり、Ptシェル構造をより精密に制御する必要があり、これを改善すれば、さらなる触媒活性の向上が期待された。

そこで、1日当たり数十種に及ぶ各種コアシェル型触媒の連続・自動合成が可能なハイスループットフロー合成装置(図3-⑧-7)を用いてプロセス条件の最適化を迅速に実施することで、均一な1原子層のPtシェルを有するPd@Pt/炭素触媒の合成条件を明らかにした。

合成したPd@Pt/炭素触媒の電子エネルギー損失分光法(EELS)ライン分析(図3-⑧-8)の結果、Ptシェルの厚さが約0.25nm(Ptの原子径は0.28nm)であることから、この粒子が1原子層のPtシェルを有していることがわかる。さらに、XAFS分析の結果、Pt-Pt配位数が5.6、Pt-Pd配位数が2.4であることが示され、コア-シェル粒子の平均構造としても1原子層のPtシェルを有することが確認された。

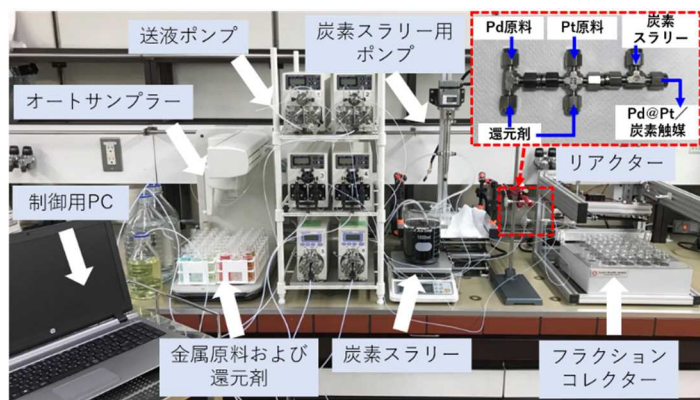


図3-⑧-7 ハイスループットフロー合成装置

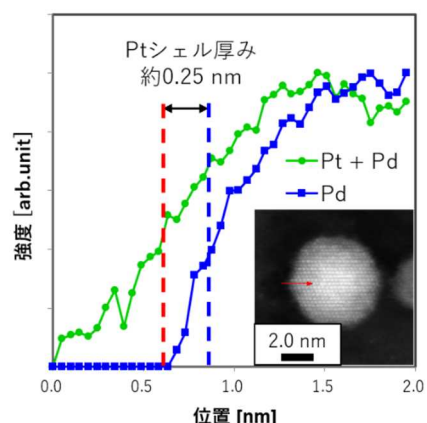


図3-⑧-8 EELSライン分析

次に、合成した触媒のPEFC用カソード触媒としての性能を調べるため、ORR活性評価を実施した。その結果、0.9Vにおける白金重量当たりの活性(Mass Activity, MA)が522A/g-Ptと、従来のバッチ合成プロセスであるCu-UPD法によって合成した触媒に匹敵する性能を示した。さらに、今回確立した条件を2020年度に開発した全工程フロー合成法に応用した結果、Cu-UPD法とほぼ同程度の活性を有するPd@Pt/炭素触媒の連続合成に成功した。これにより、Cu-UPD法に比べ、ラボレベルで10倍以上高い生産性が見込めるPd@Pt/炭素触媒の連続合成プロセスを実現した。本成果については特許を1報出願し、プレスリリースを1件行った。

### (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 3-⑧-9)。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。

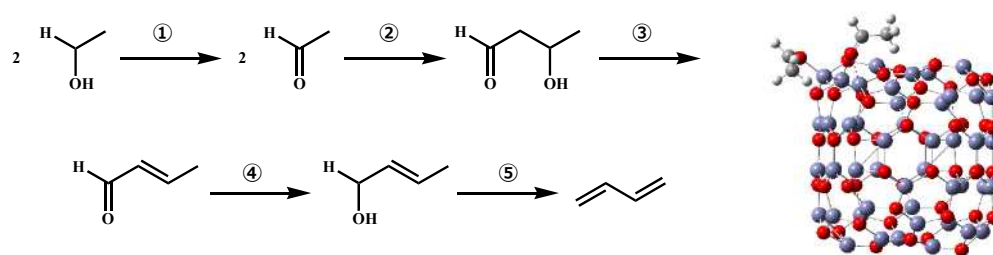


図 3-⑧-9 エタノールからブタジエン合成における反応経路

さらに、第一原理計算によるエタノールからのブタジエン合成の各段階の活性化エネルギーの計算より、反応を 2 段階(エタノール→アセトアルデヒド、エタノール/アセトアルデヒド→ブタジエン)に分けることでさらに活性を向上できることが分かった。そこで、2 段階反応装置の設計・製作、およびこれらの反応に用いる触媒を開発するため、約 50 種類の金属酸化物系触媒を導入したハイスループット触媒調製装置によって自動調製し、高速触媒スクリーニングを実施した。また、導入したハイスループット触媒評価装置を用いて、最適な反応条件(プロセス条件)の探索を検討し、各段階で高い活性を示した金属酸化物系触媒を組み合わせることで、さらに高活性のブタジエン収率を示す触媒システムを開発することに成功した。本触媒システムに関連する特許 2 件の出願を実施した。さらに第一原理計算およびハイスループット装置で蓄積したデータを用いた触媒活性の予測モデルの構築を行った。



図 3-⑧-10 ハイスループット触媒調製装置とハイスループット触媒評価装置

さらに、本触媒システムを用いて合成したブタジエンを回収し、蒸留による精密精製、重合反応を行うことでブタジエンゴムの合成を行った。合成したブタジエンゴムは市販品と同等の性能であることが確認された。このブタジエンゴムを原料として用いた自動車用タイヤを試作し、全てが天然原料であるタイヤの製造に成功した。これにより、バイオエタノール原料からタイヤ製造までの一連の触媒反応プロセスの実証に成功した。

#### (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 3-⑧-11)、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 3-⑧-12)。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。

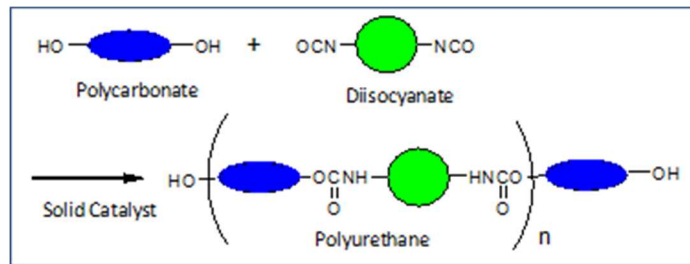


図 3-⑧-11 固定化触媒によるポリウレタンポリマーの合成

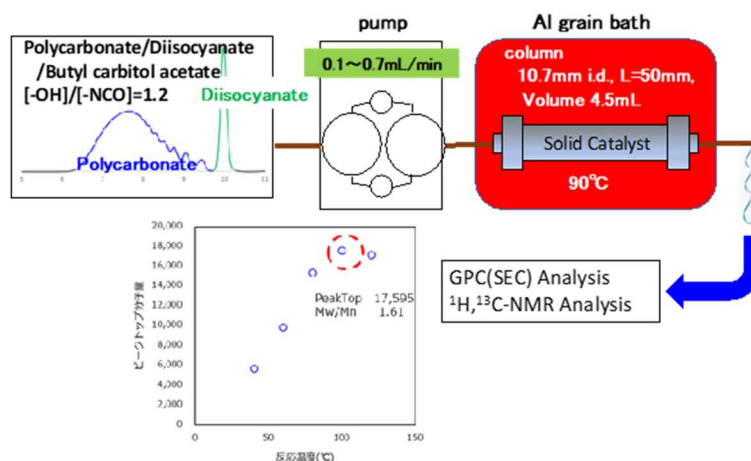


図 3-⑧-12 フローリアクターによるポリマー合成システム

事業内容⑤の AI 解析との連携を遂行するために、種々のジオールモノマーから 2 ないしは 3 のモノマー種の組み合わせ、異なるジオールモノマー組成比となるウレタンプレポリマーを合成し、結果として 300 種以上の熱硬化フィルムを作成した。その作成したフィルムに対して、

それぞれ機械強度物性、および光学物性の評価を実施し、最終的に合成情報(ジオールモノマー構造、組成比)とを合わせたデータセットとして事業内容⑤の AI 解析サイドへと提供した。

ここで提供したデータセットを基に本プロジェクトの AI 解析サイドで開発した数密度 ECFP 法等を用いて予測モデルを構築し、逆問題へのアプローチも試みた。具体的には数値目標としていた熱硬化フィルムの伸び  $> 50(\%GL)$  の機械物性をターゲットとしたジオールモノマー種および組成比を AI 予測モデルに基づいて算出し、実証実験を実施した。結果、伸び  $> 50(\%GL)$  の熱硬化性樹脂フィルムを取得することに成功した。光学特性の評価も実施したところ、haze 値  $0.31\%$ (数値目標  $5\%$ )、全光線透過率  $> 90\%$ (数値目標  $\geq 85\%$ ) と優れたフィルムであることが明らかとなった。

フローリアクターに適した固定化触媒の開発にも取り組んだ。結果、表面修飾シリカに対して、有機塩化ズズ化合物を高温・高圧下において相互作用させることで安定的に担持できることを見出し、触媒の完成に至った。ここで得られた触媒をカラムに充填し、Loop-flow 式フローリアクタ(図 3-⑧-13)を用いて反応を実施したところ、dTbDL(ジブチルスズジラウリレート)に代表される均一系触媒を用いた工業的なバッチ反応と同等の合成処理能力を発揮することが flowIR による反応系中の-NCO 基消費を追跡することで確認することができた(図 3-⑧-14)。更には樹脂の分析によって同等の分子量、分布を持つポリマーが得られていることが確認できた(図 3-⑧-15)。

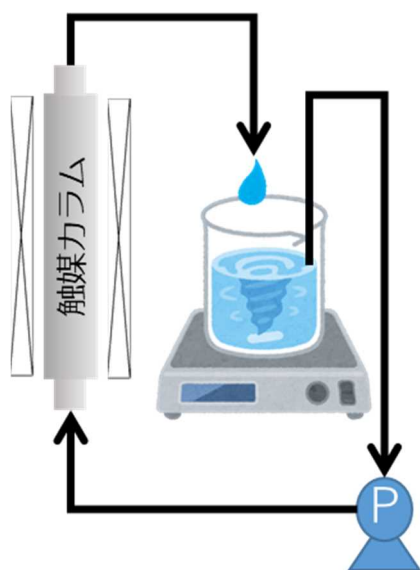


図 3-⑧-13 Loop-flow 式フローリアクター概念図

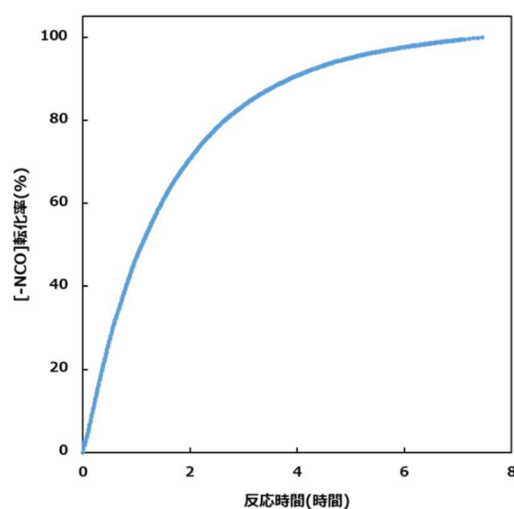


図 3-⑧-14 ウレタン化反応の追跡

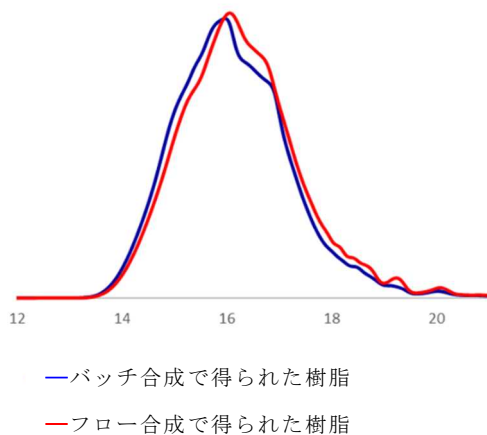


図 3-⑧-15 ウレタンプレポリマーの GPC(SEC)分析結果

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 3-⑧-16)。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。

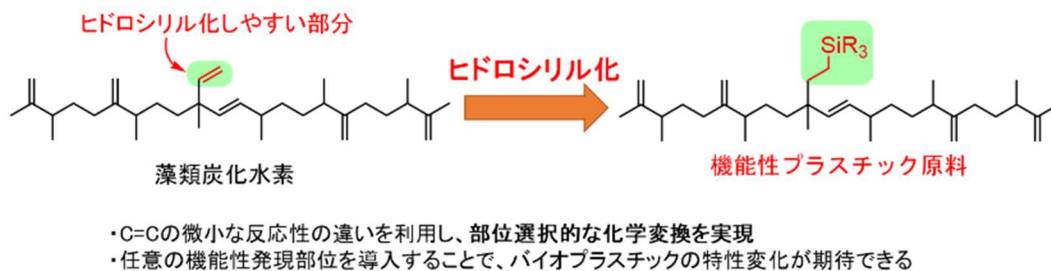


図 3-⑧-16 藻類炭化水素から機能性プラスチック原料の合成スキーム

さらに、微細藻類由来スクアレンの熱分解による有用化合物への変換反応を検討した。スクアレンの熱分解は連鎖反応として進行し、イソプレン(C<sub>5</sub>H<sub>8</sub>)とC10炭化水素が723Kで90%以上の変換率で生成し、スクアレンからイソプレンへ効率的に変換できることを明らかにした。また、TiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>、MgO、La<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、CeO<sub>2</sub>、Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>などの塩基触媒を用いることで、熱分解の生成物分布を保ちつつ、反応温度を低下させることに成功した。特に、ZrO<sub>2</sub>触媒を用いることで、500°C程度の反応温度で、イソプレンを選択的に生成することがわかった。一方、酸性のZSM-5とSiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>触媒は、C1-C4炭化水素を生成した。このように、藻類油としてのスクアレンが、ゴム製造の産業において有望な原料化学物質であることを明らかにした。



## 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

シミュレーションや計測による予測に基づいた CNT 構造及びドーパントを用いた CNT 線材を作製することが可能なプロセス技術を確立する。

#### ■ 研究開発の成果

事業内容⑬-1 で低抵抗線材として最適と予測された直径約 2 nm の CNT を用い、高温真空アニールによる高結晶化の実験を行った。その結果、1200-1900°C が最適温度範囲であることがわかった。さらに、ハロゲン元素であるヨウ素をドーパントとした、気相法による CNT 線材へのドーピングプロセスを確立した。なお、本研究課題で得られた真空アニールによる CNT 線材の構造情報および電気抵抗変化、さらにヨウ素ドーピングされた CNT 線材の構造並びに各種物性データは DPF へ提供され、MDPF・コンソーシアム運用の基盤情報として活用される。具体的には以下に示すとおりである。

#### (1) アニールによる CNT の結晶性向上

カーボンナノチューブ(CNT)は、グラファイトシートをポール状に丸めた構造を形成しており、その直径が数 nm オーダーになると高い導電性を示す。この特性を活かし、次世代電線における導体材料として期待されている。電線化の実現には、導電性の向上が必要不可欠であり、CNT の高結晶化は有効な手段と考えられる。CNT の結晶構造はグラファイトと同様であり、グラファイトは高温でアニールすることで高結晶化し、導電性も向上する。その一方で、CNT を高温でアニールすると CNT 自体のポール状の構造が崩壊することが報告されている。

本項では、表 3-⑨-1-1 の結果から、低抵抗な CNT として径が 2nm 程度であり、有効長が 1500nm 以上である CNT を準備した。それらの CNT を IPA に分散し、シート化した後、アニール実験を行った(図 3-⑨-1-1)。アニール条件としては、最高到達を温度は 1200~3000°C であり、保持時間は 30 分とした。雰囲気としてはアルゴン雰囲気を実施した(図 3-⑨-1-2)。アニール実験を行った試料に関して、結晶性やその他の構造の変化を追うために、ラマン散乱測定、

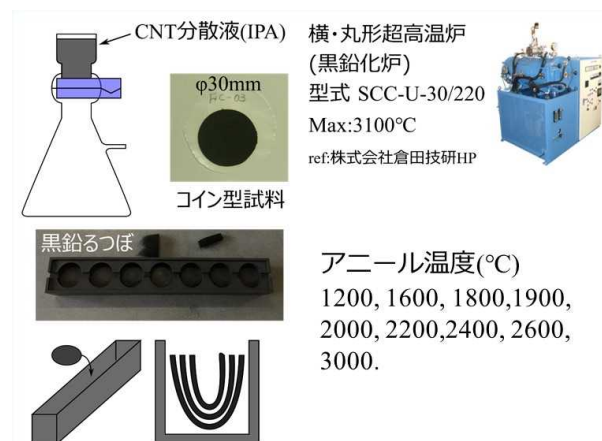


図 3-⑨-1-1 アニール実験の模式図。

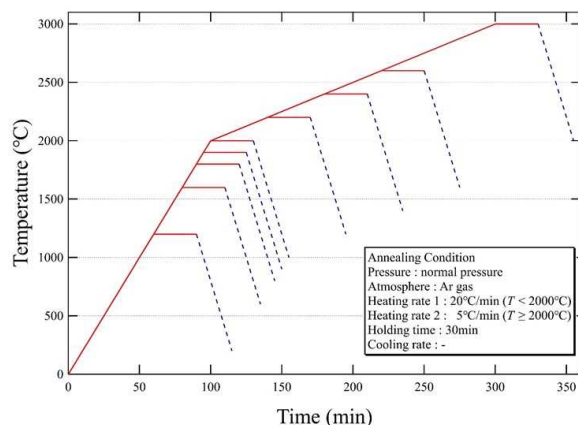


図 3-⑨-1-2 アニール温度プロファイル

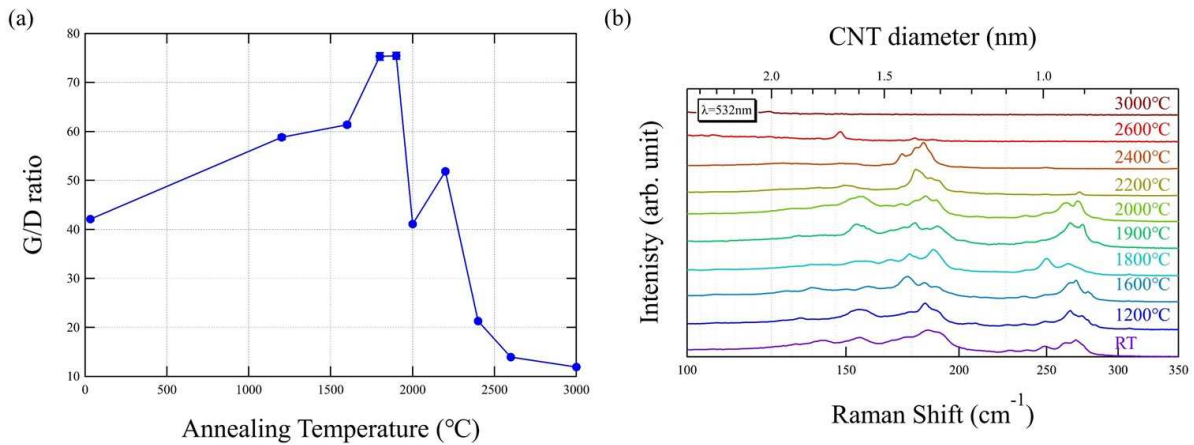


図 3-⑨-1-3 (a) 各アニール温度における G/D 強度比. (b) 各アニール温度における RBM

X 線散乱測定、走査型電子顕微鏡(SEM)、透過型走査顕微鏡(STEM)観察などの多角的な構造評価を行った。また、高温アニールによる抵抗値の変化を追うため、粉体抵抗測定を行った。加えて、導電メカニズムの解明のため抵抗値の温度依存性を測定した。

各アニール条件におけるラマン散乱スペクトルから、結晶性のスタンダードな指標である G/D 強度比を算出した。図 3-⑨-1-3(a)に示す通り、1200~1900°Cの間ではその値は上昇した。2000~2400°Cでは一転し減少に転じた後、2600~3000°Cでは一定となった。G/D 強度比を見る限り、1900°Cまでは結晶性が向上していると言える。また、CNT の直径を反映している RBM では、大枠で  $100\sim 200\text{cm}^{-1}$  と  $240\sim 300\text{cm}^{-1}$  の領域で確認できていた RBM が、2200°C以上で  $240\sim 300\text{cm}^{-1}$  の領域の RBM が消失し、2600°C以上では  $100\sim 200\text{cm}^{-1}$  の領域の RBM が消失した。これは各波数に対応する直径の CNT が消失していることを意味している(図 3-⑨-1-3(b))。

アニール処理により CNT の形状が崩壊する様子を確認できたが、崩壊した後の構造を把握するために X 線散乱測定を実施した。CNT の特徴的な構造として、グラファイト構造と、直径が揃った CNT がスタックすることで形成する六方最密充填(HCP)構造を併せて持つ点である。これらの構造を反映した回折が、幅広い角度領域 ( $q$  レンジ) で確認することができる。図 3-⑨-1-4(a)に HCP 構造の回折が確認できる  $q$  レンジの X 線散乱スペクトルを示す。 $q=3\sim 7\text{nm}^{-1}$  にブロードなピークが 2200°Cまで確認できるが、それよりも高い温度では HCP 構造が崩壊したと言

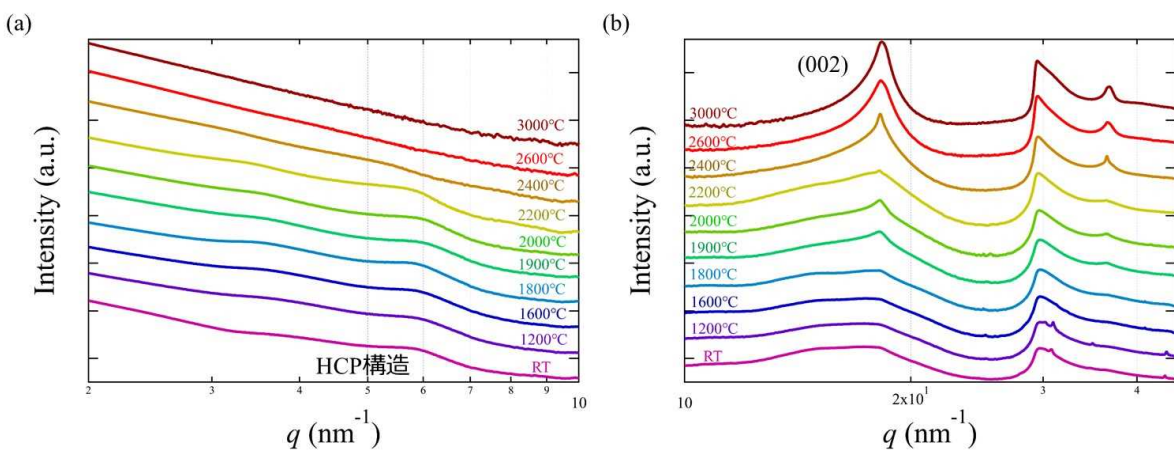


図 3-⑨-1-4 各アニール処理後の X 線散乱. (a) HCP 構造領域. (b) グラファイト構造領域.

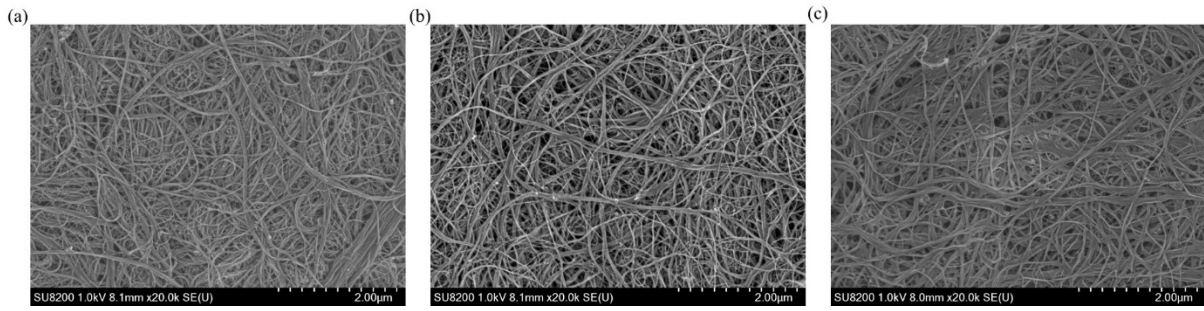


図 3-⑨-1-5 各アニール処理後の SEM 像. (a) アニール温度 : 1200°C. (b) アニール温度 : 2200°C. (c) アニール温度 : 3000°C

える。一方でグラファイト構造を反映する  $q$  レンジでは、2200°C以上でグラファイトの(002)ピークが急激にシャープになることが確認できる。(002)ピークの半値幅は、グラファイト構造の結晶性が向上することでシャープになることから、2200°C以上では、CNT が崩壊してグラファイトに構造転位していると考えられる。

ラマン散乱や X 線散乱より高温アニールにより CNT が崩壊している様子を確認してきた。一方で繊維状態の CNT 自体の構造の変化を確認するために SEM 観察を実施した。アニール温度 1200, 2200, 3000°Cの SEM 像を図 3-⑨-1-5 に示す。全ての試料において繊維状の構造は維持されている。これは少なくとも 1200, 2200°Cでは CNT のバンドルを見ていると言える。3000°Cでは CNT バンドルの様に見えるが、これは CNT ではなくグラファイト構造を持った繊維状の構造体と思われる。

更に CNT バンドル内の構造を把握するために、断面 STEM 観察を実施した。その結果を図 3-⑨-1-6 に示す。SEM 像で確認できた CNT バンドル及び繊維状は断面 STEM で確認するとアニール温度が 2200°Cまでは、2nm 程度の CNT で構成されたバンドルになっている。一方でアニール温度が 3000°Cでは、MWNT へ構造相転移していることがわかった。X 線散乱にてグラファイト構造の(002)ピークがシャープになっている要因として、図 3-⑨-1-6 (c)の様な MWNT になり、グラファイト層間が多く積層したためと考える。

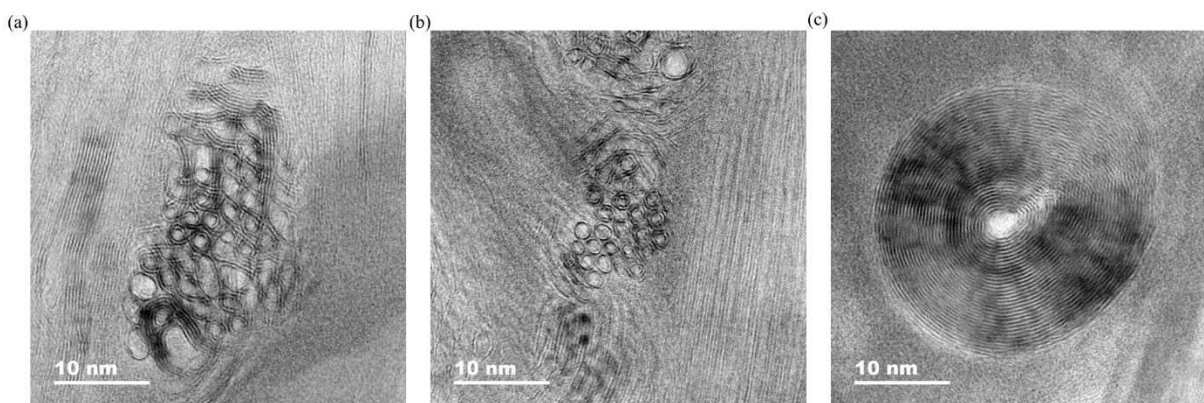


図 3-⑨-1-6 各アニール処理後の STEM 像. (a) アニール温度 : 1200°C. (b) アニール温度 : 2200°C. (c) アニール温度 : 3000°C

各アニール処理における粉体抵抗測定結果を示す。抵抗値はアニール温度が 1200～1800°Cの範囲で、ほぼ一定であり、1900～2600°Cまで上昇した後、それ以上の温度で一定と

なった(図 3-⑨-1-7-(a))。この抵抗値の上昇は各構造評価において CNT 自体の構造が崩壊していくタイミングとリンクしており、直径が 2nm 程度の CNT が高導電化への必要不可欠な構造要因である事が明確になった。また、各アニール処理後の試料における抵抗値の温度依存性を見ると、小径の CNT が崩壊、融合し MWNT に構造相転移する過程で、R-T の 50~225K あたりで低温に向かうに連れて、抵抗値が上昇する挙動が確認できる。これは試料 A の R-T でも見られたフリーデル振動であると思われる。試料 A は数十層の MWNT であることから、構造としてもよく一致している。

本項の結果から、CNT 線材における小直径化は必要不可欠な要因であることが確認できた。また、小径の CNT には高温アニールによる CNT としての結晶の向上は成し得ない事が確認できた。これは製造プロセスにおける候補の一つである高温アニール処理を行う必要が無い事を示唆しており、プロセスのスリム化に大きく貢献したと言える。

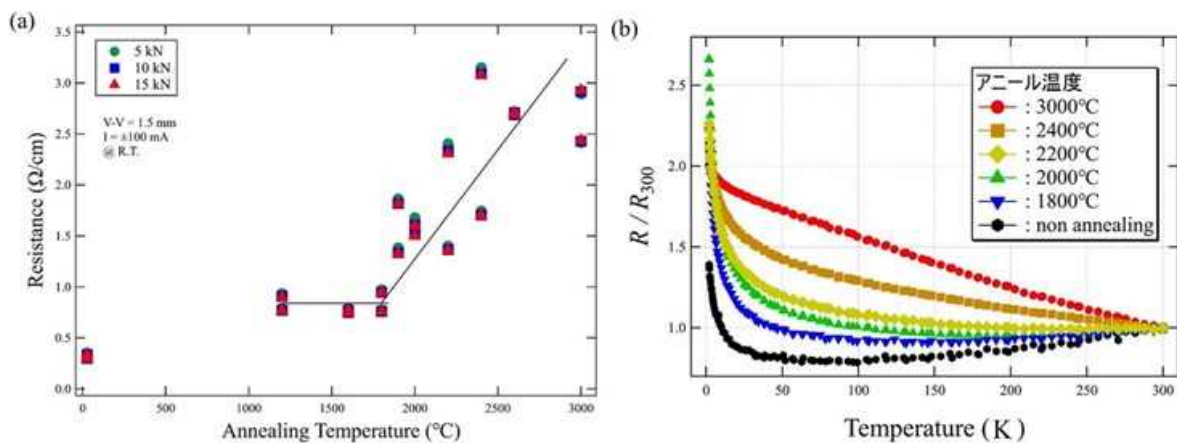


図 3-⑨-1-7 (a)アニール温度処理後の CNT シートの粉体抵抗. (b) アニール温度処理後の CNT シートにおける抵抗値の温度依存性.

## (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。

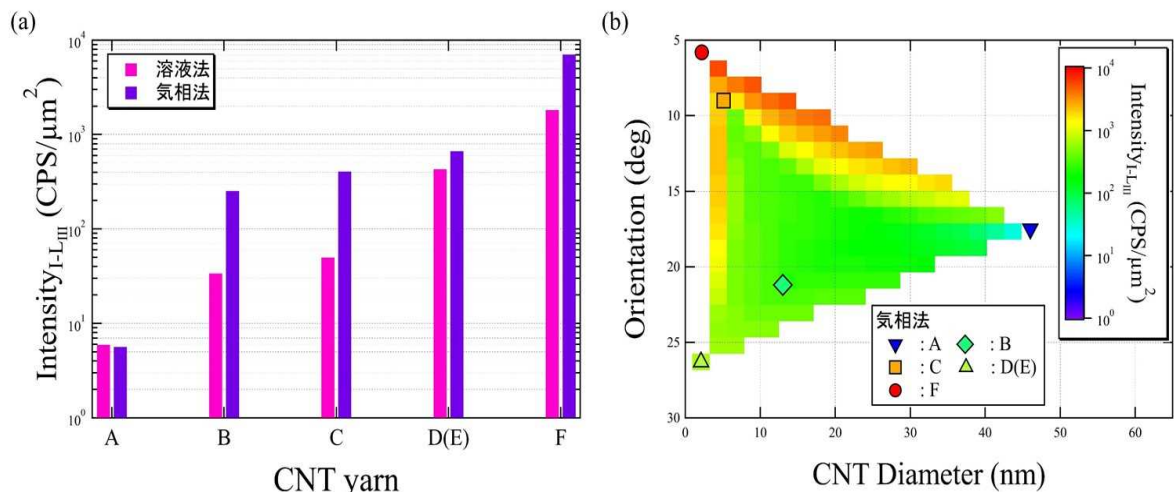


図 3-⑨-1-8 (a) ドープヨウ素の各線材における単位断面積あたり蛍光 X 線強度。  
 (b) 気相法ドープにおける各線材の CNT の直径及び配向度に対するヨウ素ドープ量。

ドープされる CNT 線材は、G/D 比、直径、層数、有効長、配向度、線密度の異なるものを 5 本準備した(表 3-⑬-1-1)。ドープはヨウ素として、ドープ方法は「気相法」と「溶液法」を選択した。各 CNT 線材の直径は数百から数十マイクロメートルであることから、実験室系の X 線分析では必要なデータを得ることは難しい。そこで、XRF, XAFS 測定に関しては、放射光を用いて実施した。CNT 線材におけるドープの分布状況の評価装置として EDX 装置を導入し、それを用いて行った。また、CNT 線材内の詳細なドープ位置を把握し、各ドープ位置におけるドープ及び CNT の化学状態を把握するために、STEM-EDX 観察を実施した。ドープによる導電率を評価するために、ドープ前後の CNT 線材について、四端子法にて抵抗測定を実施した。また、ドープによる導電メカニズムを把握するため、抵抗の温度依存性を評価した。

CNT 線材におけるドープ量を把握するために、あいちシンクロトロン光センターにて XRF 測定を実施した。入射した X 線のエネルギーを 4800eV とし、検出器:SSD を利用した。測定雰囲気下は、He 雰囲気で行った。得られた蛍光 X 線スペクトルは E=3000~4600eV であり、ヨウ

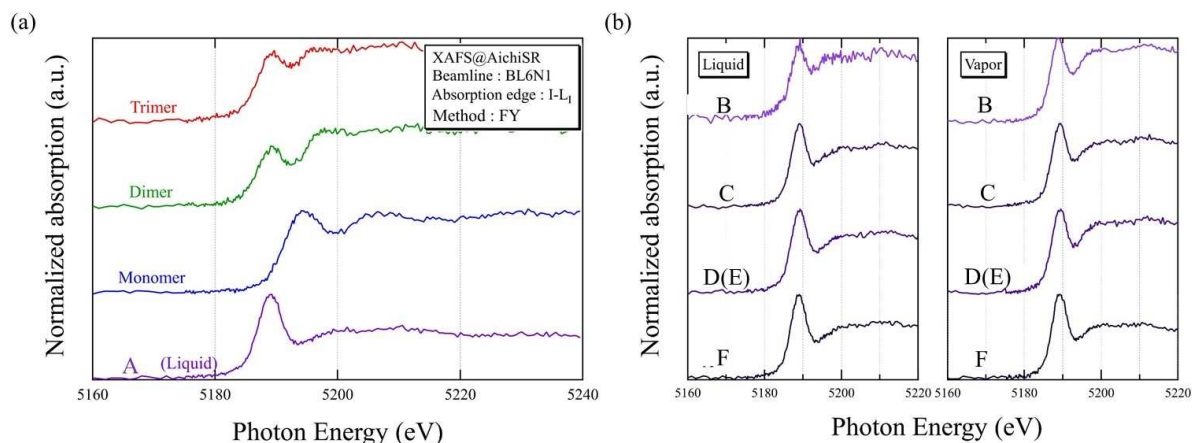


図 3-⑨-1-9 ヨウ素ドープ線材の I-L1 吸収端での XANES スペクトル。(a) 指紋法によるドープヨウ素の化学状態評価。(b) 各線材の吸収スペクトル比較。

素の L-III~I 吸収端が 3750~4600eV に見られる。各線材から得られた XRF スペクトルより、ヨウ素の L-III のピークから蛍光 X 線のピーク面積を算出し、線材の断面積で規格化した。その結果を図 3-⑨-1-8(a) に示す。総じて気相法の方が溶液法に比べてドーパ量が多い事がわかる。また、気相法の中でも試料 F が単位断面積あたり最も多くのヨウ素を内包しており、この試料 F は、5 試料の線材中、CNT の平均直径が最も小さくかつ線材の長手方向に CNT が配向している。次点にくるのは C 試料 D(E) であり、この線材を構成する CNT の平均直径は 1.7nm であり、比較的、配向度が高い。その一方で CNT の平均直径は 5.5nm と少し大きい、配向度が高い CNT 試料 C がヨウ素ドーパ量は 5 試料中 3 番目であった。これより高濃度にドーパントをドーパするには、CNT 自体の小直径化と線材方向に対する配向度(密度)が高い事が重要である。因みにドーパ濃度で 4、5 番に来る CNT 線材 B, A だが、これは層数が 10 層以上の CNT であり、配向度も高くないのでヨウ素のドーパ量が少ないと推測する(図 3-⑨-1-8(b))。

更にドーパントの化学状態を把握するため、あいちシンクロトロン光センターにて XAFS 測定を実施した。ヨウ素の L-I 吸収端について測定を行い、試料は非常に細い線であるため、微量元素の分析に優位な蛍光法を選択した。検出器は XRF と同様に SSD を使用している。また、参照物質として、ヨウ素の一量体、二量体、三量体を準備した。結果としては、ドーパ量が低濃度な線材 A を除いて XANES スペクトルが得られた。XANES スペクトルの特徴として、E=5189eV をピークトップに持つ急伸な吸収ピークを持ち、E=5193~5240eV にブロードなピークを持っている。参照物質と比較すると二量体、三量体のスペクトルに近い(図 3-⑨-1-9(a))。各線材のスペクトルを比較するとスペクトルの形状には大きな変化は見られなかった(図 3-⑨-1-9(b))。よって、各線材におけるヨウ素の化学状態において大きな違いは無いと考える。

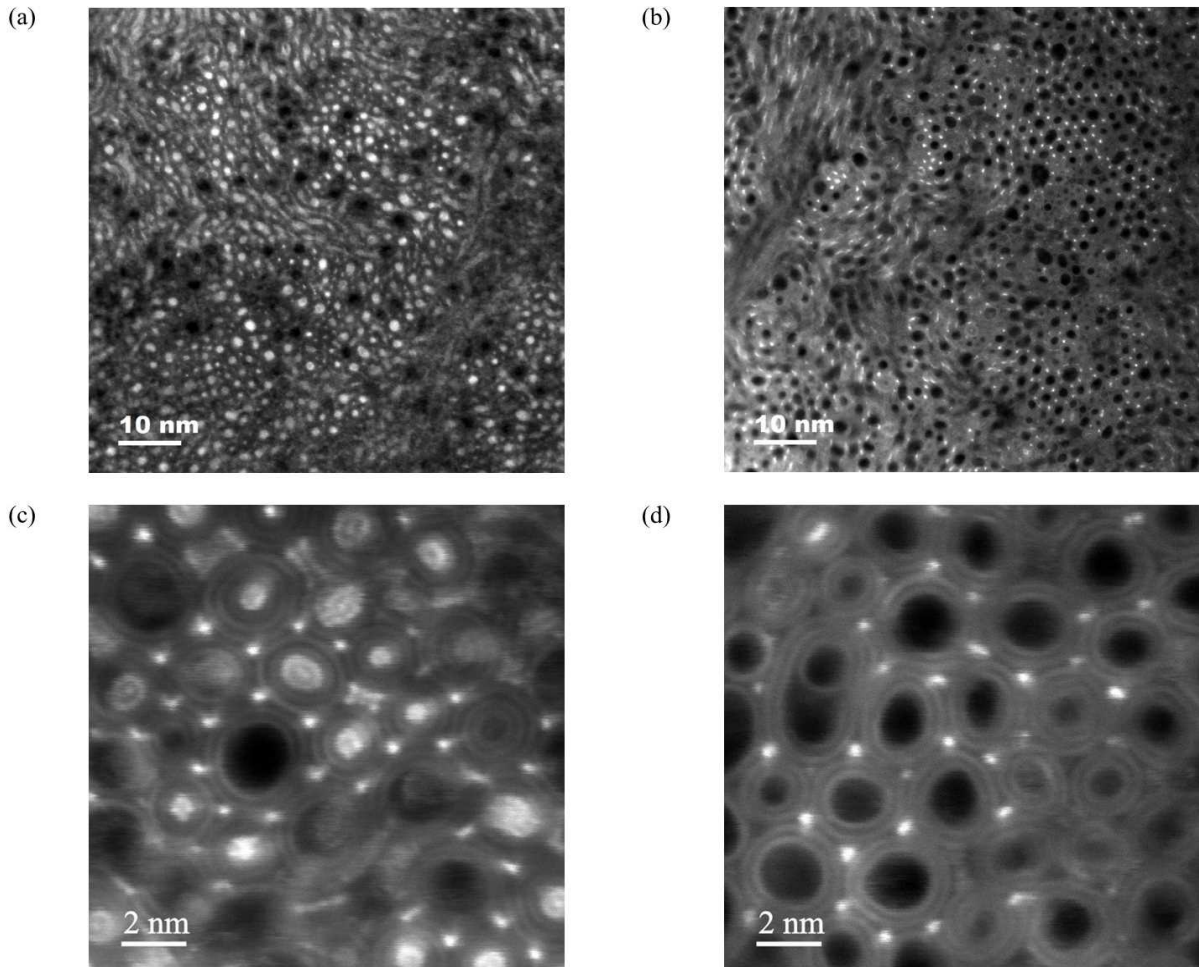


図 3-⑨-1-10 気相法及び溶液法にてヨウ素ドープを行った CNT 線材 A の断面 HAADF-STEM 観察結果. (a) 気相法-低倍率の断面像. (b) 溶液法-低倍率の断面像. (c) 気相法-高倍率の断面像. (d) 溶液法-高倍率の断面像.

ここまで CNT 線材のドーパントヨウ素について、平均的な構造評価を行ってきた。結論として、ドーパントであるヨウ素は、今回実施した二つのドープ方法に寄らず CNT 線材内での化学状態は同様であり、そのドープ量は CNT 線材を構成している CNT の直径と配向度に依存することがわかった。以後の局所的な構造評価では、ドープ後の導電率が最も高い CNT 線材にフォーカスして評価を行う。

CNT 線材内におけるドーパント位置や構造を把握するため、STEM-EDX を実施した。選択した CNT 線材としては試料 F として、ドープ方法は気相法である。参照線材として同線材に溶液法でドープした CNT 線材も評価した。既に SEM-EDX にて気相法、溶液法でドーパントのヨウ素は線材内外にまんべんなく存在していることを確認している。観察試料は FIB-SEM にて薄片試料を作成し、STEM-EDX は加速電圧:80keV で、高分解能 STEM 観察は加速電圧:200keV で観察を行った。図 3-⑨-1-10 に気相法、溶液法でヨウ素をドープした試料 F の断面 STEM 像を示す。図 3-⑨-1-10(a),(b)は低倍率における HAADF-STEM 像である。CNT の断面を輝度の高い構造体が充填している様子が見て取れる。更に倍率を上げると気相法ドー

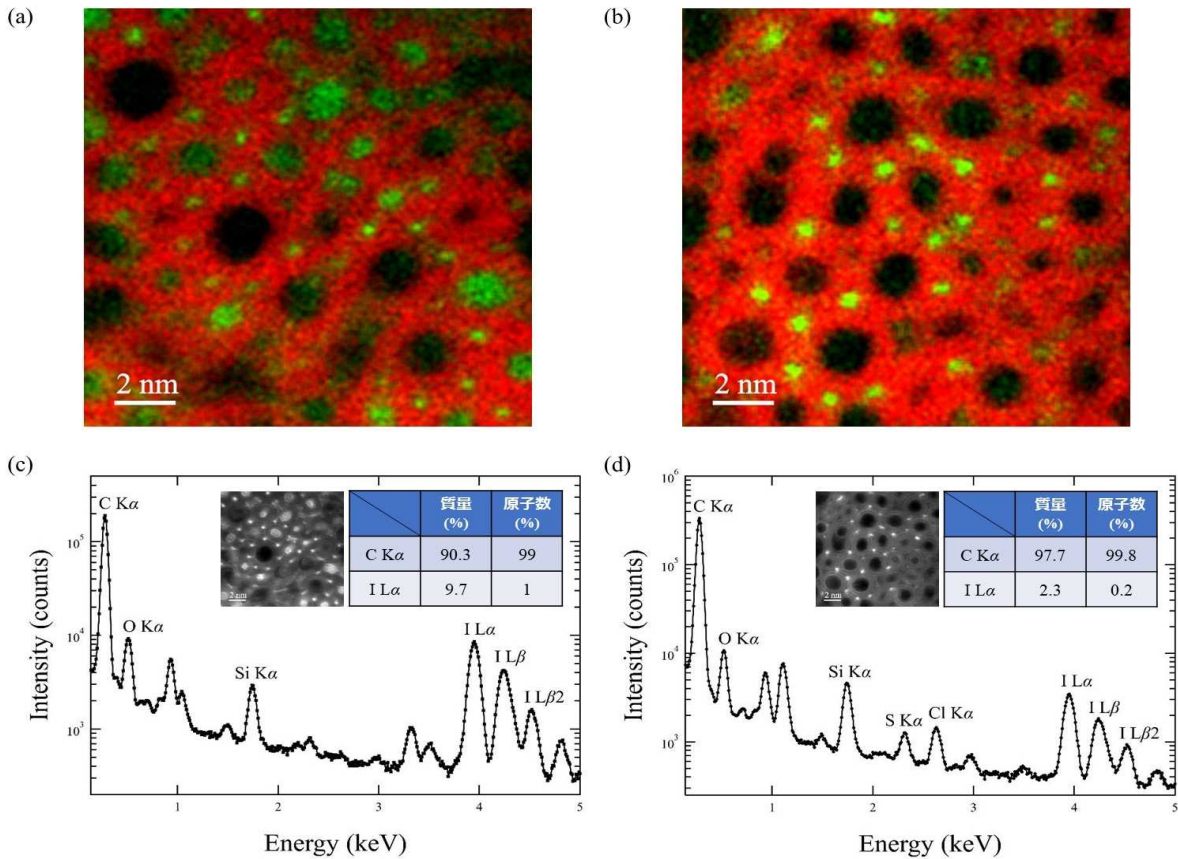


図 3-⑨-1-11 気相法及び溶液法にてヨウ素ドーピングを行った CNT 線材 A の元素分析. (a) & (b) マッピング. 赤:炭素, 緑:ヨウ素. (c) & (d) EDX スペクトルと炭素に対するヨウ素の存在比率.

プの試料では CNT 間、CNT 内を輝度の高い構造体が充填しているのに対して、溶液法ドーピングの試料は 3 本の CNT が集まって構成された小さな隙間に輝度の高い構造体が充填しているのみである(図 3-⑨-1-10 (c),(d))。同視野において元素マッピングを行った結果、図 3-⑨-1-11(a), (b)の様になり、輝度の高い構造体からはヨウ素が検出された。また、EDX スペクトルからカーボンに対するヨウ素の相対比率を算出すると気相法は溶液法に比べて大よそ 3 倍も多くヨウ素が入っていることが確認できた。この結果は、XRF の結果と大筋一致している。

更に詳細なヨウ素の構造を確認するために、高分解能 STEM 観察を実施した。図 3-⑨-1-12(a)は気相法の結果だが、CNT ではその直径によってシングルチェーンからマルチチェーンを組んでいる。また、CNT-CNT 間の隙間でも比較的大きな隙間では結晶格子を組んでいる。溶液法の結果は、比較的径の揃った 3 本の CNT で凝集して作った隙間にもみヨウ素のチェーンが入っているのみである(図 3-⑨-1-12(b))。



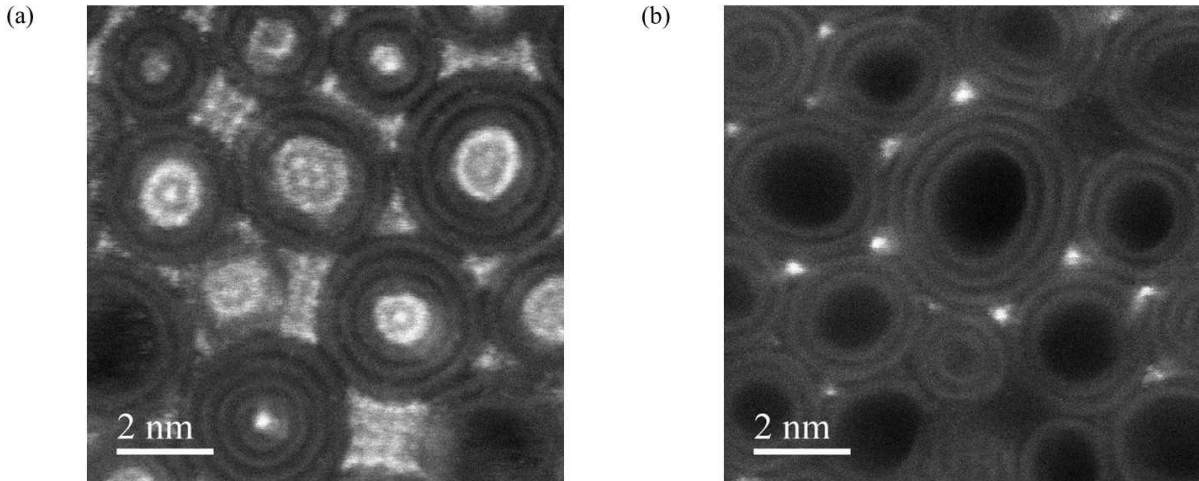


図 3-⑨-1-12. 高分解能 STEM 像. (a) 気相法ドーピング線材. (b) 溶液法ドーピング線材.

局所的な構造評価のまとめとして、同じ CNT 線材において気相法、溶液法でヨウ素の入り方が異なっていた。ヨウ素のドーピング量は XRF の測定結果と良く一致しており、両線材のドーピング量の違いは、主にドーピングヨウ素が CNT 内に内包されているか否かに起因すると考えられる。

両線材に関してドーピング後の導電率の変化を見ると、気相法では 18~20% 上昇したのに対して、溶液法ではほとんど変化が無かった (図 3-⑨-1-13(a), (b))。溶液法でのヨウ素のドーピング位置は CNT-CNT 間の非常に狭い隙間に限定されることから、この隙間にヨウ素が入っても導電率には影響しないと考えられる。よって、気相法による CNT 線材 A の導電率の上昇は、CNT 内もしくは比較的大きな隙間に充填されたヨウ素が担っていると推測される。気相法ドーピング線材と溶液法ドーピング線材の温度依存性を見ると全ての線材で共通して  $T=30\text{K}$  まで温度が下がると抵抗値も下がっている。 $R \propto T$  であることから金属的な挙動であり、これは金属的な CNT 同士の導電パスが支配的であること示唆している (図 3-⑨-1-14)。バルクのヨウ素自体は、電気抵抗が非常に高いので、CNT-CNT 間の隙間に入っても接触抵抗を下げる効果は限定的と

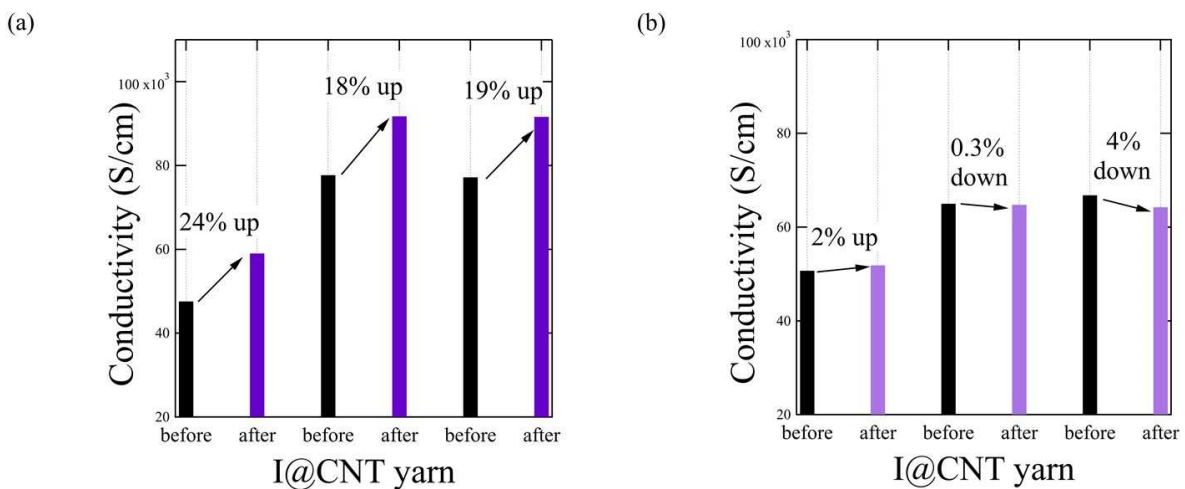


図 3-⑨-1-13. ドーピング前後の CNT 線材 A の導電率変化. (a) 気相法ドーピング線材. (b) 溶液法ドーピング線材.

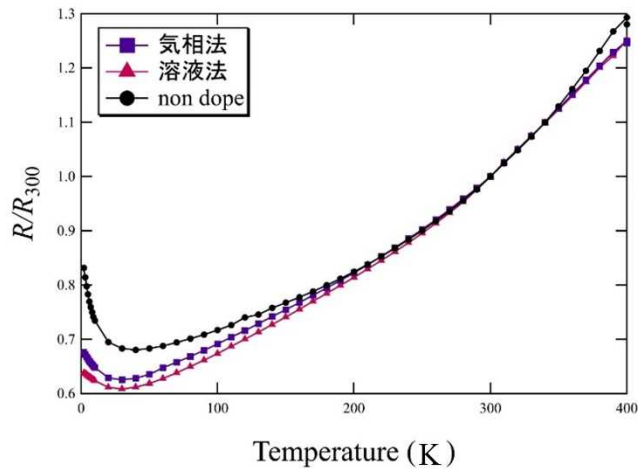


図 3-⑨-1-14.ドーピング前後の CNT 線材 A における抵抗値の温度依存性.

推測する。よって、気相法にヨウ素ドーピングで導電性が上昇したメカニズムは、半導体的な CNT の内部にヨウ素が内包されることで CNT-ヨウ素間で電荷移動等の相互作用が起こり、導電性が向上したと考える。

CNT 線材におけるドーピング研究では、ドーパント種の多さが研究を複雑にし、開発時間が長くする大きな原因となる。本プロジェクトでは平均から局所に至るあらゆる構造評価を多角的に行うことで、そのメカニズムを解明し、的確なドーピングサイトの絞り込みに成功した。特にドーピング効果を発現させるために、CNT の直径の選択は重要と考えており、この点は想定する試作回数を大きく減らすことができる。また、CNT 内のドーパントの状態を把握することで、他のドーパントにおいて想定できる特性が予測できることも試作回数の低減に大きく貢献している。

## 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

本研究項目ではプラズマ CVD の合成パラメータの最適化などにより、原子層グラフェンの高スループット連続合成技術(基材の巻取り速度 100mm/sec)を開発する。六方晶窒化ホウ素(*h*-BN)の大面積(5cm 角)合成技術を開発する。グラフェンの高品質な転写技術開発およびグラフェンと *h*-BN の積層技術を開発し、グラフェンの高移動度(20,000cm<sup>2</sup>/Vs)を実証する。並行して二硫化モリブデン(MoS<sub>2</sub>)等の遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)の大面積合成技術を開発し、発光デバイスの試作を試みる。さらにラマン分光などの光学特性から積層状態を確認する手法を検討し、高スループットグラフェン合成の積層状態と品質・特性がどのような相関を持つのかを見極める。これらにより今後二次元材料を工業的に利用する際の積層技術検討の指針とする。本項目では高スループットのグラフェン合成技術開発を基盤として、ナノカーボン材料の開発期間の 1/20 短縮を目指す。

#### ■ 研究開発の成果

グラフェンに代表される二次元材料は工業利用に向けた黎明期にある。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、ヨーロッパ、米国、中国、韓国など世界各国でグラフェン等二次元材料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、用途開発などにおいて競争が激化しており、利用分野の拡大など急速な展開が予想される。本項目では二次元材料の本命である CVD 合成の原子層グラフェンにおいて、高品質かつ高スループットの合成技術を世界に先駆けて確立することを目標として開発を実施した。さらに本項目では、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 *h*-BN、TMDC 等の二次元材料の合成技術開発とヘテロ接合積層技術の開発に取り組んだ。

図 3-⑨-2-1 は原子層グラフェンの高スループット合成技術開発に用いた独自開発のプラズマ 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手法を用いて、グラフェンの高スループット合成技術の開発を実施した。

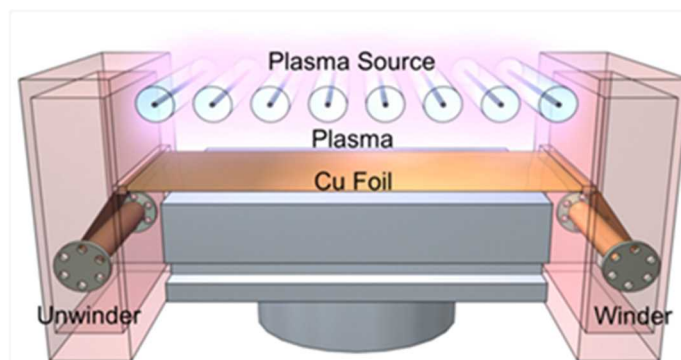


図 3-⑨-2-1 プラズマ CVD による高スループットグラフェン連続合成装置

銅箔基材の巻き取り速度 100mm/sec で連続合成したグラフェンのラマンスペクトルを図 3-⑨-2-2 に示す。グラフェン合成を示す G バンド( $1590\text{cm}^{-1}$ )および 2D バンド( $2652\text{cm}^{-1}$ )が明瞭に確認でき、銅箔基材の巻き取り速度 100mm/sec でグラフェンの連続合成に成功した。プロジェクト開始前と比較して 10 倍の巻き取り速度で、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。この成果はグラフェンの工業利用分野開拓をさらに加速するものと期待している。

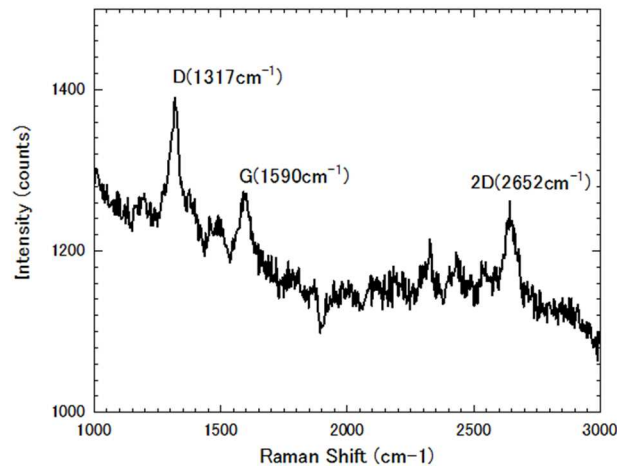


図 3-⑨-2-2 100mm/sec で銅箔を巻取ながらロールツーロール連続合成したグラフェンのラマンスペクトル(銅箔上で測定)。励起用レーザー波長 638nm。

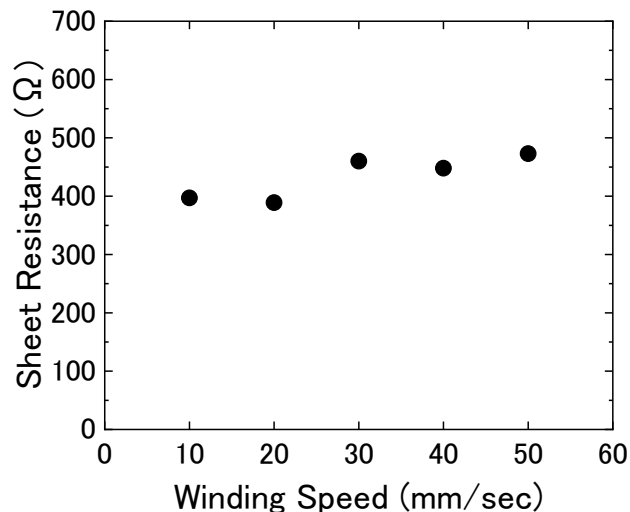


図 3-⑨-2-3 グラフェンのロールツーロール連続合成における銅箔の巻き取り速度とグラフェンのシート抵抗

本項目ではロールツーロール方式で高スループット連続合成した原子層グラフェンの低抵抗化に取り組んだ。図3-⑨-2-3はロールツーロール合成における銅箔基材の巻き取り速度と、合成したグラフェンをPETフィルムに転写して作製したグラフェン透明導電フィルムのシート抵抗を示したものである。測定には非接触抵抗測定装置(測定可能な最大シート抵抗 $1500\Omega$ )を使用し

た。このように巻き取り速度10～50mm/secでシート抵抗500Ω以下を達成し、高スループット合成グラフェンの品質を著しく向上した。

原子層グラフェンの工業的な魅力と他の材料に対する圧倒的な優位性の一つはその大きな

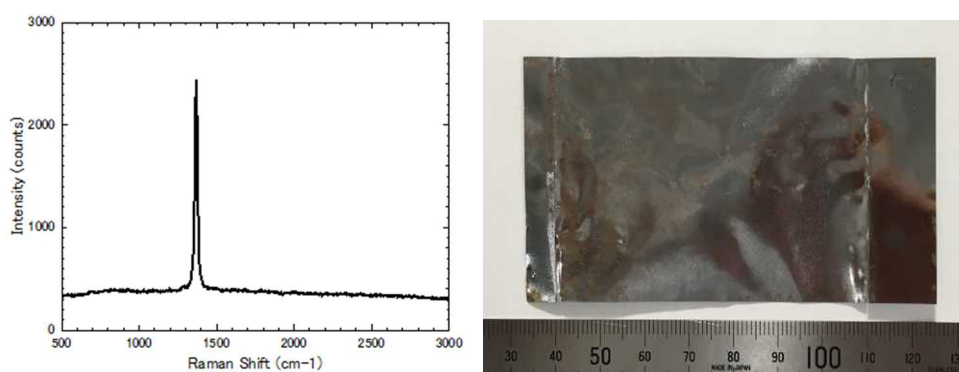


図 3-⑨-2-4 鉄箔を基材とする CVD で合成した高品質 *h*-BN のラマンスペクトル(左)と写真(右)

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。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*h*-BNとされている。これまでに物質・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 薄片を基材としてグラフェンの高移動度が実証されてきた。工業的なグラフェンの高移動度利用のためには、より大面積の *h*-BN が求められる。そこで本項目ではCVDによる大面積 *h*-BN 合成技術開発に取り組んだ。本項目では鉄箔基材を用いて結晶品質の良好な *h*-BN 合成技術開発を行った。まず合成面積1cm角で、特に原料ガスの精密制御およびチャンバー内アウトガスを制御することによる品質向上を図った。その後合成装置の改造を行い、5cm角の大面積合成技術開発を実施した。*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、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、本項目での大面積化へのポイントとなった。図3-⑨-2-4は5cm角の鉄箔基材に合成した*h*-BNのラマンスペクトルと写真である。このように目標である5cm角の合成技術開発を達成した。ラマンピークの半値幅は  $21\text{cm}^{-1}$  とシャープであり、高い結晶性を有することを示している。

本項目ではグラフェンと *h*-BN の高品質な積層技術を開発し、それを利用してグラフェンの高移動度を発現する技術開発を実施した。グラフェンは原子層の厚さの究極に薄い物質であるため、支持基材のうねり・凹凸、不純物などの影響を強く受ける。そこで研究項目①-1においてグラフェン合成プロセスで生じる不純物ドーブ、うねり・凹凸等ワーピングに対する電気伝導度を予測し、さらに本項目および③-2 で大面積グラフェンの合成とその特性計測のデータと合わせて導電性阻害要因の絞り込みを行った。これらをプロセス条件の探索に利用することで、開発期間を短縮した。図 3-⑨-2-5 は *h*-BN 上にグラフェンを積層してヘテロ積層を作製し、それを利用してグラフェン電界効果トランジスタ(FET)デバイスを作製して評価した特性である。このデバイスによりグラフェンの移動度  $20,000\text{ cm}^2/\text{Vs}$  以上を達成した。

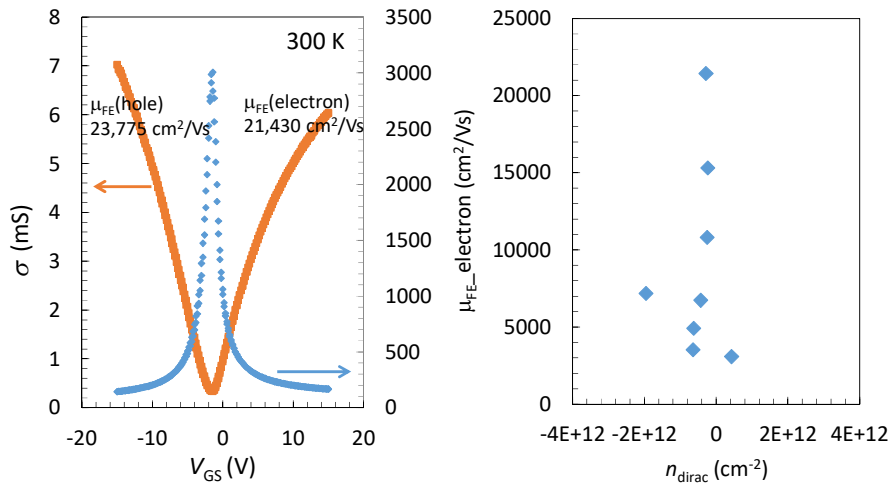


図 3-⑨-2-5 (左)グラフェン/h-BN デバイスの導電率(茶)およびシート抵抗(青)のゲート電圧依存性。(右)電子移動度と $n_{Dirac}$ との関係

本項目ではグラフェンの電気特性とグラフェンに残留するひずみの関係を解明した。図3-⑨-2-6(左)はグラフェンのラマンスペクトルの2Dバンド位置と電子移動度の関係を示し、これを利用してグラフェンに残留するひずみを評価した。本項目で開発したラマン分光によるグラフェンの残留ひずみの評価手法は大面積への拡張が容易で定量性のある手法であり、グラフェンを工業利用する際に有用なツールとなる。同図(右)はグラフェンの残留ひずみ(正は引っ張りひずみ、負は圧縮ひずみ)と移動度の関係を示す。このようにグラフェンに残留する引っ張りおよび圧縮ひずみはどちらもグラフェンの移動度を低下させる要因となり、グラフェンの高移動度はひずみゼロで達成されることが明らかとなった。グラフェンのひずみはグラフェンを支持する基材の凹凸が原因であることが第一に考えられるため、この結果は基材の凹凸を抑制することがグラフェンの高移動度を利用する際のキーであることを示唆するものである。

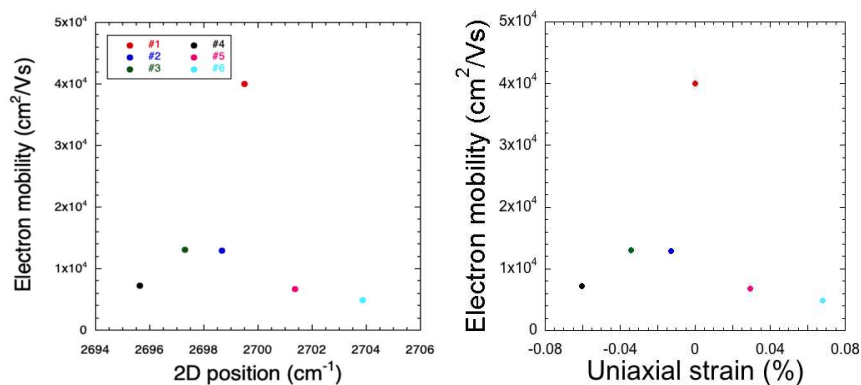


図 3-⑨-2-6 グラフェンの残留応力と移動度との関係を解明。(左)グラフェンのラマンスペクトルの2D バンド位置と電子移動度、および(右)それを用いて解析したグラフェンの残留ひずみ(正は引っ張りひずみ、負は圧縮ひずみ)と移動度の関係。

本項目ではグラフェン、*h*-BNの他、半導体特性を有することで今後の利用が期待されるTMD C、二硫化モリブデン(MoS<sub>2</sub>)の合成手法の開発を行った。本項目では2cm角の石英ガラス上にスパッタリングで形成した厚さ数nmのモリブデン(Mo)薄膜を硫化する手法を用いた。図3-⑨-2-7はこの手法で合成したMoS<sub>2</sub>のラマンスペクトルであり、ラマン分光マッピング測定とAFM測定により均一な多層膜(厚さ10nm程度)が形成されていることがわかった。このようにMo薄膜の硫化という簡便な手法で大面積のMoS<sub>2</sub>の合成に成功した。また図3-⑨-2-8はこの膜のフォトルミネッセンスによる発光スペクトルである。多層膜であるため高強度の発光とはいえないが、大面積合成が容易な手法で合成したMoS<sub>2</sub>の発光を確認した本成果は、今後の工業利用への拡張可能性を示唆するものである。

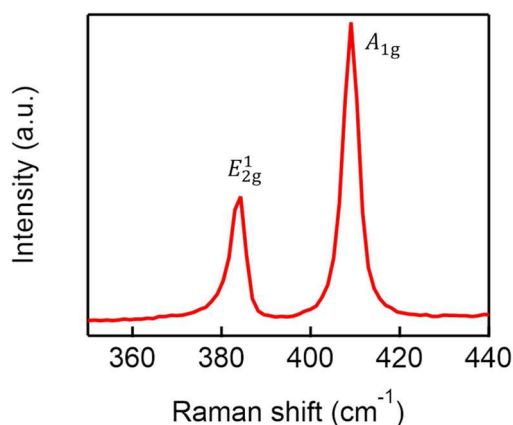


図 3-⑨-2-7 Mo の硫化により作製した MoS<sub>2</sub> 膜のラマンスペクトル。

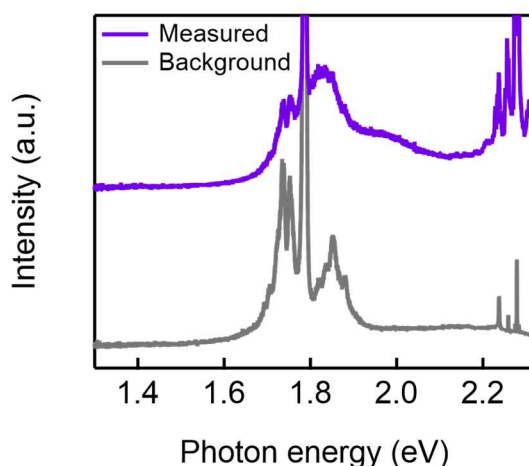


図 3-⑨-2-8 Mo の硫化により作製した MoS<sub>2</sub> 膜の発光スペクトル(フォトルミネッセンス)。

本項目ではグラフェン等二次元材料の用途を探索するうえで欠かすことのできない加工法の開発を行った。本項目ではまず原子層グラフェンの精密加工法を検討した。グラフェンは高感度センサー等の用途が検討されているが、感度を向上するためにはその電気特性の精密制御のための原子レベルの欠陥生成や異種原子の導入手法(ドーピング)が必要となる。従来グラフェンの欠陥生成はプラズマに曝露するなどの方法が試されてきたが、この方法はグラフェンに対するダメージが大きく原子レベルの加工法とは言えない。そこで本項目では図3-⑨-2-9(上)に

示す酸素濃度を調整した雰囲気中でグラフェンに紫外線を照射する方法による原子レベル加工法を検討した。酸素濃度を調整することによりグラフェンに形成される欠陥の濃度を精密に制御可能であることがラマン分光測定による欠陥密度測定で明らかとなった。さらに同図(下)に示すように、グラフェンの格子中にシリコンと窒素、およびシリコンと酸素の複合体が導入することに成功した。以上のように本項目では酸素濃度を制御した雰囲気中で紫外線照射することでグラフェンに原子レベルの欠陥形成と異種原子の導入する手法を開発した。

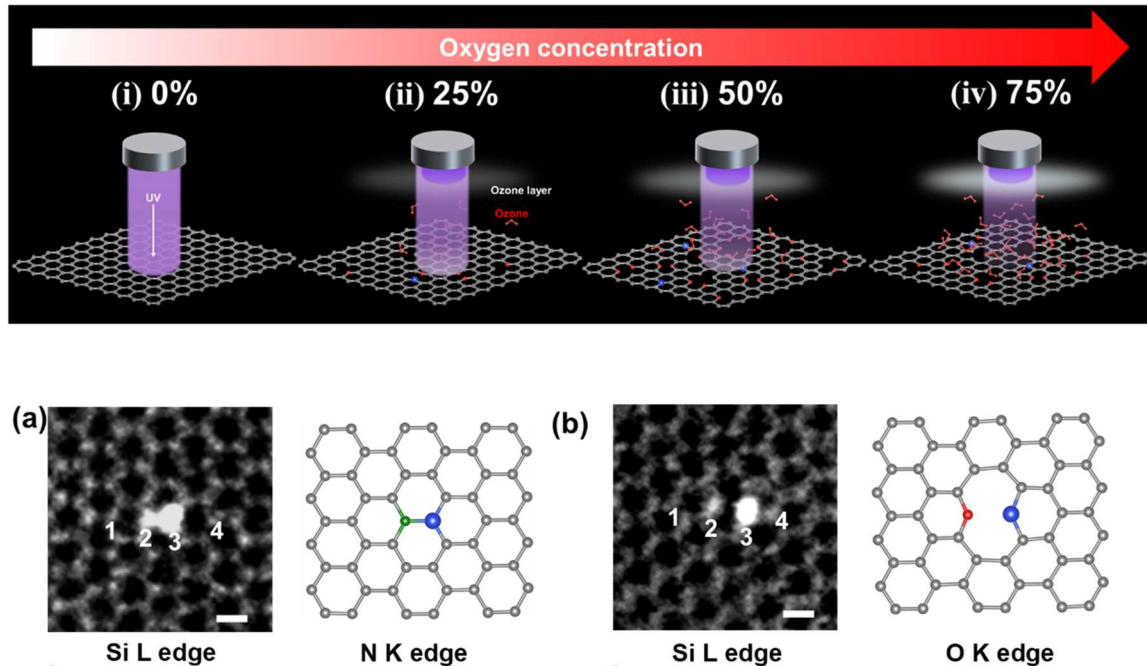


図 3-⑨-2-9 (上)酸素濃度を調整した雰囲気中で紫外線照射することによるグラフェンへの原子レベル欠陥形成法の概念図、およびこの手法によりグラフェンに導入したシリコンと窒素(下 a)、シリコンと酸素(下 b)の透過電子顕微鏡像。

並行して本項目では、グラフェンや $h$ -BN等の二次元材料の電子デバイス利用に向け、その電気的特性評価用Test Element Group(TEG)の構造及びその製造プロセスの検討を行った(九州工業大学グループ担当)。これにより評価に適したTEG構造を明らかにするとともに、TEGの製造プロセスの開発に成功した。グラフェンに関しては、グラフェン上に原子や分子の吸着による特性変動を抑制するためグラフェン上にパッシベーション膜を堆積する構造が有効であることを見出し、また $h$ -BNに関しては図3-⑨-2-10に示すように、加工や電極の形成を可能とした。



図 3-⑨-2-10 ドライエッチングにより加工した  $h$ -BN のパターン



本項目ではグラフェンのロールツーロール高スループット合成技術と高品質転写技術、計算によるグラフェン合成プロセスで生じる不純物ドーピング、うねり・凹凸等ワーピングに対する電気伝導度の予測、さらにその特性計測のデータと合わせての導電性阻害要因の絞り込み、グラフェン/*h*-BNヘテロ積層による高移動度発現、グラフェンの残留ひずみと移動度の関係解明、グラフェン等二次元材料の原子レベル加工法の開発などにより試作回数・開発期間の1/20短縮を達成した。

## 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 複合材料において、所望の物性を発現するために適切な CNT、添加物等を得ることが可能となるプロセス技術を確立する。確立したプロセス技術を用いることによって、機械学習等で予測される物理・構造特性を有する CNT 膜・複合材の組成・製造を行うことで、材料開発時間の 1/20 達成に貢献する。

#### ■ 研究開発の成果

所望の物性を発現するために適切な CNT 膜および複合材を得ることが可能となるプロセス技術を開発した。さらに機械学習による特性予測をおこない、逆問題への回答例を示すことに成功した。なお、本研究課題で得られた CNT 膜および複合材の配合条件と電気特性等のデータは DPF へ提供され、MDPF・コンソーシアム運用の基盤情報として活用される。具体的には以下に示すとおりである。

#### (1) CNT 複合膜の構造・特性制御

##### (a) CNT 複合化によるネットワーク構造および物性の制御

カーボンナノチューブ(CNT)は炭素からなる細長いチューブ状の一次元ナノ材料であり、そのネットワーク構造によって、CNT 複合材料を含む CNT 構造材料の特性がおおよそ決定される。それゆえ、CNT の形成する構造と、その構造体が見出す特性との相関を見出すことは、所望の特性を示す材料創製を目指す上で極めて重要となる。本テーマでは、CNT により構成されるバルク材料のうち、CNT のみにより形成される CNT 膜を題材に検討を開始した。異なった CNT ネットワーク構造を実現するためのアプローチとして、ある種の CNT と、それとは物性の異なる別種の CNT をもう一種のフィラーとしてブレンドされた CNT 複合膜を作製した。異種の CNT 分散液同士を混合し、その混合分散液を濾過することによって CNT 複合膜を作製して、ネットワーク構造および物性を評価している。ここでは、8 種類の CNT(FloTube 9000、K-nanos 100p、JC142、SG-CNT、CoMoCAT CG200、AST-100F、Tuball、eDIPS EC2.0)を用い、CNT の代表的な物性である導電率の制御を目的として CNT 膜を作製し、得られた膜のネットワーク構造についても観察を行った。得られた CNT 複合膜の微細構造は、それぞれの CNT がある程度の大きさのドメインとなり、それぞれ区別できる形であることを確認した(図 3-⑨-3-1)。CNT 複合膜の微視的特性はこのようにそれぞれ単体 CNT の構造が強く反映されているが、バルクの物性としては元となるそれぞれの単体 CNT 膜の物性と混合比によって連続的に変化することが分かり、例えば FloTube 9000 と eDIPS EC2.0 の組み合わせにより、導電率を 5.9 S/cm から  $3.6 \times 10^2$  S/cm までの範疇で調節できることが分かった。また、種々の CNT の組み合わせにより、より細やかな導電率の調整ができており、所望の特性値に従って材料設計できる可能性を示唆している(図 3-⑨-3-2)。CNT 膜の導電率を変化させる手法としては一般に、CNT 分散時における分散条件を最適化することや、得られた CNT 膜を高圧でプレスすることなどが知られているが、変化の程度は数倍程度の範疇に収まる。本手法においては最大値が最小値の約 60 倍の幅の中で導電率を調整できることを示した。また、CNT の特徴として高い熱伝導性も挙げ

られ、それについて熱拡散率を尺度として比較を行ったところ、図 3-⑨-3-3 のような導電率との相関が見られた。この相関について詳細は不明ではあるが、例えば CNT の結晶性は電気伝導における電子輸送特性に、また熱伝導におけるフォノン伝導に影響しているため、結晶性の高い CNT からなる構造体においては導電率および熱拡散率の両方が高まるということが考えられる。実際にラマンスペクトルにおける G バンド(グラファイト構造に由来)および D バンド(構造中の欠陥等に由来)の比である G/D 比を評価すると、結晶性の尺度である G/D 比が高い領域では導電率および熱拡散率の両方で高い値を示すことが確認された。これは、電気伝導および熱伝導の両方を用いるアプリケーション(例として面状発熱体など)において重要であると考えられる。

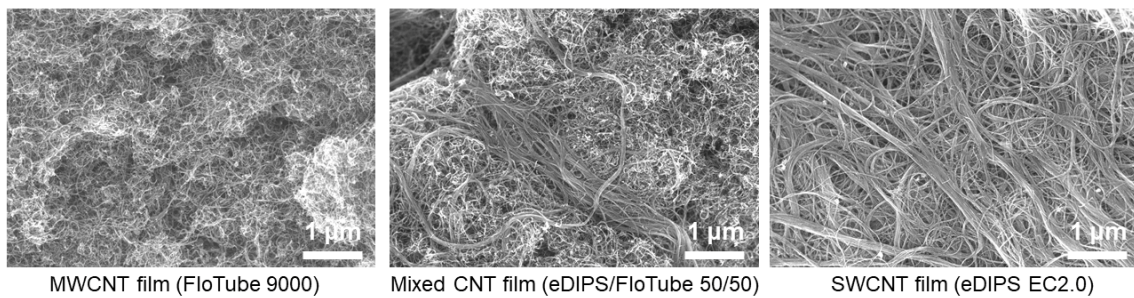


図 3-⑨-3-1 単体および CNT 複合膜の SEM 画像の一例

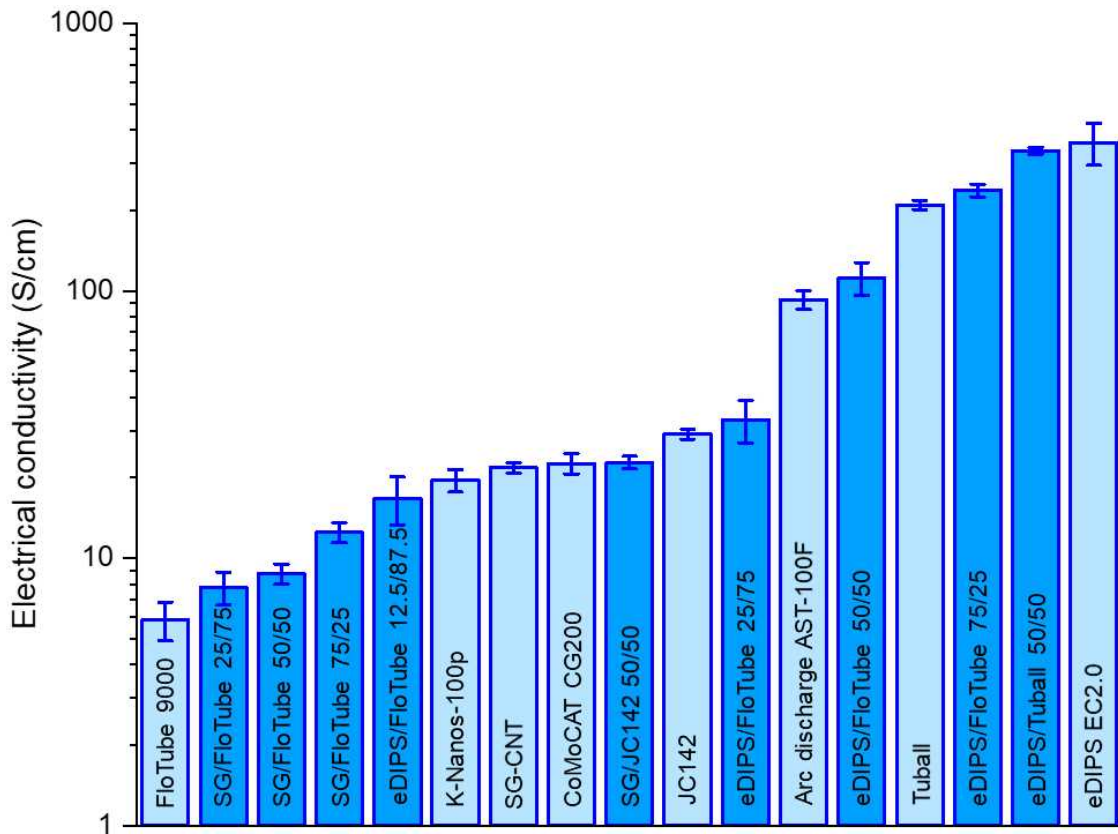


図 3-9-3-2 種々の単体および CNT 複合膜における導電率

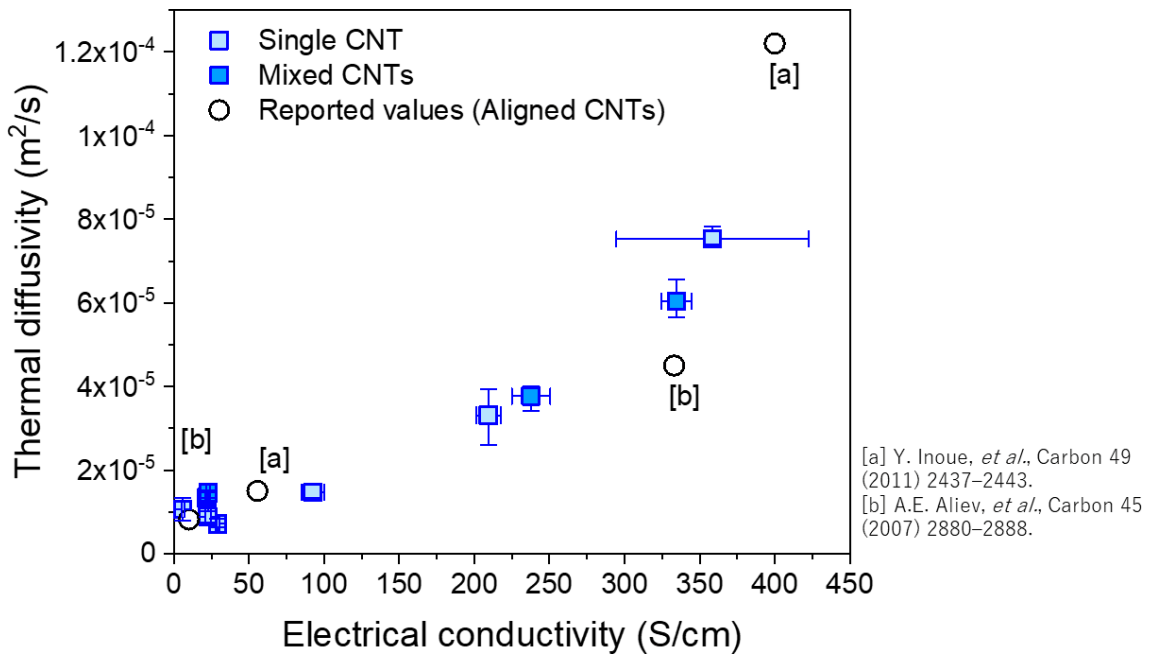


図 3-9-3-3 種々CNT 膜の導電率および熱拡散率の相関。[a]および[b]は文献からの値

(b) CNT 複合膜による電気二重層キャパシタの創製

前項における CNT 膜の検討により、CNT 同士をブレンドすることで得られた CNT 複合膜の物性を制御できることが明らかになった。このようにチューニング可能な導電率を活かすことが

できるアプリケーションとして、本項においては水系電解液を用いる電気二重層キャパシタの、電極材料としての応用を試みた。前項と同じ手法で CNT 膜を作製し、セパレータを CNT 膜、白金集電体の順で挟む形でセルを組んだ(図 3-⑨-3-4)。得られた種々の CNT 膜系キャパシタの物性の一例として、定電流充放電から算出されたエネルギー密度およびパワー密度をプロットしたグラフ(Ragone プロット)が図 3-⑨-3-5 である。これを見ると、破線で示された単体 CNT 膜系よりも、CNT 複合膜系の方がパワー密度(横軸)において高い値を示していることが分かる。パワー密度の向上によってより高速な充放電が可能となるため、電極材料への CNT 複合膜の利用は非常に有望であるといえる。このような CNT 同士のブレンドによるキャパシタ特性の向上の要因を探るため、キャパシタ特性に大きく影響する膜の細孔特性を評価した。SEM による構造観察に加え、窒素吸脱着測定によって求められる細孔径分布(BJH 法)による評価を行った。細孔径分布(図 3-⑨-3-6)を見ると、例えば結晶性の高い eDIPS EC2.0 などにおいては細孔容積が小さいこと、多層 CNT などにおいては 50-200 nm あたりの領域で細孔容積が大きいことなどが確認できる。また、CNT 複合系においては用いた単体系の両方の特徴を示すような分布となっている。電気二重層キャパシタにおいては電極表面における電気二重層を形成するイオンが動作中に電極内細孔を移動する必要があり、細孔のサイズおよび容積はキャパシタ特性に強く影響すると考えられる一方、電極材料そのものの導電率も、電極内部に蓄えられる電荷の移動の容易性に影響すると考えられる。このようなことから、細孔容積および導電率の関係を見たのが図 3-⑨-3-7 左である。まず単体 CNT 膜に着目すると、導電率の高い系は細孔容積が低く、一方細孔容積が高い系は導電率が低いものに限られることが分かった。他方、CNT 複合系においては、CNT 種の適切な組み合わせにより、単体系では得られない、比較的高い導電率と細孔容積の両立が可能な系が存在することが分かる。また、同じプロットにおいて、最大パワー密度のヒートマップを重ねると(図 3-⑨-3-1 右)、グラフ上で右上に行くほど最大パワー密度が高いことが示された。これは、導電率と細孔容積はそれぞれ一方のみの向上では最大パワー密度の向上へつながらず、両方の向上によってはじめて最大パワー密度向上が実現できる、という可能性を示している。この結果は、高速充放電を目指すキャパシタの設計時において重要な指針となると考えられる。本テーマにおける成果によって、CNT の形成するネットワーク構造がキャパシタ特性という、実用的な特性と密接につながっていることを実証した。

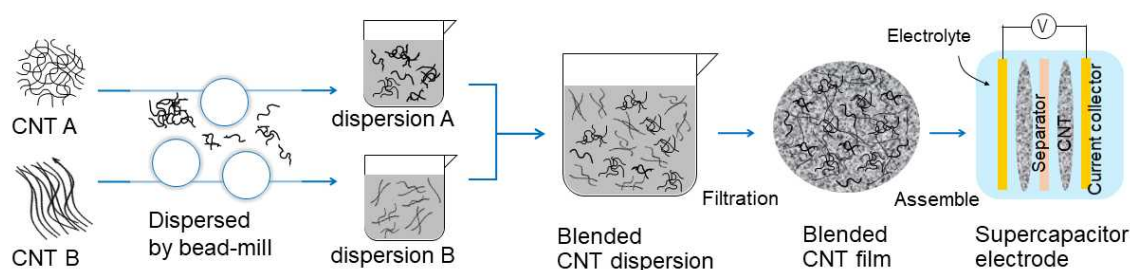


図 3-⑨-3-4CNT 複合膜を用いた電気二重層キャパシタの模式図

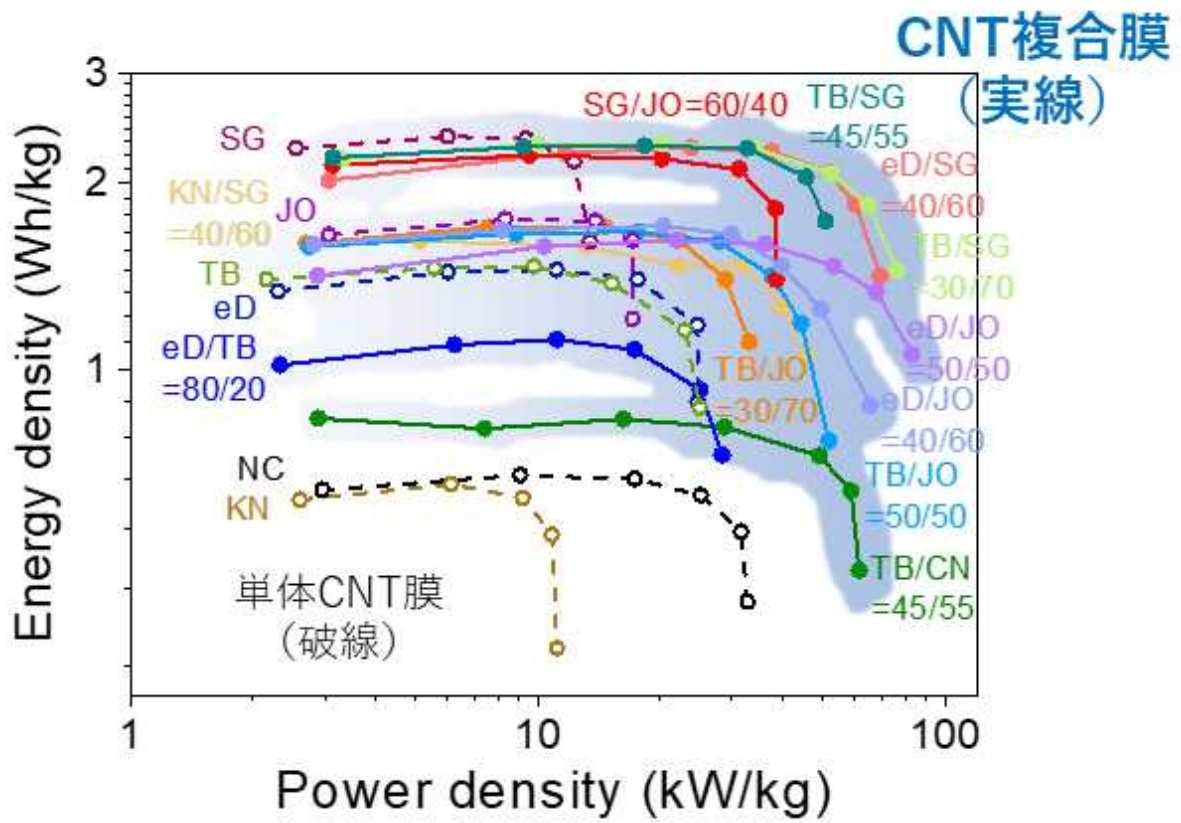


図 3-⑨-3-5 種々の単体 CNT 膜および CNT 複合膜を用いた場合のパワー密度およびエネルギー密度の相関(Ragone プロット)

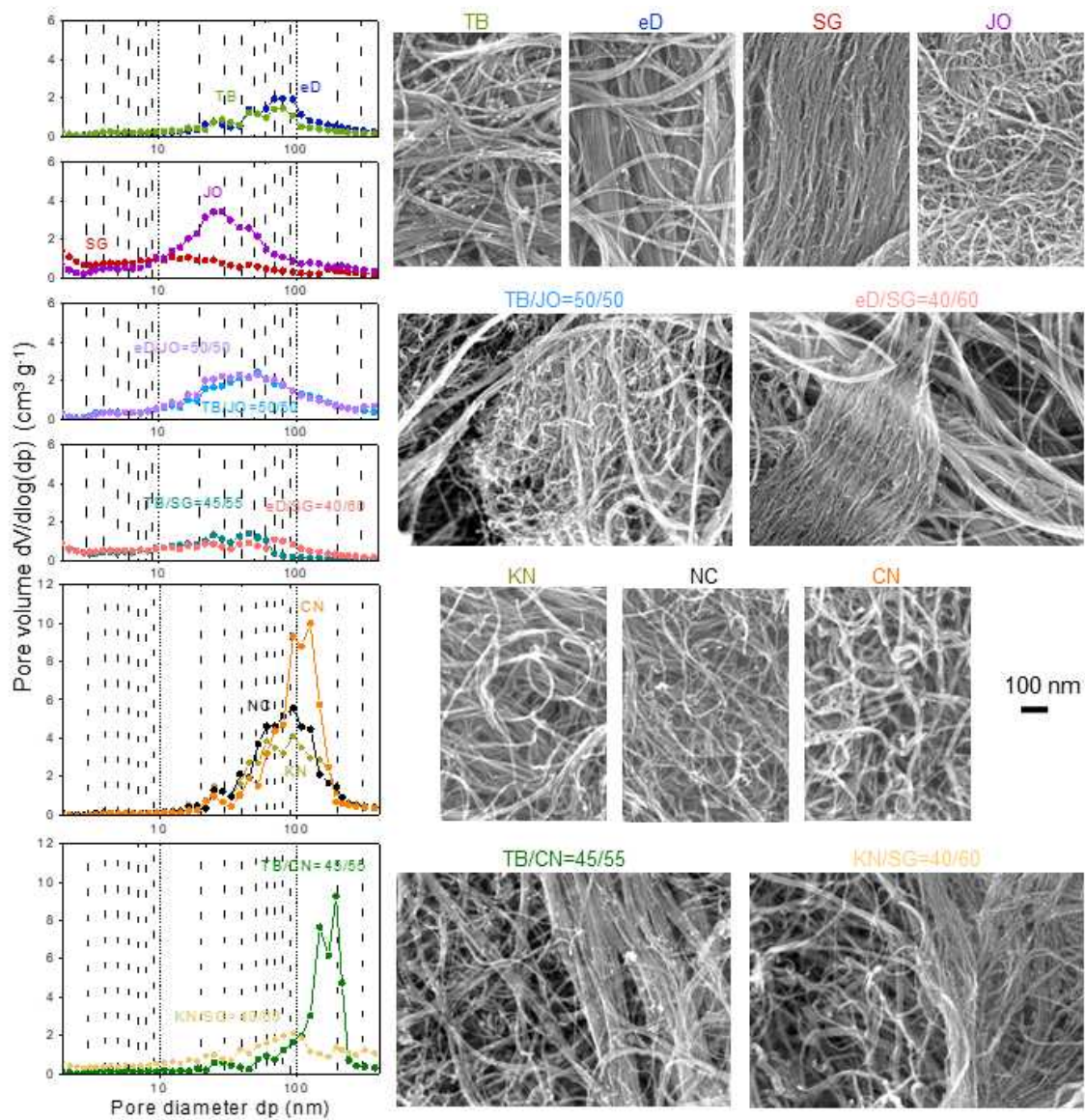


図 3-⑨-3-6 種々CNT 膜における窒素吸脱着測定から求められた細孔径分布 (BJH 法) および SEM 観察像

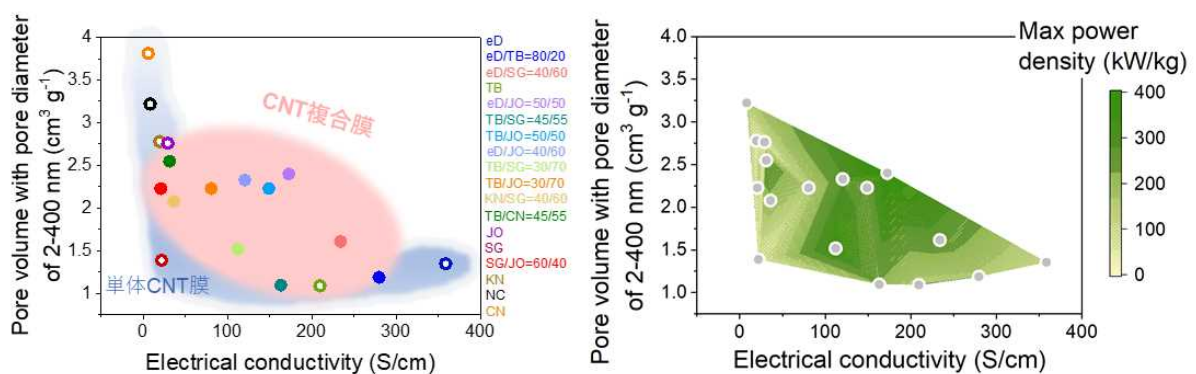


図 3-⑨-3-7 種々CNT 膜における導電率と細孔容積の相関、および最大パワー密度のヒートマップ

### (c)深層学習による CNT 複合膜の仮想実験と逆設計

(a)及び(b)で示したように、CNT 複合膜はネットワーク構造に由来した構造を制御することが可能であり、部素材としての特性を大きく変化させることが可能である。CNT の構成要素は炭素原子であるが、チューブ状の CNT が多数束ねられたバンドル構造が絡まりあってネットワークを形成する階層構造を持ち、そのいずれのスケールの構造も材料のバルク特性に大きく影響を及ぼす。一方でこのような CNT に代表される複雑な構造をもつ材料系は、従来の低分子や無機といった材料系と異なり、単純な構成原子等に由来した記述子を算出できないため、データ駆動型の材料開発が極めて困難とされてきた。本テーマにおいてはこうした従来開発期間短縮が困難な非常に複雑な構造を持つ材料系に適用可能な手法を目指し、事業内容③、⑬-3と連携し、新規な仮想実験法に関して検討した。そこでアプローチとして、CNT が分散した構造自体を入力とした深層学習モデルを構築し、組成、構造、特性の一連の現実の流れを模倣した“仮想実験法”を提案し、複雑な材料系へ展開可能なフレームワークであることを実証した(図 3-⑨-3-8)。事業内容⑨-3 で作成した種々の配合条件の異なる CNT 複合膜の構造を事業内容⑬-3 においてナノスケールの微細構造のデータを取得し、深層学習の一種である敵対的生成ネットワーク(GAN)に学習させた。学習済みの GAN モデルは所望の配合条件を入力させると、対応した材料構造を生成可能になった。生成された構造と材料特性の関係をニューラルネットワーク(ANN)で学習させることで、所望の配合条件から構造生成・特性予測を一気通貫に実施可能になった。例えば数千もの非常に多数の配合においても、本手法を用いることで導電率や比表面積が数時間オーダーで予測することが可能になった。一例として 2 種または 3 種の CNT を組み合わせた CNT 複合膜の場合、1716 条件における構造を生成し、特性を予測する仮想実験を行った結果を示す。実際の実験においては CNT 複合膜の試作から評価に至るまでに合計で約 31.5 時間を要する。仮に 1716 条件実験を行うと 31500 時間がかかることになる。今般深層学習モデルに学習させるために、CNT 単独またはブレンドを 17 サンプル作製と評価を行った。学習用のサンプル作製と評価に約 535.5 時間、GAN 及び ANN に学習させて学習完了後に 1716 条件の予測結果を出力するまでに約 100 時間かかっている。したがって、実際の実験と比べて約 85 倍の開発期間の高速化、98.8%もの時間を短縮することに相当する、極めて開発期間短縮効果の高い新たな基盤技術を開発したといえる。また、これらの多量の配合条件における特性を予測するだけでなく、配合における経済性も予測し、特性が同等であっても最も安価で経済性に優れた条件を逆設計することが可能になった(図 3-⑨-3-9)。このように深層学習を用いて極めて高速に特性を予測することに加えて、経済性を含む非常に多様な制約の中で所望の材料をどう作るのかに関する定量的な指針を得ることを可能にした。



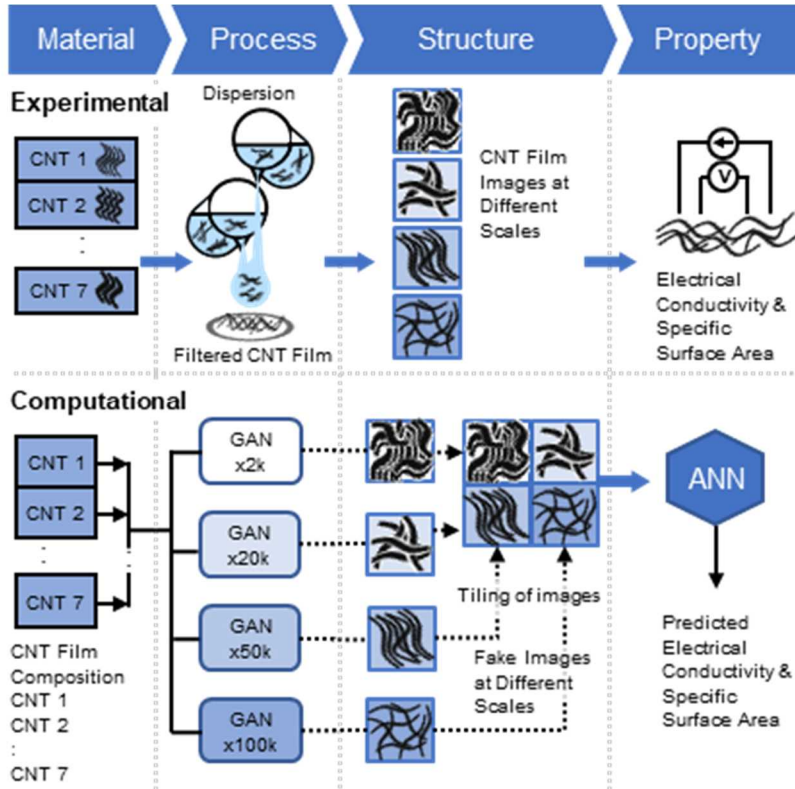


図 3-⑨-3-8 本テーマで提案する現実の実験の流れを深層学習及び敵対的生成ネットワークで模倣した仮想実験技術

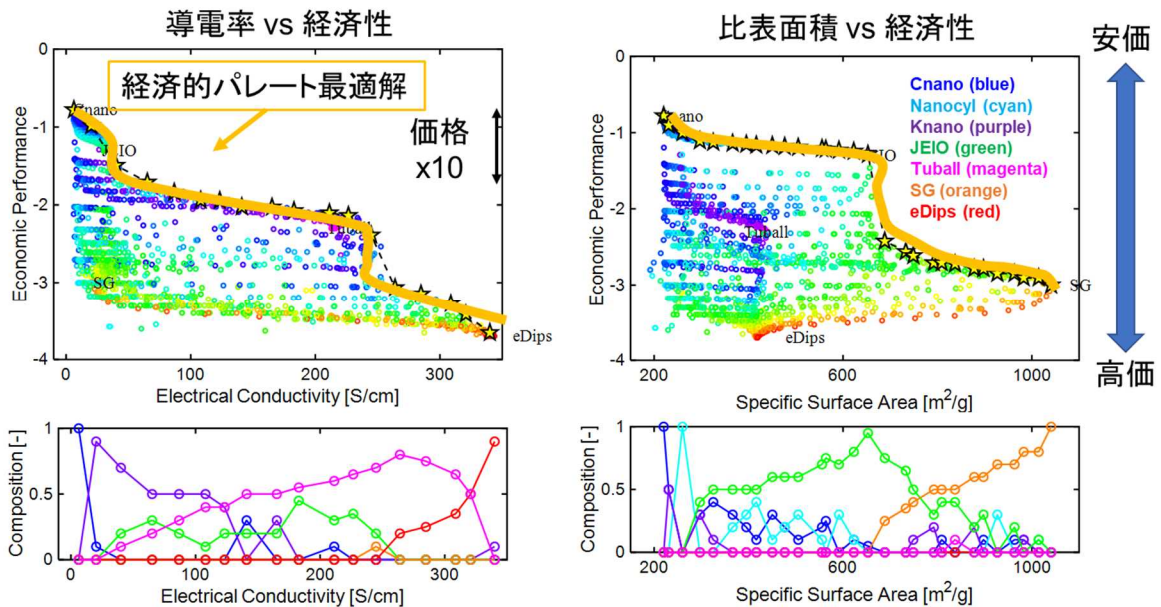


図 3-⑨-3-9 深層学習による物性予測結果と CNT 複合膜の経済性の比較による経済性最適配合の逆設計

## (2) CNT/高分子複合材料の構造・特性制御

### (a)CNT 表面改質技術

高分子などの別種マトリクス中に CNT を分散させることを考えた場合、CNT の表面エネルギーを制御することは重要である。CNT の表面エネルギーを変化させる手法として、我々は乾式での CNT 表面改質に取り組んだ。ここで用いる方法は、図 3-⑨-3-10 に示す通り CNT 表面に存在する官能基を真空下・高温で脱離させてラジカルを発生させ、真空を保ったまま室温へ戻したのち、ラジカルと反応する試薬を蒸気として導入することによって付加させる手法となる(R. Menzel *et al.*, *Chem. Sci.*, **2010**, 1, 603-608 参照)。実際に CNT 膜へ利用した一例として、アクリロニトリルの付加を試みた結果をここで示す。図 3-⑨-3-11 に得られた CNT 膜の SEM 観察および EDS スペクトルにおける N 原子のマッピング、および EDS スペクトルを示す。これを見るに、アクリロニトリルに由来する N 原子が CNT 膜上に存在しており、スペクトル上においても通常の CNT 膜と比較して明らかに N 原子に由来するピークが確認できることが分かる。この手法は、ラジカルとの反応性を有する試薬に広く活用できると考えられる。こうした CNT 表面改質技術によって高分子等のマトリクス中における分散構造を広く制御することが可能になった。

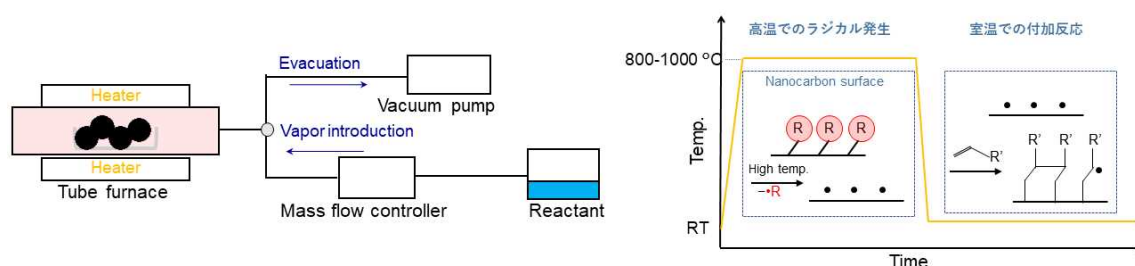


図 3-⑨-3-10 CNT 表面改質技術の模式図

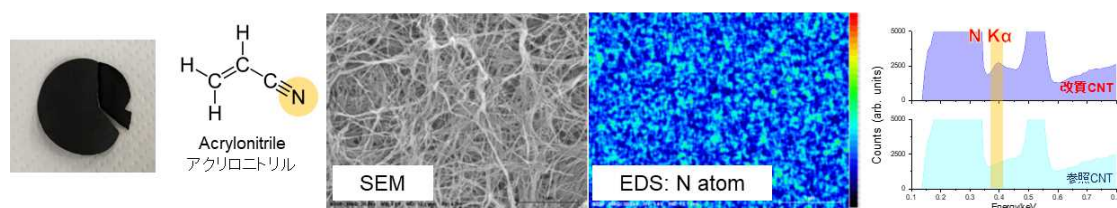


図 3-⑨-3-11 表面改質 CNT 膜の一例。EDS により、アクリロニトリルに由来する N 原子が CNT 膜上に存在していることがわかる

### (b)CNT と異種フィラーとの複合化

一次元ナノ材料である CNT において近年、グラフェン様材料などの二次元ナノ材料などとの複合化により、シナジー効果を創出する研究が試みられている。前項における、異種 CNT 同士を組み合わせる”ブレンド”による CNT 複合膜でのキャパシタ特性の向上も、そういったシナジーの一例であった。ここでは、グラフェンナノプレートレット(GN)と CNT の複合化を試みた。図 3-⑨-3-12 に示す通り、単層 CNT である SG-CNT および GN をメチルイソブチルケトン中へジェットミルを用いて分散させ、フッ素ゴムのメチルイソブチルケトン溶液中に加えたのちに乾燥さ

せることで複合材料を得ている。得られた複合材料の中において、最も特徴的な例である GN 10 wt%と SG-CNT 0.10 wt%を組み合わせた場合の結果を示す。図 3-⑨-3-12 に示す通り、GN 10 wt%のみ、また SG-CNT 0.10 wt%のみの複合材料と比較して、SG-CNT と GN を組み合わせた場合には導電率が大きく向上していることが分かる。これは、GN 間を少量の SG-CNT がつなぐことによって効果的に導電パスが形成された可能性が示唆される。



図 3-⑨-3-12 CNT/グラフェンナノプレートレット複合材料作製の模式図および得られた複合材料の導電率の一例

### (c) 深層学習によるフィラー分散構造からの複合材料特性予測

(a)での CNT 表面改質、2-2 での異種フィラーの複合化といった処理を行うことによってフィラーがマトリックス中に分散した構造は大きく変化する。複合化した材料の開発期間短縮のために、本テーマではフィラーの分散構造の「画像」を入力として複合材料の物性を予測可能な深層学習モデルを構築し、所望の物性の逆設計に向けた技術に関して検討した。事業内容⑨-3において種々の配合条件でマトリックス中に分散させた複合材料を試作し、事業内容⑬-3においてフィラーの分散状態を光学顕微鏡で測定した。得られたデータから顕微鏡画像を入力として力学物性・電気物性を出力とするデータセットを構築し、深層学習の 1 種である畳み込みニューラルネットワーク(CNN)に対して構造と物性の関係を学習させた(図 3-⑨-3-13)。所定のスケールのフィラー分散状態を充分情報として有する画像を学習させた場合に、非常に優れた予測精度を有することが明らかになった。これによって複合材料中における材料の分散状態を制御した材料開発を極めて迅速に行うことが可能になった。このようにして本テーマにおいて、従来の元素や化学結合を用いた記述子による機械学習を適用できないような CNT 複合膜や高分子複合材料においても、画像といった材料の特徴を内包する計測データから深層学習によってうまく特徴抽出することで予測結果に基づく仮想実験が可能になり、材料開発の期間短縮が可能になることを示した。

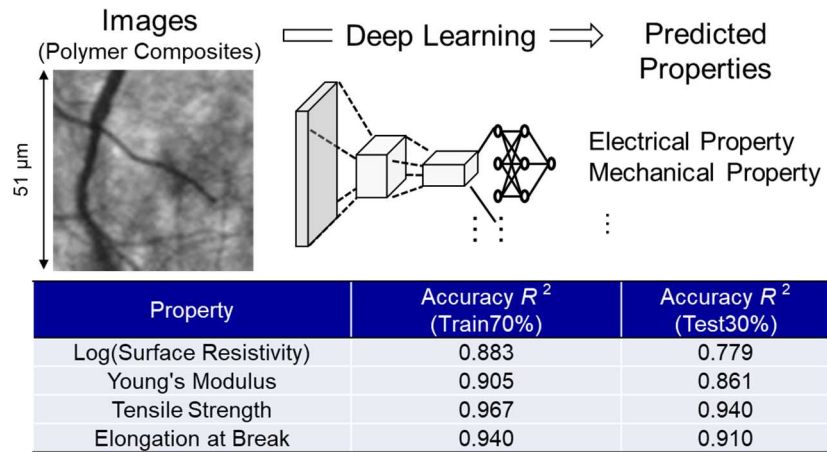


図 3-⑨-3-13 フィラー分散構造画像を入力とする深層学習を用いた複合材料の特性予測

### 3.2.2 研究開発項目[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	最終目標 (2021年度末)	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	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	<ul style="list-style-type: none"> <li>・和周波分光では、種々の環境下で表面・界面の構造を迅速に評価・解析するシステムを構築し、有機半導体デバイス中のキャリア空間分布や有機・無機ハイブリッド薄膜材料での有機イオンの配列構造などを明らかにした</li> <li>また、高面圧剪断応力を印加可能な測定系を開発し、圧力による試料液の振動スペクトルの変化を確認した</li> <li>さらにATR測定からは添加剤の反応が示唆された</li> <li>・ナノプローブ分光では、ナノ材料の局所赤外分光、デバイス動作中の電位分布測定、温度可変試料台を用いた相変化材料評価、弾性材料の応力下粘弾性分布測定などの機能を有する計測システムを構築した</li> <li>さらにメタデータを追加入力できるソフトウェアを開発した</li> <li>また、個々のナノ粒子の精密な3次元形状を取得し、ナノ粒子吸光スペクトルの再構築に貢献した</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	<p>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</p>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・STEM装置を用いて、試料と電子線との相互作用により発生する非弾性散乱電子や特性X線を分光し、EELSおよびEDXスペクトル情報の取得の高感度化・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</li> <li>・STEM-EDXトモグラフィーによりポリマー系で初めて3次元EDX元素マッピングに成功し、コンポジット材料の複雑な構造を3次元で明らかにすることが可能となった</li> <li>・STEM-EELS/EDX同時取得により、X-Y構造に加えて、元素組成(E)と化学構造(C)のX-Y-E-Cの4次元データの取得が可能となった</li> <li>・解析データはADMATによる計算シミュレーションとの連携により、ゴム材料(③)、ポリマー系コンポジット材料(⑦)の構造発現メカニズムに関する検討を進めた</li> </ul>	○
	2.陽電子消滅法とX線CT	nmからμm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	陽電子プローブ制御パラメータが最適化された計測装置や、エネルギー分別機能を強化した高速化X線CT計測技術によって、nmからμmまでのマルチスケール構造解析技術により、AI用データを提供した	○
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およびNMR計測において、in-situ計測・解析が可能なフロー型リアクターを設計し、高感度で反応生成物等を測定する	<p>XAFSおよびDNTPによる固体NMRの高感度化を行うことで、各々の計測に対して、in-situ計測・解析が可能なフロー型リアクターを設計し、高感度で実用材料を精密かつ高速に構造解析するための測定手法を開発した</p> <p>さらに、これらの測定データを課題⑤および課題⑧と協力して、高性能触媒および高機能材料の開発法を構築した</p> <p>これにより、触媒や材料の開発スピード20倍を達成した</p>	○	
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	CNT線材の導電性メカニズムを明らかにするとともに、AI用データを提供する。さらに、高速化・自動化された計測技術を開発する。	CNT線材の導電率について、CNTの長さ(有効長)およびCNTの充填密度との相関が高いことを見出し、さらに電気伝導度の温度変化測定から、伝導メカニズムを解明した。また、CNT長さ(有効長)については遠赤外分光法により、約20倍計測時間を短縮できることを見出した。	○
	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	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	本項目では、開発した計測技術を用いて材料特性の計測データを提供し、形状に伴わない電気的な特性について解析を進め、これらをプロセス条件の探索に利用することで、グラフェン等二次元材料の試作回数・開発期間の短縮に貢献した	○
	3.CNT複合材料評価に関する基盤技術開発	表面状態評価法と空間分布評価法を実用材料への展開を行うとともに、機械学習用のデータを構築し、組成・プロセス条件最適化と逆問題解決の実例の提示に貢献する	SEM/EDSによるCNT表面状態を10 nm以下の空間分解能で評価する手法を確立し、CNT膜、複合材、カーボンナノホーンへの適用に成功した	◎

【研究計画(線表)】

事業内容	2016年度				2017年度				2018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)コンポジット材料の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				
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					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								
					表面状態の評価					モデル試料(グラフェン/h-BN)計測			
									フィラーの分散状態の評価				

事業項目	2019年度				2020年度				2021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	その場計測・解析技術の高度化				データの蓄積と構造と物性の相関因子の抽出							
	物性測定範囲の拡大と測定精度の向上				光・電気・機械物性の多物性値測システム				計測データプラットフォーム			
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												
1.電子分光型電子顕微鏡	4次元構造の定性データ蓄積				4次元構造情報の定量化				4次元構造情報の高効率・高信頼性化			
	スクリーニング測定の効率化				高速計測				高分解能(nm)解析			
2.陽電子消滅法とX線CT	サブマイクロ空隙構造の精密三次元解析技術の完成				X線CT計測法と計算シミュレーションの連携確立				従来法比5倍以上の高速化技術の完成			
⑫ フロープロセスの高感度・in-situ計測:フロー型XAFS及びNMR												
	各種データ蓄積				高速スループット計測技術とデータの蓄積							
	DNP-NMR測定条件、パルスシーケンスの改良及び分極剤の開発											
	in-situ XAFSによる触媒の表面・反応解析											
⑬ ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発												
1.CNT線材の導電阻害部を可視化する計測技術基盤開発	伝導特性の温度依存性評価とデータ蓄積				物性と構造の相関に関するデータ蓄積				CNT線材の導電メカニズムの解明			
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	電気諸特性の評価およびデータ蓄積				環境条件の電気的特性への影響の評価				モデル材料と製品レベルの相関とそのデータベース化			
3.CNT複合材料評価に関する基盤技術開発	表面状態、官能基及び分散状態の評価とデータベース化								表面状態・空間状態の相関性の解明とデータプラットフォーム			

## 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

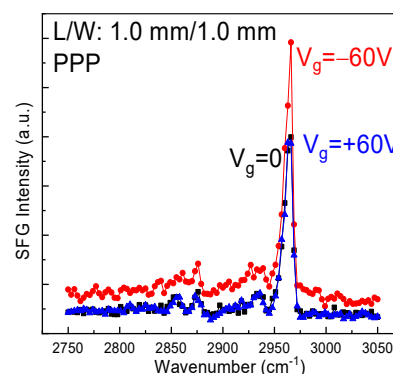


図 3-⑩-1 OFET にバイアス印加した際の SFG スペクトル



OFET はスピコート法による成膜により作製したものであるが、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。

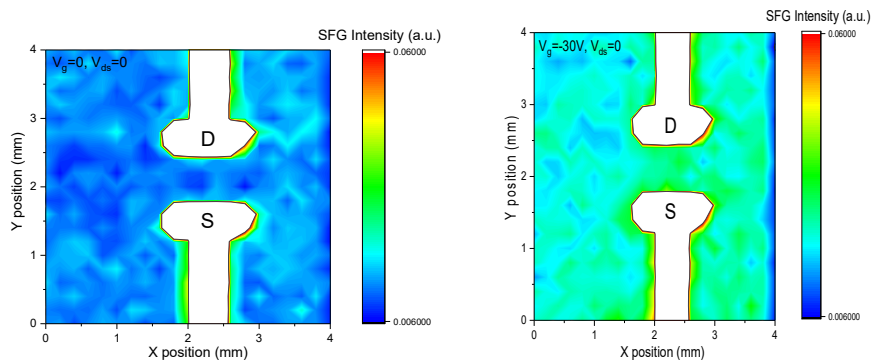


図 3-10-2 OFET の電極付近の SFG マッピング。(左)電圧オフ、(右)ゲート -30 V 印加。

OFET の電荷挙動を SFG 分光でさらに詳細に調べるため、アメリカヒューストン大学の Baldelli 教授と共同で、圧縮センシングを領した SFG 顕微鏡を用いて 2,7-diphenyl[1]benzothieno[3,2-b][1]benzothiophene (DPh-BTBT)を半導体層に用いた OFET を駆動させながら、電極付近ならびにチャンネル部の SFG 測定を行った。図 3-10-3 に絶縁層表面に形成したオクタデシルリン酸(ODPA)の末端メチル基のフェルミ共鳴強度をマッピングした測定ならびに各点におけるスペクトルを示す。開放状態に比べ(図 3-10-3 (a))、ゲート電圧並びにソース電圧を印可した際には(図 3-10-3 (b), (c))、チャンネル部よりも明らかに金電極の端での SFG 信号が増強している。このことから、ODPA/DPh-BTBT 界面において大きな電界がかかっていることが示唆された。一方、DPh-BTBT のフェニル基 C-H 伸縮振動の SFG シグナルをマッピングすると、開放状態でも強いシグナルが見えることから、DPh-BTBT/金界面で生じた電場を捉えられることも明らかとなった。

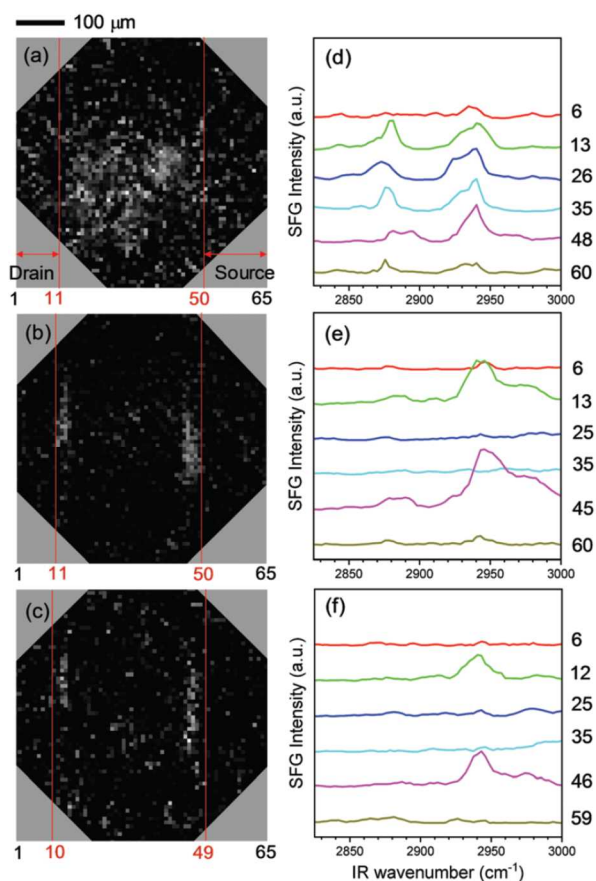


図 3-10-3 DPh-BTBT OFET 駆動中の SFG 像。(a)開放状態、(b)ゲート電圧 = -3 V、(c)ゲート電圧 = ソース電圧 = -3 V。赤線は金電極端を示す。(d)-(f)は(a)-(c)に対応した各点における SFG スペクトル。

高速化した SFG システムを利用し、トランジスタ界面以外の異種材料界面の測定も実施した。図 3-⑩-4(a)に有機太陽電池の光電変換層やバイポーラ電界効果トランジスタの半導体層として機能する、セキシチオフェン(6T)/C<sub>60</sub>接合の SFG スペクトルを示す。ガラス基板上に形成した 20 nm の C<sub>60</sub> 薄膜に比べ、C<sub>60</sub> の A<sub>g</sub> モードの SFG 信号が 6T と界面を形成することで著しく増強することを見出した。この現象を説明するために、6T/C<sub>60</sub> 界面の分子配向を図 3-⑩-4(b)のように仮定し、密度汎関数法(DFT)を用いた分子軌道計算から電荷密度分布を計算したところ、6T と接している C<sub>60</sub> の五員環に負の電荷が出現することが分かった。この電荷が、本来ラマン活性である A<sub>g</sub> に赤外活性をも付与したため、SFG 信号が増大したと解釈できる。一方、絶縁体である長鎖アルカンを C<sub>60</sub> に蒸着しても若干の増強が観測されたため、異種分子界面を形成することで C<sub>60</sub> の分子回転が抑制され、分子配向が揃った可能性についても示唆された。

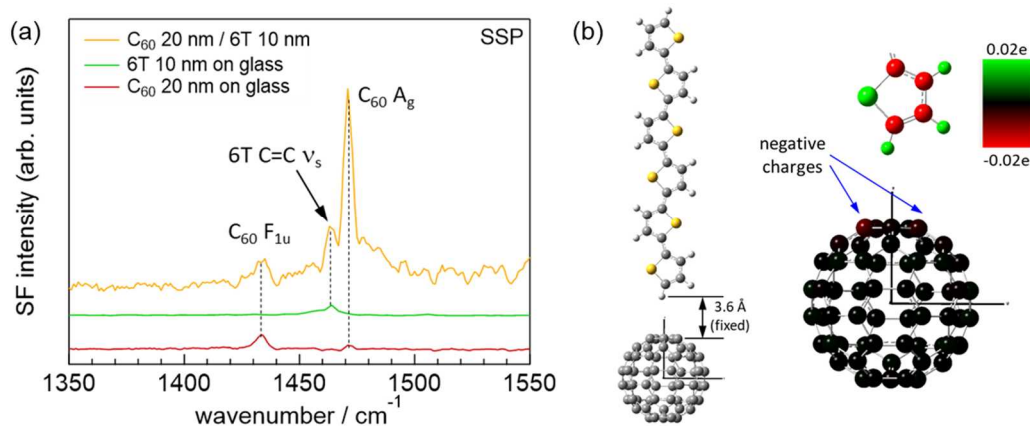


図 3-⑩-4 (a)6T/C<sub>60</sub> 接合の SFG スペクトル。(b)同分子接合のモデルと電荷密度分布。

さらに、近年太陽電池の分野で簡単に高効率が出せる有機・無機ハイブリッドペロブスカイト材料にも着目した界面測定も行った。中でも 2 次元ペロブスカイト材料の高い面内電荷移動度期待し、電界効果トランジスタを作製評価した(図 3-⑩-5(a))。その結果、ホール移動度が  $5 \times 10^{-2} \text{ cm}^2 / \text{Vs}$  に到達した。ガラス上に作製したペロブスカイト薄膜の SFG スペクトル(図 3-⑩-5(b))を測定すると、3000-3100  $\text{cm}^{-1}$  の範囲にフェニル基の C-H 伸縮振動が明確に観測されたことから、ペロブスカイトの有機カチオンが表面や界面でよく配向していることを見出した。

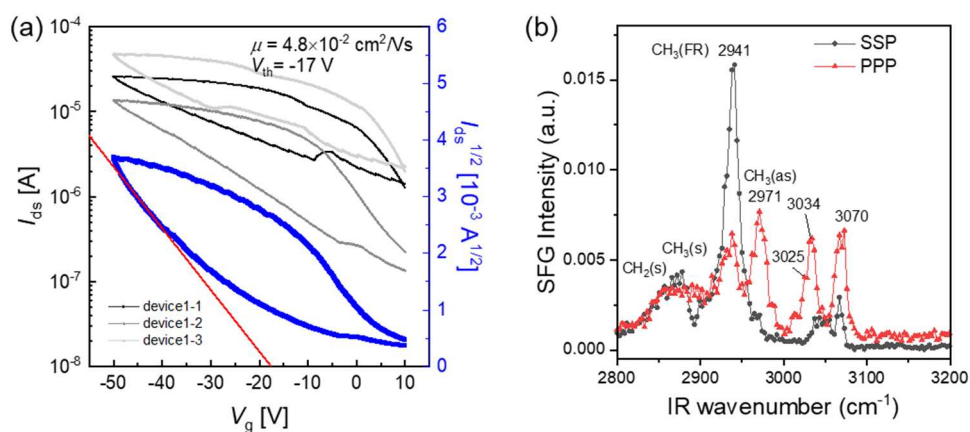


図 3-⑩-5 有機・無機ペロブスカイト薄膜のトランジスタ特性(a)と SFG スペクトル(b)。

この他、天然物質を用いた電極修飾による仕事関数制御をケルビンプローブ法で明らかにするなどの結果も得て、電極表面への吸着配向状態を SFG で部分的に明らかにした。

SFG その場観察用高面圧対応の試験機を設計し、製作した。設計した試験機の概要図を図 3-⑩-6 に示す。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。窓材としては厚さ 2mm のサファイア、対向する材料としては、実用材料である高炭素クロム鋼材 (SUJ2) 製の直径 19mm の球を用いた。測定中の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。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せた。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た。

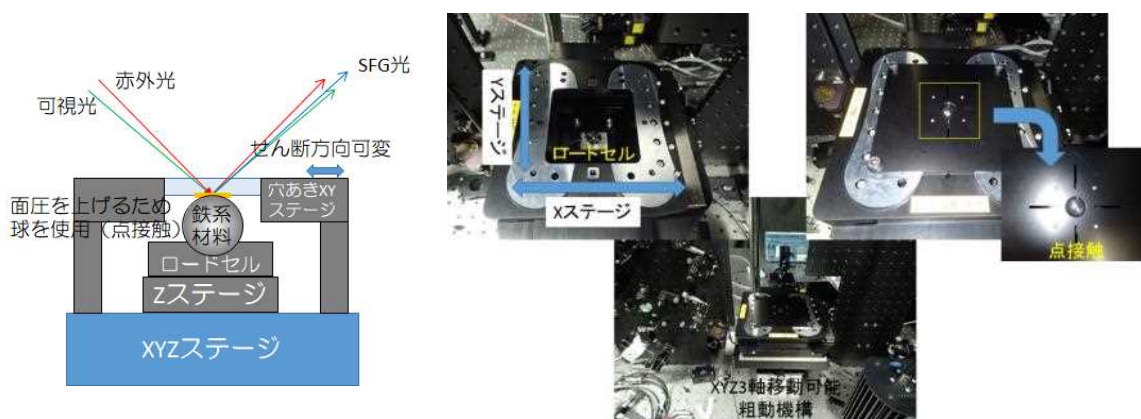


図 3-⑩-6 開発した SFG その場観察用高面圧対応のせん断機構

本試験機を用いて、n-ドデカンにステアリン酸を 0.05wt% 添加した試料の加圧下での測定を行った。サファイアと SUJ2 の間にサンプルを挟み、荷重を付加しない状態 (0N) と荷重を負荷した状態 (65N: ~1GPa) で測定を行った。低圧での挙動は、既存装置での測定結果と対応し<sup>i</sup>、高面圧下では、他研究者の報告<sup>ii</sup>と同様に、C-H 伸縮振動に関する SFG 信号の強度が全体的に低くなること、加えて、メチル基 ( $\text{CH}_3\nu_{\text{as}}$ ) に対するメチレン基 ( $\text{CH}_2\nu_{\text{ss}}$ ) の SFG 強度比が大きくなる<sup>iii</sup>ことを確認した。今後、せん断場における SFG 測定を行うことで金属表面への吸着状況を把握する。さらに金属表面への吸着や反応を DSC や ATR で解析できることも見出しており、

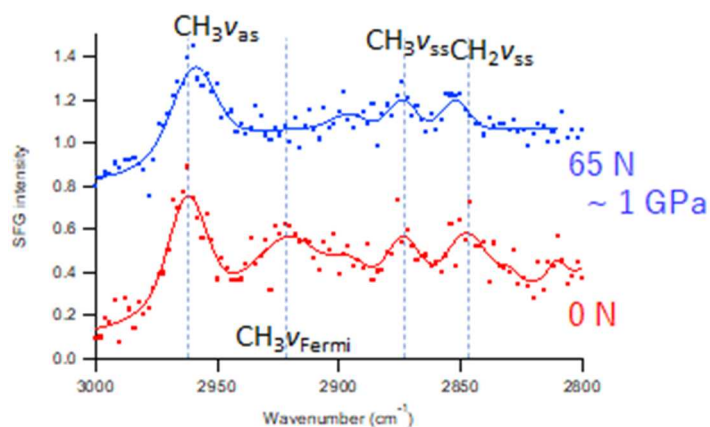


図 3-⑩-7 圧力下での SFG スペクトル

今後金属表面への有機化合物、金属錯体などの作用機構を表す物性値のデータベースを構築することで材料開発を効率的に行う基盤技術を確立できることが分かった。

<sup>i</sup> S. Watanabe, M. Nakano, K. Miyake, S. Sasaki, Langmuir 32, (2016) 13649.

<sup>ii</sup> O. Berg, D. Klenerman, J. Am. Chem. Soc., 125, (2003) 5493.

<sup>iii</sup> C. Meltzer, J. Paul, H. Dietrich, C.M. Jä Ger, T. Clark, D. Zahn, B. Braunschweig, W. Peukert, J. Am. Chem. Soc., 136, 30 (2014) 10718.

金属表面での添加剤の吸着や反応を調べるために、DSC および、ATR を用いた測定を行った。金属として鉄粉末/鉄酸化物粉末、添加剤として酸性リン酸エステル/オレイン酸を使用し、金属/酸化物粉末・添加剤の混合物を DSC 用の試料容器に入れて、熱分析を行った。また、DSC で加熱後の混合物、および、鉄基板上に添加剤を塗布した表面を用いた ATR 測定を行った。図 3-⑩-8 に鉄表面上の酸性リン酸エステルの ATR スペクトルを示す。加熱によりアルキル鎖に由来するピークが観察されなくなる一方で、リン酸基に由来するピークは、ブロードになることがわかり、鉄表面での加熱により、添加剤の反応が起きていることが示された。一方、酸化鉄表面上では、加熱の有無に関わらず、アルキル鎖に由来するピークが観察されており、基板表面の化学状態も影響することが示された。

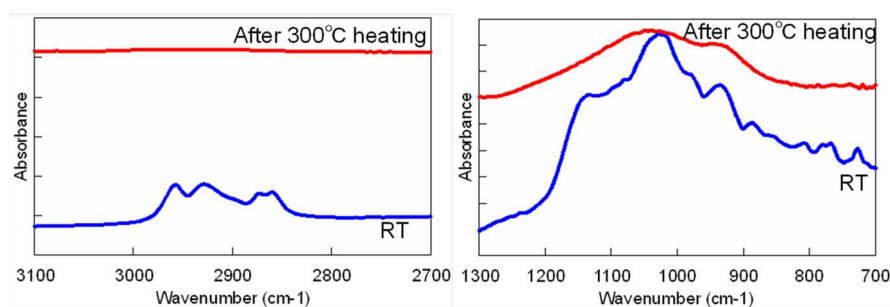


図 3-⑩-8 鉄表面上での酸性リン酸エステルの ATR スペクトル  
左図がアルキル鎖、右図がリン酸基によるピーク

## (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表面の 3 次元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。2016 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( $\text{VO}_2$  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。さらにコンポジットエラストマー材料に応力変形を起こさせた状態で粘弾性測定が行える機構を開発し、応力印

加時の各コンポジットドメインの変形について評価が行えることを確認した。AI利用に向けては、市販の AFM 装置では不足しがちなメタデータを確実に保存するためのソフトウェアの開発を行った。

走査型近接場光学顕微鏡(SNOM)を用いた光学測定について図 3-⑩-9 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、この微細な局在光電磁波により直下のナノ構造の複素誘電率に応じた光信号(散乱光)が発生する。散乱光強度を測定することで微小領域の複素誘電率に計測される。図(b)は試料として用いた有機半導体薄膜の反射スペクトルである。SNOM 測定では、共鳴( $1450\text{ cm}^{-1}$ )と非共鳴( $1650\text{ cm}^{-1}$ )の波長をもつ照射光を用いて測定を行った。図(c)が測定結果である。AFM 像からは、この薄膜がサブミクロンサイズのグレイン構造の積層構造となっていることが分かるが、グレイン端は不明瞭である。一方 SNOM 像からは、非共鳴の照射光を用いた場合はコントラストが低いが、共鳴光を用いた場合は信号強度が高く、とくにグレイン端で信号強度が高くなることが分かった。これは SNOM 信号光強度が複素誘電率だけでなく、形状によって変化することを示しており、グレイン構造を正確に評価する手法として有効であることが分かった。

試料温度を変えながら SNOM 測定をするための温調台を開発した(図 3-⑩-10(a))。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調台の開発を行った。試料としたのは相変化材料である  $\text{VO}_2$  のナノ粒子を Si 平坦基板上に分散したものである。図(b)は各温度で測定した  $\text{VO}_2$  ナノ粒子の AFM 像と同時に得られた SNOM 像(光散乱強度像)である。粒径  $100\text{ nm}$  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  $6.9\text{ }\mu\text{m}$  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  $< 100\text{ nm}$ )が測定できている。 $\text{VO}_2$  は約  $50^\circ\text{C}$  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は温度により大きく変化することはないため、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  $49.5^\circ\text{C}$  に

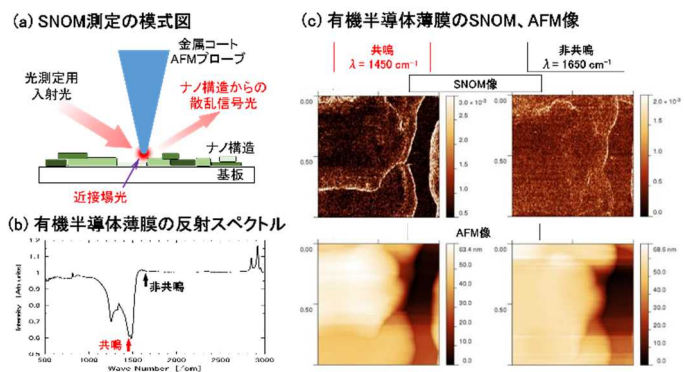


図 3-⑩-9 (a)SNOM の原理模式図、(b)有機半導体薄膜の中赤外域反射スペクトル、(c) 有機半導体薄膜の AFM 及び SNOM 像

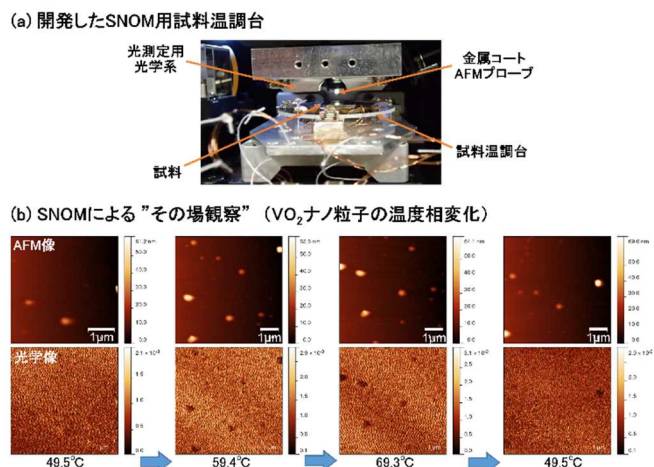


図 3-⑩-10 (a)SNOM 測定用試料温調台、(b) $\text{VO}_2$  ナノ粒子の光学特性の温度変化測定

おける光学像と 59°C以上のそれとで n ナノ粒子の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を確認できた。

次に走査型ケルビンプローブ顕微鏡(KPFM)による電位分布測定について図 3-⑩-11(a)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おペラント計測(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。デバイスの動作状態での計測では、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~+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(オペラント計測)を実現した。

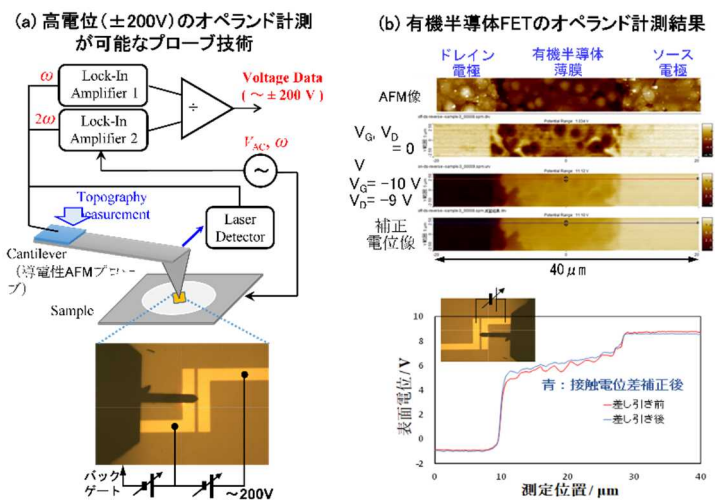


図 3-⑩-11 (a)高電位のオペラント計測が可能なプローブ技術(KPFM 測定)、(b)有機半導体 FET における電位測定の結果

この手法を用いて、有機半導体 FET デバイスにおけるソース・ドレイン電極間の有機半導体薄膜の電位変化を測定した。FET デバイスでは、ソース・ドレイン電極とゲート電極間に電圧を印加すると、ゲート電極との界面付近の有機半導体薄膜中にキャリアが発生し、ソース、ドレイン間の電位差に応じて電流が流れる。この時、本手法を用いて電位を測定することにより電気抵抗の大きい箇所、いわばデバイス内の欠陥を評価することが出来る。図(b)上図はこの手法により測定したソース電極からドレイン電極に渡る AFM 像と電位像である。ゲート電圧の印加によりキャリアが発生し、電位分布が大きく変化していることが分かる。図(b)下図はゲート電圧を印加した状態で、ドレイン電極からソース電極までの電位をトレースしたものである。この図から、両電極付近での電位の空間変化が大きい、すなわち高い抵抗領域が存在していることが明らかとなった。

次に機械的“その場”測定である応力下での粘弾性像測定について述べる。タッピングモード(短針の上下動振動を用いた原子間力顕微鏡制御方式)の AFM においては、プローブ先端の試料表面への接触によるタッピング振幅の減少がプローブの高さ制御に用いられるが、振動の位相変化からは試料の粘弾性についての情報が得られる。いわゆる位相像を測定することにより局所的な粘弾性の違いを判別することが可能である。本装置ではさらに応力印加中の状態で試料の粘弾性が測定できるように、アクチュエーター付きの試料台に試料を取り付けて AFM 測定ができるように改良を加えた(図 3-⑩-12(a))。

試料としてはイソプレンゴムとスチレン・ブタジエンゴムから成るブレンドゴム材料を用いた。図(b)左図は応力を掛ける前の試料の位相像を示す。この図からイソプレン相がスチレンブタジエン相中に島状に存在していることを明らかにした。また、図(b)右図は圧縮応力を掛けている最中の位相像である。光学顕微鏡観察では圧力方向に10%程度の収縮が見られた。一方、位相像からは、島状に存在しているイソプレン相が圧縮方向に細長く(薄く)なっている状態を明らかにした。また、この測定から、マクロな圧力方向収縮率と比較してイソプレン相の収縮率が大きいことも明らかになった。

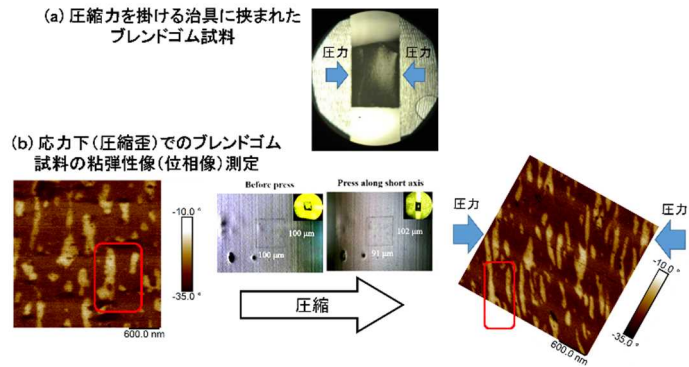


図 3-10-12 (a)AFM 測定において試料に圧縮印加可能な治具、(b)圧縮前と圧縮中に測定されたブレンドゴムの粘弾性像(位相像)

最後に、AI 用途に向けて、プローブ顕微鏡のメタデータを追加保存するためのソフトウェア開発について述べる。一般のプローブ顕微鏡では、プローブ関連の制御パラメータは残るものの、測定環境(温度、湿度)、試料の作成・処理情報、画像データの処理情報などは残らないものが多い。従来はこれらの情報をノートに記載していたが、これでは AI において処理が出来ない。そこで、プローブ制御パラメータを確認するとともに、それ以外のメタデータ情報をノートと同様に残せるソフトウェアを開発した(図 3-10-13)。このソフトウェアの特徴としては、以前に書き込んだコメントを消すことなく、新たなコメントを追加して保存する機能を有することである。これにより、試料準備、測定、画像処理などの全ての履歴を測定画像とともに残すことが出来るようになった。

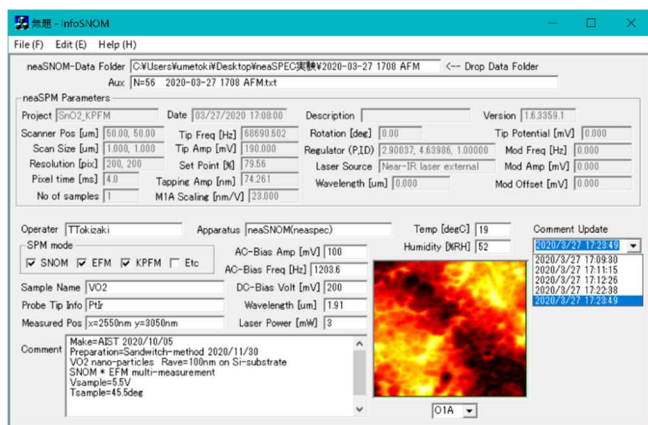


図 3-10-13 AFM のメタデータを追加保存するためのソフトウェアの操作画面

⑩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

### ⑩-1 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、ポリマーブレンドモデル試料(PVDF/PLLA)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フォロジー・界面解析を行い、物性相関に関する研究に有用な構造情報を提供した。

#### (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がポリマーと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3-⑩-1-1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℃、50 rpmで5分間熔融混練を行った。図3-⑩-1-2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。ウルトラマイクロ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。

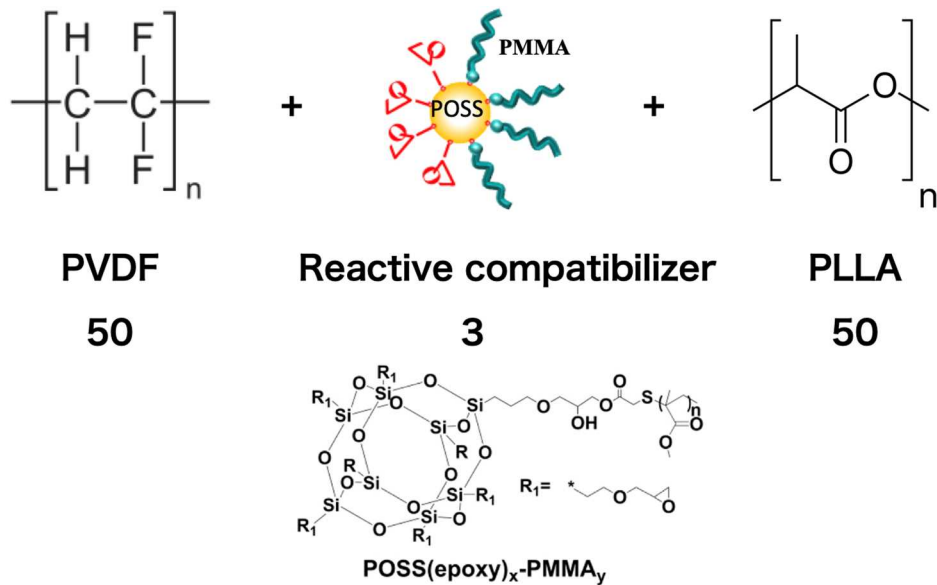
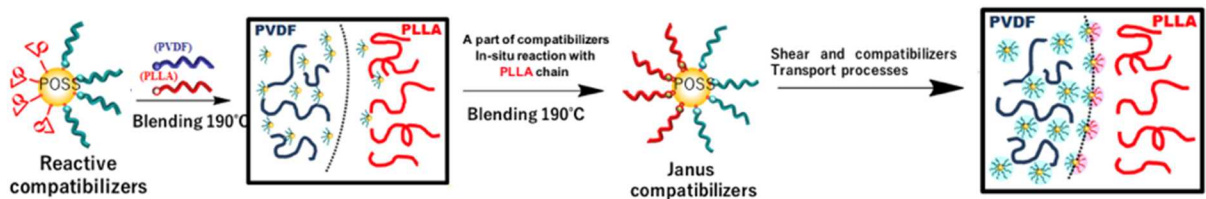


図 3-⑩-1-1 PMMA 変性かご状シリカ POSS の構造

(a) One-step melt mixing



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

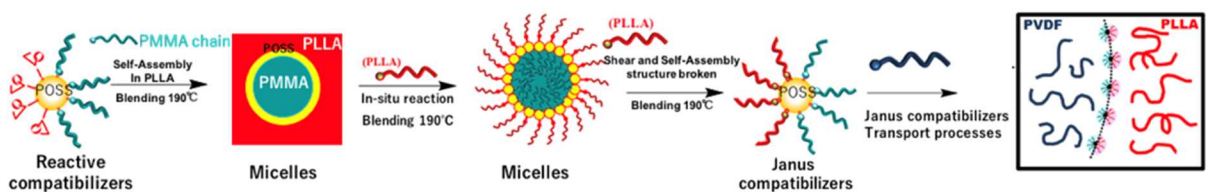


図 3-⑩-1-2 PVDF/PLLA/POSS ブレンドの溶融混練プロセス

図 3-⑩-1-3 は、PVDF/PLLA50/50 wt/wt%ブレンドの相分離構造を STEM-BF モードで観察した結果である。単純ブレンド(a)では、PVDF の粗大な分散ドメインが分散しているのに対して、POSS(epoxy)<sub>8</sub> を 3 wt%添加することにより、若干の分散性の改善が見られる。一方、PMMA をグラフト化した POSS(epoxy)<sub>8</sub>-g-PMMA を添加することにより、分散性の顕著な改善が起こる。特に、図 3-⑩-1-2(b)に示すように相容化剤を2段階プロセスで投入することにより、飛躍的に分散性の向上が達成された。図 3-⑩-1-4 はこれらの試料の歪-応力曲線(S-S カーブ)であり、two-step での混練により、降伏後の伸びが飛躍的に長くなり、材料の強靱性の向上がもたらされる。

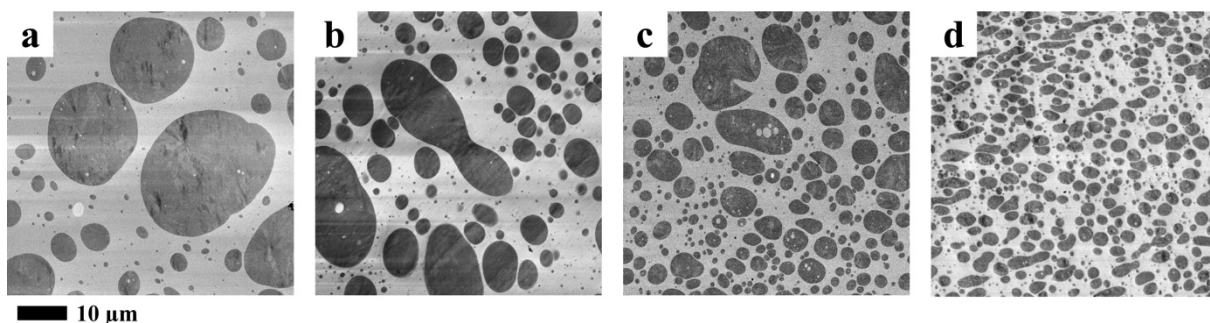


図 3-⑪-1-3 PVDF/PLLA50/50 ブレンド相分離構造における相容化剤と混練プロセスの影響: (a)相容化剤なし、(b) POSS(epoxy)8、(c) POSS(epoxy)8-g-PMMA one-step、(d) POSS(epoxy)8-g-PMMA two-step.

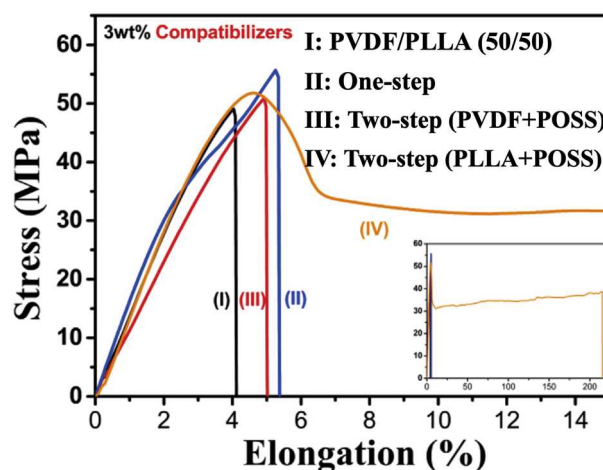


図 3-⑪-1-4 PVDF/PLLA50/50 相容化ブレンドの歪-応力曲線.: (I)相容化剤なし、(II) POSS(epoxy)8、(III) POSS(epoxy)8-g-PMMA one-step、(IV) POSS(epoxy)8-g-PMMA two-step.

図 3-⑪-1-5 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 STEM-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。

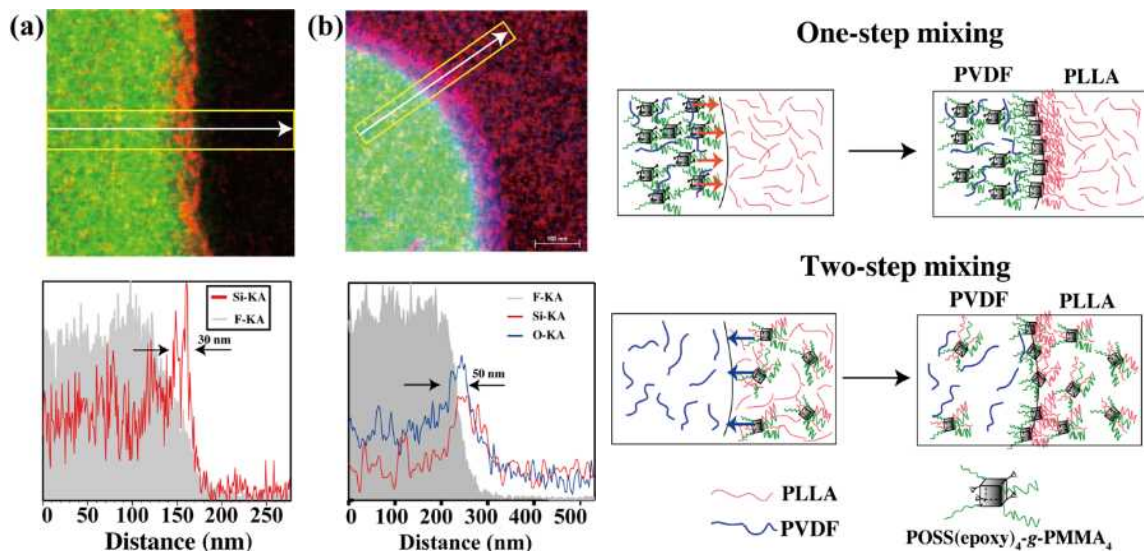


図 3-⑪-1-5 STEM-EDX マッピングによる PVDF/PLLA 界面での POSS 相容化剤の局在性の解析

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)の強度が上がるということが図 3-⑪-1-6 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 3-⑪-1-7 は、化学構造の異なる4種類のポリマーの O K-edge EELS スペクトルの照射電子線量の影響を示した。カルボニル基を有する PLLA、ポリメチルメタクリレート(PMMA)、ポリカーボネート(PC)では、低エネルギー側から2番目に現れるピークに特徴があり、電子線照射によりその強度が減少していく。(a)PLLA は最も電子線に対して弱く、(c)PC でのピークの減少は若干遅くなる傾向がわかる。また、カルボニル基を有しない(d)ポリフェニレンエーテル(PPE)では、少ない電子線照射の条件においても、ピークはほとんど検出されない。以上の結果から、O K-edge のスペクトル構造からポリマーに含まれる同一原子の結合状態が識別することが可能であることが明らかになった。

図 3-⑪-1-8 は、(a) one-step と(b) two-step での混練条件による界面構造の違いを EELS O K-edge と F-edge から検討した結果である。O は 535 eV、F は 670 eV 付近の吸収励起端が現れ、それらの吸収端の大きさと構造から界面状態の詳細を読み取ることができる。One-step では、O K-edge の2番目のピーク(537 eV)が見られないが、two-step では検出されている。これは、POSS が PLLA 相に存在しているために、電子線によるダメージが軽減されたと考えられる。さらに、one-step では、PVDF 相内部からも O K-edge が強く検出され、POSS( epoxy )<sub>8</sub>-g-PMMA が PVDF 相に存在していることが示唆される。この解析データから図 3-⑪-1-9 に示すように、O

とFの元素マッピングを作成することが可能であり、強度プロファイルから相容化剤として添加した POSS(epoxy)<sub>8</sub>-g-PMMA の分布がわかる。良好な機械的特性が得られる two-step ブレンドでは、相容化剤が界面に局在化しているのに対し、one-step では、PVDFと相溶するPMMAをグラフト化した POSS(epoxy)<sub>8</sub>-g-PMMA は、層内部にも存在していることが明らかになった。

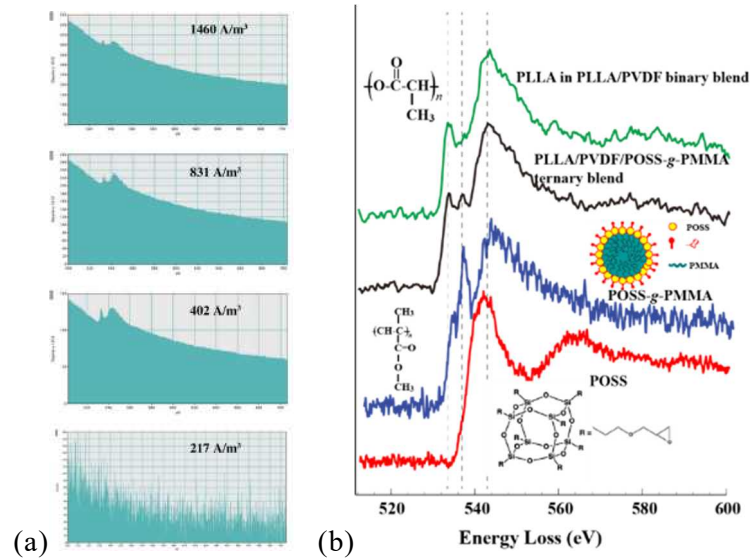


図 3-⑪-1-6 (a) EELS による PLLA の O k-edge の電子線照射量依存、および(b)化学結合状態分析.

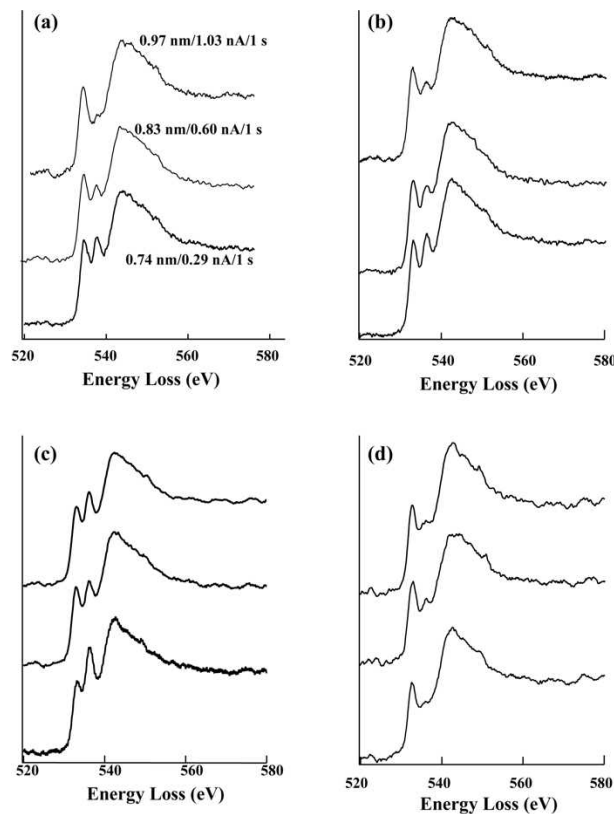


図 3-⑪-1-7 (a) EELS による PLLA の O k-edge の電子線照射量依存、および(b)化学結合状態分析.

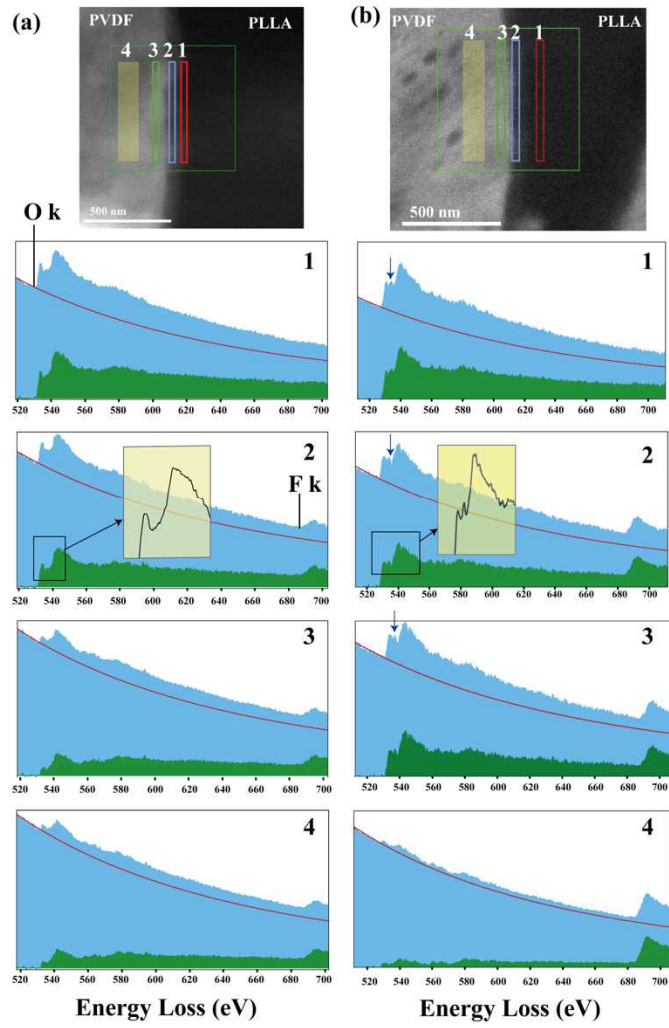


図 3-⑪-1-8 (a) one-step および(b)two-step での混練条件の PVDF/PLLA 界面での O K-edge と F K-edge の変化.

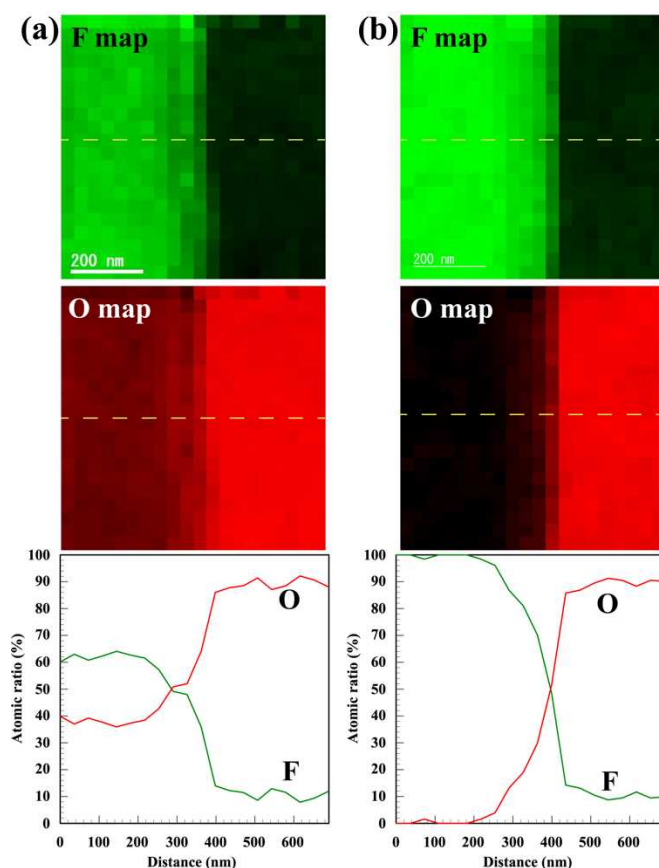


図 3-⑪-1-9 (a) one-step および(b)two-step での混練条件の PVDF/PLLA 界面での O K-edge と F K-edge の変化.

### (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  $-120\text{ }^{\circ}\text{C}$ でのクライオウルトラマイクロームにより作製し、四酸化オスmium ( $\text{OsO}_4$ )により  $60\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、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、 $-55\text{ }^{\circ}\sim 55\text{ }^{\circ}$ の傾斜角を約  $2.5\text{ }^{\circ}$ 間隔で連続傾斜像を取得し、3 次元再構築を行った。

図 3-⑪-1-10 は、SBR/IR ゴムブレンドシリカフィラーを 25-70phr (parts per hundred)配合した試料の STEM-BF 像である。STEM 環状暗視野(STEM-ADF)像である。OsO<sub>4</sub> で染色することにより、IR と SBR ドメインが識別可能になるが、両者ともに染色され、その度合いがシリカの添

加量で変化するようである。シリカ無配合試料(a, e)では、SBR 相が相対的に強く染色され、暗い相となるが、シリカを添加すると、白黒のコントラストが反転する。さらに、シリカを配合すると IR/SBR 相分離構造が微細化する傾向となり、配合量が 70phr と多くなると、識別が困難になる。図 3-⑩-1-11 は、SBR/IR/silica (40/60/50)染色試料の HAADF 像、と Si の EDX 元素マッピング、さらにそれらを重ね合わせた像であり、シリカの分散と SBR/IR ブレンドの相分離構造を比較すると、シリカは主に SBR 相に分散していることが確認される。OsO<sub>4</sub> でゴム相を染色することは、相分離の識別に有効であるだけでなく、ゴム分子を架橋することにより、電子線に対する耐久性が向上するため、長時間の測定での変形を抑える効果もある。

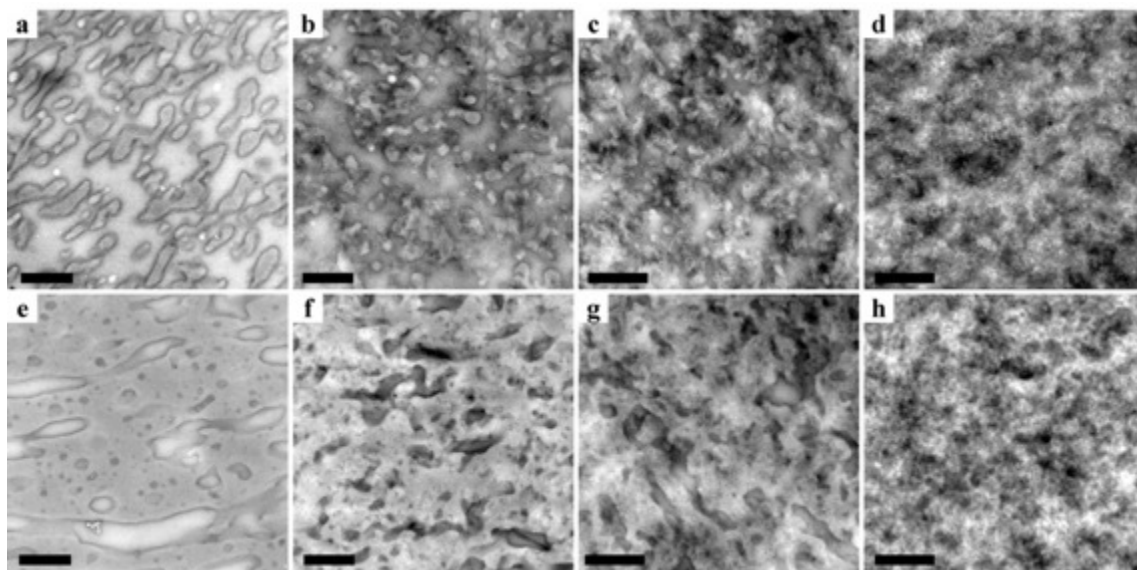


図 3-⑩-1-10 SBR/IR/シリカブレンドの OsO<sub>4</sub> 染色試料の STEM-BF 像. (a-d) 70/30 ,(e-h) 30/70 (wt/wt) IR/SBR ゴムブレンド. シリカ含有量は、(a, e) 0, (b, f) 25, (c, g)50, (d, h) 70 phr. スケールバーは 500 nm.

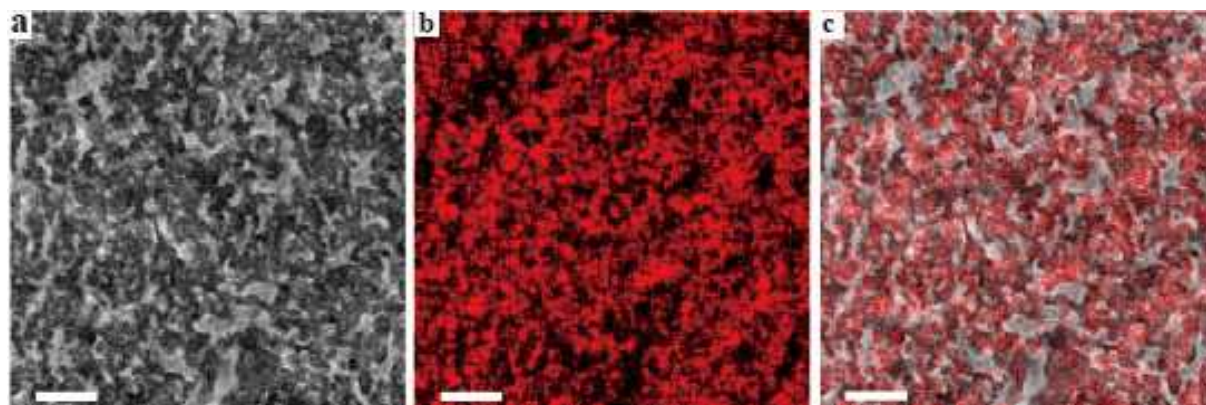


図 3-⑩-1-11 IR/SBR/シリカブレンド 40/60/50 の(a)OsO<sub>4</sub> 染色による STEM-HAADF 像, (b)Si マップ, (c)HAADF 像とシリカマップ像の重ね合わせ.スケールバーは 200 nm.

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 3-⑪-1-12 に、元素マッピング-トモグラフィーに必要な、Si ピークの傾斜角度依存を示した。単一の EDX 検出器では、検出器と反対側に試料が傾斜すると、信号はほとんど検出されないが、4 器の検出器を対称に配置すると、全ての傾斜角度で高い信号が検出される。

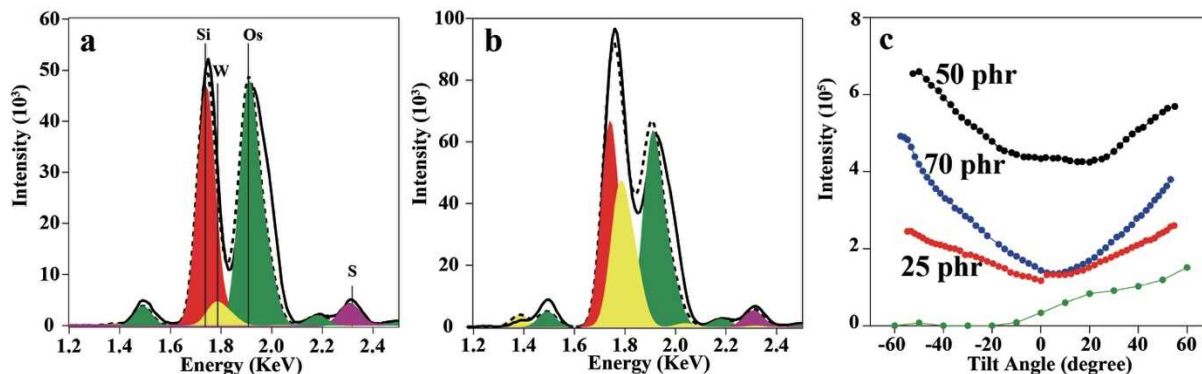


図 3-⑪-1-12 30/70/50 IR/SBR/silica ブレンドの傾斜角 (a) 0° と(b) -55°での EDX スペクトル。実線と点線はそれぞれ測定されたスペクトルとピーク分離後の積算ピークである。(c) は Si Ka ピーク強度の傾斜角依存性であり、単一検出器での結果(緑)を合わせて示した。

図 3-⑪-1-13 は、STEM-HAADF 像と Si マッピング像から得られた3次元再構築像を複合化し、IR/SBR70/30と30/70ブレンドでのSBRとIR相に分散するシリカを識別した結果である。SBR リッチなブレンド系(e-h)では、シリカはほぼ SBR マトリックス相に分散している。一方、IR リッチな系では、SBR ドメインにシリカが偏在するが、IR マトリックス相にも分散する割合がシリカの含量と共に増えてくる傾向が明らかである。図 3-⑪-1-14 に仕込み比から計算される各成分の体積分率と解析から算出された体積分率をまとめた。トモグラフィーから得られた体積分率と仕込み比はほぼ一致しており、解析が妥当であるといえる。

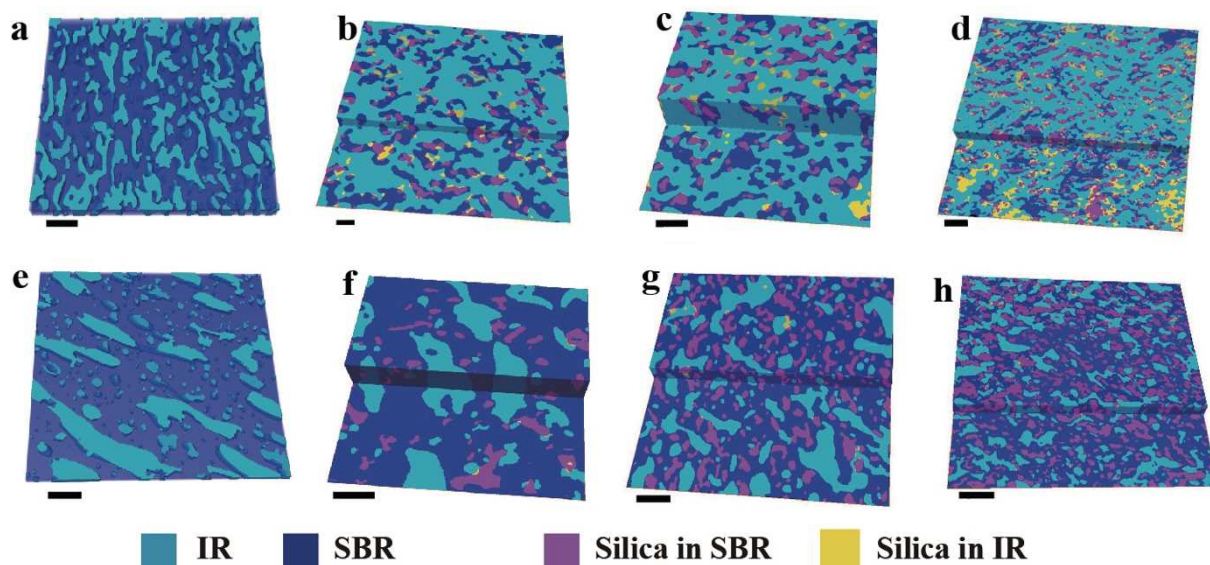


図 3-⑪-1-13 (a-d) 70/30 and (e-h) 30/70 (wt/wt) IR/SBR ブレンドの3次元構造。シリカ配合料は(a, e) 0, (b, f) 25, (c, g) 50, and (d, h) 70 phr. スケールバーは 200 nm.



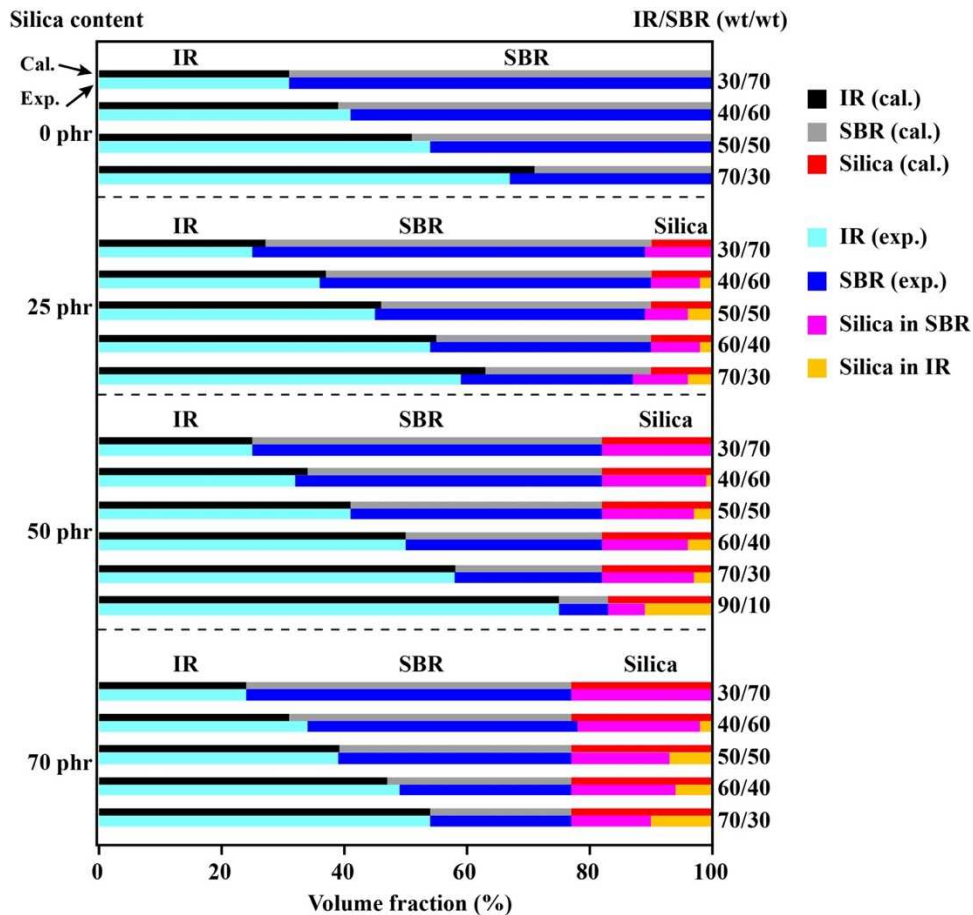


図 3-⑪-1-14 仕込み比とモグラフィーデータから算出した IR,SBR,シリカの 体積分率

図 3-⑪-1-15 は、シリカ添加量が 50phr とした場合の IR/SBR ブレンド比の変化に伴う相分離パターンの変化を示した。SBR リッチの時、シリカは SBR 相に偏在するが、IR の体積分率が 増えるに従い、シリカの IR 相への偏在が徐々に増え、IR 分率が 70%を超えると急激にシリカ の IR 相への偏在化が起こるようである。

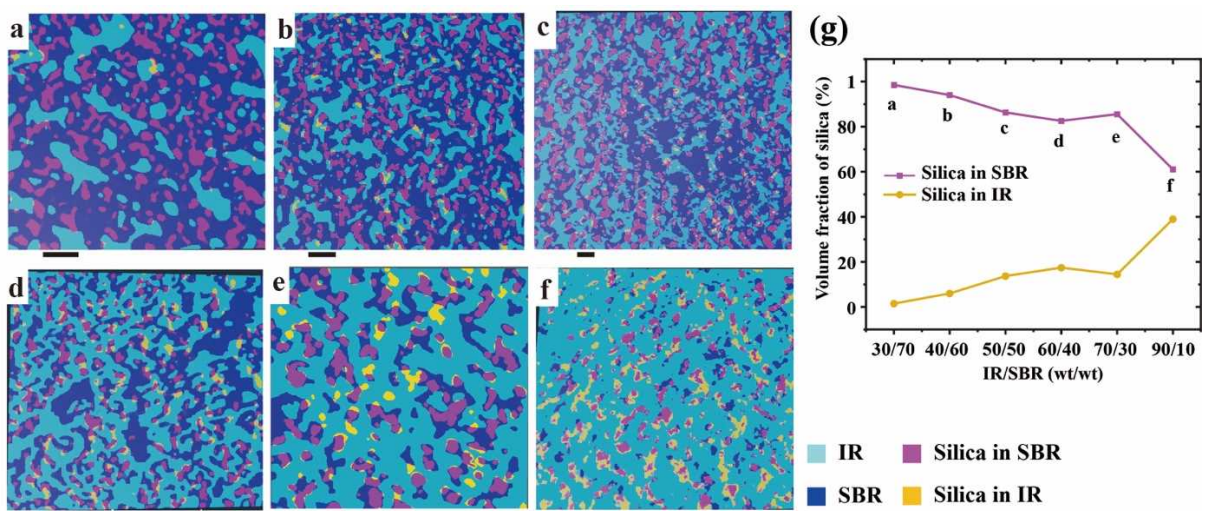


図 3-⑪-1-15 シリカ(50phr)の偏在に対する IR/SBR ブレンド比の影響. IR/SBR ブレンド比: 30/70 (a), 40/60 (b), 50/50 (c), 60/40 (d), 70/30 (e) and 90/10 (f). (g)シリカの各相への配合比の IR/SBR ブレンド比に対するプロット. スケールバーは 200 nm.

3次元最構築像からシリカを除外して、IR/SBRブレンドの相分離パターンに対するシリカの影響を確認した。図3-⑩-1-16は、シリカ50phrの時のIR/SBR相分離パターンの変化を示した。IR/SBR50/50の時に、共連続性が高く分散性の高い構造が得られ、60/40でマトリックス/ドメインの反転が起こる。

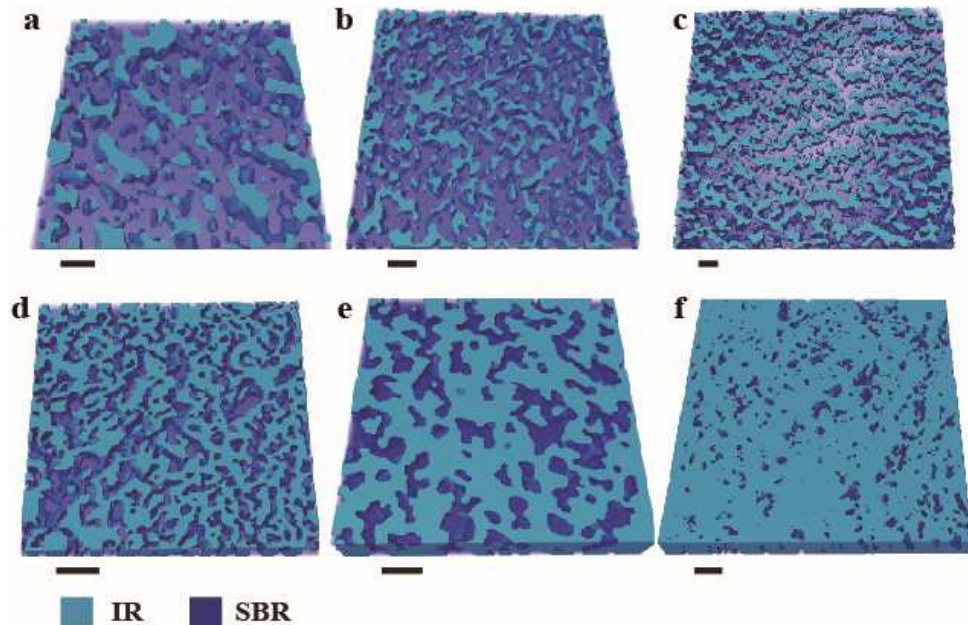


図3-⑩-1-16 シリカ50phrの時のIR/SBRブレンド比(a)30/70, (b)40/60, (c)50/50, (d)60/40, (e)70/30, (f)90/10 (wt/wt) IR/SBRブレンド相分離パターン変化. スケールバーは200 nm.

図3-⑩-1-17にシリカの配合料とIR/SBRブレンド比による相分離パターン変化をまとめた。シリカ添加量が50phrの時に最も分散性のよい構造が得られることが明らかになった。非相溶2成分ブレンドにおける分散ドメインのサイズは、混練のせん断力、界面張力、2相の粘度比が支配因子であることが知られている。シリカがSBR相に偏在するとドメイン(IR相)/マトリックス(SBR相)の粘度比が大きく変わるため、最も良好な分散が得られると考えられる。一方、シリカが70phrまで増えると、IR相にもシリカが分散するため、大きな粘度比の変化が起こらなくなり、再びドメインの粗大化が起こる。

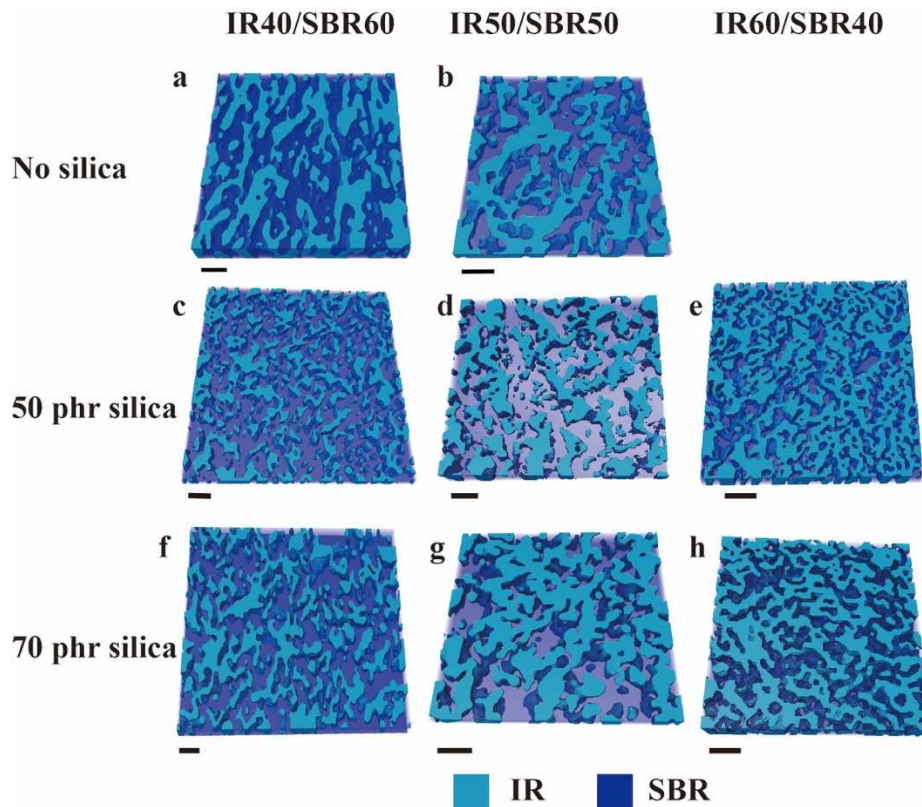


図 3-⑪-1-17 IR/SBR 相分離モルフォロジーへのシリカ配合の影響.スケールバーは 200 nm.

### (3) 高せん断リアクティブポリマーブレンドにおける相分離構造解析

互いに非相溶な熱可塑性ポリマーを熔融時にせん断を加えながら混練することにより、マイクロレベルで両者が混ざり合い、単一ポリマーでは得られない高分子材料を生み出すことが可能である。一般的には、単純に混ぜ合わせただけでは、分散性は良好ではなく、また界面の強度が十分ではないため、高い機械的強度を得ることはできない。混練時に、ポリマー間で化学反応を起こすような系では、界面にブロックもしくはグラフト重合体が形成し、熔融混練時に形成する分散ドメインの微細化とその粗大化を阻止するため、ナノレベルの分散が可能になる。本プロジェクトでは、高性能プラスチックとして使用されているポリフェニレンサルファイド(PPS)の耐衝撃性を向上させる目的で、PPS との反応が期待できるグリシジル基を側鎖に有するエラストマーである変性ポリエチレン EGMA とのブレンドを検討した。PPS の末端に存在するカルボキシル基と EGMA が反応することにより、EGMA の微分散化が起こり、耐衝撃性の向上が期待できる。

図 3-⑪-1-18 は、グリシジル基を含まない未変性エラストマーと EGMA をそれぞれ 20 wt%ブレンドしたブレンドの相分離構造であり、反応によりエラストマー相の微分散化が起こることが明らかである。図 3-⑪-1-19 は、PPS/EGMA80/20 ブレンドのモルフォロジーに対する熔融混練時のせん断力の影響を示す。最も小さいせん断力(300rpm)では、円形状のエラストマー分散ドメインが得られるのに対して、せん断力を高くすると、エラストマードメインがいびつな形状になる。さらに、エラストマードメインの内部に微小なドメインが分散し、STEM-EDX の S マッピング像(図 3-⑪-1-20)により、PPS が EGMA ドメイン内部に再度分散する2重構造(サラミ構造)が得られることがわかる。このようなモルフォロジー形成は、界面での化学反応により形成するグラフト

コポリマー(PPS-EGMA)がドメイン周囲を覆い尽くすと、可能なポリマーが界面から脱離し、ドメイン内部でミセル化するためと考えられる。サラミ構造が混練速度に大きく依存することは、エラストマードメイン内部でミセルの再凝集により新たな界面を形成し、ドメインを分離させるためと考えられる。せん断速度が速い場合では、ミセルの形成が早く起こり、結果として、ドメインの微細化が起こり、サラミ体が少なくなると考えられる。

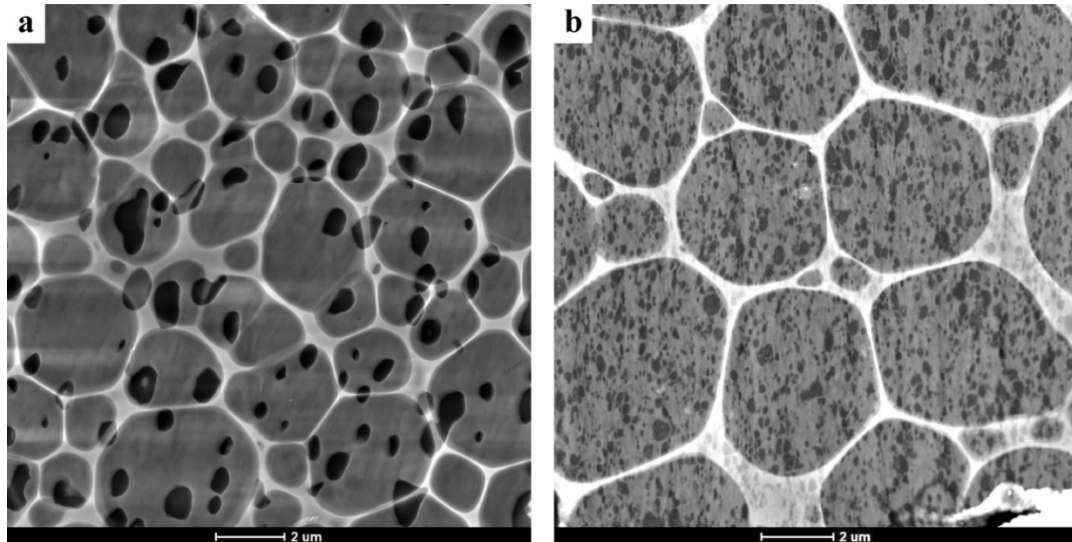


図 3-⑪-1-18 (a)PPS/未変性エラストマーと(b)PPS/反応性エラストマー(EGAM) 80/20 の STEM-HAADF 像.

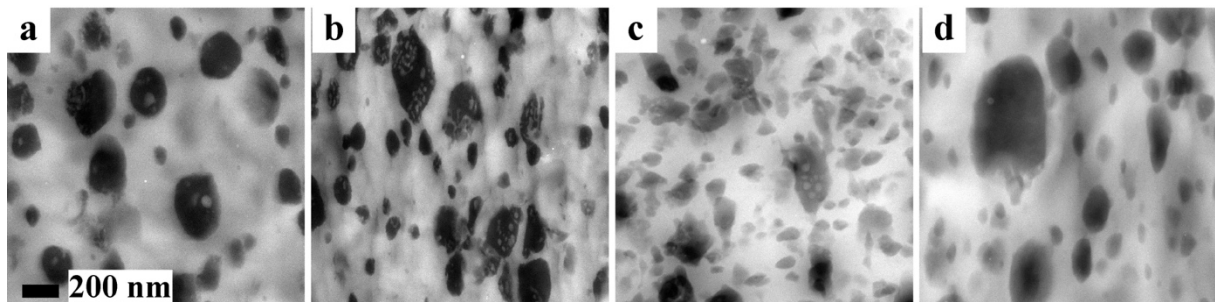


図 3-⑪-1-19 PPS/EGAM 80/20 ブレンドの相分離構造の混練回転速度依存性. (a)300, (b) 1000, (c) 2000, (d) 3000 rpm.

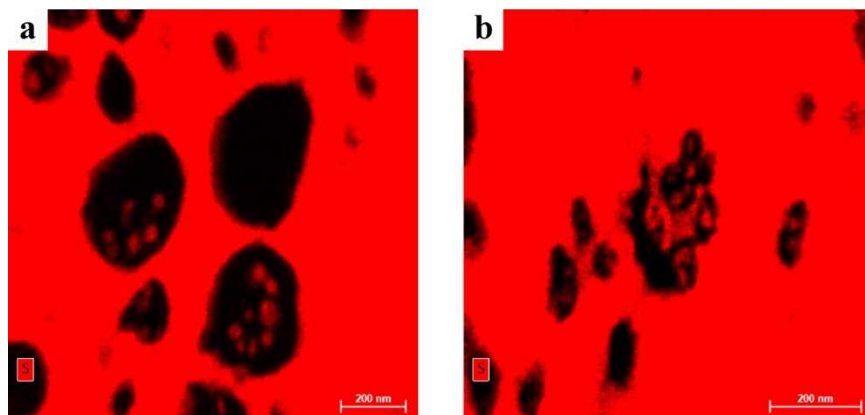


図 3-⑪-1-20 PPS/EGAM 80/20 ブレンドの STEM-EDX による S 元素マップ像. (a)300, (b) 1000 rpm.

図 3-⑩-1-21 は、シャルピー耐衝撃強度のせん断回転速度に対するプロットであり、配合比によらず 1000 rpm の回転速度で最大の耐衝撃性が得られることがわかる。エラストマードメインの分散粒子径は、回転速度による違いは見られず、図 3-⑩-1-19 に示すように、エラストマードメイン内部に再分散する PPS は 1000rpm の回転速度で最も多く見られ、3000rpm ではほとんど存在しない。よって、サラミ構造が耐衝撃性に有効に作用していることが示唆される。

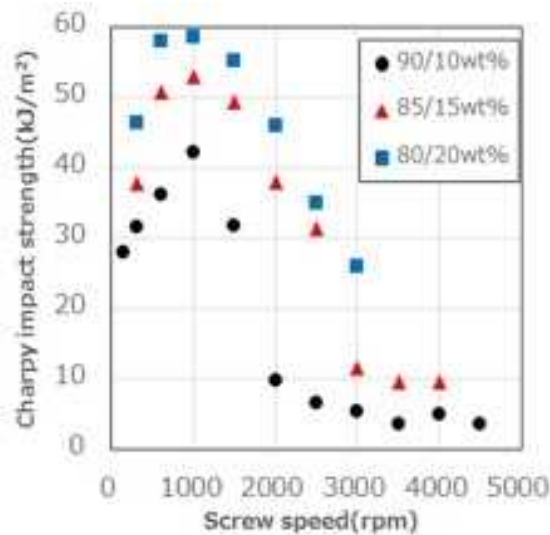


図 3-⑩-1-21 PPS/EGMA ブレンドのシャルピー耐衝撃強度に対する混練速度依存性.

図 3-⑩-1-22 は、ウルトラマイクロームで切削した超薄切片を 140°C のキシレンに 30 分間浸漬し、未反応の EGMA を除去した切片の S (赤) と O (緑) の STEM-EDX 元素マッピング像である。未反応系(a)では、エラストマードメインがほぼ完全に除去されるのに対し、PPS と反応を起こし、グラフト化した EGMA はキシレンで溶けずに残るため、界面に O リッチな相が形成する。ドメインの中央を横切るラインに沿って各元素マッピングのプロファイルと比較すると、反応系では、約 20nm の反応相が形成していることが確認された。この様な相は混練回転速度に依存せずにほぼ同じ厚みであることが確認された。

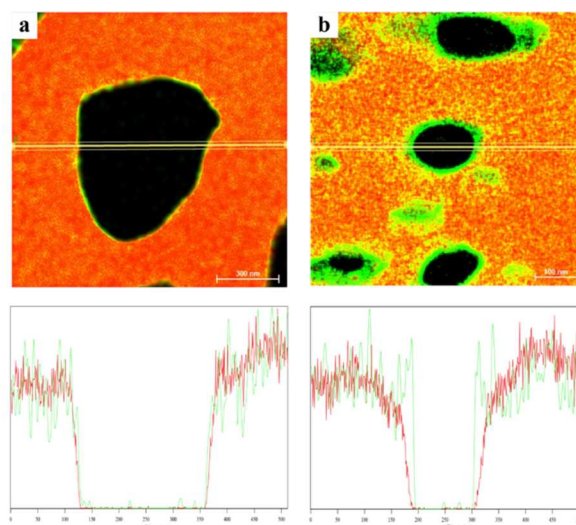


図 3-⑩-1-22 (a)PPS/未変性エラストマーと(b)PPS/反応性エラストマー(EGMA)80/20 の キシレンエッチング試料の STEM-EDX 元素マッピング像.(赤)S,(緑)酸素

耐衝撃性の混練回転速度依存性メカニズムを明らかにするため、シャルピー衝撃試験片のノッチ先端にカミソリでき裂を発生させ、き裂先端部分を STEM で観察した。図 3-⑪-1-2(a)は、未変性エラストマーによるブレンドであり、エラストマードメイン内部からボイド(キャビティー)が発生していることが確認された。一方、最も高い耐衝撃性を示す 1000rpm での PPS/EGMA ブレンドでは、ドメイン内部からのキャビティーはみられず、PPS マトリックスにエラストマードメインを連結するようにクレーズ(微小き裂)が発生していることが確認された。クレーズが発生することにより、PPS マトリックスの塑性変形が促され、衝撃エネルギーが効率的に吸収されるが、エラストマードメインがクレーズの成長を止めることで巨視的な破壊を助け、エネルギー吸収領域(応力白化)を広く作ることが可能になったものと推測される。エラストマードメインに PPS が最分散するサラミ構造は、キャビテーションの発生を抑え、クレーズの発生と停止に有効であると考えられる。また、未変性エラストマーでは、十分な厚みの界面層が形成されないが、界面での離は起こらないことから、界面の接着性が直接耐衝撃性に関与していないことが明らかになった。

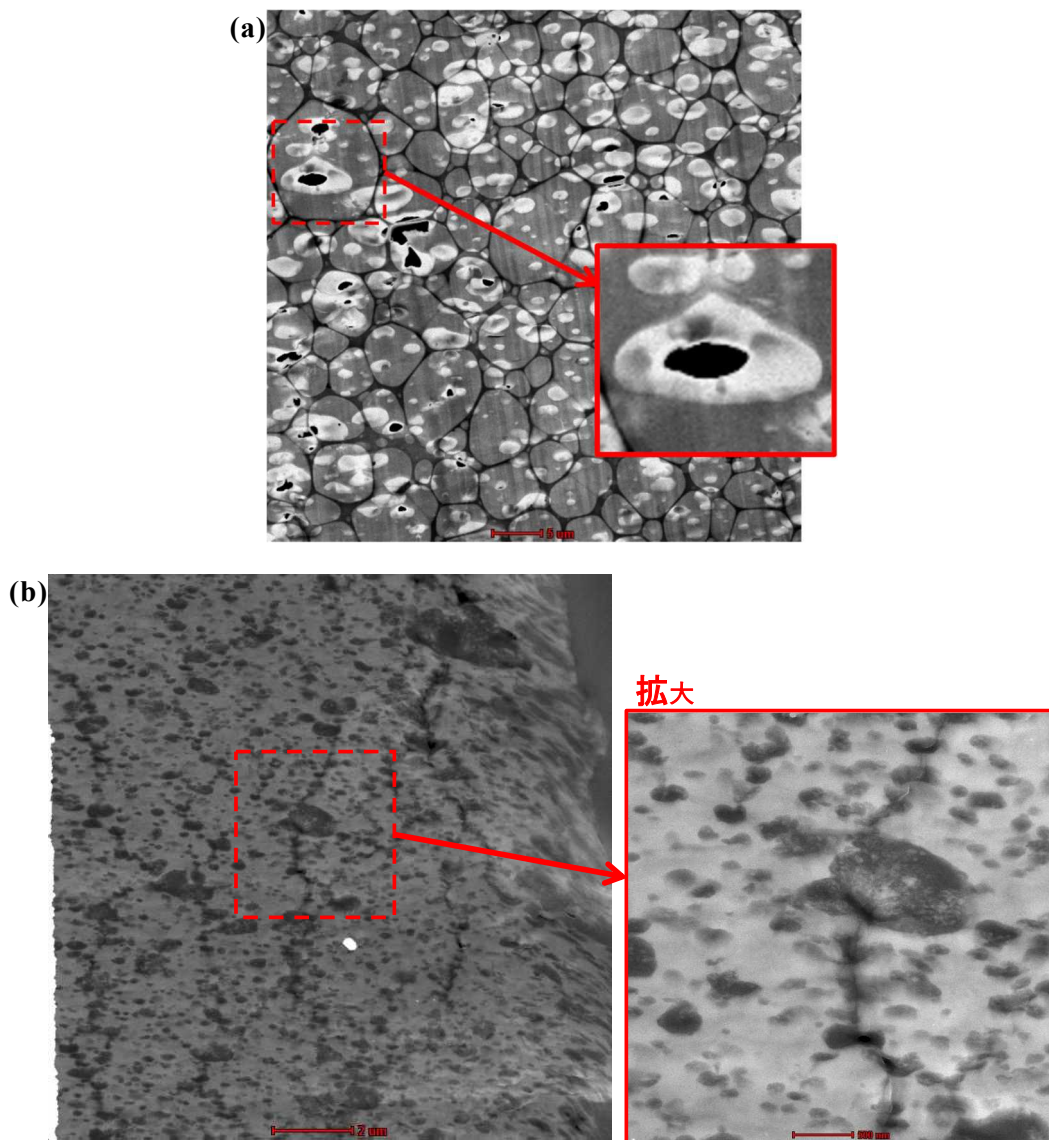


図 3-⑪-1-23 (a)PPS/未変性エラストマーと(b)PPS/反応性エラストマー(EGMA)80/20 の キシレンエッチング試料の STEM-EDX 元素マッピング像.(赤)S,(緑)酸素

#### (4) 総括

STEM 装置を用いて、試料と電子線との相互作用により発生する非弾性散乱電子や特性 X 線を分光し、EELS および EDX スペクトル情報の取得の高感度化・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。通常 2 次元の TEM 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 3 次元構造にエネルギー(E)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 3 元で明らかにすることが可能となった。STEM-EELS は、化学組成の等しいポリマーの結合状態の解析から、より詳細な構造情報を引き出すことに成功した。EELS スペクトルに含まれる吸収端微細構造(ELNES)はポリマーの化学構造の解析に有用であり、データの蓄積を行った。STEM-EELS/EDX 同時取得により、X-Y 構造に加えて、元素組成(E)と化学構造(C)の X-Y-E-C の 4 次元データの取得が可能となった。このような解析手法により、ポリマーブレンドの溶融混練プロセス条件のモルフォロジー・界面への影響を明らかにし、界面と物性の相関を解明することに成功した。

## 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

陽電子消滅計測では、次世代フレキシブル基板材料の開発工程におけるスクリーニング測定に資するためのモデル試料であるポリイミドの解析技術を開発するとともに、陽電子プローブ制御パラメータが最適化された計測装置を用いて、モデル試料の評価が迅速に行えるようにする。さらに、陽電子消滅計測では、計算シミュレーションと連携した次世代フレキシブル基板材料中の自由体積を指標とした高次構造の比較検証法の高度化も達成する。

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の実現し、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。この測定技術を用いて、ナノ発泡材料のサブマイクロメートル空隙構造の精密3D解析を行い、サブマイクロメートル空隙構造の精密三次元解析技術を完成させる。さらに、X線CT計測法と計算シミュレーションの連携を確立させるとともに、従来法比5倍以上の高速化技術を完成させる。

#### ■ 研究開発の成果

##### (1) 陽電子消滅計測

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（ナノ細孔）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）。

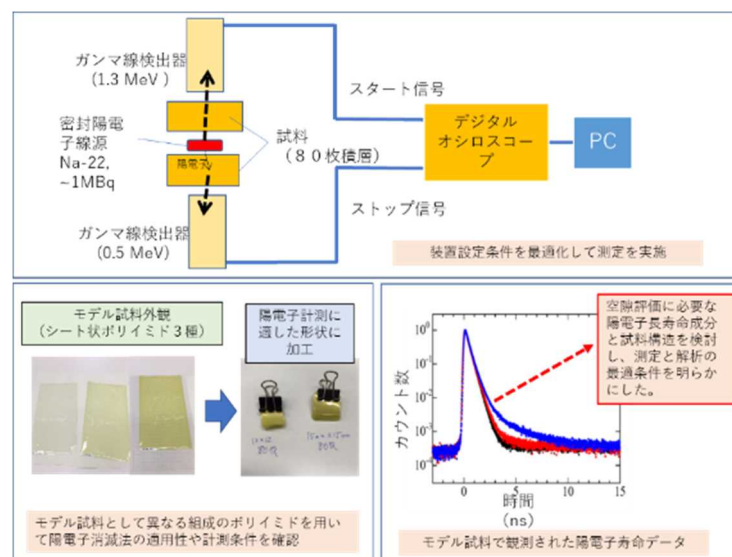
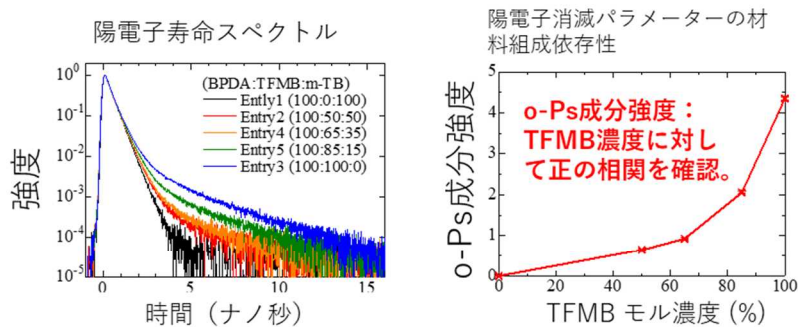


図3-⑪-2-1 陽電子消滅パラメータ計測技術とモデル試料の適用結果



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、ナノ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、モデル試料中のナノ細孔の評価を実施するとともに、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達成した。そして、開発した計測技術を応用して評価された次世代フレキシブル基板に適用されるポリイミド材料中のナノ細孔構造と、分子動力学計算シミュレーションの分子間空きき情報との相関を明らかにし、自由体積を指標とした高次構造の比較検証法の高度化を達成した(図 3-⑪-2-3)。

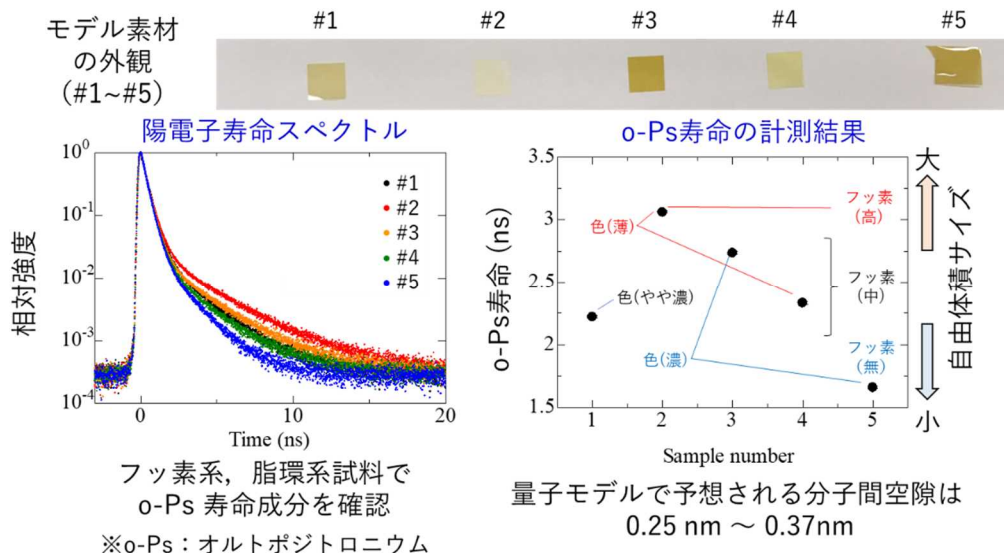


図 3-⑪-2-3 計算シミュレーションと連携した計測技術の高度化を達成

また、共用利用のための放射性同位体とネオン固体減速材を活用した陽電子ビーム源を開発し、従来の加速器を用いた陽電子ビーム源とは異なり、自動運転でのマシンタイム増加によって、試料評価の迅速化(ハイスループット化)を実現した(図 3-⑪-2-4)。

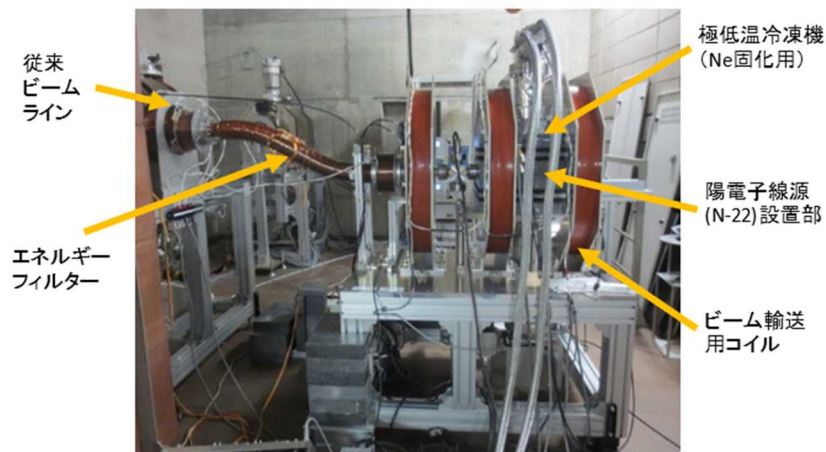


図 3-⑪-2-4 放射性同位体を用いた陽電子ビーム源

## (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等で作製するコンポ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。さらに、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方を具体化することが初期段階でできた。

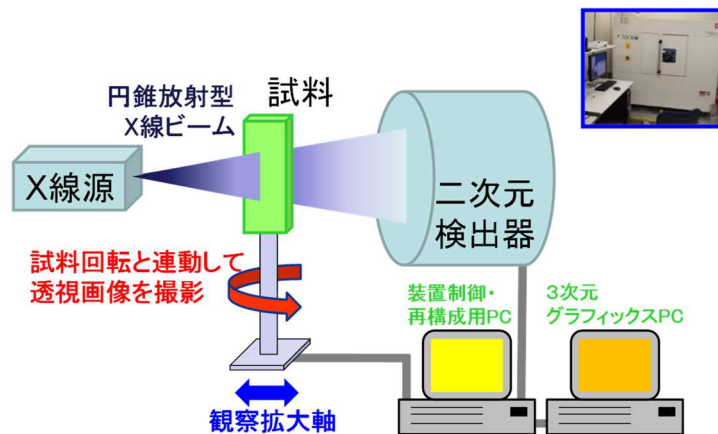


図 3-⑪-2-5 マイクロX線CT装置の構成

**発泡系コンポジット材料のマイクロX線CT測定による、  
元素分析観察像(紫色:樹脂部、緑色:シリカ粒子)**

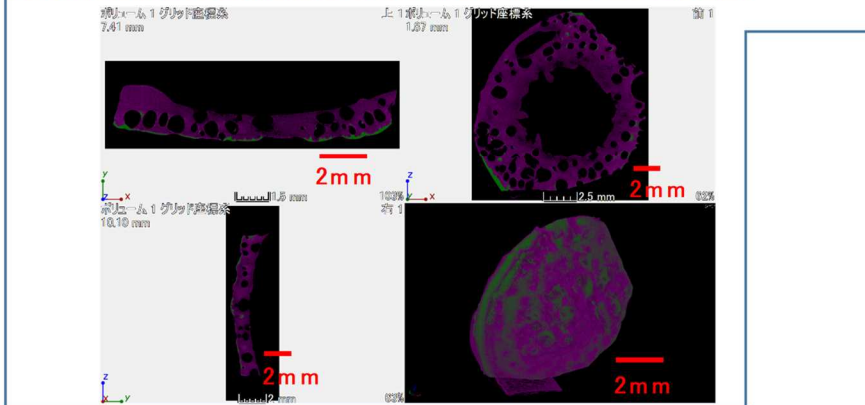


図 3-⑪-2-6 マイクロサイズ分解能での発泡コンポジット材料内部構造の 3D 評価

次に、X 線 CT 計測技術において、CT データ可視化解析ソフトウェアを導入し、ポリマー系コンポ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 CdTe 型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ならびに画像取得短縮化に必要な研究データを取得・評価した。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を確立することができた。

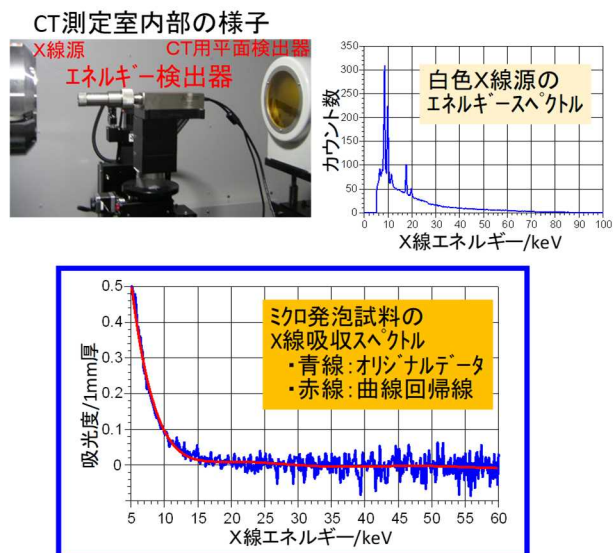


図 3-⑪-2-7 X 線エネルギー検出器による透過X線のエネルギー分布精密計測

さらに、課題⑦開発の発泡コンポジット材料等のサンプルのサブミクロンオーダーの 3 次元構造解析を試み、透視像の再構成処理高速化ならびに断層像データの解析技術高度化の検討を実施した。具体的には、幾何誤差自動的抽出型フォーカシング技術およびリングアーチファクト軽減機構を透視像再構成工程に採用し、0.8 マイクロメートル分解能の断層像マイクロ

領域低ノイズ化を達成した。最新型 GPU 並列導入による処理時間短縮化も実証できた。これらの結果を発泡断熱材料における試料内部のマイクロ発泡状態観察に適用し、多孔質セル分布可視化による 3D 評価多孔質構造解析から発泡形成機構解明に貢献できた。よって、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。さらに、計算シミュレーションなどの AI データ入力に資する画像パラメータ抽出ならびに高速化計測技術を構築し、AI 用の断層像画像データを提供した。

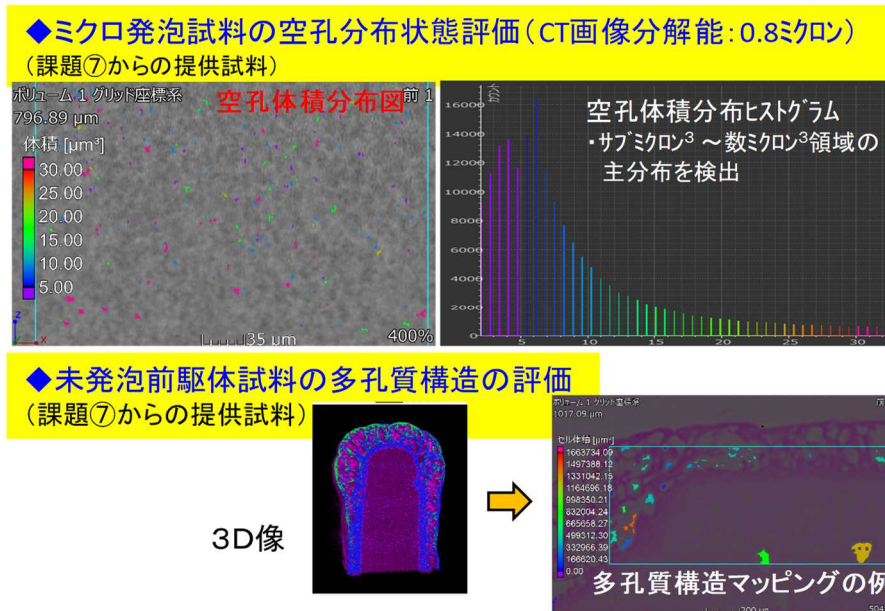


図 3-⑪-2-8 0.8 ミクロン分解能でのマイクロ発泡試料の空孔分布状態

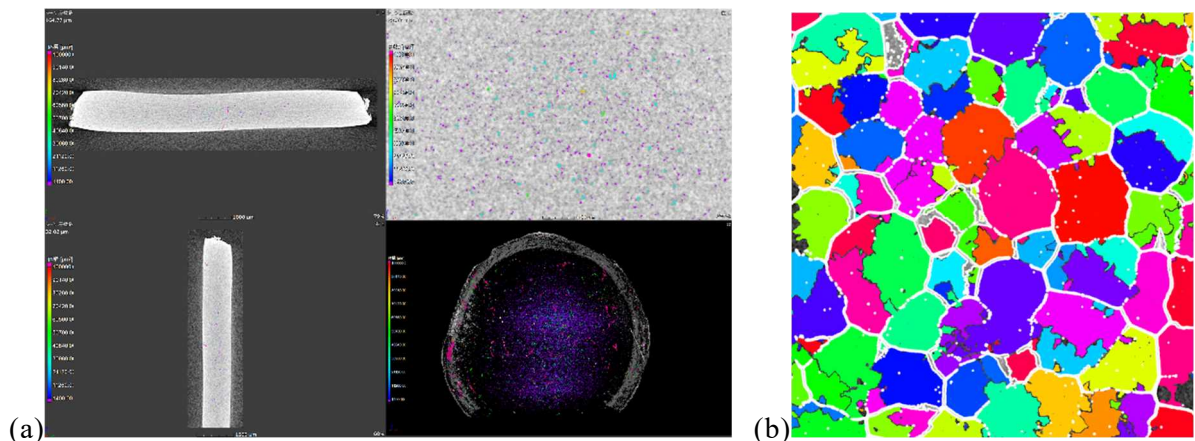


図 3-⑪-2-9 発泡断熱試料の三次元空孔分布可視化: (a)二次元断層像三面図および三次元空孔分布図、(b) 多孔質セル分布可視化

X 線 CT 測定を用いた 3 次元構造評価における短縮効果の試算については、対象サンプルとしてポリマー発泡断熱材料を選び、まず、従来手法による 3 次元構造評価として、断面 SEM 観察の場合、試料作製から解析完了まで

110 分 / 1 断面観察

と試算し、1 サンプルにつき 20 箇所での断面観察を行う場合、

### 2200 分／サンプル（断面 SEM 測定：20 断面観察）

との作業時間を得た。なお、110 分／1 断面観察の根拠については、

- |                |             |
|----------------|-------------|
| 1. 観察試料調製      | 10 分／1 断面観察 |
| 2. 断面撮影        | 40 分／1 断面観察 |
| 3. ナノ発泡構造の画像解析 | 60 分／1 断面観察 |

から、合計 110 分／1 断面観察 としている。

さらに、本 PJ 開発成果として、高速化マイクロ X 線 CT 測定の場合、試料作製から 3 次元構造評価完了まで、

### 220 分／サンプル（高速化マイクロ X 線 CT 測定：2500 断層像観察）

となる。これは、

- |                   |            |
|-------------------|------------|
| 1. 観察試料調製         | 10 分／サンプル  |
| 2. X線透視像撮影        | 140 分／サンプル |
| 3. 再構成処理(透視像→断層像) | 10 分／サンプル  |
| 4. 発泡構造の画像解析      | 60 分／サンプル  |

から、合計 220 分／サンプル と試算している。なお、10mm サイズの試料を高速化マイクロ X 線 CT 測定法で 3 次元構造評価した時、4 $\mu$ m 間隔の 2,500 箇所について、断面観察像(断層像)の一括取得が可能あることから、SEM 観察よりもより精密な内部構造解析が可能となっている。また、超々PJ 開始前の段階では、従来型の X 線 CT 測定において上記 1 から 4 の工程で計 670 分/サンプル(=10+360+120+180 分)を要していた。

これらの上記 4 つの各工程での開発・改良点として、

1. 発泡系コンポジット材料に適した試料保持具の形状改良（※時間短縮効果なし）
2. 小型高性能 X 線エネルギー検出器導入による X 線源照射波長帯域幅の最適化による高コントラスト透視像画像の取得時間短縮化
3. 幾何誤差自動抽出型フォーカシング技術、および、リングアーチファクト軽減機構の採用による断層像のマイクロ領域低ノイズ化、ならびに、最新型 GPU 導入による再構成計算時間短縮化
4. ミクロ発泡構造を 3D 評価する多孔質構造解析手法の導入、および、大容量メモリ搭載の高速 PC の使用

が挙げられる。これらの試算結果から、高速化マイクロ X 線 CT 測定は断面 SEM 観察よりも 10 倍高速であるとの結果を得た。

以上の検討から、今回開発のエネルギー分別機能を強化した高速化 X 線 CT 測定を行うことでマイクロメートル～サブマイクロメートル領域でのマルチスケール三次元構造評価が可能となり、内部構造可視化技術として用いとともに、AI 用画像データとして提供できることが分かった。とくに、CT 技術によって部材の内部発泡構造を三次元グラフィックスとして一括観察でき、0.8 マイクロメートル分解能前後までの微細構造や欠陥部位の非破壊型観察を実証できた。これにより、マルチマテリアル材料内部の材質分布や配向特性を CT 画像解析に基づき評価できるので、製造工程における製品の品質管理や歩留まり向上のみならず、材料開発や生産プロセス効率化等へ幅広く展開可能と考える。

## ⑫フロープロセスの高感度 in-situ 計測：フロー型 XAFS および 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。

2021 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 2016 年度後半から着手した。DNP-NMR 装置の導入が 2017 年 12 月に完了し(図 3-⑫-1)、2018 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。

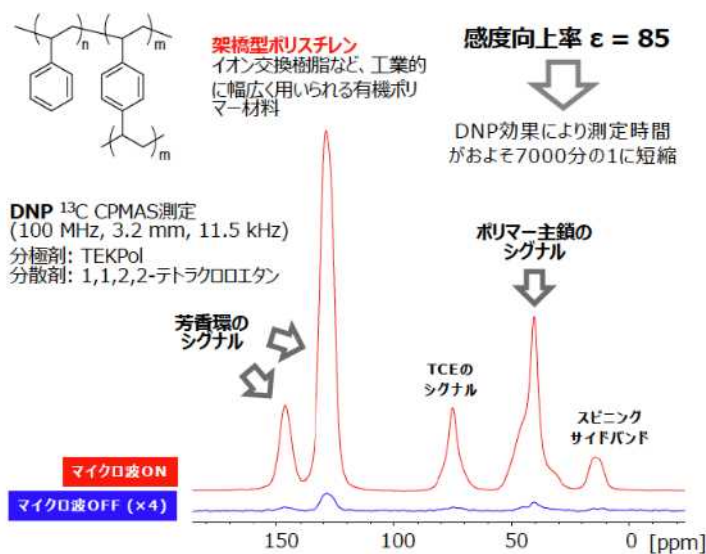


図 3-⑫-2 DNP-NMR による有機ポリマー材料の超高速解

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。

不溶性有機ポリマーの検討では応用範囲を広げるために、PPS、PEEK、PEI などのエンジニアリングプラスチック材料への適用検討を進めた。試料調整方法を新たに検討することで、これら材料に対しても十分な DNP-NMR の感度向上効果が得られるようになった。これにより、PPS のポリマーブレンドの界面構造解析に応用できることを実証した。さらに、微量成分である PPS の末端基の  $^{13}\text{C}$ ,  $^{15}\text{N}$  信号の観測に成功した。従来法では観測困難だったポリマーの構造を、新しい試料調整法を開発したことで、DNP-NMR を使用して新たに解析できるようになった。

DNP-NMR では  $^{13}\text{C}$ ,  $^{29}\text{Si}$ ,  $^{15}\text{N}$ ,  $^{31}\text{P}$  などの原子核は高速に測定できるものの、周期表中の 75%を占める四極子核の測定が困難であることが知られていた。そのため、四極子核(例えば、 $^{17}\text{O}$ ,  $^{33}\text{S}$  など)を含む無機固体触媒の表面構造解析は困難であった。そこでこの課題に取り組む、これを解決する新たなパルスプログラムを開発することに成功した。これにより、DNP-NMR を使用し、無機固体触媒表面の構造解析が可能となった。さらに研究を進展させ、スペ

クトル分解能が不十分であった四極子核の信号を高分解能化するパルスプログラムの開発にも成功した(図 3-⑫-3)。これらの開発により、従来では得られない固体表面の詳細な構造が得られるようになった。解析例として、固体触媒等によく使用される様々な金属酸化物に手法を適用し、詳細な表面構造の取得に成功した。これにより手法の有用性を実証した。

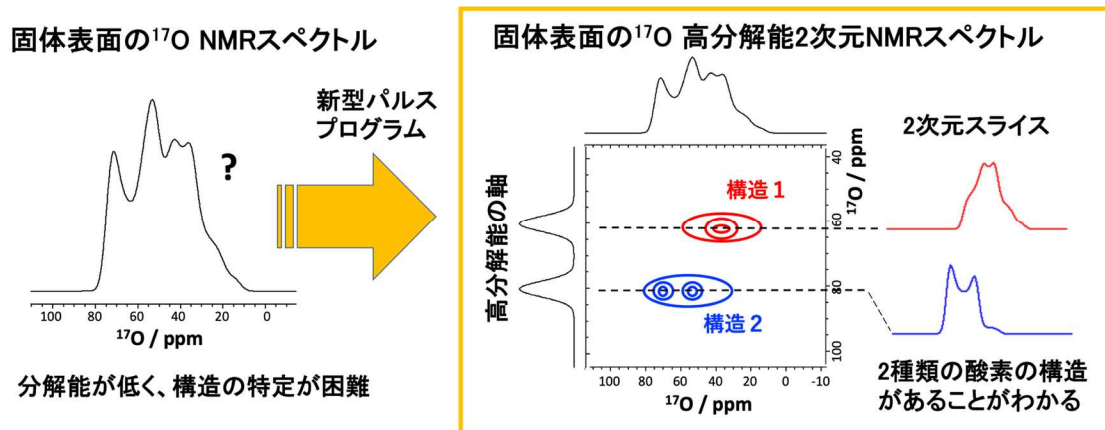


図 3-⑫-3 DNP-NMR による固体表面上の高分解能  $^{17}\text{O}$  解析

$^{195}\text{Pt}$  のような非常に幅広いスペクトルを示す原子核に対しても DNP-NMR 測定法の検討を実施した。特に Pt は固体触媒表面上で重要な役割を示すが、非常に幅広いスペクトルとなり、DNP-NMR を使用しても従来ではスペクトルの全体を観測することは困難であった。この課題に対し、適切なパルスプログラムの選択と広帯域を一度に励起可能なパルス条件を見出したことで、シリカ表面上に担持された 1% の Pt 錯体の幅広い  $^{195}\text{Pt}$  スペクトルを短時間で DNP-NMR 観測し、Pt 周りの構造を解析することに成功した。

ゴムの架橋密度解析について、新たな固体 NMR の測定法を開発した。固体 NMR は従来からゴムの架橋密度解析に応用されてきたが、ブレンドゴム中の各ゴム相の架橋密度を分離して解析することは困難だった。これを可能にするパルスプログラムによって、様々なブレンドゴムに応用できることを確認し、特にタイヤのトレッド部に使用されるブタジエン/スチレン・ブタジエンゴムをごく短時間で解析することに成功した。また、各ゴム相の異なる劣化挙動を解析できたことで本手法の有用性を実証した。



### ⑬ ナノカーボン材料の構造・特性評価技術開発

#### ⑬-1 CNT 電線の導電障害部を可視化する計測技術基盤開発

##### ■ 目標

CNT 線材の導電性メカニズムを明らかにするとともに、CNT 導電性に重要な測定パラメータをデータプラットフォームに提供する。さらに、量産プロセスにおける、高速化・自動化された計測技術を開発する。CNT 線材に対する計測評価の自動化・高速化・簡便化・低コスト化・汎用化・省力化を進めることで、計測評価にかかる回数を 1/2 に削減できることを見込む。

##### ■ 研究開発の成果

3 種類の紡糸方法で作製された CNT 線材 6 種を多面的に解析した。線材の導電率に対しては、線材を構成する CNT の長さ(有効長)および CNT の充填密度との相関が高いことを見出した。特に、CNT 長さ(有効長)については遠赤外分光による計測法を適用することで、約 20 倍計測時間を短縮でき、紡糸プロセス前に試料選定をすることで、試作回数削減に寄与することがわかった。さらに CNT 線材および CNT 膜について、電気伝導度の温度変化測定から、CNT 線材における電気伝導機構を解明した。特に、線材における導電パスとして金属性 CNT が優位であるか、あるいは半導体性 CNT が優位であるかを判別することに成功した。なお、本研究課題で得られた CNT 線材の透過型および走査型電子顕微鏡像、電気抵抗率の温度依存性や各種物性データは DPF へ提供され、MDPF・コンソーシアム運用の基盤情報として活用される。具体的には以下に示すとおりである。

#### (1) 種々の紡糸方法で作製された CNT 線材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。

現在、CNT 線材は、主に 3 つの方法で作製されている。多層 CNT(MWCNT)フォレストからの乾式紡糸、CVD 炉からの直接紡糸、および CNT の湿式紡糸である。そこで、市販されている 6 種類の CNT 線材について、その電気伝導率および引張強度と、CNT 線材の構造および線材を構成する CNT の性質とを計測し、その相関を調べた。

まず、図 3-⑬-1-1 に対象とした CNT 線材の側面および断面の SEM 像を示す。試料 A と B は垂直配向合成した MWCNT から乾式紡糸、試料 C は CNT の CVD 合成炉からの直接紡糸、試料 D および E は CNT ミセル水溶液を用いた湿式紡糸、試料 F は強酸処理 CNT 水溶液を用いた湿式紡糸により作製された CNT 線材である。断面像からは、製造工程によって繊維の形状が異なることがわかる。そして、試料 C と E には数 10-100 マイクロメートルの空隙が存在している。各 CNT 繊維の平均直径は 20~数 100 マイクロメートルの範囲である(表 3-⑬-1-1)。また、TEM による観察像から、試料 A および B は MWCNT で構成されており、他の試料 C-F は数層(FW)の CNT および単層(SW)CNT の両方が含まれていることがわかった。

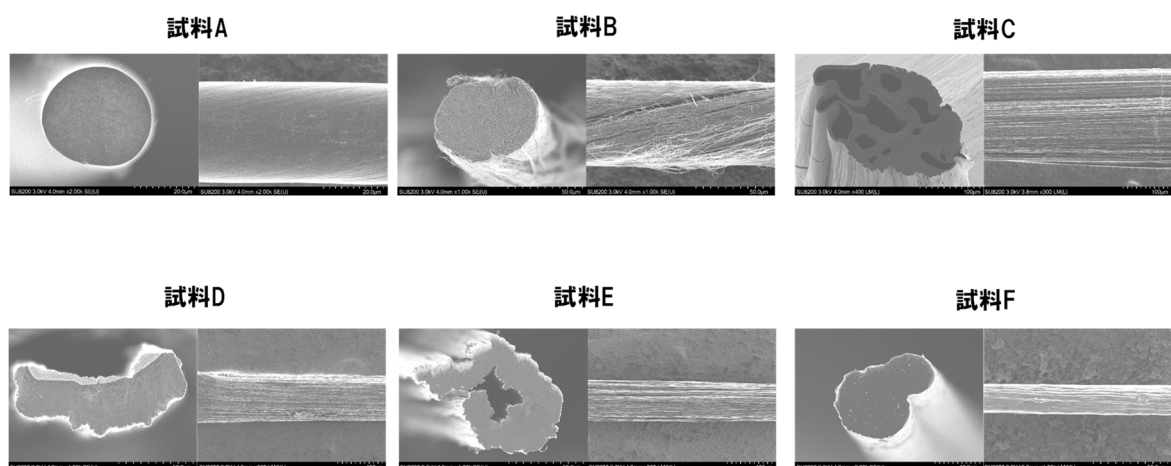


図 3-⑬-1-1 6 種の CNT 線材の側面および断面の SEM 像.

表 3-⑬-1-1 6 種の CNT 線材の物性値.

	試料 A	試料 B	試料 C	試料 D	試料 E	試料 F
紡糸方法	垂直合成 MWCNT 式	垂直合成 MWCNT 式	乾式直接紡糸	ミセル分散液湿式	ミセル分散液湿式	強酸処理分散湿式
線材の直径 (μm)	59	31	230	90	76	20
CNT の直径 (nm)	45 ± 1	12 ± 0.2	5.3 ± 0.1	1.8 ± 0.05	1.7 ± 0.04	2.2 ± 0.05
CNT の層数	50 ± 2	8.5 ± 0.1	1.9 ± 0.03	1.4 ± 0.05	1.4 ± 0.05	1.6 ± 0.05
CNT のタイプ	MWCNT	MWCNT	FWCNT	SWCNT	SWCNT	FWCNT
WAXD (002) FWHM (degree)	42.8	23.7	9.4	21.4	38.4	7.7
Herman orientation factor	0.86	0.89	0.94	0.82	0.78	0.94
G/D ratio	2.2 ± 0.03	1.2 ± 0.03	3.3 ± 0.3	50 ± 5	98 ± 9	31 ± 2
CNT 有効長 (nm)	270	130	470	2300	2300	1800
AFM 観測による CNT 長さ (μm)	11 ± 2 <sup>a)</sup>	1.1 ± 0.07 <sup>a)</sup>	3.9 ± 0.4 <sup>b)</sup>	3.2 ± 0.2 <sup>b)</sup>	1.7 ± 0.1 <sup>b)</sup>	1.3 ± 0.1 <sup>b)</sup>
線材の密度 (mg/cm <sup>3</sup> )	450	1111	985	353	575	1670
導電率 (S/cm)	462	588	16627	1725	3334	70659
破断強度 (MPa)	151	716	1193	69	111	1595

a) 単独の MWCNT b) 束上の SWCNT あるいは FWCNT

糸の長軸に沿った CNT の配列は広角 X 線散乱(WAXD)によって推定した。WAXD スペクトルは、 $q = 11.41$  と  $25.27\text{nm}^{-1}$  の間に広いピークを示した。CNT 配向度は、ピークの方角スキャンの半値全幅(FWHM)に基づいて推定した。ミセル水溶液からの湿式紡糸試料 D、E、および MWCNT フォレストからの乾式紡糸試料 A のハーマン配向係数は  $0.78\sim 0.86$  と低かった(表 3-⑬-1-1)。一方、乾式直接紡糸試料 C および強酸処理湿式紡糸試料 F は、より高い配向度(=  $0.94$ )を示した。

図 3-⑬-1-2 は 6 種の CNT 線材試料 A-F から得られた共鳴ラマン散乱スペクトルにおける、G バンド( $\sim 1590\text{ cm}^{-1}$ )および D バンド( $\sim 1370\text{ cm}^{-1}$ )領域である。G/D 強度比は、MWCNT で構成される試料 A-C で低く、SW~FWCNT で構成される試料 D-F で高く、それぞれに典型的な値を示している(表 3-⑬-1-1)。

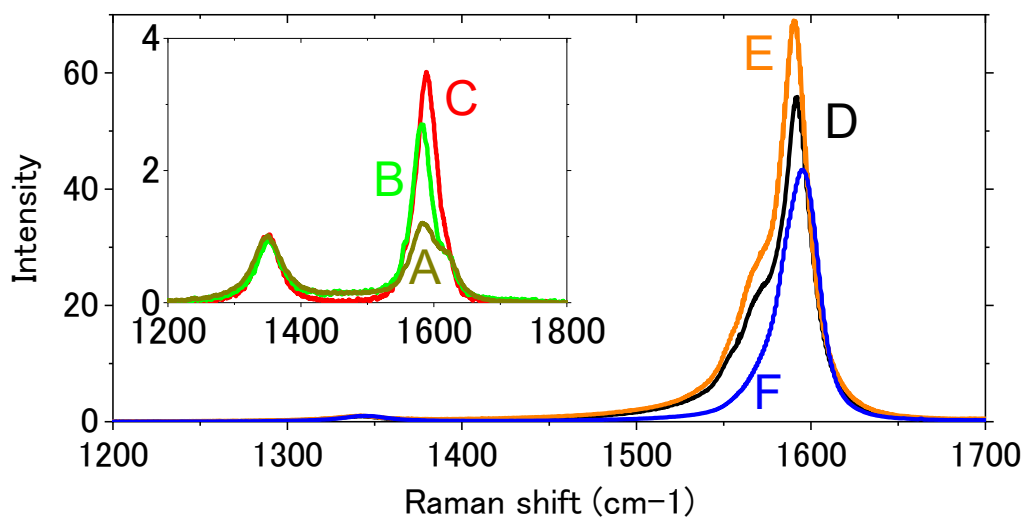


図 3-⑬-1-2 6 種の CNT 線材試料 A-F から得られた共鳴ラマン散乱スペクトル。

6種のCNT線材試料A-Fを解繊し、取り出したCNTから得られた遠赤外スペクトルを図3-⑬-1-3に示す。得られたピーク位置から各線材で用いられているCNTの有効長を算出した(表3-⑬-1-1)。その結果、試料A-Cについては、CNTの有効長が短く、試料D-Fを構成するCNTの有効長は比較的長く、約2マイクロメートルであることがわかった。

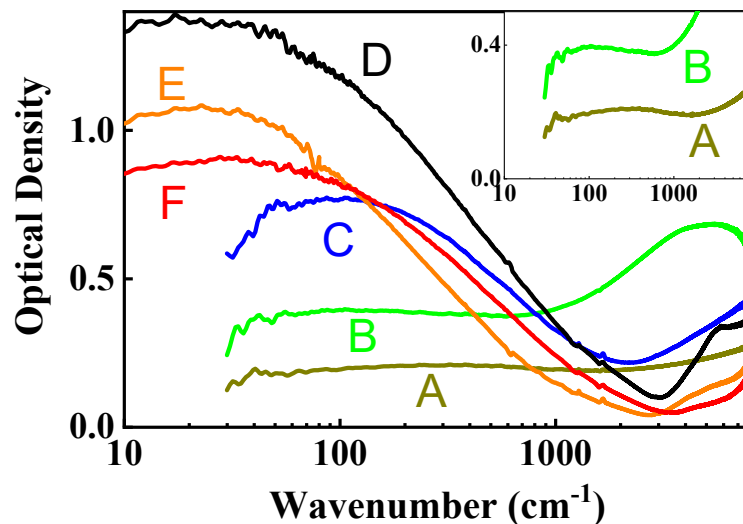


図 3-⑬-1-3 CNT線材試料A-Fを構成するCNTから得られた遠赤外スペクトル。

そこで、6種のCNT線材の導電率を測定し、CNT線材およびそれを構成するCNTの特性との相関を調べた。図3-⑬-1-4(a)は線材の導電率に対するCNT有効長依存性を示す。一見、有効長と導電率の間に明確な相関はみられないことがわかる。しかしながら、低密度である試料AおよびD、Eのグループとその他の高密度グループにグループ分けを行うと、それぞれのグループ内では有効長が長いほど導電率が増す傾向がある。次に、図3-⑬-1-4(b)に導電率の密度依存性を示す。やはり、密度と導電率の間に明確な相関はみられない一方、比較的有効長が長いSW/FWCNTと短いMWCNTのグループ内においては、密度と導電率の相関は明瞭に観測される。そこで、有効長と密度に対する線材の導電率の等高線プロットを図3-⑬-1-4(c)に示した。明瞭に有効長が長いほど、密度が大きいほど導電率の値が大きく、CNT線材の導電率は主にCNT(有効)長さおよび線材中のCNTの充填密度に依存することがわかった。尚、導電率の配向度依存性は密度依存性と類似していることから、配向度が良いと、密度が高くなり、その結果、導電率が向上すると考えられる。

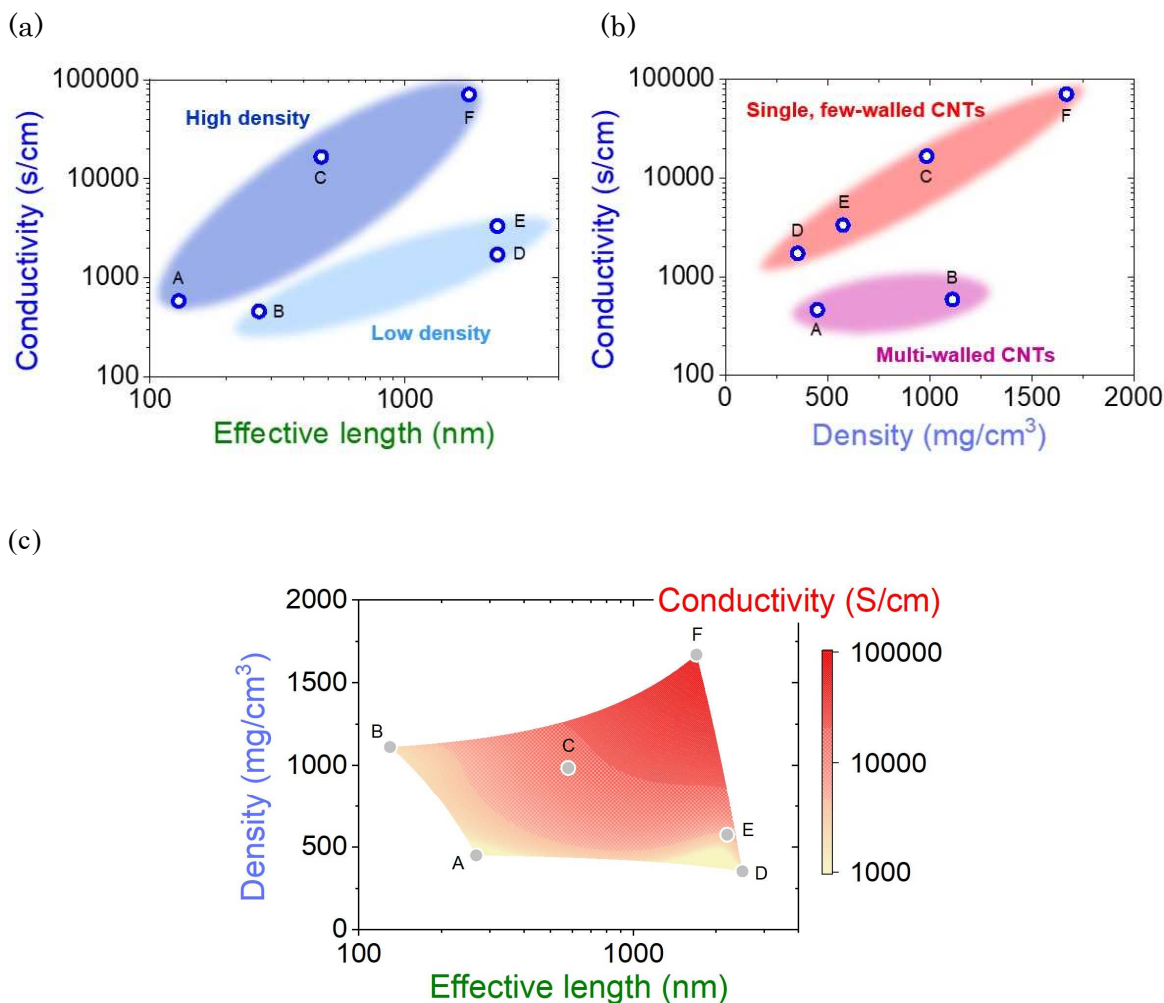


図 3-⑬-1-4 6 種の CNT 線材の導電率にたいする(a)CNT 有効長依存性および(b)密度依存性、さらに(c)それらに対する導電率の 3 次元等高線プロット。

各パラメータの寄与度を定量的に調べるため、CNT 線材の導電率に対する各物理パラメータの部分的最小二乗(PLS)回帰分析を行った(図 3-⑬-1-5)。導電率には有効長、密度、配向度が支配的に寄与しており、さらに、密度に対し有効長や配向度の寄与率が相対的に大きいことがわかる。これは、CNT 線材中で電気抵抗をうけることなく、最短距離で電流パスが形成されることが重要であることを示唆している。一方、大変興味深いことに、破断強度に対し、同様の解析を行うと、CNT 品質のパラメータである有効長や G/D への依存度は低く、密度および配向度が同程度に高く寄与することがわかった(図 3-⑬-1-5)。これは、引張における CNT 糸の破壊メカニズムは CNT の引き抜きが支配的と考えられ、CNT1 本の強度よりもいかに他の CNT と密着しているかが重要であると解釈できる。

ここでは、さまざまな CNT を使用してさまざまな紡績方法で製造された 6 本の CNT 線材の導電率に対する包括的な特性依存性評価を実施した。その結果、導電率は CNT の有効長と糸密度との相関が高いことがわかった。試算によると、遠赤外分光による有効長測定は、これまで用いられてきた顕微鏡観測による CNT 長さ計測に比べ、約 23 倍の高速化が見込まれるため、

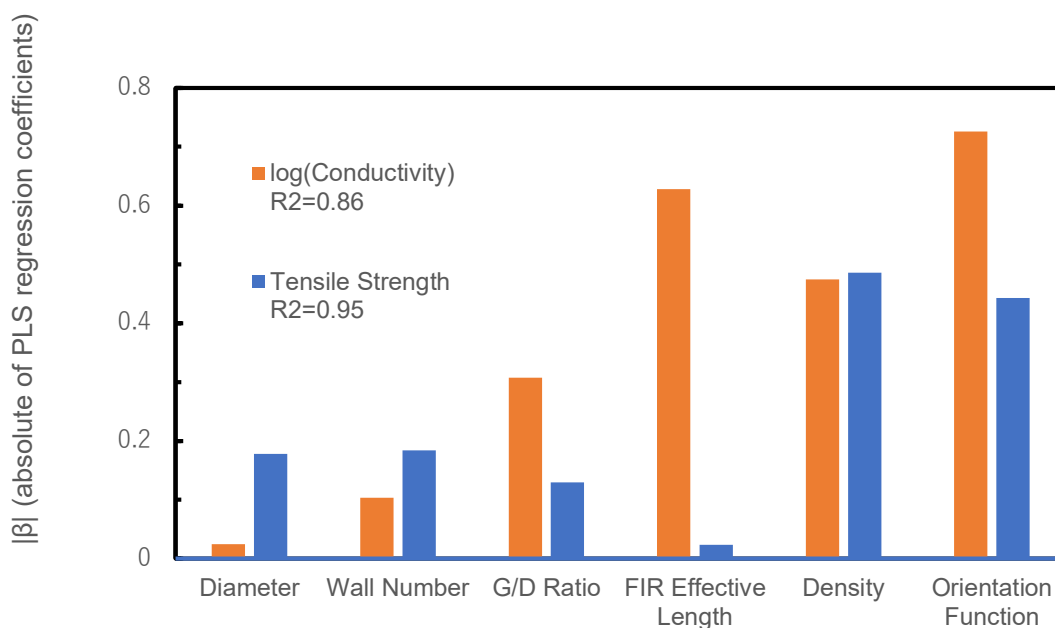


図 3-⑬-1-5 CNT 線材の導電率と破断強度に対する各物理パラメータの部分的最小二乗(PLS)回帰分析結果。

CNT 線材開発の高効率化に大きく寄与する。一方で、紡糸試料 F は最も長い有効長を有する CNT で構成されており、充填密度が理論的に見積もられる上限に近いことから、CNT 線材の導電率をさらに向上させるには、ドーピングなどの後処理プロセスが重要になると考えられる。

## (2) 抵抗温度依存性を用いた CNT 線材における微視的導電機構評価

CNT 線材の物性を予測・制御する上では、マクロな幾何学的構造や CNT 自身の特性による物性発現だけでなく、CNT 同士の微視的な接合を介したネットワーク構造における導電メカニズムについても明らかにする必要が有る。しかし実際には、カイラリティ(巻き方)による半導体・金属 CNT 生成や接合状態、ドーピング状態や表面状態など、多様な物性パラメータを有する複雑な構造体となる CNT 線材における微視的な導電機構の完全な理解には至っていない。この為、組成やプロセス・構造を変化させた際の物性予測が困難であり、出来上がった試料の測定値から試料の良し悪しを判断する場合が通常である。また、様々な物理スケール・温度域における多様な導電機構が提案・乱立し、物性予測の基礎となるモデル選択自体も困難な場合が多く、まずは構成する CNT や基本構造と導電性発現メカニズムの相関性を明らかにする必要性が有った。

CNT 線材の導電性を理解する上で重要な物性指標として、抵抗の温度依存性が挙げられる。複雑な導電パスを形成した CNT 線材中の導電キャリアの挙動を、総合的・俯瞰的に捉える事が可能で、エネルギー空間上の CNT 自身の準位の配置・バラツキに対して、伝導キャリア自身の熱励起や散乱機構を通じてアクセス出来る手法である。また、電流電圧特性(IV 特性)も、ソース・ドレイン電極と CNT 準位の相対位置を変化させ、試料中のエネルギー空間へアク

セス出来るもう一つの簡便な手法であり、これら二つの方法を相補的に用いる事で、様々なCNT線材の微視的な導電機構に対する総合的な評価が可能となる。

CNT線材の導電機構を考える上で基本となる抵抗温度曲線において、典型的な類型を図3-⑬-1-6に挙げている。単層や多層、半導体や金属、直径の太い細い、長さの長短など様々な物性要因が有るものの、その抵抗温度曲線の類型はおおよそ3つの型に分類される。一つは図中①に示した、数10K以下の低温域における強い抵抗発散を伴った抵抗変化曲線。もう一つは②に示した、温度低下に伴って一定程度単調な抵抗減少を示し、極低温において抵抗発散を示すもの。そして、③として示した、温度低下により線形な抵抗上昇を示すものが挙げられる。特に③は、ナノ材料全般を見渡しても一般的な振る舞いとして知られておらず、CNT線材の統一的理解を妨げる一因であると考えられた。その為、プロジェクト中期においては、このCNT線材の示す特異な負の線形抵抗のメカニズム解明に取り組んだ。

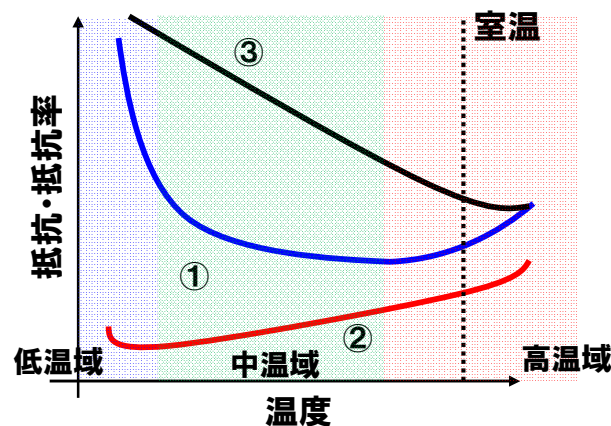


図 3-⑬-1-6、CNT線材の抵抗温度依存性の類型

室温から温度を低下させていった際の電気抵抗の振る舞いとして代表的なものは、フォノン散乱による伝導キャリアの散乱現象である。通常はフォノンによる非弾性散乱により温度低下に伴って線形に抵抗が減少する「正の線形抵抗」が現れる。CNT線材に見られる「負の線形抵抗」は、これら一般的なフォノン散乱では説明が出来ず、まったく異なる起源を持った現象であることが予想された。通常、温度を変化させるとキャリアの熱励起による分布関数の変化を反映した指数もしくはべき乗型を示す抵抗変化現象が多く観測される。従来CNT線材で提唱されていた、Variable Range Hopping (VRH) や Weak Localization (WL)、Fluctuation Induced Tunneling (FIT)などいずれもべき乗則を示す現象である。図3-⑬-1-7に示すように、CNT線材で観測される負の線形抵抗の特徴として、かなりの高温域まで負の線形性が保たれるという特徴がある、この事からも量子干渉効果に起因するような温度に敏感なコヒーレンス性に起因する現象ではない事が分かる。この様な、室温付近を超えて安定的に存在する抵抗寄与可能な現象として、われわれはグラフェンにおいて理論的に提唱されていた、欠陥起因のフリーデル振動による散乱増強効果に着目した。これは、欠陥が存在した際にそこでのポテンシャル変調を周囲のキャリアが協同的に遮蔽した結果として、フェルミ波長に依存する振動ポテンシャルが発現するフリーデル振動に起因する現象であり、フェルミ面が存在する比較的高温まで、その起源となるフリーデル振動が残存するため、温度上昇に対してロバストな特長とも一致する。また、特にグラフェンシートが示す線形エネルギーバンドが存在する際には、特に抵抗の温度

依存性が負の線形性を示すことが予想されており、この点も CNT 線材での振る舞いとも一致する。

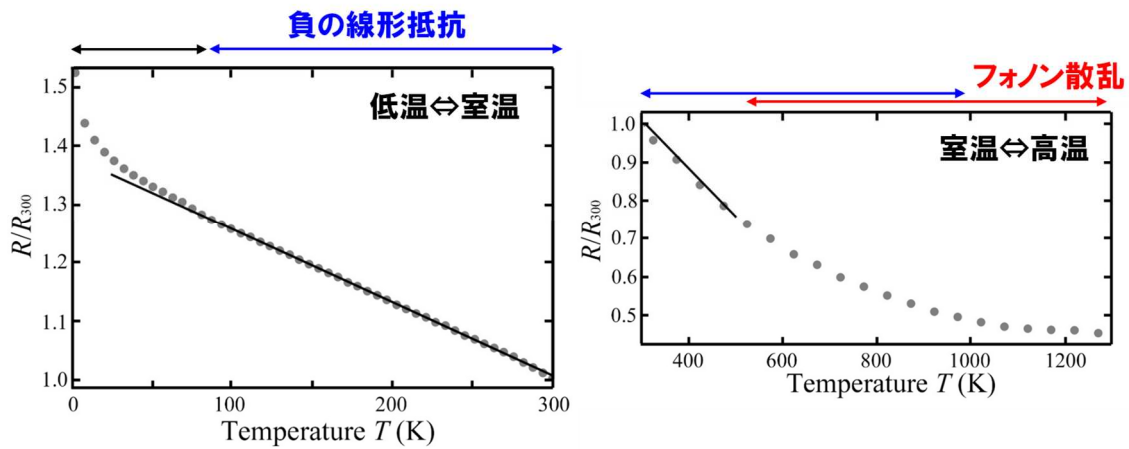


図 3-13-1-7 CNT 線材における負の線形性

CNT 線材における負の線形性が、フリーデル振動に起因する散乱効果で有る事を検証する為、欠陥導入効果とドーピング効果の検証、および断面 TEM 像観察を行った(図 3-13-1-8)。

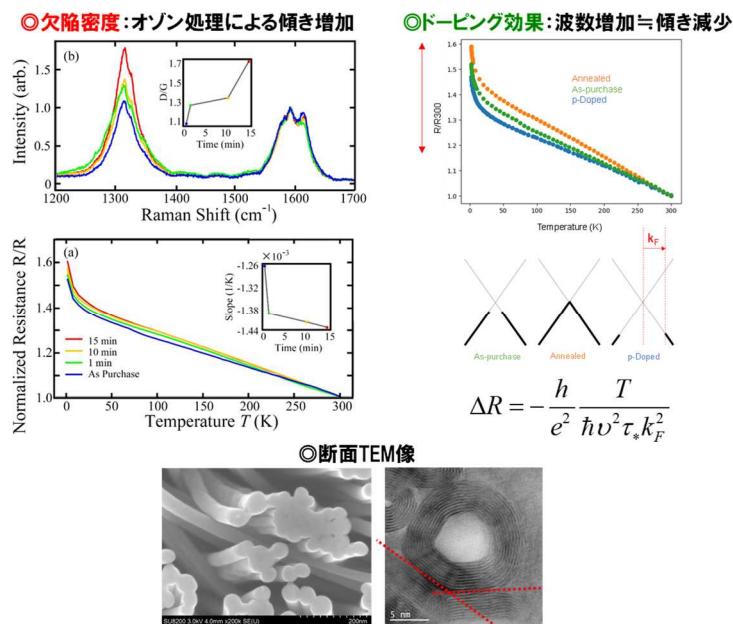


図 3-13-1-8 負の線形抵抗の欠陥量・ドーピング依存および断面 TEM 像

理論的には欠陥導入量はフリーデル振動自体の数と直結する為には散乱効果の増大効果を持ち、ドーピングはフェルミ波数の増大による傾き減少効果をもたらす事が予想されたが、実際の測定結果もこれらの予測と一致した特性を示した。また、高い線形性を示すためには、グラフェンライクな平坦なグラファイト構造を持つことが理論予測から必要であるが、実際に負の線形性を示す CNT 線材において、CNT の歪みによる平坦構造が多数観測され、その点からもフリーデル振動による散乱効果起因であるとの予測と一致した。この様に、CNT 線材に現れる負の線形性の起源が明らかになった事で、発現が予測される物理現象が明らかとなり、モデルの



不完全性が解消したことで、幅広い温度領域に対する微視的な伝導現象の解析が可能となった。

CNT 線材を含めた CNT ネットワーク構造全般に対して、その伝導機構を理解・解析する上では、実際の CNT 線材中でどのような導電機構が発現し、それによりどのような温度・構造・組成に対する振る舞いをするのかの予測が出来る事が重要である。CNT 線材で提案されている導電メカニズムは、それぞれが金属 CNT で起こりやすい現象であるのか、または半導体 CNT で発現しやすい現象なのか、およその分類が可能である。図 3-⑬-1-9 に、各導電機構に対して主に発現しやすい温度域、および発現しやすい CNT が金属的もしくは半導体的 CNT なのかを分類した物を示す。ここに示したように、大きな抵抗値の低温発散を引き起こす VRH は半導体 CNT のエネルギーギャップ起因であり、薄い絶縁膜(真空を含む)を挟んだ導体接合間に発現する FIT は金属 CNT においてより発現しやすい。この事から、実際の CNT 線材において、電流パス上の CNT が金属優位であるのか、半導体優位であるかを簡易に判別する事が出来れば、線材の物性予測および特性向上手法の推定が非常に簡易になる事が分かる。

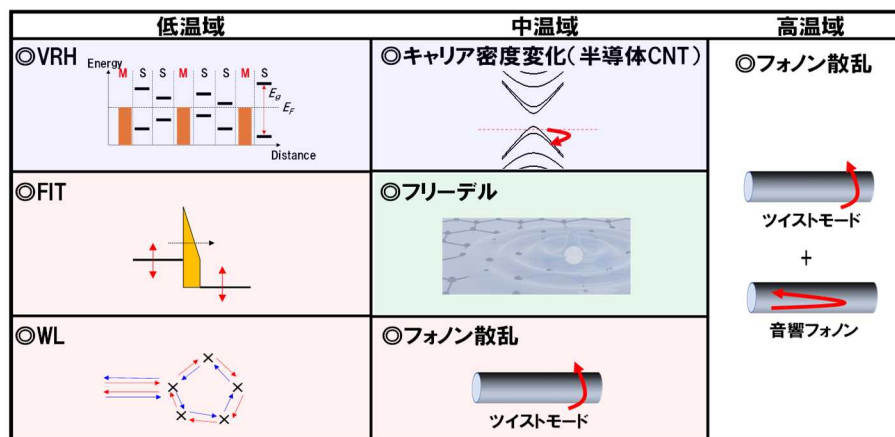


図 3-⑬-1-9 CNT 線材の各温度域における推定導電機構

そこで我々が着目したのは、CNT 線材が示す中温域(100~200K 前後)での振る舞いである。この領域には、半導体 CNT のキャリア密度変化による抵抗変化(温度上昇により抵抗低下)と、金属 CNT におけるフォノン散乱増大による抵抗変化(温度上昇による抵抗上昇)の相反する振る舞いが競合している事が一般的である。その為、CNT 線材(および CNT ランダムネットワーク膜)はその温度依存性に抵抗極小点を持ち、この値が実際の CNT 線材試料中での、金属 CNT と半導体 CNT それぞれの電流パスに対する寄与度を反映したものとなる事が推定される。実際に図 3-⑬-1-10 に示したように、各試料における抵抗極小点を示す温度( $T_{min}$ )と最低温度における抵抗値と極小点における抵抗値の比(抵抗発散強度)をプロットすると、すべての試料の振る舞いが一つの曲線でスケール出来る事が分かる。これは、金属的な CNT が有意であればあるほど低温発散挙動が WL や FIT といった、VRH と比較して相対的に小さな発散挙動となり、半導体性が強いほど、より半導体 CNT のエネルギー準位のバラツキの影響を受ける事を反映した結果と考えられる。半導体的 CNT と金属的 CNT の寄与の比率が容易に推定できることは、CNT 線材における導電性向上指針も容易に推定できることと直結する。つまり、すでに金属 CNT によるパス形成がメインである際には、ドーピングなどのエネルギー空間を変

化させる操作よりも、配向性や充填率など空間配置に関する制御が適しており、一方で半導体的 CNT が優位である際には、ドーピング効果が有効であることが推測される。市販 CNT で高い導電性を示した Dexmat 線材は、この図では左下の領域に位置し、高い配向性とパッキングにより非常に強い金属的性質を持ったネットワーク形成がなされている事が推定される。これにより、より一層の特性向上のためには、更なる配向性の向上や高充填化が重要であることが推定され、計算シミュレーションにおいて高い配向性が重要であることが示された点とコンシステントな結果となっている。

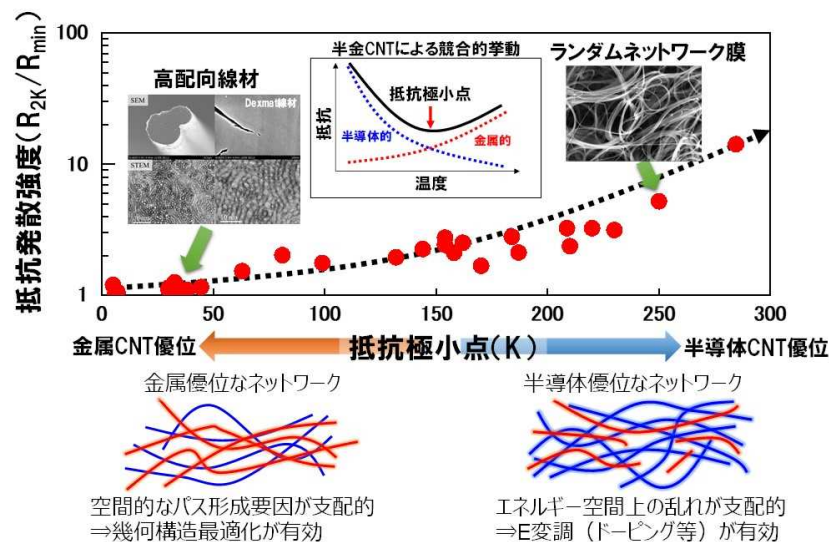


図 3-⑬-1-10 抵抗極小点を用いた導電機構推定

また、DPF への貢献として、ここで示した様々な抵抗温度曲線および電流電圧特性 (2, 000 件)、SEM および TEM 像 (8, 000 件) をはじめとした各種測定データおよび物理指標データ 10, 000 件以上の収録を行う予定であり、CNT 線材をはじめとした CNT 用途部材開発への活用を想定している。

### 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。

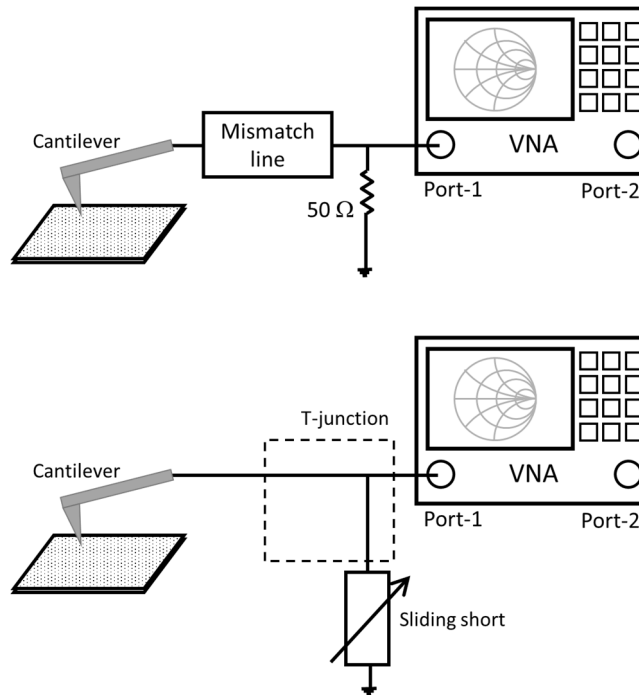


図 3-⑬-2-1 走査型マイクロ波顕微鏡の高感度化 : (上) 既存品 (下) 高感度型

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)。

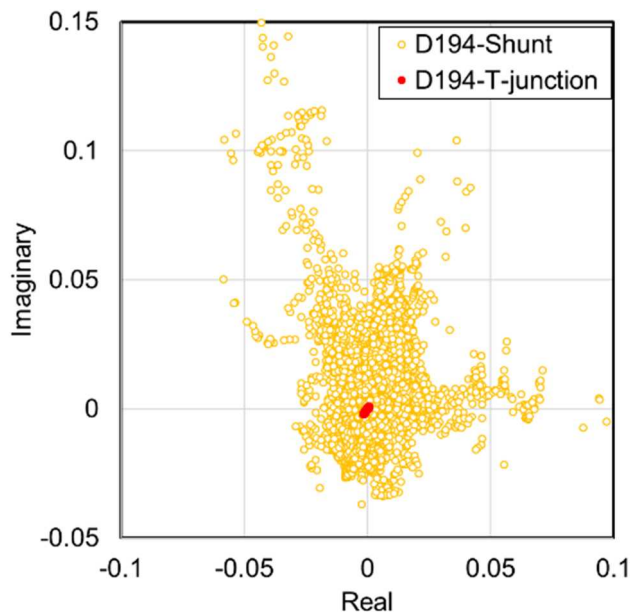


図 3-⑬-2-2 測定ばらつきの低減(精度向上)

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。

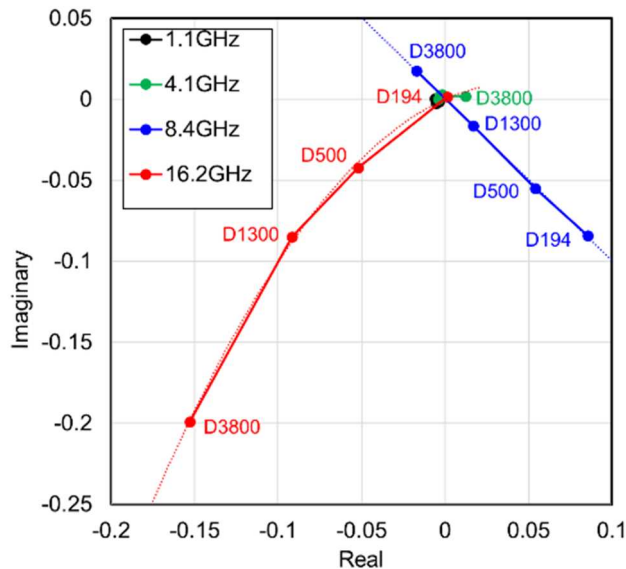


図 3-⑬-2-3 測定結果の定量化

#### (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、本項目および⑨-2 で大面積グラフェンの合成とその特性計測のデータを合わせて導電性阻害要因の絞り込みを行った。これらをプロセス条件の探索に利用することで、開発期間の短縮に取り組んだ。

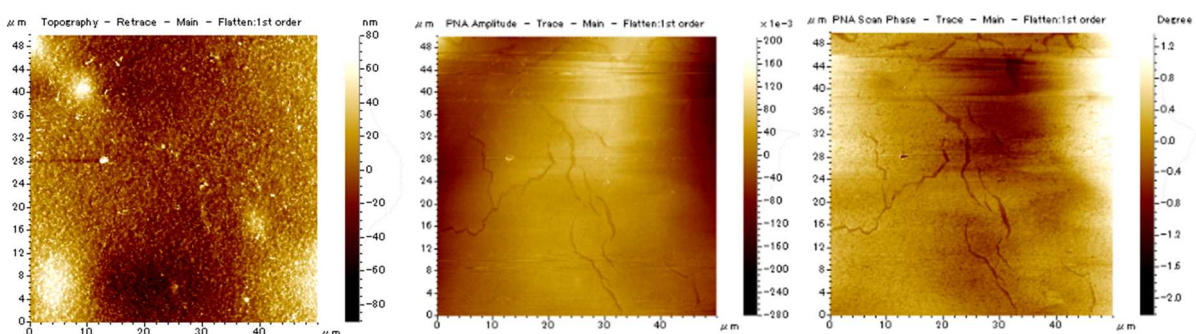


図 3-⑬-2-4 グラフェン 1.1 層転写膜の評価結果(左:形状像、中:マイクロ波位相像、右:マイクロ波位相像)

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。

### (5) 誘電率・導電率の高精度・広帯域評価技術

これまで開発を行ってきた高周波電磁波顕微鏡の基盤技術の検証を進めるために、誘電体基板で金属円板を挟んだ平衡型円板共振器を利用した計測方法の開発に取り組んだ。この方法により、誘電率や導電率の温度特性を高精度かつ広帯域に計測可能な評価手法を開発した。従来、高周波帯での材料の温度特性評価では、空洞共振器や開放型共振器を大型の恒温チャンバーに入れて温度制御をしながら材料計測を行っており、装置の大型化とともに、高周波ケーブルなどの周辺部材にも耐熱性が求められることが課題であった。今回、平衡型円板共振器を局所加熱する測定系を構築し(図 3-⑬-2-5)、材料の熱膨張を考慮したうえで、共振器の高次モード励振の共振特性から基板の誘電率と金属層の導電率を厳密に決定できる電磁界解析アルゴリズムを開発することで、回路基板の誘電率と導電率の温度特性を 10 GHz~100 GHz 超の超広帯域で計測する技術を開発した(図 3-⑬-2-6)。今回開発した技術によって、これまでは難しかった誘電率と導電率の温度特性を 10 GHz~100 GHz 超の超広帯域にわたって簡便に計測できるため、幅広い温度域での低損失化が要求されるミリ波対応先端材料開発の高速化が期待できる。

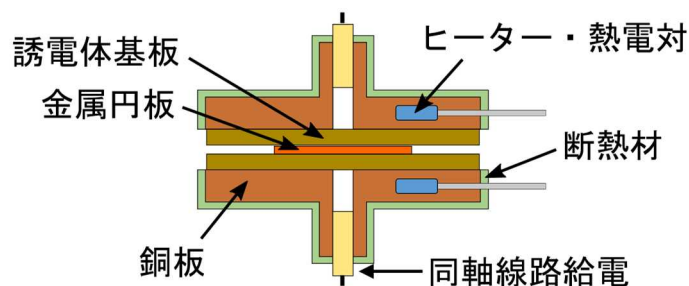


図 3-⑬-2-5 温度特性評価に用いる共振器

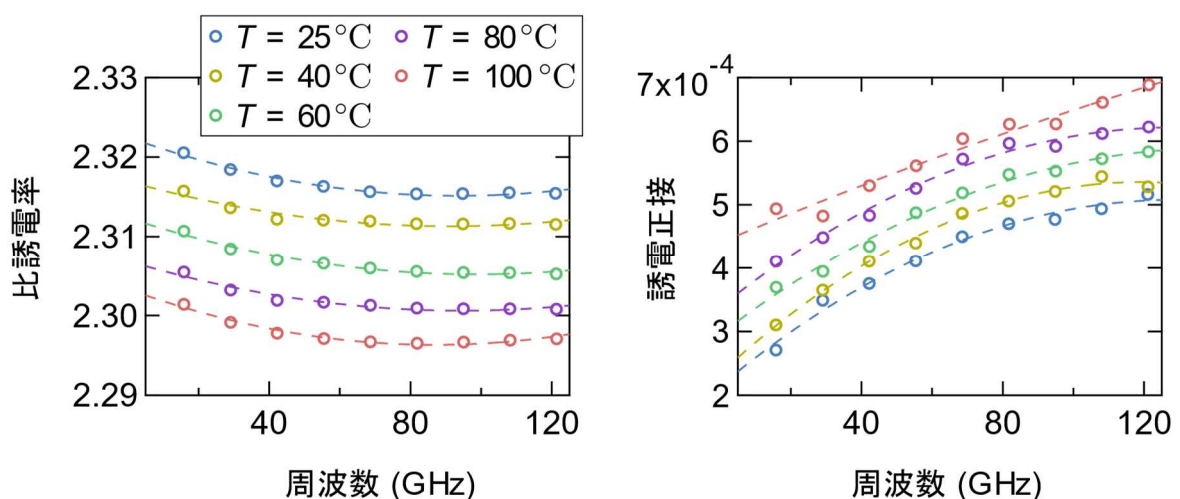


図 3-⑬-2-6 誘電率の温度特性の測定結果例(シクロオレフィンポリマー)

本項目では、開発した計測技術を用いて材料特性の計測データを提供することで、グラフェン等二次元材料の試作回数・開発期間の1/20短縮に貢献した。



### 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

表面状態評価法と空間分布評価法を実用材料への展開を行うとともに、AI 等の機械学習用のデータを構築し、組成・プロセス条件最適化と逆問題解決の実例の提示に貢献する

##### ■ 研究開発の成果

SEM/EDS によって CNT 表面状態を 10 nm 以下の空間分解能で評価する手法を確立し、CNT 膜、複合材、カーボンナノホーンへの適用に成功した。また、敵対的生成ネットワーク (GAN) による仮想実験用の CNT 複合膜の構造観察を行い、電気伝導特性などに対するプロセス条件の最適化と、経済的 CNT 配合割合の導出など、逆問題解決の例示に貢献した。さらに、全反射減衰赤外分光 (ATR-FTIR) イメージングによる CNT/フッ素ゴム材料中の複合材成分の空間分布の可視化に成功した。なお、本研究課題で得られた CNT 複合膜及び複合材の電子顕微鏡像、表面状態解析像、分光スペクトル等の基盤データは DPF へ提供され、MDPF・コンソーシアム運用の基盤情報として活用される。具体的には以下に示すとおりである。

#### (1) 表面官能基の定量的/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の開発を行った。

本項目では、官能基処理を行ったスーパーグロース法単層 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。X 線光電子分光法 (XPS) やラマン分光法を相補的に用いることで、表面官能基の同定や定量化を行った。更には、走査型電子顕微鏡 (SEM) 中での元素分析 (エネルギー分散型 X 線分光法: EDS) における空間分解能を従来技術と比べて2桁向上させ、10 nm 以下の高い空間分解能にて CNT の構造イメージングを可能にし、空間分布を含めた官能基評価法の開発に成功した。

以降では、本項目で開発した高空間分解 SEM-EDS 技術を紹介するとともに、CNT 表面官能基の空間分布について実験結果を踏まえて記載する。

#### (a) SEM 中 EDS 分析における技術課題

エネルギー分散型 X 線分光法 (EDS) は、元素組成分析の 1 種である。図 3-⑬-3-1 に計測原理の概略図を示す。EDS では、①基底状態の原子に電子線を照射することで内殻電子が原子外へと励起され、②生成した空孔へと外殻電子が緩和することによって、③特性 X 線が放出される。特性 X 線は、元素によって固有のエネルギーを持つため、そのスペクトルを解析することで試料に含まれる元素の同定やその組成を定量的に評価することができる。更に近年では検出器の性能向上に伴い、特定箇所の分析のみならず、“イメージング”として元素組成の空間分布に関する分析も需要が高まっている。

EDS は、主に SEM 中あるいは透過型電子顕微鏡 (TEM) 中での用途の 2 種類がある。両者

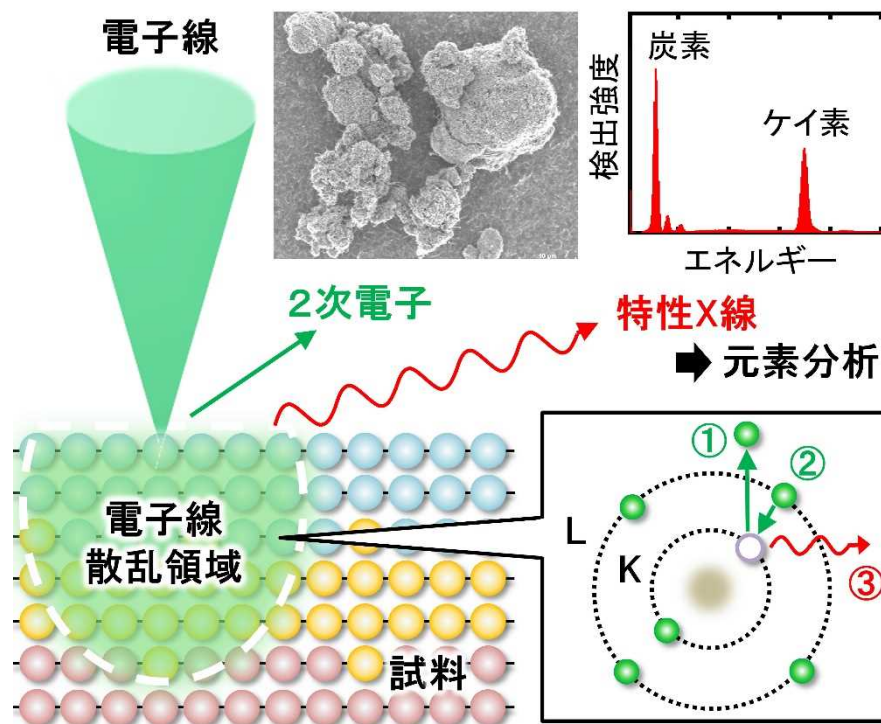


図 3-⑬-3-1 SEM-EDS での元素組成分析.

の違いは下段で詳しく紹介するが、特に SEM-EDS は大面積視野での分析に適しており、また試料形状などの制約も受けないことも大きな特徴である。しかしながら、SEM 中では電子線散乱の影響を受けるため(図 3-⑬-3-1)、EDS 分析の空間分解能は通常 1  $\mu\text{m}$  程度と大きな制約を受けてしまう。

これまで CNT 表面状態に関する均一性は、主に TEM 中での EDS あるいは電子エネルギー損失分光法(EELS)を用いることで、官能基に由来した元素のイメージング評価として行われてきた。TEM 観察では、数百 kV 程度の高い加速電圧を用いて電子線を結像させるため、1 nm 以下の高い空間分解能での元素分析が可能である。しかしながらこれらの手法では、電子線を透過させるために試料を数 nm 程度の厚さまで薄膜化させる必要があり、さらに観察視野も数～数十 nm 程度と強く制限してしまう。そのため CNT の表面分析では、孤立した 1 本～数本の CNT にのみフォーカスした観察が必要であり、材料のごく一部しか評価できないことが大きな技術課題であった。

一方、SEM-EDS は、数  $\mu\text{m}$  から数 mm 程度まで大面積視野での評価に適しており、CNT 材料においても触媒残渣や官能基導入量の分析手法として汎用的に用いられている。しかしながら SEM 中での分析では、試料表面へと入射された電子線がエネルギーを失いながら試料内へと侵入するため(非弾性散乱)、その電子散乱によって空間分解能を強く低減してしまう(図 3-⑬-3-1)。この散乱は一般に軽元素(C や O)ほど影響が大きい。例えば、入射エネルギー 10 keV における散乱領域は、金(Au)では約 200 nm であるのに対し、炭素(C)では 1  $\mu\text{m}$  程度と 5 倍程度の拡がりになる。非弾性散乱は電子線のエネルギーに比例して生じるため、入射エネルギーを十分下げることで空間分解能は数 nm 程度にまでに改善する。ところが電子線の

エネルギーを下げると、X 線自体の放出量が低減してしまうため、特に軽元素に対する検出効率の低い EDS ではこのトレードオフが技術的な課題であった。以上の理由から SEM-EDS 分析における実験的に可能な空間分解能は一般に 1  $\mu\text{m}$  程度であり、CNT のような軽元素ナノ材料の“イメージング”としてはこれまで適切な評価が困難であった。

### (b) 高空間分解 SEM-EDS の開発

今回開発した SEM-EDS 技術の主なポイントは、軽元素材料から放出される X 線信号を効率良く、かつ安定に計測することである。低加速電圧(3~5 kV)での電子線照射時に生成する X 線信号を高効率に検出するため、四素子一体型アニュラー型シリコンドリフト EDS 検出器を用い、高角度・広範囲での X 線取り込みによって検出効率を飛躍的に向上させた。但し、検出効率のみでは下記の 2 点の要因から安定したイメージング計測は困難であり、それぞれについての改良を行った。課題となったのは、①帯電現象(チャージアップ)によるイメージングドリフトおよび②環境由来の元素放出である(図 3-⑬-3-2(a))。図 3-⑬-3-2(b)に示す実験結果からも帯電現象による画像の乱れ(炭素イメージ)、および観察に用いる支持基板からの酸素放出(酸素イメージ)の影響が顕著に見られる。今回の技術では、支持基板に対して①メッシュ状の金属パターンを作製することで帯電現象をほぼ完全に抑制し、さらに②窒化物基板を用いることで酸素などの環境元素を十分に抑え込んだ(図 3-⑬-3-2(c))。

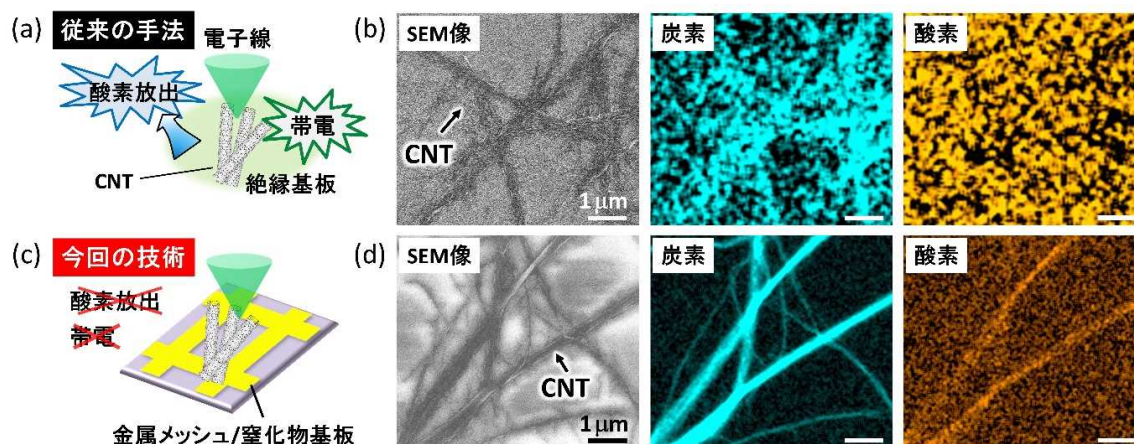


図 3-⑬-3-2 SEM-EDS による表面修飾 CNT の元素イメージング. (a),(b) 従来技術でのイメージングと(c),(d) 今回開発した技術によるイメージング.

図 3-⑬-3-2 (d)に今回開発した SEM-EDS によって表面修飾 CNT の元素イメージングを行った結果を示す。試料はスーパージグロス法によって合成された単層 CNT であり、酸化処理を行うことで CNT 表面に官能基を導入したものである。また XPS 分析により、カルボキシル基(-COOH)が主な官能基であることが同定されている。図示した SEM 画像より、表面修飾によって CNT 同士の絡み合いがほぐれ、数百 nm 程度の比較的細かいバンドルがネットワーク状に分散していることが分かる。これら CNT の構造が EDS 炭素イメージにて鮮明に再現されている。また酸素元素のイメージにおいても CNT 構造をよく反映しており、表面官能基に由来した元素

の空間分布を精度良くイメージングできることが明らかとなった。

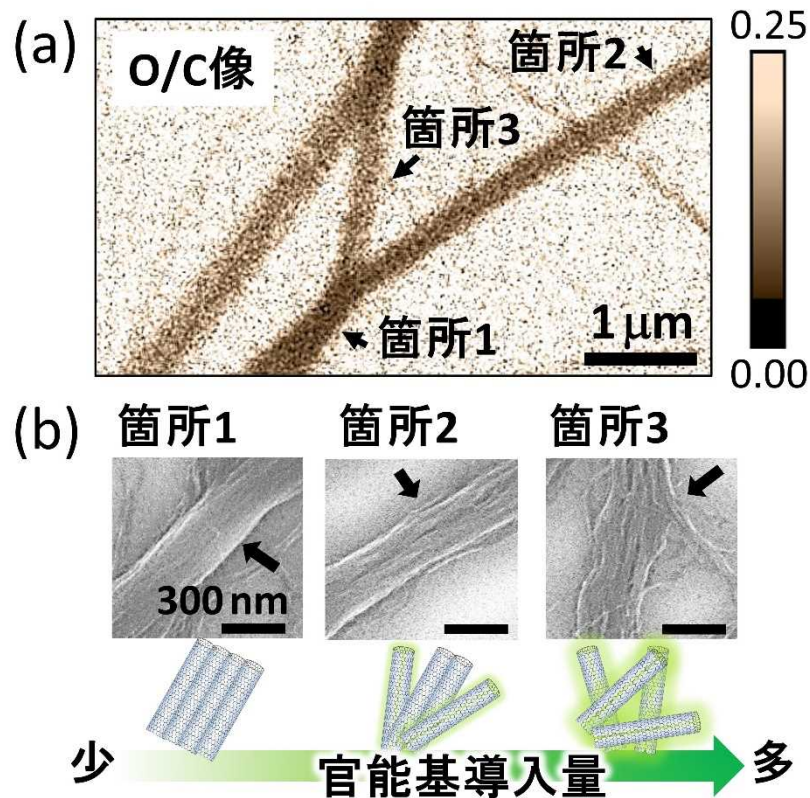


図 3-13-3-3 高空間分解 SEM-EDS イメージングによる CNT 表面官能基の空間分布評価。

今回の技術により、CNT 表面の官能基導入量についての均一性を微細なバンドル構造レベルで評価することが可能となった。図 3-13-3-3(a)に、EDS 分析によって得られた酸素元素の強度(表面官能基)を炭素元素の強度(CNT)で規格化したイメージ(O/C 像)を示す。バンドル構造上の特定箇所(1~3)において O/C 比の異なる結果が得られ、表面官能基が不均一に導入されていることが分かる。またこれら O/C 比の違いは、SEM 像で見られる CNT バンドルの解繊構造(図 3-13-3-3(b))と良い相関を示していることが明らかとなった。これは、化学処理が進み官能基導入量の多い CNT ほど、溶媒和によって分散が促進され、より解繊したバンドル形状を持つことを示唆している。これまで経験則に基づいて議論されてきた CNT 表面の化学状態と形態的な構造との相関について、実空間にて直接可視化された初めての結果である。

本手法は、EDS 分析で頻繁に問題となるイメージドリフトがほぼ完全に抑制されるため、高倍率観察や長時間計測でのイメージ取得に耐性が高く、そのため高い空間分解能での元素分析が可能である。図 3-13-3-4(a)に高倍率(100,000 倍率)で計測した一例を示す。SEM 像で見られる 10 nm 程度の微細な CNT バンドル構造が炭素イメージにて良く現れている。さらに EDS は SEM 像と遜色ないコントラストで高精度に CNT を再現しており(図 3-13-3-4(b)), 10 nm 以下の高い空間分解能でイメージング評価されていることが明らかとなった。この値は、先行研究での電子線散乱の予測値とも良く一致しており、SEM-EDS 分析における理想的な分解能を実現していると言える。以上の結果は、高効率かつ安定性の高い X 線信号検出による

恩恵であり、従来 SEM-EDS での空間分解能(1  $\mu\text{m}$ )を大きく改善することに成功した。

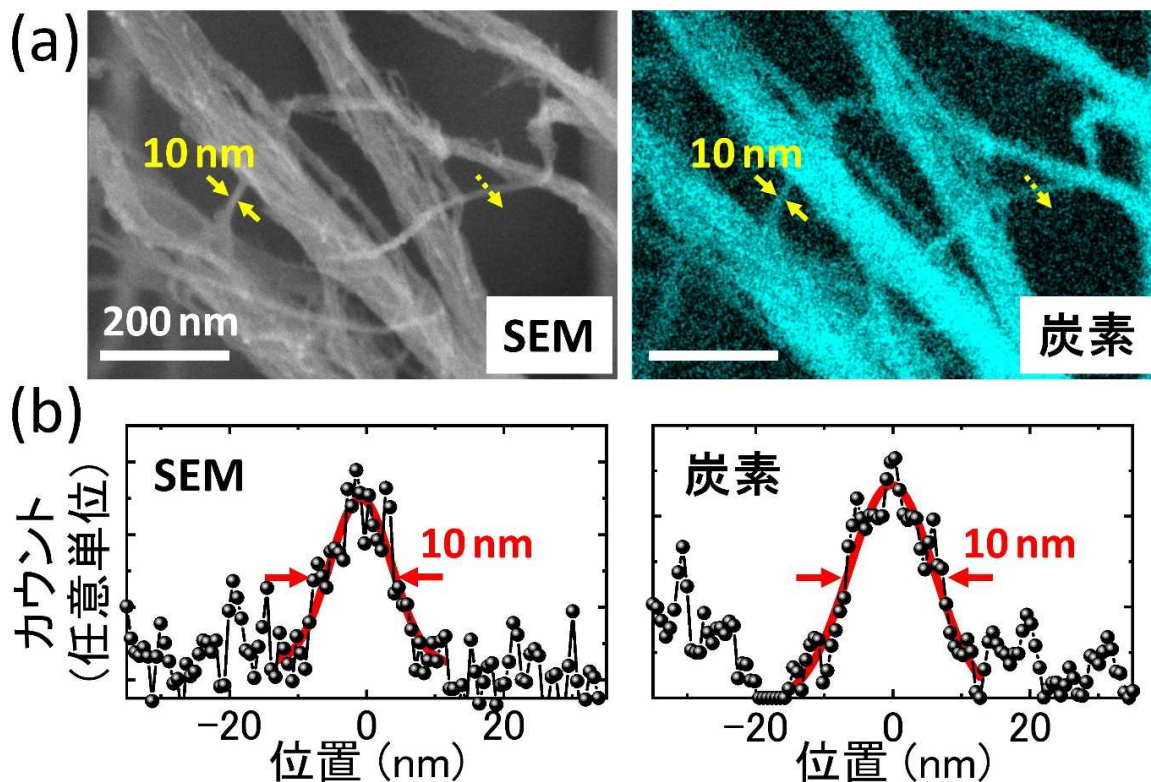


図 3-⑬-3-4 本技術における空間分解能. (a) SEM および炭素イメージと(b)ラインプロファイル解析(黄色点線箇所).

(c) さまざまなナノ材料の評価手法として

高効率・高安定な X 線信号検出により、これまで分析が困難であった軽元素ナノ構造の元素組成がイメージングとして評価可能となった(図 3-⑬-3-5)。本技術は CNT のみならず、さまざまなナノ材料に対して広く適用が可能な分析手法である。実際に、本技術によってカーボンナノホーン(CNH)材料の表面官能基イメージング評価が可能となり、CNH凝集構造(ダリア)中での立体障害による表面修飾の不均一性の可視化に成功している。従来 SEM-EDS 技術では評価が困難であったさまざまなナノカーボン材料の表面状態を可視化する新しいツールとして汎用的に適用可能であることを示唆している

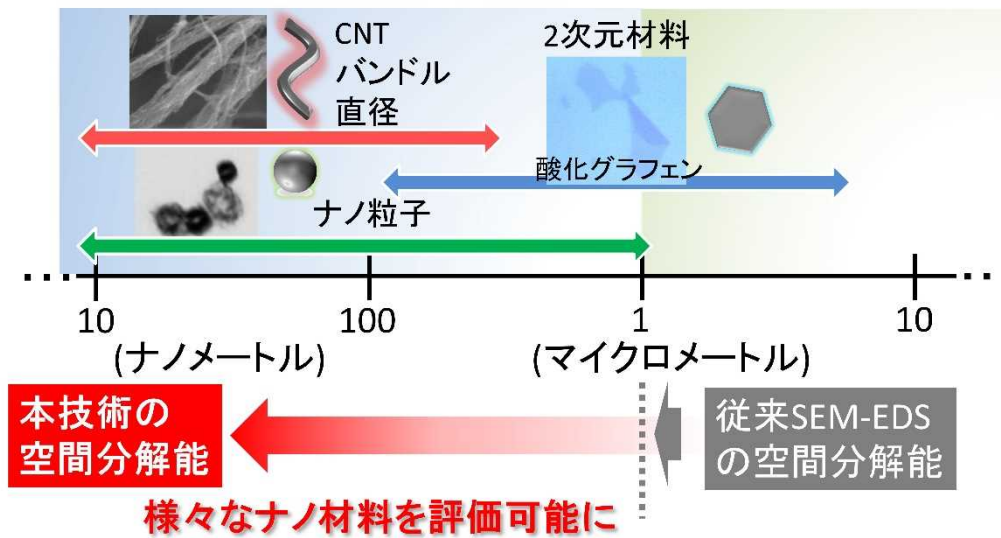


図 3-⑬-3-5 開発した SEM-EDS 技術の位置付け(さまざまなナノ材料とのサイズ比較)

(2) 計測技術に基づく材料仮想実験や逆設計への貢献

本テーマにおいては(1)で示した多様な計測技術の確立に取り組んできた。こうした計測技術を活用して事業内容③、⑨-3 と連携して材料の仮想実験や逆設計のための基盤技術に関して検討した。CNT 複合膜のケースを例に、計測と材料仮想実験や逆設計との関わりを説明する。CNT はチューブが多数束ねられバンドル構造が絡み合った、非常に複雑なネットワーク構造を形成し、電気・熱・力学特性を発現する。原子や化学結合で構造全体を表現できない、かつ、マルチスケールな構造全体がバルク特性に大きく影響するため、本テーマにおいては微細構造を用いて深層学習の 1 種である敵対的生成ネットワーク(GAN)による材料仮想実験に取り組んだ。CNTの構造の階層性を表現するためにマルチスケールな構造を反映した、異なる倍率における微細構造を計測し、倍率ごとに GAN モデルに学習させるアプローチをとった。これにより所望の配合条件を入力することで各スケールに対応する微細構造を人工的に生成することが可能になった(図 3-⑬-3-6)。実際に計測で得られている画像と比較しても遜色ない構造が GAN モデルによって得られていることがわかる。この時に得られた構造が実際の構造とどれぐらい一致しているのかを定量評価するために、計測で得られた画像を解析し、空隙やバンドルサイズといった観点から GAN モデルの確からしさを定量的に比較した(図 3-⑬-3-7)。これにより良好な画像が GAN モデルによって得られていることを確かめられた。また、生成したマルチスケールな画像を束ねてタイリングし、CNT 複合膜の特性を予測するニューラルネットワーク(ANN)を構築した。この時に、ANN によって得られた特性の予測値の確からしさを定量的に評価するために、予測と対応した配合条件における CNT 複合膜の特性を計測した(図 3-⑬-3-8)。予測精度を調べることで良好なモデルが得られているかどうかの指針を得ることができ、信頼性を担保した上で仮想実験を行うことが可能になった。実際に予測精度を検証したモデルによって 1716 もの配合条件における CNT 複合膜の特性を予測し(図 3-⑬-3-9)、CNT を 2 種または 3 種用いた際の CNT 複合膜の設計指針を定量的に得ることを可能にした。実際に 1716 条件も実験すると非常に膨大な時間を要する CNT 複合膜の試作が、マルチスケールな CNT

の構造の特徴を捉えた GAN, ANN によって実際の実験と比べて約 85 倍の高速化し 98.8% もの時間を短縮したことになる。開発期間短縮に資する深層学習のために、計測で得られた種々のデータはモデルを学習する際に、そしてモデルの出力の確からしさを多面的に検証するために非常に密接に関わっている。このように本課題におけるナノスケールからマイクロスケールにおける多階層における分散構造の画像、化学構造や材料結晶性を反映した分光スペクトル、電気・熱・力学特性といった多種の計測技術によって、機械学習や深層学習に代表されるデータ駆動型の材料開発を行うために必要なデータセット構築、及び予測結果の検証のために必要な実データの蓄積において大きく貢献することができた。

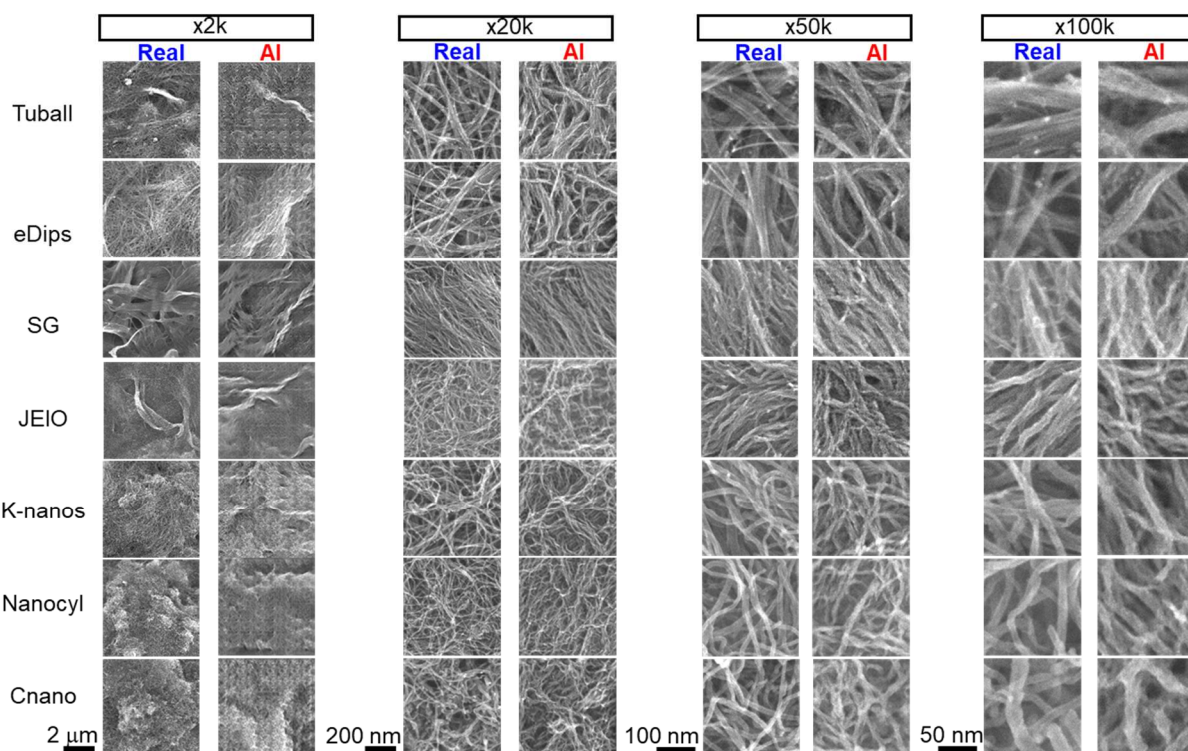


図 3-⑬-3-6 AI により生成された CNT の微細構造の画像と計測によって実際に得られた画像の比較

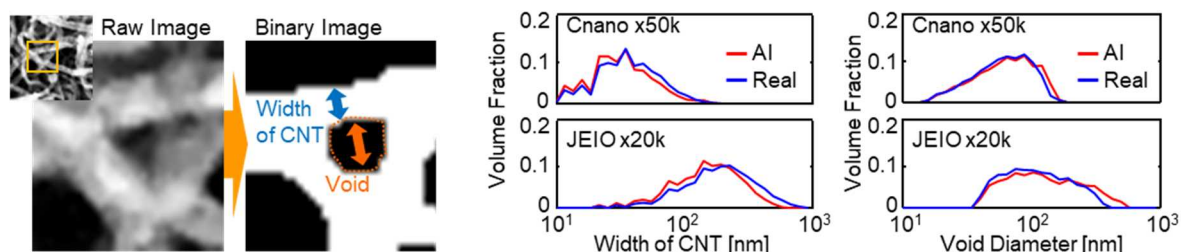


図 3-⑬-3-7 AI により生成された微細構造の検証のための画像解析

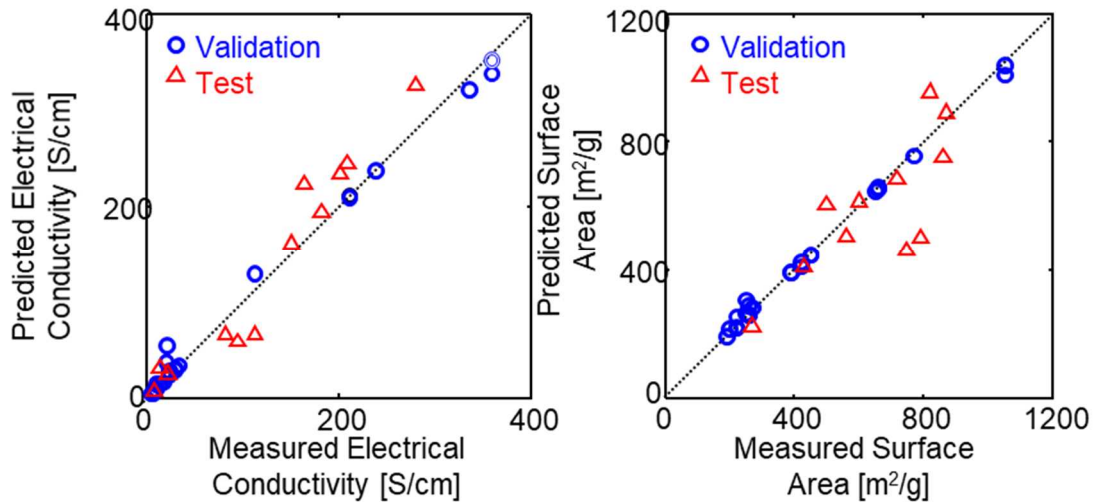


図 3-⑬-3-8 深層学習による予測される CNT 複合膜の特性と計測による予測結果の検証

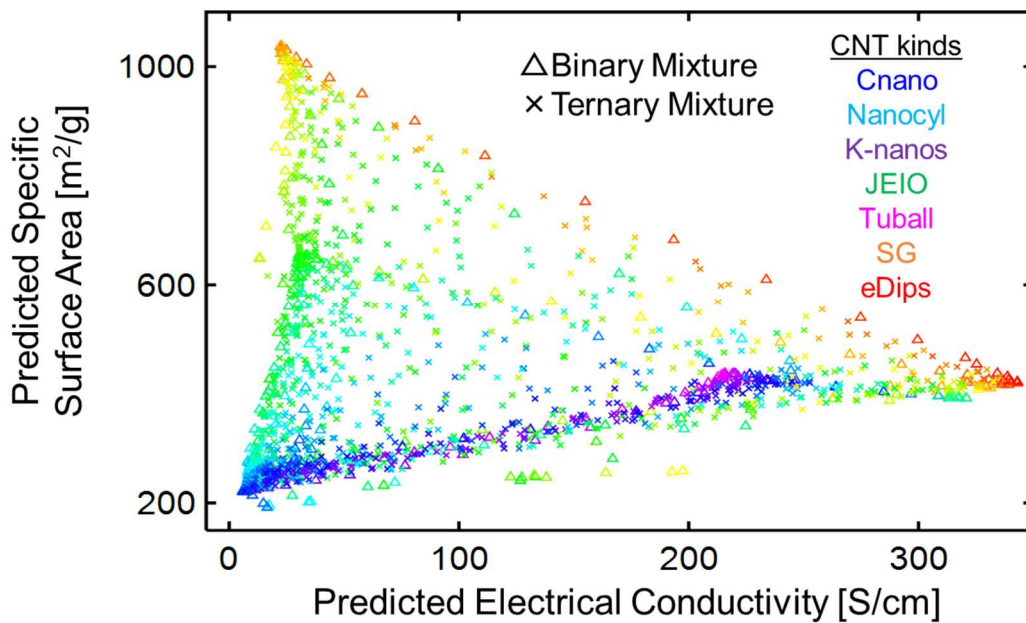


図 3-⑬-3-9 図 3-⑬-3-8 で検証した深層学習モデルによって予測された、2 種または 3 種の CNT を用いた 1716 条件における複合膜の導電率及び比表面積の散布図

(3)近赤外分光(NIR)イメージング法、全反射減衰赤外分光(ATR-FTIR)イメージング法を用いた CNT 複合材料評価法の開発(京都大学再委託)

CNT 高分子複合材料中の CNT 及び複合材成分の空間分布状態の可視化手法の開発を目的に、近赤外分光イメージング法、ATR-FTIR イメージング法を用いた複合材料評価法の開発を行った。

まず、NIR イメージングを用いたフッ素ゴム(FKM)の評価をおこなった。FKM 製品は FKМ に架橋剤と架橋開始剤を配合したものを、成形中に加熱して反応させることでゴム弾性と形状を



同時に付与する。本事業では、FKM/CNT 複合材料の架橋度に着目し、NIR イメージングを用いて成形品間の架橋状態の違いを非破壊分析可能であるか検討した。

図 3-⑬-3-10 に①FKM 単体、②架橋剤・架橋開始剤配合後の FKM、③架橋後の FKM の NIR スペクトルを示す。ピーク強度や形状に違いが見られたが、特に大きな違いが、1700 nm 付近のピーク周辺と 2120 nm 付近のピーク形状である。架橋剤・架橋開始剤の配合により現れた 1639 nm (中央) や 2120 nm (右) のピークは架橋後にピークが減少または消失している。このピーク強度を利用することで、架橋状態の違いを簡易的に可視化することを試みた。

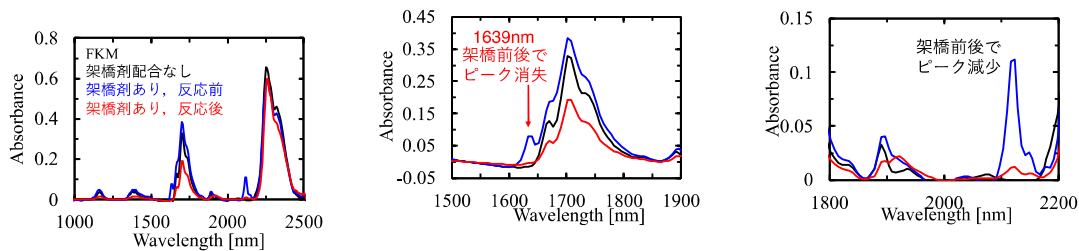


図 3-⑬-3-10 架橋剤配合・架橋状態の異なる FKM の NIR スペクトル。(左) スペクトル全体図、(中央) 1700 nm 付近ピーク拡大図、(右) 1800 nm 以上の波長域

NIR イメージング測定を行うにあたり、近赤外レンズを新たに検出器に取り付けることで、従来の2倍程度の空間分解能で測定が可能になった。図 3-⑬-3-11 に架橋条件の異なる FKM 成形体の可視像と NIR イメージングにより測定した各位置の吸収スペクトルから 1639 nm の吸光度の大きさを色で表現したケミカルイメージを示す。可視像では架橋反応進行した試料は、黄色みがかかることがわかるが、NIR イメージでは架橋温度が高く、長い時間架橋させた試料ほど青色、すなわち小さい吸光度を示すことがわかる。したがって、架橋剤由来の吸収ピーク強度を利用することで、簡易的に架橋状態の違いを可視化することができた。

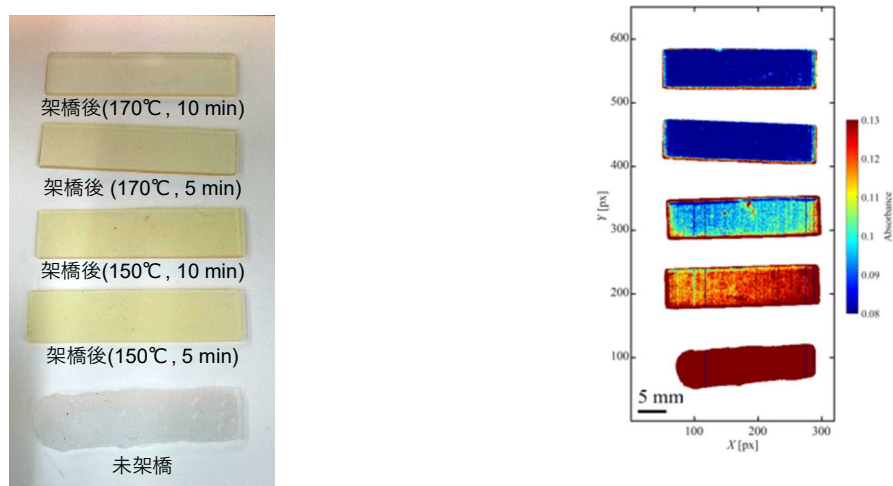


図 3-⑬-3-11 架橋状態の異なる FKM 材料の(左)可視像(右) NIR 吸光度イメージ(1639 nm)

次に、FKM 内のケミカルイメージを取得するために、全反射減衰赤外分光(ATR-FTIR)イメージング法に関して検討した。CNT 濃度や CNT の種類を変えた際の各試料の配合比と ATR-FTIR スペクトルを図 3-⑬-3-12 に示す。SG はスーパーグロース法単層 CNT, Knano, Cnano

はそれぞれ Kumho 製、および CNano technology 製の多層 CNT である。FKM 内の C-F 基由来のピーク( $1396\text{ cm}^{-1}$ )、架橋剤カルボニル基由来のピーク( $1690\text{ cm}^{-1}$ )に加えて、CNT 総添加量の増大に伴う波長域全体のベースライン増加が見られた。このことは、ベースライン像により CNT の空間分布を評価可能であることを表している。

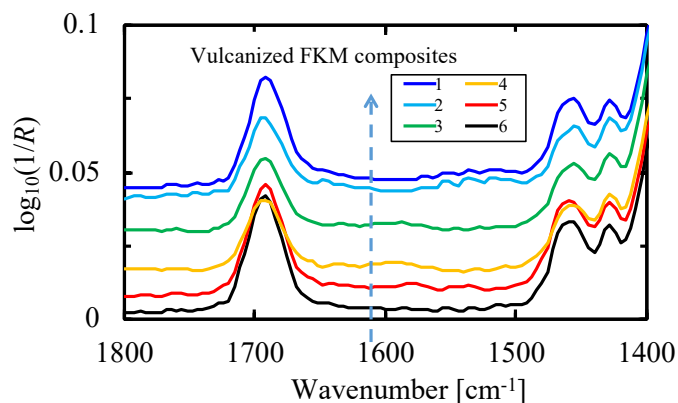


図 3-⑬-3-12 CNT 濃度・CNT 種類の異なる FKM/CNT 試料の ATR-FTIR スペクトル  
 (1: FKM/SG 99/1.0, 2:FKM/SG/Knano 99/0.5/0.5, 3: FKM/SG/Cnano 99/0.5/0.5,  
 4: FKM/SG/Knano 99.5/0.25/0.25, 5:FKM/SG 99/0.1, 6: CNT なしの成形体)

そこで産業技術総合研究所でロックイン発熱解析(図 3-⑬-3-13)及び顕微ラマンマッピング測定(図 3-⑬-3-14 (a))を行った試料を提供してもらい、ATR-FTIR イメージング法により同一試料、同一箇所の評価を実施した。赤外線観察像では均一に見える試料内でも、ロックイン発熱強度像では高発熱部位周辺で CNT ネットワークの欠陥が存在することが示唆された。ラマン G/D 比マップは異物の存在する位置でのみ値が低下し、それ以外の領域ではほぼ均一な分布が得られた。ATR-FTIR イメージングにより得られた、架橋剤カルボニル基ピーク吸光度像(図 3-⑬-3-14(b))は、顕微ラマンマッピングとほぼ同様のモルフォロジーを示しており、架橋剤の濃度分布や架橋度の不均一性は確認できなかった。一方で、ベースライン像(図 3-⑬-3-14 (c))では顕微ラマンマッピングとは異なるモルフォロジーが得られ、異なる内部の CNT の分散状態を捉えている可能性が示唆された。

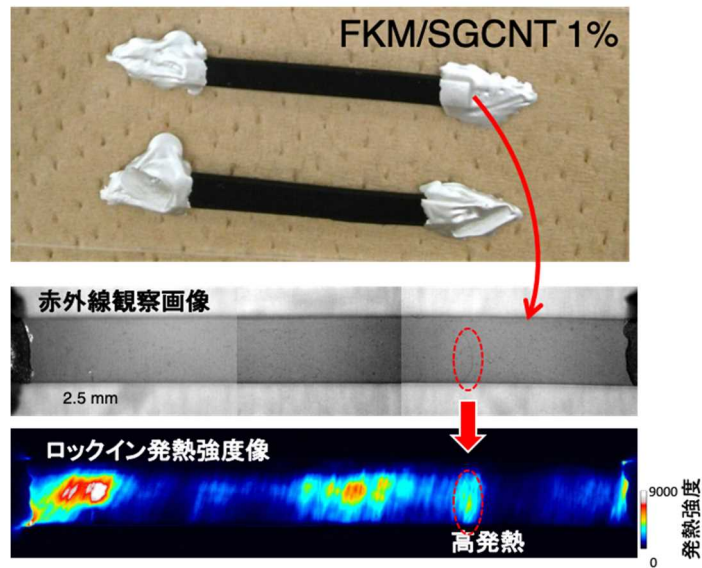


図 3-⑬-3-13 FKM/SGCNT(1wt.%)試料のロックイン発熱解析の結果(産業技術総合研究所提供)

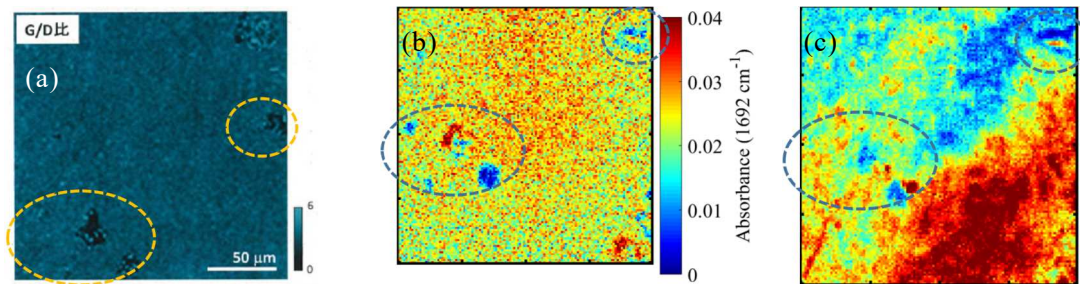


図 3-⑬-3-14 FKM/SGCNT(1wt.%)の発熱部位近傍の (a)顕微ラマン G/D 比マップ, (b)ATR-FTIR イメージング FKM 架橋剤カルボニル基吸光度像, (c)ベースライン像

## ⑭超先端材料超高速開発基盤技術に関する調査

### 【事業内容毎の目標と達成状況】

事業内容	最終目標 (2021年度末)	成果	達成度
⑭超先端材料超高速開発基盤技術に関する調査	市場調査の実施とPJ終了後の事業化戦略の策定	欧州の研究機関の訪問(2016年度)を行うとともに、「計算科学・AIに関する技術動向調査」と「MIに関する動向調査」を外注により実施し、コンソーシアムを通じた成果の普及・社会貢献の体制を整備した	○

#### ■ 目標

各開発基盤技術(計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術、高速試作・革新プロセス技術開発、先端ナノ計測評価技術開発)の国内及び海外研究動向等の調査を行なう。また、開発加速に資する資料収集や、開発要素についての最新のニーズを把握するとともに、国内外の材料開発の市場調査を行い、プロジェクト終了後の事業化戦略の策定を進める。

#### ■ 研究開発の成果

2016年度は、計算科学に関しドイツのフラウンホーファーIAIS(インテリジェント分析・情報システム研究所)、IWM(材料メカニズム研究所)およびSCAI(アルゴリズム・科学計算研究所)を16名で訪問し、材料開発に向けたマイクロ・マクロ計算および深層学習に関する情報収集と意見交換を行った。一方、プロセス関係でリール大学(フランス)とリバプール大学(イギリス)を5名で訪問し、コンビナトリアルケミストリーに関する情報収集と設備の見学を行った。

2018年度は「マテリアルズインフォマティクスの動向調査」と「有機系複合材料におけるAI・機械学習等の活用事例調査」、2019年度と2020年度は「計算科学・AIに関する技術動向調査」を、2021年度は「MIに関する動向調査」を外注により行った。

さらに、プロジェクト終了後の成果普及と社会実装のための「データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアム」の立ち上げと、データプラットフォーム(DPF)および材料設計プラットフォーム(MDPF)に関しての装置群を整備した。

また、ホームページ、プレスリリース、公開の成果報告会、装置群の見学対応などを通じて、積極的に成果の普及・宣伝と、プロジェクト終了後のDPF-MDPFの利活用に向けた準備を行った。

### 3.2.4 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／材料データ構造化 AI ツール開発

#### 全体の目標、計画、および成果

研究開発項目	目標	成果	達成状況
課題 1-1 高分子論文コーパスの研究開発			
1) アノテーションガイドラインの作成	「高分子名と特性」、「関係性」について実施	「高分子名と特性」、「関係性」についてアノテーションガイドラインを作成した	○
2) 機械学習用コーパスの作成	「高分子名と特性」、「関係性」について実施し、①-3の改善を経て、各 200 論文以上のアノテーションを行う	「高分子名と特性」、「関係性」について実施し、①-3の改善を経て、各 200 論文以上のアノテーションを行った結果、機械学習用のコーパスを作成できた	○
3) コーパスの機械学習と改善	「高分子名と特性」、「関係性」について実施	「高分子名と特性」、「関係性」について課題 2 にコーパスを提供し、機械学習を行った。結果をガイドライン及びコーパスの改善を行った	○
4) 持続的高度化システム構築	「コーパス作成基盤 (PoLyInfo との互換)」、「機械学習対応」、「アーカイブ化」を実施する	持続的高度化システムとして、コーパス作成基盤 (TeamAnno) を作成し、そのコーパスを汎用の機械学習にかけ、アノテーションの作業を効率化するシステムを追加した。更に作成したコーパスや関係するファイルをアーカイブ化する、ファイル管理システムを追加構築した。	○
課題 1-2 AI ツールの高度化に向けた教師データ作成技術の開発			
1) 教師データの作成	①-1 で作成したガイドラインにもとづきアノテーション作業を外注により「高分子名と特性」、「関係性」について実施	高分子論文集のテキスト化、および左記のアノテーション作業を外注し 500 報分のデータを作成した	○
2) 海外巨大 DB 構造情報の調査	研究者を CAS へ派遣し、DB の構造情報と仕様について調査を実施	オントロジーやデータフォーマット、技術用語辞書作成の基礎に関して 6 週間の調査を実施、技術文献を構造化し知識化する一連のフローにおいて重要な知見を得た	○
課題 1-3 データ連携基盤技術構築と特許データベース設計			
1) データ連携プロトコルの作成	様々なデータリソースを MI のために統合する仕組みをつくる	PoLyInfo フォーマットに準拠した RDF (Resource Description Framework)、および高分子オントロジーを作製した。	○
2) 特許データベースの設計	特許データベースの概念設計・要件定義を行う	公知情報の中でもインフォーマティクス用の大量データのリソースとして注目される特許データベースの概念設計・要件定義を行った。	○
3) データ連携基盤の構築	データ連携用の RDF に特許 DB 等、外部からアクセスするためのエンドポイントの構築	NIMS 内のテスト環境での検証後、安定的な運用を目指して外部クラウド (Azure) にエンドポイントを構築した	○
課題 2 技術文献から物性情報を抽出するツールの開発			
1) 高分子名・特性の抽出技術の開発	データ分析、モデル構築、計算実験、ツール化を行う	材料科学ドメインに特化した日本語用 BERT を開発し、これを基にエンティティ抽出手法を開発した。計算実験の結果、抽出性能は 90%を超える F 値マクロ平均を達成した。ウェブアプリケーションツールとして実装した。	○
2) 関係性の抽出技術の開発	データ分析、モデル構築、計算実験、ツール化を行う	上記 BERT を基に、関係抽出手法を開発した。計算実験の結果、抽出性能は 70%を超える F 値マクロ平均を達成した。ウェ	○

		ブアプリケーションツールとして実装した。	
3)プロセス情報の調査	先行補完調査、データ分析、プロトタイプ構築を行う	材料科学ドメインの文献に対し、材料合成プロセス情報を含む部分を抽出する手法のプロトタイプを開発した。	○
課題 3 材料科学論文の図表から情報抽出するツールの開発			
1)PDF からの図表の領域認識	教師データの収集と領域認識ツールのプロトタイプ作成、領域認識モデルの改善、領域認識モデルの評価と大規模化、ツール統合について実施	PDF をデジタル画像処理によって図表の領域を検出する教師データおよび機械学習モデルを開発した。また、ウェブ上で動作するツールとしてプロトタイプを実装した。	○
2)表の構造解析	教師データの収集、表の構造解析モデルの開発、構造解析モデルの改善と高分子論文集での評価、ツール統合について実施	表の構造をアノテーションした教師データを作成した。構造解析を行う機械学習モデルを開発し、ウェブ上で動作するツールとしてプロトタイプを実装した。高分子論文集で評価した結果、90%を超える F 値を達成した。	○
3)グラフのオブジェクト認識と数値読み取り	教師データの収集、オブジェクト認識と数値読み取りモデルの開発、モデルの改善と高分子論文集での評価、ツール統合について実施	グラフのオブジェクトをアノテーションした教師データを作成し、数値読み取りモデルを開発した。高分子論文集で評価した結果、70~90%程度の平均適合率を達成した。ツールとしてプロトタイプの実装を行った。	○
課題 4 材料データ構造化のための標準データフォーマット・オントロジーの研究開発			
1)標準データフォーマットの開発	高分子名および代表的な特性、代表的な関係性、プロセスについて開発を行い、公開する	課題 1 作成のアノテーションガイドラインに沿ったデータを標準フォーマットとして利用し、高分子名、特性、プロセス等はオントロジーで定義した語彙を参照形式とした。	○
2)辞書(オントロジー)の開発	高分子名および代表的な特性、代表的な関係性、プロセスについて開発を行い、公開する	Wikidata、MeSH、ChEBI から抽出した高分子に関する用語の is-a 階層を統合し、RDF 形式のデータとして整備した高分子オントロジーを開発・公開した。	○
3)外部データベースとの連携	特性についてのオントロジーの外部データベースとの統合を行う	複数の外部データベースを統合することによって高分子オントロジーを開発し、外部データベースとの連携を実現した。	○
4)標準データフォーマットおよびオントロジーの開発・利用のためツールの開発・整備	基本機能の設計・開発、改良を実施、標準データフォーマットおよびオントロジーと共にツールを公開する	データフォーマット・オントロジーを構築・利用するためのツール群を開発し、オープンソースソフトウェアとして公開した。	○

事業項目	2019年度				2020年度				2021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
<b>【課題1-1】</b> 1)アノテーションガイドラインの作成 2)機械学習用コーパスの作成 3)コーパスの機械学習と改善 4)持続的・高度化システム構築(以上、NIMS、東大)	高分子名と特性 ↓課題4				高分子名と特性の関係性 ↓課題4 ↓課題2				プロセス情報 ↓課題4 ↓課題2 アーカイブ化 ↓課題2,3			
<b>【課題1-2】</b> 1)教師データの作成(6社、別記) 2)海外DB構造情報の調査(東レ)	海外調査				高分子名と特性 ↓課題2,3,4 RDF構築				関係性 ↓課題2,3,4			
<b>【課題1-3】(NIMS)</b> 1)データ連携プロトコルの作成 2)特許データベースの設計 3)データ連携基盤の構築					概念設計・要件定義				エンドポイントの構築			
<b>【課題2】(産総研)</b> 1)高分子名・特性の抽出技術の開発 2)関係性の抽出技術の開発 3)プロセス情報の調査	プロトタイプ作成 ↓課題4				技術開発・ツール作成 プロトタイプ作成 調査 ↓課題4				抽出技術の高性能化 技術開発・ツール作成 プロトタイプ作成 ↓課題4			
<b>【課題3】</b> 1)PDFからの図表の領域認識(奈良先端大) 2)表の構造解析(奈良先端大、理研) 3)グラフのオブジェクト認識と数値読取り(千葉工大)	データ構築・プロトタイプ データ構築 データ構築				モデル改善 モデル構築 モデル構築 ↓課題4				評価と大規模化・ツール統合 評価と手法改善・ツール統合 評価と手法改善・ツール統合			
<b>【課題4】(大阪電通大)</b> 1)標準データフォーマットの開発 2)辞書(オントロジー)の開発 3)外部データベースとの連携 4)ツールの開発・整備	高分子名と特性 高分子名と特性 既存DBの調査 基本設計・主要機能の開発				高分子名と特性の関係性 高分子名と特性の関係性 高分子名・特性の連携 改良・機能拡張				プロセス情報 プロセス情報 オントロジーマッピング 公開向け整備			
	外部公開作業											

### 3.2.4.1.1 高分子論文コーパスの研究開発（課題 1-1）

#### ■目標

PDF化された「高分子論文集」（1974-2019年 5,355論文）及びその前身誌「高分子化学」（1944-1973年 3,250論文）（公益社団法人 高分子学会）などを対象論文とし、

- ・人手により必要な情報（高分子名、主要物性、プロセス情報、及びそれらの関係性）をムラなくアノテートするガイドラインの作成、（事業項目1）「アノテーションガイドラインの作成」)
- ・ガイドラインに沿ったアノテーション（事業項目2）「機械学習用コーパスの作成」)、
- ・改善によるコーパスの完成（事業項目3）「コーパスの機械学習と改善」)、
- ・完成したコーパスのアーカイブ化と、その持続的・高度化システムの作製（事業項目4）「持続的・高度化システム構築」)

を行う。

#### ■研究開発の成果

事業項目1)「アノテーションガイドラインの作成」として、教師データとなる情報(高分子名、主要物性、プロセス情報、およびそれらの関係性)にムラなくアノテートするために、企業6社(旭化成、住友化学、積水化学工業、東レ、三井化学、三菱ケミカル)と共にガイドラインを作成した。すなわち、「高分子論文集」から代表的な論文をいくつか選び、項目を決め、複数名で個別に同一論文にタグ付け(アノテーション)を行った。タグ付け後、各人の違いを最小化するための協議を繰り返し、外注などによる大人数への依頼する際の仕様にもなるように、手順や必要に応じてケース毎の対応も含めて文書化した。

2019年度と2020年度は、「高分子名と特性」と「関係性」のガイドラインを並行して作成した。課題1-2「教師データの作成」との共同作業により、初版リリースから10数回に及ぶ改訂を重ね、2020年度末時点でのバージョンは4.3となった。高分子の煩雑さを反映して、総ページ数は43頁になるが、重要なポイントはテーブルにまとめ、具体例となる文章と共に、アノテーションの正誤例を記載した。このガイドラインはプロジェクトメンバー外のアノテータであってもムラのない均一なアノテーションができるようにする目的で、次に述べる外注業者の所見も改訂に取り入れた。最終的に仕上がったガイドラインは、事業項目2)「機械学習用コーパスの作成」として約200報の「高分子論文集」の外注業者によるアノテーションに使われた。更に作成されたコーパスは、事業項目3)「コーパスの機械学習と改善」として、課題2「技術文献から物性情報を抽出するツールの開発(担当:産業技術総合研究所)」の中で高度な機械学習の教師データとして使用された。

2021年度は、2019/2020年度に作成した「高分子名と特性」と「関係性」に関するガイドラインを改訂するとともに、「プロセス情報」を対象とした新たなアノテーションガイドラインを作成した。2020年度までのガイドラインと同様に、課題1-2「教師データの作成」との共同作業により、実際にアノテーションを試行しつつ詳細な検討を繰り返し、改訂を重ねた。最終的に「高分子名と特性」と「関係性」に関するガイドラインと統合する形で、バージョン6.0をリリースした。高分子のプロセスの記述は無機材料に比べて大変



に複雑であるが、基本方針をまとめ、具体的なアノテーションの正誤例を記載する形式を踏襲し、フローチャート形式も加え、総ページ数 68 頁の「高分子名と特性」「関係性」「プロセス情報」のアノテーションガイドラインを計画通り完成させた。

また、事業項目 4)「持続的高度化システム構築」として、PoLyInfo と、データ抽出項目および抽出作業のフローの共通化を目指し、そのためのハード・ソフト的な対応を進めた。プロジェクト期間中、2019 年度を始点として、年度ごとに機能・要素を追加する形で段階的に構築を進めた。

2019 年度は、コーパス作成基盤として、PoLyInfo のデータキュレーションと互換性のある基幹システム（アノテーションツール・汎用機械学習ツール・論文管理機能）の設計・製造を完了した。2020 年度は、作成されたコーパスを汎用の機械学習にかけ、アノテーションの作業を効率化するシステムを追加構築した。2021 年度は、作成したコーパスや関係するファイルを認証の下でアップロード・ダウンロードできるファイル管理システムを追加構築した。更に、アノテーションや実際の機械学習で得られたタブ区切りテキストのコーパスを、データベース化する変換ツールも実装した。このデータベースは、グラフィックインターフェイス上で物質名、特性名などでスクリーニングができ、その結果はダウンロード可能となっている。またこのデータベースからは課題 4 や課題 1-3 ともデータ連携可能な Resource Description Framework (RDF) が作成できるようになっている。本持続的高度化システムは、NIMS のデータプラットフォーム (DPF) の中で実装された。DPF 内の同システムの外部からのアクセスは、F5 VPN で接続することで、セキュアな環境の下で作業できるように整備した。このシステムはプロジェクト終了後もコーパスの高度化を持続的に継続するために、維持される予定であり、適宜ユーザーの拡張を図る。

### 3.2.4.1.2 AI ツールの高度化に向けた教師データ作成技術の開発（課題 1-2）

#### ■目標

公知文献から高精度に材料データを取り出すための教師データ作成方法とアノテーション基準の標準化を課題 1-1 と共同で実施し、作成したガイドラインを元にアノテーション作業を外注して教師データを作成する。また、対象論文の選定に際しては、各企業が高分子材料の研究開発に有用と思われるデータ構造を選定し、対象論文候補についてテキストマイニングを実施した結果と照らし合わせて絞り込みを行う。

技術文献の構造化において先行する海外機関として、世界最大の化学物質・文献データベースを擁する CAS(Cheical Abstracts Service)に研究者を派遣し、技術分野に応じたオントロジーやデータフォーマット、技術用語辞書を作成する際の基礎となるデータサイエンスに関する調査研究を行う。

#### ■研究開発の成果

##### 1) 教師データの作成

##### 1) - 1 テキストマイニング（担当：旭化成、住友化学、三菱ケミカル）

アノテーションガイドラインの拡充と改訂および機械学習用コーパスの改善に用いる論文を対象に、テキストマイニングに関連した以下の業務を実施した。

旭化成はプロセス条件が記載された高分子論文を選定するためのテキストマイニングの検討を行った。課題メンバーで作成した辞書に含まれるプロセス関連用語が多く出現する論文から選定することで、精度良く対象論文を選定できた。

住友化学は高分子論文集のデータから、要旨と本文のテキスト化を実施し、物性キーワードを一定数以上含む重要文献の抽出を行った。それぞれの文献から単語抽出を行い、高分子分野に関する単語表を作成し、高分子分野に関するキーワードのうち弾性率が含まれる文献を選定した。得られた文献はアノテーション付与の検討に活用された。

三菱ケミカルは、市販テキストマイニングソフトを用いてアノテーション候補となる文書選定をどの程度実施可能か検討した。その結果、一部製品については、単なるキーワード検索による文書選定よりも、質の高い候補文書を抽出可能であることが分かった。

1) - 2) アノテーション (担当: 旭化成、住友化学、積水化学工業、東レ、三井化学、三菱ケミカル)

高分子論文集のテキストマイニングによる解析を基に、教師データ用論文の特性として2019年度は「ガラス転移温度」、2020年度は「弾性率」と「関係性」、2021年度は「プロセス」の材料データ構造化のためのデータフォーマット案を作成した。また並行してガイドラインを用いたアノテーション作業を外注し、結果の検証、フィードバックによりガイドライン改訂および教師データの改良を実施し、計画400報に対しガラス転移温度について105報、弾性率について100報、関係性について195報、プロセスについて100報の計500報の教師データを作成した。またプロセス100報を除く400報分については機械学習用コーパスとして課題2に提供した。

2) 海外巨大DB 構造情報の調査 (担当: 東レ)

技術文献の構造化において先行する海外機関として、世界最大の化学物質・文献データベースを擁するCAS(Cheical Abstracts Service)に研究者を派遣し、オントロジーやデータフォーマット、技術用語辞書作成の基礎に関して6週間の調査を実施した。

技術文献を構造化し知識化する一連のフローの中で、本プロジェクトの成果物のあるべき姿を考える上で重要な知見は以下の通りである。

・複数の専門家による分野別キュレーション

1本の文献の全体を1人のキュレーターが担当するのではなく、化学構造や合成方法、生理活性など、各分野の専門家がキュレーションを分担することにより、精度の高いデータ抽出を実現している。

・データの一貫性管理 (統制語、シソーラス、オントロジーの組織的統制)

データ検索の網羅性を高めるため、データ構造や用語の統一性を組織的に統制する仕組みを構築している。また、技術用語は分類学を援用して構築したシソーラスとして体系的に管理されている。

一方、高分子データベースを構築する上で最大の課題である構造の定義については、共重合や分岐など複雑なトポロジーを考慮すると非常に難度が高いため、CASでも未だ試行錯誤の段階であり、これまでの部分構造の集合体としての取り扱いから、新たな定義に向けての開発を進めている。

### 3.2.4.1.3 データ連携基盤技術構築と特許データベース設計（課題 1-3）

#### ■目標

2020 年度からの追加テーマとして

- ・アノテーションのための標準データフォーマットとオントロジーをデータ連携に拡張し、様々なデータリソースを MI のために統合する仕組みづくり（事業項目 1）「データ連携プロトコルの作成」
  - ・公知情報の中でも大量データのリソースとして注目される特許データベースの概念設計・要件定義（事業項目 2）「特許データベースの設計」
  - ・事業項目 1) の RDF に特許 DB 等、外部からアクセスするためのエンドポイントの構築（事業項目 3）「データ連携基盤の構築」
- を実施する。

#### ■研究開発の成果

「日本生粋のデータプラットフォーム形成に向けた、MI のためのデータ収集基盤の作成」という社会要請に基づいて、NEDO の加速予算により 2020 年度から本プロジェクトに追加された課題である。本課題では、事業項目 1) 「データ連携プロトコルの作成」として、様々なデータリソースを MI のために統合する仕組みを検討し、PoLyInfo フォーマットに準拠した RDF (Resource Description Framework)、および高分子オントロジーを構築した。更に、事業項目 2) 「特許データベースの設計」として、公知情報の中でもインフォマティクス用の大量データのリソースとして注目される特許データベースの概念設計・要件定義を行った。具体的には、

- (1) 約 1,000 件の特許を手で読み込み、PoLyInfo フォーマットでのデータ収集を行い、PoLyInfo との類似、相違を抽出
- (2) 有識者等からなる MIDB 検討委員会を設置し、化学系民間企業等からの要件の集約
- (3) (1)(2)を反映させた MI に使うことを前提とした特許データベースの構造、データ提供方法、データの持続的収集法、データベースの拡張性、維持管理運用など、実運用を想定した課題の抽出
- (4) 課題解決を検討・反映した、今後の詳細設計に入るための概念設計を実施した。

2021 年度は、事業項目 3) 「データ連携基盤の構築」を進めた。ここでは、事業項目 1) で作成した RDF に外部からアクセスするためのエンドポイント構築（図 3.2.4-1）と、語彙・概念間の関係を書き下す連携辞書の作成を行った。エンドポイントについては、NIMS 内のテスト環境での検証と共に、安定的な運用を目指して外部クラウド（Azure）にも構築した。

こうした連携の器ができたところで、実際に連携を実現するための語彙・概念間の関係を書き下す辞書を作成した。約 550 の特許でよくみられるポリマーを、機能別に分類し、さらに PoLyInfo の ID や機能発現のカギになる部分分子構造など 18 項目を書き出して整理

した連携用辞書を作成した。これは、高分子を構造と ID で管理している PoLyInfo との直接的な連携口（対応表）になる。

更に、2020 年度の特許調査に基づいて、特許記載のポリマーの構造式からのデータ連携を実現する経路も確立した。すなわち、PoLyInfo の全ホモポリマーの繰り返し単位を分類し、樹形図にまとめることで、特許に記載してあるポリマーを、その構造情報の粒度に合わせて、この樹形図にあてはめて最適な連携を実現する仕組みを作った。この連携の仕組みは、機械学習を利用して自動ツール化し、良好な精度が得られることも確認した。

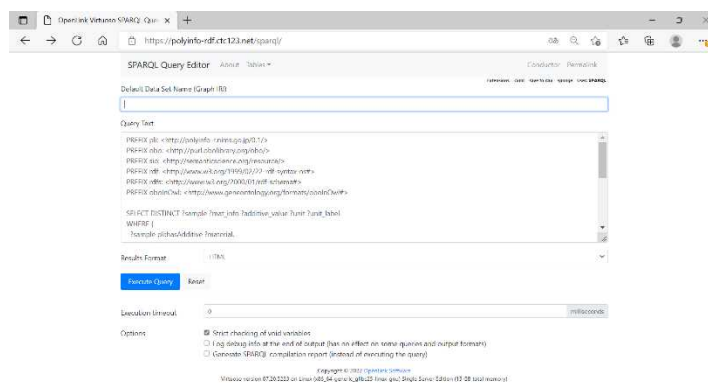


図 3.2.4-1 Azure 上に構築した RDF エンドポイント

### 3.2.4.2 技術文献から物性情報を抽出するツールの開発（課題 2）

#### ■ 目標

本課題が担当するのは、材料分野、とくに高分子材料分野の論文などの技術文献から、物性情報を抽出する技術の開発、およびそのツール化である。材料分野における日本語文献を対象とする点が特徴的である。

産業技術総合研究所では、課題1で構築するアノテーション付きコーパスを訓練データおよび評価データとして用い、ニューラルネットワークを含む機械学習に基づくエンティティ抽出モデルや、関係抽出モデルを構築および評価する。また、エンティティリンキング手法も開発し、全体をツール群として実装する。

また、産業技術総合研究所と理化学研究所は、技術文献からの材料合成プロセス情報の抽出手法に関し、そのプロトタイプを開発する。

#### ■ 研究開発の成果

本課題では、材料分野、特に高分子材料分野の論文などの技術文献から、物性情報を抽出する技術の開発、およびそのツール化を行った。特に、課題1-2で構築したアノテーション付きコーパスを基に、日本語で書かれた文献を対象とし、ニューラルネットワークを含む機械学習に基づくエンティティ抽出モデルや、関係抽出モデルを開発し、実装した。詳細は以下の通りである。

##### 1) 材料科学ドメインに特化した日本語用BERTの開発

まず、課題1-2で構築するアノテーション付きコーパスを最大限利用するために、アノテーションされていない大量のテキストデータを利用した。具体的には、言語理解などを目的として入力テキストをエンコードするためのニューラルネットワークとして非常に強力であるBERT (Bidirectional Encoder Representations from Transformers)を利用した。まずは、そのため、GP

U環境(特に産総研のABCI)でのBERTの事前学習を高速に行うことを可能にするスクリプトを開発した。また、BERTを特定の課題に適応させるための追加学習をするためのスクリプトも開発した。さらに、科学技術ドメイン(特に材料科学)の文献で高い性能が出るよう、一般ドメインのテキストだけでなく、科学技術ドメイン(特に材料科学)の文献でBERTを学習した。ただし、利用可能な日本語の材料科学ドメインのテキストを大量に入手することは困難であったため、英語文献を自動翻訳することで対応した。計算実験により、翻訳データの有効的な活用方法を調査した。特に、一般ドメインのテキストと材料科学ドメインのテキストをどのように組み合わせて利用すべきか、どのように語彙を設定すべきかについて調査した。

## 2) 情報抽出ツールの開発

抽出のために開発した手法は、エンティティ抽出手法、エンティティリンキング手法、関係抽出手法である。エンティティ抽出は、テキスト中のエンティティ(材料名や特性など)を表す部分を特定するタスクであり、関係はエンティティ間の関係(ある材料とあるガラス転移温度が対応するか)を抽出するタスクである。また、エンティティリンキングは、抽出されたエンティティがオントロジー中のどのエントリーに対応するかを決定するタスクである。エンティティ抽出手法と関係抽出手法については、上記BERTの上に各抽出モジュールを重ねたモデルを開発し、実装した。実際に課題1で構築されたコーパスで学習を行い、性能評価を行った。エンティティ抽出および共参照を除く関係抽出の性能は、F値マクロ平均でそれぞれ90%、70%以上となっている。エンティティリンキング手法については、課題4で開発したオントロジーにリンクする手法を開発した。

## 3) 材料合成プロセス情報抽出手法の開発

また、これらに加え、材料合成プロセス情報抽出についても、英語文献を対象に技術開発を進め、日本語文献を対象としたプロトタイプの開発を行った。英語では、共通した性質を持つと考えられる材料合成プロセス情報抽出タスクのデータセットを用いて技術開発をした。日本語ではプロセスの詳細な情報がアノテートされたデータセットが存在しないため、材料合成プロセス情報を含む部分を抽出する手法のプロトタイプを開発した。

## 4) 抽出手法のウェブアプリケーション化

開発した抽出手法は、ウェブアプリケーション「高分子分野テキスト解析システム」としてツール化を行った。グラフィカルユーザインターフェイスを通し、直感的な形で使用できるインターフェイスと、プログラムから呼び出せるようなウェブAPIという形で実装を行い、利便性を高めた。出力形式も、その応用に応じて選択できるようになっている。下図(図3-2-4-2)はグラフィカルユーザインターフェイスの出力例である。

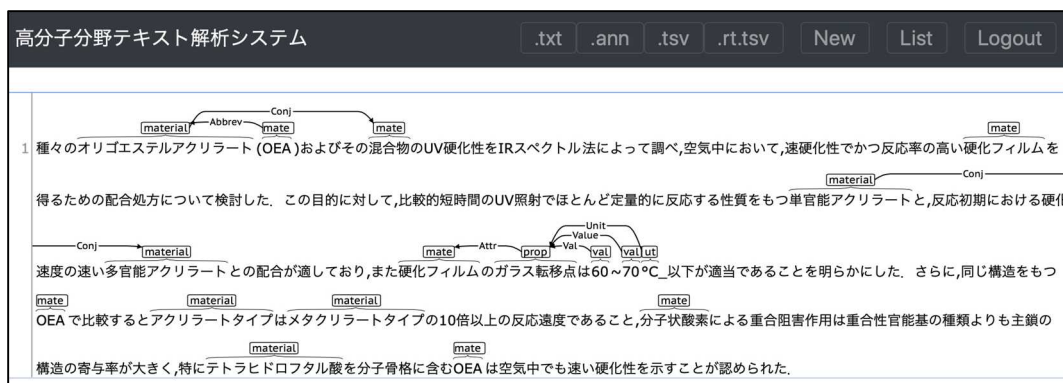


図 3.2.4-2 グラフィカルユーザーインターフェイスの出力例

### 3.2.4.3 材料科学論文の図表から情報抽出するツールの開発（課題 3）

#### ■ 目標

本課題の目標は、高分子材料分野の文献から、図表の認識と読み取りを行う技術の開発である。具体的には以下の3つを目標とする。

- ・ PDF から図表の領域を認識する技術の開発（事業項目 1）
- ・ 文献中の表の構造を解析する技術の開発（事業項目 2）
- ・ グラフのオブジェクト認識と数値読み取りの技術の開発（事業項目 3）

#### ■ 研究開発の成果

##### 1) PDF からの図表の領域認識

2019年度は、PDF形式の論文（日本語）から図表の領域を抽出する技術開発と、図表の中身（図のオブジェクト検出、表の構造推定）に関するデータセット構築を行った。図表の領域については、PDFを画像へ変換し、深層学習に基づくオブジェクト検出技術によって図表の領域を認識するモデル開発のプロトタイピングを行った。データセット構築については、アクセスの容易性から、まずは材料科学以外の分野から大量に収集されたPDFデータを用いた。それと並行して、高分子論文集について図表領域のアノテーションを行うために、アノテーションガイドラインを整備した。図表には、本体以外にもキャプション、ヘッダー、フッターなどの要素が含まれるため、それらの判定基準や仕様を作成した。2020年度は、前年度に構築した機械学習モデルをコンパクトかつ省メモリで動作するように改善し、実際にツールとして動作するようにONNX化を行った。また、領域検出結果の可視化やモデル切り替えを容易にするため、アノテーションのフォーマットおよびインターフェースを設計した。定量的な評価では、平均適合率というオブジェクト認識の評価指標（0～1の値で高ければ性能が高い）において、0.96程度であった。動作速度については、省メモリなオブジェクト検出モデルをクラウド環境にデプロイして検証した結果、モデルファイルのロード、検出プログラム実行、結果の出力までを、論文1ページあたり1秒程度で動作させることができた。データセット構築については、前年度に作成したガイドラインの一部を改変し、そのガイドラインに沿ってアノテーション作業を進めた結果、高分子論文集（vol. 61～76）の図表領域に関する教師データが完成した。2021年度は、前年度のモデルの改善・評価およびデータセットのエラー修正作業を行った。また、データセットの規模を前年度

よりも拡大させた結果、高分子論文集以外の材料論文に対しても頑健に図表領域の検出が行えることを確認した。

高分子論文集の論文は、図表のキャプションが英語で書かれており、図表以外のテキスト部から情報を得るためには、キャプション中の材料名と本文中の表記との対応を取る必要がある。英語表記、日本語表記、および、Wikidata の項目との対応を取るための仕様を設定し、外注によるアノテーション作業の結果、約 300 件の論文に対して上記の対応データの構築を行った。

## 2) 表の構造解析

2019 年度は、主にデータセットの収集および生成プログラムの開発を行った。PDF には、表という情報そのものは含まれておらず、単に文字と座標の一覧が得られるだけである。したがって、文字の x, y 座標に基づく相対的な位置関係や、罫線の有無によって表の行列構造を推定しなければならない。また、ヘッダーセルにおいて見られるセルの結合が起こっている場合は、さらに推定が難しい問題となる。教師データセットを構築するため、XML 形式の論文が得られる論文誌から表の XML を収集し、表の構造に関するデータを収集した。また、表の構造の一部を改変して、多様な構造の表を生成するためのシミュレーターを開発した。

2020 年度は、表の構造解析を行うモデル開発を行った。具体的には、ルールベースによる粗い行列決定処理と、機械学習による構造解析処理を組み合わせることにより、比較的少量の教師データでも動作するモデルを開発した。また、表の罫線の有無によらず頑健に解析が行えることが課題であったが、様々なパターンの表をシミュレーションによって生成し、それを疑似教師データとして利用する技術により、未知ドメインの表について解析性能が改善することを確認した。2021 年度は、モデルの評価およびツール化を行った。具体的には、材料文献でアノテーションを実施した教師データについて、適合率と再現率がそれぞれ 0.9 程度となることを確認した。エラーの主な原因はヘッダーセルに頻出するセル結合であった、ツール化については、図表の領域検出のモデルと組み合わせるインターフェースを設計し、PDF を入力すると表の領域を検出および構造解析までをワンストップで行えるようになった。下図（図 3.2.4-3）は実際にヘッダーセルの読み取りを行って可視化した材料文献の表である。

**Table 1. Synthesis of porous resin monoliths<sup>a)</sup>**

Run No.	Feed <sup>b)</sup>					Porous resin monoliths			
	Styrene (mmol)	CMS <sup>c)</sup> (mmol)	DVR <sup>d)</sup> (mmol)	AIBN <sup>e)</sup> (mmol)	SMO <sup>f)</sup> (mmol)	Yield (%)	Pore volume <sup>g)</sup> (mL/g)	Modulus <sup>h)</sup> (Mpa)	Strength <sup>i)</sup> (Mpa)
S-1	186	0	6.4	0.9	2.6	84	8.7	29	0.87
S-2	176	0	12.8	1.2	2.6	84	8.2	32	1.01
S-3	156	0	26.4	1.5	2.6	88	8.4	34	1.09
S-4	127	0	45.4	2.3	2.6	92	8.3	33	1.12
S-5 <sup>j)</sup>	186	0	6.4	0.9	2.6	84	7.9	27	0.61
V-1	0	120	12.8	1.7	5.4	88	8.2	—	—

<sup>a)</sup> Polymerized for 24 h at 60°C. <sup>b)</sup> The other component of the emulsion was 180 g of pure water. <sup>c)</sup> Chloromethylstyrene. <sup>d)</sup> Divinylbenzene. <sup>e)</sup>  $\alpha, \alpha'$ -Azobisisobutyronitrile. <sup>f)</sup> Sorbitan monooleate. <sup>g)</sup> Measured by mercury intrusion method. <sup>h)</sup> Compressive modulus. <sup>i)</sup> Compressive strength. <sup>j)</sup> The emulsion was prepared by using a conventional mixer.

図 3.2.4-3 表の構造解析例

表は”高分子論文集, Vol. 61, No. 1, pp. 12—21 (Jan., 2004)”より引用

## 3) グラフのオブジェクト認識と数値読み取り

2019 年度は、実際の図を元に、新たな図をランダムに生成するシミュレーターの開発を行った。具体的には、少量の図について人手でアノテーションを行い、それを元にランダムに教師デ

ータを生成することにより、人手のコストを最小限に抑えて、多くの教師データを取得することができる。また、図中のオブジェクトの中で、まずは文字領域の認識について、既存の文字認識（OCR）ソフトウェアの性能評価とエラー分析を行った。既存の OCR ソフトウェアでは、文字領域が与えられた下での文字認識性能は高いが、図中の文字領域を同定する部分は性能が低いということを確認した。また、図の読み取りに関する大規模なデータセット構築のため、オブジェクトのアノテーションに関するガイドラインを作成した。2020 年度は、主にモデル開発を行った。具体的には、前年度に作成したデータセット（約 10000 枚）を教師データとして、折れ線グラフおよび散布図のオブジェクト（軸、目盛、点など）を認識する画像処理プログラムを開発した。グラフの読み取りモデルについては、インスタンスセグメンテーションの既存モデルを改善し、クラスタリングベースの手法によって線の本数が少ない単純な折れ線グラフについては読み取りが行えることを確認した。光学文字読み取り（OCR）については、注意機構を用いたモデルを開発し、図の軸ラベルや目盛について、9 割以上の性能で読み取りできることを検証した。2021 年度は、評価と手法改善、ツール化を行った。具体的には、図の読み取りに必要な各モデルのインターフェースを統一して統合し、図を入力すれば、図に含まれるオブジェクトや構造を出力できるようにした。OCR については、データセットを大規模化し、学習時間を増やすことにより、様々な材料文献に対応できる頑健性の向上を達成した。下図（図 3.2.4-4）は実際にプロットの読み取りを行って可視化した材料文献の図である。

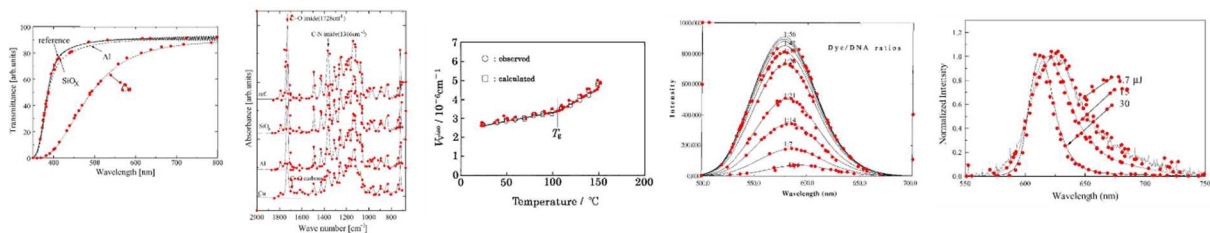


図 3.2.4-4 グラフの解析例

### 3.2.4.4 材料データ構造化のための標準データフォーマット・オントロジーの研究開発（課題 4）

#### ■ 目標

どのような形式でデータを構造化するかを規定する標準データフォーマットおよび、材料データ構造化 AI ツールが用いる辞書（オントロジー）の研究開発を行う。

具体的には、

- ・ 標準データフォーマットの開発（事業項目 1）
- ・ 辞書（オントロジー）の開発（事業項目 2）
- ・ 外部データベースとの連携（事業項目 3）
- ・ 標準データフォーマットおよびオントロジーの開発・利用のためツールの開発・整備（事業項目 4）

を実施する。

#### ■ 研究開発の成果



### 1) 標準データフォーマットの開発

課題1が作成する教師データとの整合性の観点から、課題1-1で作成したアノテーションガイドラインに沿ったアノテーション用フォーマットをデータ交換のためのデータフォーマットとして利用することとした。本データフォーマットにおいて高分子の材料、特性・物性、プロセスに関する語彙を表す際には、事業項目2)で作成したオントロジー(辞書)の語彙を用いて記述する。オントロジーの記述フォーマットには、データベース統合に広く使用されているRDF(Resource Description Framework)を使用し、各語彙のIDはURIを用いて表現される。

### 2) 辞書(オントロジー)の開発

教師データにおけるアノテーションおよび既存のデータベースとの統合にも用いることを想定している。そのため、(1)教師データの作成に用いる日本語論文に出現する単語、および(2)既存のRDFデータベースで定義されている用語、の双方を基にしてオントロジーの基本部分の構築を進めた。2019年度には、高分子学会論文集(Vol.61(2004)からVol.76(2019)までの論文全1,379本)から抽出した約37,000単語に対して、オープンな汎用知識ベースとして構築・公開されているWikidata(<http://wikidata.org>)から取得した用語のクラス階層(用語の分類階層)を用いた処理を行った結果、高分子に関連する約3,500の専門用語を取得することができた。これらの専門用語を中心に、高分子名および特性に関するオントロジーの基本となる部分を開発した。

2020年度には、基本仕様案に基づいて高分子名と材料の特性を表す語彙を中心とした高分子オントロジーを開発した。オントロジー構築には、汎用の知識ベースWikidataおよび高分子学会論文集の情報を基に語彙のis-a階層(分類階層)を半自動で構築する手法を用いた。具体的には、PolyInfoから人手で抽出した語彙(220語)をもとにすることで約50万エンティティ、高分子辞典の索引語(約1,700語)をもとにすることで約100万エンティティのis-a階層を構築することができた。この高分子オントロジーの試験的な評価として、オントロジーの語彙を用いた辞書マッチによる自動アノテーションを試行したところ、課題1による手動アノテーションの64.6%(42/65)を再現可能であることが確認できた。さらに、語彙間の関係性についてWikidataから抽出する手法を開発し、前述のis-a階層に適用することで関係性を追加し、高分子オントロジーVer1.1としてプロジェクト関係者向けに公開した。

2021年度には、高分子オントロジーVer1.1において、材料、特性・物性、プロセスを表す中間概念の範囲を決定し、構築したオントロジーに導入することで、それぞれのis-a階層を構成した。さらに高分子オントロジーがカバーできる語彙数を増加させるために、Ver1.1の構築時にAPIを用いたデータ取得の制限のために発生した「一部のis-a階層の抽出漏れ」を改善する処理方式を変更した。具体的には、抽出に用いるプログラムをAPI利用からWikidataのダンプデータを解析して抽出する方式に変更した。これにより抽出される概念階層のエンティティ数が増大(約6,000万)すると共に、高分子との関係が薄い階層も多く抽出されたため、不要と思われるis-a階層の枝刈り処理を導入した。その結果、

約 1,200 万エンティティからなる is-a 階層が得られ、これを高分子オントロジー Ver1.2 とした。

さらに、後述の事業項目 3) 外部データベースとの連携で述べる MeSH および ChEBI から抽出した is-a 階層を統合することで、外部データベースとの統合版の高分子オントロジーを得た。統合版のオントロジーでは、各階層の元データへのリンクを保持しつつ、エンティティごとの別名も管理している。

これらのオントロジーはすべて、公開用のウェブサイト (<https://oecu-kozaki-lab.github.io/MI/>) にて公開しており、① API によるアクセス、② Web ブラウザによる階層の閲覧、③ データ全体のダウンロードが行える。

### 3) 外部データベースとの連携

Wikidata 以外の 8 つの既存の RDF データベースについて、本課題で開発したオントロジー半構築手法を適用するために必要となる情報の収集・検討を行い、連携対象のデータベースとして、

- **MeSH** (Medical Subject Headings) : NLM (米国国立医学図書館) が作成する生命科学分野のシソーラス
- **ChEBI** (Chemical Entities of Biological Interest) : 欧州バイオインフォマティクス研究所が提供する化合物データベース・オントロジー

を採用した。これらのデータベースに、is-a 階層を半自動抽出する手法を適用することで、MeSH からは 57,359 エンティティ、ChEBI からは 147,421 エンティティの語彙を is-a 階層と共に抽出することができた。これらの階層は、上述の通り高分子オントロジーと統合して公開した。

さらに他のデータベースとの連携を行うために、事業項目 4) で開発したマッチングツールを利用して、高分子オントロジーで定義された語彙を他のデータベースから得た語彙一覧との連携試験を行った。対象としたデータベースは、

- ライフサイエンス辞書 RDF (LSD) : 約 13 万語
- 日本化学物質辞書 (日化辞) の RDF 版 : 約 740 万語

である。これらのマッチング結果は、ツールと共に公開を予定している。

### 4) 標準データフォーマットおよびオントロジーの開発・利用のためツールの開発・整備 下記のツールの開発を行った。

1. **オントロジー (スキーマ) 編集ツール** : オントロジーのスキーマ (フォーマット) を編集するソフトウェア。
2. **オントロジー語彙マッピング・アノテーション支援ツール** : 高分子オントロジーや既存のオープンなナレッジグラフ (LOD) 等から取得した語彙一覧を、語彙のマッピングやア



図 3.2.4-5 高分子オントロジー (統合版) の階層表示例

ノテーション支援に利用するソフトウェアツール群.

3. **オントロジー公開（閲覧）サービス**：RDF データベースに格納したオントロジー閲覧する Web サービス. 高分子オントロジーの公開に利用すると共に，他の LOD の閲覧サービス開発にも利用できる.
  4. **LOD からの概念階層抽出ツール**：オープンなナレッジグラフ（LOD）から注目するドメインの概念階層を抽出し，オントロジー構築に利用するソフトウェア.
- これらのツールはすべて、オープンソースソフトウェアとして公開する。

### 3.2.4.5 成果の実用化に向けた取り組み及び見通し

#### 3.2.4.5.1 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 2.6 記載の内容であるが、材料データ構造化 AI ツール開発において、具体的には開発した AI ツール、および、材料分野オントロジーを利用して、材料科学論文や当該分野の専門文書から、材料名や材料に関する特性情報やプロセス情報を自動抽出すること、あるいは、本プロジェクトで構築したアノテーションガイドラインとそれに基づくデータを利用して実応用システムの構築へむすびつけることとする。これにより、マテリアルインフォマティクスのための研究、応用、基盤データ構築の開発支援を実現することを言う。

#### 3.2.4.5.2 成果の実用化に向けた戦略

課題 1-1 の成果物として、

- (1) 高分子名・特性名・特性値・単位とそれらの間の関係性、プロセスに関する情報に関するコーパスを作成するためのガイドライン
- (2) 同コーパスを作成・改訂・拡張し、管理するためのツール

が挙げられる。(1)、(2)とも、個別には、ビジビリティの良い公開基盤で公開して普及に努める。持続的高度化のための web アプリケーションは、NIMS のデータプラットフォームのセキュアな環境の下で利用できるようにしてあり、参画機関を中心に有志でブラッシュアップするとともに、新たな利用展開を図る。

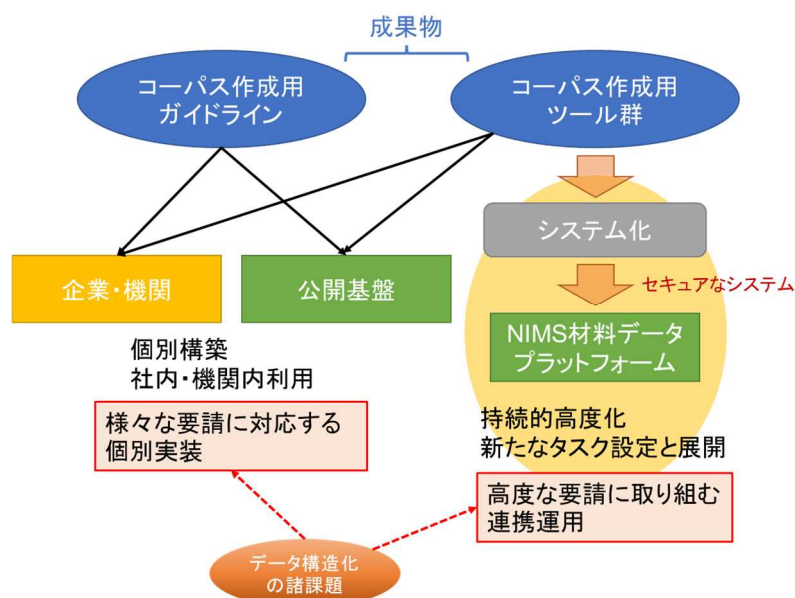


図 3.2.4-6 課題 1-1 の成果の実用化に向けた戦略の概念図

課題 1-2 の成果物として、

- (1) 「高分子論文集 (1974-2019)」より 431 報、「高分子化学 (1944-1973)」より 69 報に

ついてアノテーションを実施した教師データ（tsv形式）。

(2) 上記の論文と合わせて、「高分子論文集」より 781 報、「高分子化学」より 2280 報のテキストデータ（xml形式）

が挙げられる。(1) に関しては課題 2 の成果である「高分子名・特性」および「関係性」の抽出器の検証用データとしての活用が見込まれる一方、他の抽出器の開発研究において教師データとしての活用も見込まれる。また、課題 1-1 の成果であるガイドラインの内容に沿ってアノテーションを実施した例として、ガイドラインの内容の理解と深めるための助けとなることが期待される。(2) に関しては「高分子論文集」の 35%、「高分子化学」の 70%におよぶ論文数の日本語のテキストデータであり、材料物性に限らず、自然言語学研究など広い範囲での応用が期待される。

課題 1-3 の成果物として、

(1) 特許データベースの基本設計書

(2) PoLyInfo との連携のためのプロトコル（Resource Description Framework）設計書・オントロジー・辞書

が挙げられる。(1)に関しては、巨大な公知情報の集約を目的としており、今後のデータ統合や共通性を重視して、競合が起きないように形体を有識者と十分検討して公開する。(2) のプロトコルの設計書に関しては、RDF を推進する機関との連携時に提供し、統合データ基盤を作るための共通資料とする。また、オントロジーに関しては、この分野で先行するバイオ関係に倣い、オープンリポジトリや国際的なオントロジー管理基盤の中で公開する。辞書に関しては、現在の表形式のものをビジビリティの良い公開基盤で公開するとともに、RDF 化し連携用に公開する。

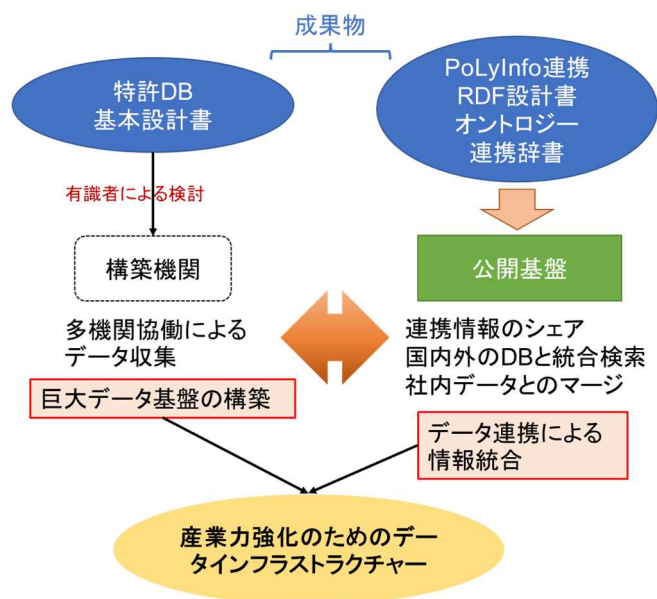


図 3.2.4-7 課題 1-3 の成果の実用化に向けた戦略の概念図

課題 2 の成果として

(1) 材料科学ドメインに特化した日本語用 BERT

(2) 情報抽出ツール

(3) ウェブアプリケーション「高分子分野テキスト解析システム」

が挙げられる。(1)、(2)については、利用可能なツールとして広く公開し、利用者からのフィードバックを得ることによって、改良を実施することでより実用的なシステムとして更新することが考えられる。その利用を促進するために、(3)のウェブアプリケーションを公開し、(1)、(2)のシステムを自己環境内にインストールすることなく直感的な形で使用できるインターフェイスとして提供する。

課題 3 の成果物として、

(1) 図表読み取りのためのアノテーションガイドラインおよびアノテーションデータ

(2) 図表読み取りのツール群

が挙げられる。(1)のガイドラインについては、高分子分野に限らず、様々な材料文献の図表読み取りに関して、教師データを作成するため資料として活用が見込まれる。また、(1)のアノテーションデータについては、機械学習モデルの訓練や評価のためのデータとして活用されることが期待される。(2)は、実際にユーザーが図表の読み取りを行うためのプログラム類であり、ユーザーのサポートができる環境の下で公開して普及に努める。また、参画機関を中心に有志でブラッシュアップするとともに、新たな利用展開を図る。

課題 4 の成果物として、

(1) 高分子オントロジー（辞書）

(2) 標準データフォーマット・オントロジーを利用するためのツール群

が挙げられる。(1)に関しては、使用ライセンスが CC0（制限なし）または CC-BY（クレジット表記のみ）のオープンデータとして公開することで利用を促進する。公開時のファイル形式は、構造化データを Web で公開する際のフォーマットとして標準化されている N-Triple 形式の RDF ファイルとし、

① RDF データのダウンロード

② RDF データベースに格納し、RDF に対するクエリサービス（API）として標準化されている SPARQL エンドポイント

③ オントロジーの概念階層を閲覧するための Web サービス

という 3 つの方法で公開する。(2)に関しては、Apache Version 2.0 ライセンスのオープンソースソフトウェアとして公開することで、ツールの改修を含めた自由な利用が可能な形式で公開する。

### 3.2.4.5.3 成果の実用化へ向けた具体的取り組み

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り組みを実施する。

#### 課題 1-1

- (1) 高分子名・特性名・特性値・単位とそれらの間の関係性、プロセスに関する情報に関するコーパスを作成するためのガイドライン

本プロジェクトで作り上げたガイドラインは、特性に関しては基本的に「ガラス転移温度」と「弾性率」に限られている。本ガイドラインを雛形に、他の特性名についてガイドラインの拡張を図る。この取り組みに関しては、企業有志による活動の継続と、各社内での個別の取り組みを並行して進めてゆく。すなわち、共通的に取り組める特性に関しては、機械学習に適したアノテーションについて探求するとともに、各社の戦略に係る領域に関しては個別に進める、いわゆる協調と競争を両立させた取り組みとする。

- (2) コーパスを作成・改訂・拡張し、管理するためのツール

本プロジェクトで完成した TeamAnno を中心とする、コーパスの作成から管理までを一元的に扱えるツールは、上記の協調と競争を両立させる取り組みを実現するものとして実装した。協調的な使い方として、F5 VPN により接続できるセキュアな NIMS のデータプラットフォーム環境に実装してある。今後は、有志企業による共同作業や新たなタスクにも取り組みながら、ツールの改修も含め検討してゆく。一方で、競争的な使い方として、ツールを希望の企業に頒布し、自社内構築への道を拓く。

表 3.2.4-1 課題 1-1 スケジュール

	高分子名と特性	関係性	プロセス情報	
	2019年度	2020年度	2021年度	2022年度
ガイドライン	設計 完成	設計 完成	設計 完成	拡張
コーパス作成		100論文 200論文	100論文 200論文	活用
持続的高度化システム開発	設計・基盤作成	学習済AI実装	コーパス実装	持続的高度化

#### 課題 1-2

- (1) 教師データについては一部を（一定期間後に全てを公開予定）、(2) 論文テキスト化データについては全てを対象に公開を予定している。

#### 課題 1-3

- (1) 特許データベースの基本設計書

特許はインフォマティクス用のデータリソースとして活用できる可能性が高いことか

ら、その実現を検討する際の材料として本設計書を活用する。一方で、その構築と維持にかかるコストを精査し、運用する組織を十分に整える必要があることを考え、コンソーシアムなど企業の枠を超えた枠組みを作る、強力なモチベーションが必要になる。一つの方向性として、コストパフォーマンスを飛躍的に改善する本プロジェクトの AI ツールの開発の継続がある。すなわち、例えば課題 1-1 にある持続的高度化の後に、本成果が基盤として加わり、巨大データインフラストラクチャーの構想が出て来る。

(2) PoLyInfo との連携のためのプロトコル (Resource Description Framework) 設計書・オントロジー・辞書

特許だけではなく、社会の中に多くある公知情報を、PoLyInfo のような既存のデータベースに繋げる試みを進める。こうしたデータ統合の考え方は、バイオ関係で著しく発展しており、材料分野はバイオを後追いする形になる。このことは、材料分野の遅れを深刻なものと受け止めるネガティブな考え方がある一方で、これから進むべき方向性がすでに明示されていると考えることもできる。LOD (Linked Open Data) の技術を今後積極的に取り込み、かつ材料に固有の技術創出と組み合わせてゆく指針が必要になる。特に産業において予想されるクローズな領域の確保は、LOD との競合が予想されることから、まずは国の機関や大学などが中心となり、オープンな領域での活動の強化を今後進め、協調領域での企業の参画を促す。

表 3.2.4-2 課題 1-3 スケジュール

	2019年度	2020年度	2021年度	2022年度
データ連携プロトコル作成		RDF構築 →		PoLyInfo連携 →
特許データベースの設計		概念設計・要件定義 →		巨大データインフラ →
データ連携基盤の構築			エンドポイントの構築 →	公的情報との連携 →

課題 2

開発した抽出ツールが一般に利用してもらえるよう、そのウェブアプリケーションである高分子分野テキスト解析システムを、一般公開し、産総研内サーバーにて維持・管理を行いつつ運用する。

課題 3

開発された図表の読み取りツールについては、サーバーなどの提供環境および利用規約等を整備して一般公開を行い、コミュニティーを巻き込んだプログラムの維持・活用を進めていく。ま



た、機能の拡充やユーザーインターフェースの改善については今後も継続して開発を進めていく。

#### 課題 4

開発した高分子オントロジー、およびツール群を公開するための Web サイト (<https://oecu-kozaki-lab.github.io/MI/>) を整備し、最新のデータ・ツールを取得できるよう維持・管理を行う。オントロジーのデータと合わせて構築に必要なツール群もすべて公開するため、必要があれば各ユーザーにて新規のオントロジーの構築や更新を行うこともできる。ツール群についても同様に、オープンソースソフトウェアとして改修可能なライセンスで公開するため、必要に応じてユーザーが回収することができる。

#### 3.2.4.5.4 成果の実用化の見通し

課題1から4では、これまで述べた通り、TeamAnno、機械学習ツール、図・表データの抽出ツール、オントロジーツールが成果物として創出された。これらの成果物が、より汎用的なデータ抽出ツールとなり、抽出されたデータを基にデータベースとして実用化され、そのデータベースが例えば社内データや外部データベースと連携してゆく。こうしたデータ共有と流通が日本の産業競争力を強化する（図3.2.4-8）。

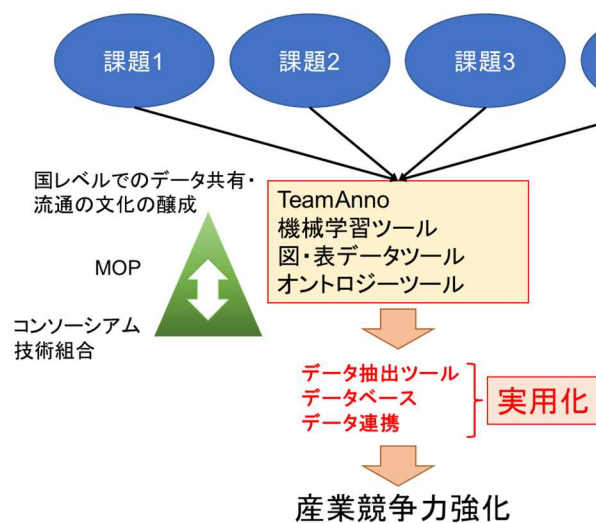


図 3.2.4-8 成果実用化の見通し

例えばNIMSでは、国の政策に基づいてデータの利活用を促進する。実際にMaterials Open Platform (MOP) といった取り組みを推進しており、協調領域における共同作業と、競争領域での契約に基づく共同研究を並行させている。一方で、一機関では産業における広い普及は困難であることから、産官学の取り組みや、産業界におけるコンソーシアムや技術組合の結成が望まれる。こうしたボトムアップの動きは、現場の状況を反映しやすく、フレキシブルな運用の中で技術力が強化されることが期待できる。合わせて、データ共有、データ流通の文化的土壌を醸成するための活動が、国家レベルで進むことを期待する。

契約管理番号：	20000362-0
	19101285-0
	19101290-0
	19101292-0
	19101293-0
	19101294-0
	19101295-0
	19101296-0
	19101297-0
	19101298-0
	19101299-0

### 3.2.5 研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発／ナノ物質計測技術開発・ナノ欠陥 検査用計測標準開発毎の成果

本テーマは 2016 年度新規公募の際に「“非破壊”、“In situ” で材料を評価する計測技術」として研究開発項目[3]に対し部分提案のあった内容である。シングルナノレベルの半導体デバイス製造を目的とした有機化合物に対する計測技術であり、提案内容の「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活用出来ることが期待されたため、研究期間 3 年間（平成 2018 年度末まで）の研究計画を採択したものである。

### 3.2.5.1 全体の目標および計画

#### 【目標および達成度】

研究開発項目	目的	達成状況
[1]-1) -1. 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	低屈折率材料であるフッ素樹脂粒子の高感度検出の実現	高屈折率の検査標準溶液の開発と選定を行ない、フッ素樹脂粒子に代表される低屈折率粒子の液中の粒子検出感度向上を実現した。この標準溶液には、大気中に放置すると白濁するという欠点があったが、この現象を回避する対策を見出し、課題解決した。
[1]-1) -2. 液中異種ナノ粒子/ナノバブル計測技術開発	流れ場の中で粒子径評価・粒子数評価・異なる材質の識別評価を同時計測する手法の確立	流れ場において安定した層流れを形成・維持するための光学セルの開発、データ解析アルゴリズムの構築などにより、粒子径評価・粒子数評価・異なる材質の識別評価の同時計測を実証的に検証し、新たな計測手法としての粒子追跡評価法（FPT法）を確立した。
[1]-2) -1. 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	従来の化学増幅レジストに代わるメタル系レジスト材料を用いた計測技術の評価・検証	メタル系レジスト材料に対して、高速原子間力顕微鏡でレジスト現像過程を計測する技術を検証確立した。この結果、レジストの現像メカニズムが明らかとなり、新規現像液の適用により、パターンニング特性が改善された。
[1]-2) -2. シングルナノパターンニング材料(レジスト)の反応機構解明	メタルレジスト等のレジスト反応機構の解明と反応機構に基づいた効率的な材料設計	メタルレジストの反応機構を原子・分子レベルでシミュレーションすることで、反応機構の解明と理解が進んだ。これにより、メタルレジスト開発の効率的開発が可能となった。
[1]-2) -3. 光励起状態のナノパターンニング材料の物性評価	シングルナノメータースケールのレジスト材料の反応メカニズムの原子・分子レベルで解明	メタルレジストの光化学反応メカニズムをXPS分析により解析することにより原子・分子レベルでのレジストの特性を解析する手法を確立し、メタルレジストの保存安定性についての知見を得た。
[1]-2) -4. 次世代レジストアウトガス計測技術開発	次世代レジストの高精度アウトガス計測手法の基盤を確立	高出力EUV照射装置を用い、メタル系モデル材料の水素環境下におけるアウトガス計測を実施し、Sn系サンプルにおいて、特徴的なメタル系アウトガスの発生を確認した。これらの結果をもとに、電子銃と水素ラジカル発生源を組み合わせたアウトガス計測手法の有効性を実証した。

研究開発項目	目的	達成状況
[1]-2) -5. DSA 精密計測技術開発	DSA (誘導自己組織化) プロセスの精密計測技術の開発	hp 15 nm DSA プロセスとして独自に開発した COOL プロセスによる DSA プロセスの精密計測技術を構築した。
[1]-2) -6. DSA ナノ欠陥計測技術開発	時分割 GI-SAXS 法による DSA ナノ欠陥計測技術開発	SPring-8 を利用した時分割 GI-SAXS 法による DSA 相分離過程の内部構造解析システムを構築した
[1]-2) -7. DSA 相分離精密計測技術開発	In-situ AFM による DSA 相分離精密計測技術開発	世界に先駆けた In-situ AFM による DSA 相分離過程の表面モルフォロジー観察システムを構築した。
[1]-2) -8. DSA 精密計測支援技術開発	DSA 相分離プロセスモデリングによる DSA 精密計測支援技術開発	DSA 相分離プロセスの高速かつ精密モデリング手法を構築した。
[2]-1) -1. ナノ欠陥検査用計測標準技術開発	シングルナノノード世代に向けた欠陥検査標準の開発による、EUV マスク欠陥仕様の明確化。	Ta 吸収体構造の検査標準プログラム欠陥マスク (PDM) 作製、露光評価により、パターン欠陥サイズとウェーハ転写性の関係を明らかにした。さらに、ブランク欠陥信号強度・ブランク欠陥位置と転写性の関係を示した。また、多層膜掘り込み構造の PDM 作製、露光評価により、マスク 3 次元効果低減とパターン欠陥転写性の方向依存性低減を確認した。

## 【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					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					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					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							
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	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				計測技術の応用拡大、相関取り の応用拡大			
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				高精度計測技術 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・ 製作			
	露光シミュレーション(欠陥転写性評価)								マスク露光実験			

### 3.3.5.2 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) 液中異種ナノ粒子／ナノバブル計測技術開発

#### ・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 3.2.5-1）。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 3.2.5-2）。

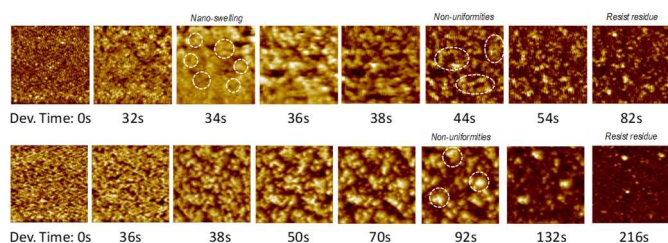


図 3.2.5-1 メタルレジストの現像過程(HS-AFM 観察結果)：酢酸ブチル現像液(上段)、新規現像液(下段)。

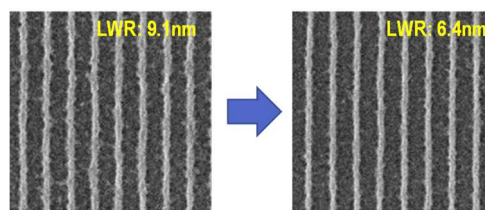


図 3.2.5-2 メタルレジストの EUV パターニング結果-走査型電子顕微鏡画像：酢酸ブチル(左)、新規現像液(右)現像による 20nm ライン。

#### ・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. 2. 5-3)を提案し、実験的にこれら課題に対する有効性(図 3. 2. 5-4)を確認した。

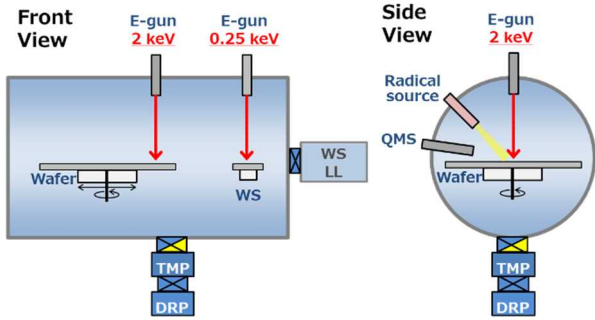


図 3.2.5-3 新規に提案した電子線照射と水素ラジカル発生源を用いた次世代レジスタアウトガス計測手法の構成図

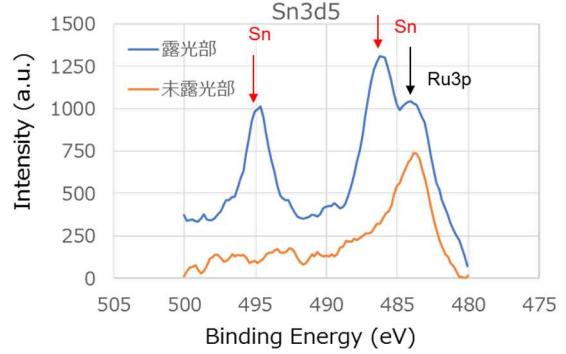


図 3.2.5-4 新規次世代レジスタアウトガス計測手法によるモデル材料(SnO<sub>2</sub>)の評価結果、XPS 解析により Sn コタミが検出された

・ 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 3.2.5-5)。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 Z\_2)。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。

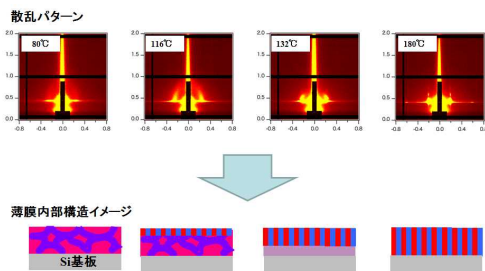


図 3.2.5-5 GI-SAXS 法による薄膜内部構造解析

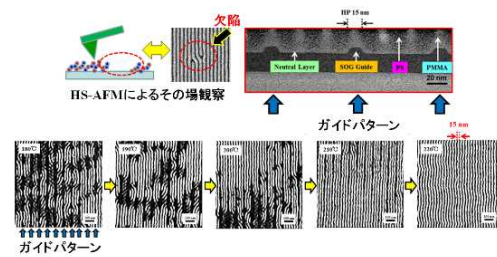


図 3.2.5-6 In-situ AFM による表面モルフォロジー解析

### 3.2.5.3 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 16nm±10%未満を満たす範囲を明らかにした(図 3.2.5-7、3.2.5-8)。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。

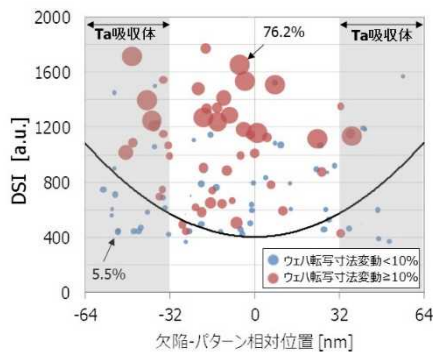


図 3.2.5-7 ブランク欠陥の位置・ABI 信号強度と転写性の関係

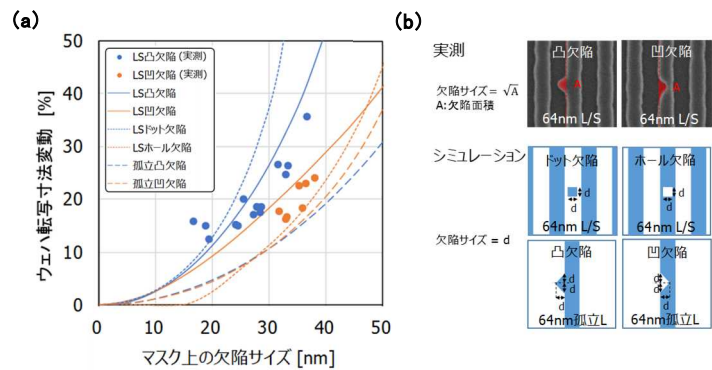


図 3.2.5-8 Ta 吸収体型 EUV PDM (a)マスクパターン欠陥サイズとウエハ転写寸法の関係 (b) マスクパターン欠陥 SEM 像の例とシミュレーションにおけるマスク欠陥形状モデル

### 3.2.5.4 成果の実用化への見通しについて

#### 1) ナノ物質計測技術の構築

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とともに、達成した基盤技術の普及に関する活動を実施する予定である。すなわち、異なる材料系の適用性の検討や、ISO/TC24/SC4 における本計測手法の標準文書化に関わる作業に関する貢献することを想定している。

また、半導体デバイス製造に用いる高純度液体材料(洗浄液/有機溶剤/レジスト等)中の粒子・泡を含めた液中欠陥計測が必須であり、各々適切な除去方法、精製方法が必要となる。現状の LPC は粒子と泡を分離計測出来ない課題と、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。液中ナノ粒子/ナノバブル計測技術開発によって新規に開発された FPT 法を用いた液中欠陥検査装置と、液中低屈折率材料(PTFE 粒子等)向けの清浄な検査標準溶液の調査・開発によって選定された高屈折率液体、この二つを用いることで半導体製造装置向けの高純度液体材料、並びに高純度(低 PTFE 発塵)部品を製造でき、新規化学材料開発・それを用いた半導体デバイスの試行・歩留改善が大幅に改善できる。

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では、高速原子間力顕微鏡(HS-AFM)を用いたメタルレジスト現像過程のその場観察方法の評価・検証を行い、本手法がメタルレジスト材料開発に有効であることが確認できた。本計測技術をメタルレジストに限らず、他の半導体レジスト材料やディスプレイ用レジスト等、現像過程・溶解過程を伴う各種機能性材料の開発に応用し、実用化を目指す。また、現在 EUV 露光装置側の対策により、デバイス量産時に大量のウエハが露光処理される条件下においてもアウトガスの影響を充分防止可能と見なされているが、仮に問題が新たに発生したとしても、次世代レジストアウトガス計測技術開発にて提案した、簡便な電子線+水素ラジカル照射方式を用いることで、迅速な計測環境の構築～問題の特定が可能である。

DSA 精密計測技術開発では、DSA 技術実用化のキーポイントである欠陥低減に向けて、まずは欠陥の高速・高精度な検査・計測技術およびシミュレーション技術を構築することができた。今後は、これら開発した技術に基づき、シングルナノレベルのシリコン半導体量産を低コストで実現できる DSA 技術を早期に実現する。更に、これら開発した技術を、シングルナノレベルの材料を扱う他分野の検査・計測技術としても有効活用できるよう応用研究開発を進める。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) ナノ欠陥検査用計測標準技術の構築

ウエハ転写寸法との関係が取得されたプログラム欠陥標準マスクと欠陥計測標準技術により、検査装置が検出すべきマスクパターン・ブランク欠陥仕様が明確化され、都度のウエハ露光確認が不要になる。特に、現時点では EUV マスクブランクの無欠陥化が困難であり、ブランク欠陥を吸収体パターンで覆い隠すことでブランク欠陥転写影響を低減する技術の適用が EUV リソグラフィ量産時に必要とされ、今回の欠陥標準マスクにより得られたブランク欠陥仕様と計測

標準技術により、ブランク欠陥転写影響低減技術の能力評価が可能になる。

### 3.2.6 研究開発項目[4] 相分離シミュレーションを活用した非溶媒誘起相分離による革新分離材料材料の研究開発

#### (1) 背景と目的

本事業は2つの目的を有する。第一に、当社が優位性を有する有機系機能材料である分離膜において、世界的な資源・エネルギー問題の解決に資する高付加価値製品をいち早く市場に送り出すことである。このような高機能分離膜の開発ターゲットとして、次の2点を想定している。

##### A) リチウム回収プロセスを実現する耐薬品性分離膜

リチウム電池の市場規模は現在の2兆円から、2025年までに5.5兆円にまで成長すると見込まれている。その急速な需要拡大のため、2030年以降にリチウムの需要が供給を上回り、リチウム不足に陥る可能性が懸念されている。また、2015年のリチウム供給量20万トンの供給源の内、6割を占める高濃度塩湖および残り4割のリチウム鉱石は、現在の埋蔵量はいずれも750万トン程度と見込まれているものの、今後の需要増により約30年以内に枯渇すると予測されている。そのため、新たなリチウム供給源開拓が強く求められており、特に廃リチウム電池からのリチウム回収技術の構築は、リサイクル社会実現の観点からも必要不可欠である。そこで、リチウム回収プロセスを実現する耐薬品性分離膜を開発する。

##### B) 省エネルギー型ガス精製プロセスを実現する耐熱・耐圧・耐薬品・高透過性支持体

SDGsでも掲げられた持続可能な社会を実現する省エネルギープロセスとして、ガス分離膜を用いたガス精製プロセスへの期待が高まっている。代表的な天然ガス精製では、年間6,000億円の大きな市場が形成されているが、多種多様な不純物を含む原ガスを高温・高圧条件下で精製するプロセスを膜分離プロセスで置き換えるには、ガス分離膜に高度な耐熱・耐圧および耐薬品性が求められる。これらを満足する支持体としてアルミナ支持体が知られているが、コストが高いため、膜分離プロセスは限定的な普及に止まっているのが現状である。そこで、ガス分離膜による省エネプロセスの普及拡大に向けて、低コストでありながら耐熱・耐圧・耐薬品性を満足する支持体を開発する。また、ガス分離膜全体のガス透過度を向上して精製プロセスの運転コストを削減するため、支持体単独での高いガス透過度を実現する。

本事業の目的の2つ目は、分離膜設計におけるシミュレーション技術およびインフォマティクス技術の有効性実証である。上記高機能分離膜の製造に共通するのは、原料ポリマー溶液を凝固液（非溶媒）中に押し出し、非溶媒誘起相分離（non-solvent induced phase separation; NIPS）によって多孔構造が自発的に形成されるプロセスの利用である。用途に応じた最適な分離膜を設計するには、原料ポリマーや良溶媒／貧溶媒といった原材料の選択に加えて、濃度・温度・流速といったプロセス条件も重要であり、考慮すべき要素の組合せは膨大な数に上る。そのため、試行錯誤に基づく研究開発では、数多くの実験を行っていきながら膨大な可能性の内ごく限られた範囲の条件しか探索できておらず、計算科学を活用した広範囲かつ高効率な探索への期待が大きい。

#### (2) 目標

本事業における分離膜の研究開発において達成すべき目標は以下のとおりである。

##### A) 耐薬品性分離膜

本事業における目的は、NIPSプロセスの応用による化学的耐久性と選択分離性に優れたナノろ過膜の開発である。

現在、廃リチウム電池からのリチウム回収は、水酸化ナトリウムや硫酸で溶液のpHを調整しながら、溶媒抽出でコバルト、マンガン、ニッケルを回収した後、最後に残ったリチウムを回収する方法が採ら

れている。この方法では、リチウムを回収する際、液中のナトリウムイオンや硫酸イオン濃度が高く、十分な純度のリチウムが得られないため、再び電池の正極材原料として回収することはできない。

そこで本事業では、強酸・強アルカリ・強酸化剤下でのリチウム分離が可能な革新ナノろ過膜を創出し、コバルト、マンガン、ニッケルの溶媒抽出による回収よりも上流でリチウムを分離して回収することで、中和や溶媒抽出操作によるナトリウムイオンや硫酸イオンの混入を防止し、正極材原料に再利用できる高純度リチウムを回収する技術の実現に貢献したい。

具体的な開発ターゲットは、強酸・強アルカリ・強酸化剤の共存下で利用できるナノろ過膜である。現行のナノろ過膜は主にポリアミド製であり、1価イオンと多価イオンとの優れた選択分離性を示すものの、強酸・強アルカリ・強酸化剤下では化学的劣化による性能低下が顕著であり、残念ながら実用的水準には到達していない。本事業では、化学的耐久性に優れた材料を選定した上で NIPS プロセスを応用し、優れた選択分離性を示すナノろ過膜の開発を目指す。

膜の開発に当たっては、当社にとって利用実績の乏しい耐薬品性ポリマーを扱うため、原液組成など様々な NIPS プロセス条件を広範囲に探索しつつ、最適なパラメータを決定する必要がある。したがって、相分離シミュレーションの活用による合理的プロセス設計と試作回数削減への期待は大きく、本事業が目的とする「試作回数・試作期間 1/20」の実証課題として適していると考えられる。

## B) ガス分離膜用支持体

本事業における目的は、相分離構造の支配因子解明および所望の多孔構造を安定して生成できるプロセス条件の確立である。

当社のガス分離膜用支持体は、NIPS プロセスを活用した高分子分離膜紡糸技術と、炭素繊維製造における焼成技術の応用により、共連続孔を有する高分子材料を焼成して多孔質炭素として構造固定することで、高分子材料の特長である安価な連続製造プロセスと無機材料の特長である耐熱・耐圧・耐薬品性を兼ね備えた、繊維状多孔質炭素材料である。

ガス分離膜の重要な性能指標であるガス透過度には、分離機能層の性能だけでなく、支持体のガス透過度が強く影響する。支持体のガス透過度は、nm スケールの微細な空隙の大きさや支持体表面の細孔サイズ・量によって大きく変化するが、これらは焼成により炭素化する前の原糸に形成されている多孔構造に由来する。したがって支持体の性能を安定させるには、焼成前の相分離構造の精密制御が必要条件であり、そのためには NIPS プロセスパラメータと相分離構造との相関を定量的に把握し、支配因子を解明した上で、パラメータ最適化を行う必要がある。

制御すべきパラメータは、後工程も含めると 12 種類あるため、これら全てを 10 通りずつ検討すると組合せの数は単純計算で  $10^{12}$  通りに上る。そこで、凝固工程の支配要因解明には NIPS シミュレーション技術を活用しつつ、他工程のパラメータには機械学習による要因解析を併用することにより、実試作の回数を  $10^2$  オーダーまで絞り込みたい。したがって、相分離シミュレーションと AI ツールの活用による合理的プロセス設計と試作回数削減への期待は大きく、本事業が目的とする「試作回数・試作期間 1/20」の実証課題として適していると考えられる。

図 3.2.6-1 にシミュレーション活用による効率化のイメージを示す。従来型の研究開発では、事業期間内に顧客評価に値する試作品を作成するのは困難であるが、本事業では計測-計算-試作のサイクルを段階的に加速することにより、検討を重ねる毎に材料設計の効率化を進めたいと考える。事業期間 3 年間で 60 年分の研究開発を行うという意味での「20 倍」は困難であるが、事業終了時点では、従来型の開発プロセスと比較しおよそ 20 倍の効率化が達成できる見込みである。



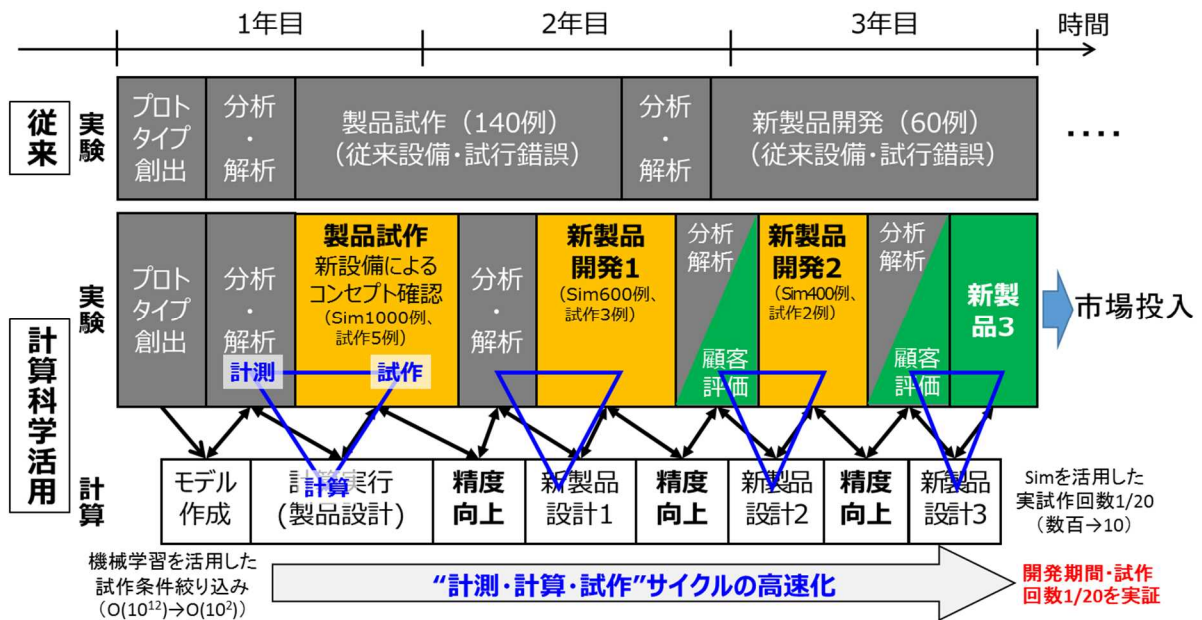


図 3.2.6-1 シミュレーション活用による材料開発効率化のイメージ

### (3) 研究開発内容

#### A) 耐薬品性分離膜の設計・試作・評価 (担当：東レ株式会社 地球環境研究所)

強酸・強アルカリ・強酸化剤等に対する化学的耐久性に優れた分離膜の製膜研究を行う。

目的の耐久性を有する分離膜を得るためには、ナノろ過膜に広く用いられるポリアミドは不適であり、まず利用するポリマーから新たに選択しなければならない。新たなポリマーを採用して多孔質膜を製膜する場合、相分離挙動が大幅に変わり、望ましい多孔質構造を得るためには、溶媒、濃度、温度、凝固時間など数多くのパラメータを変更し、調整を行わなければならない。十分な分離機能を持つ膜の開発には多大な時間を要することとなる。相分離シミュレーションの活用により、上記の条件を種々変更したときの多孔質構造の推定が可能となるため、条件検討の期間を 1/20 程度にまで大幅に短縮でき、新規分離膜開発スパンの大幅な短縮が期待できる。

本事業において、まず 2019 年度は新たなポリマーを検証する際に、相分離シミュレーションを用いることで、最適な多孔質構造を発現させるポリマー濃度、溶液温度について検証を行う。優れた分離性能を示す緻密さと、高いろ過速度を達成させる透水性とを両立させるためには、表面のろ過機能層をなるべく薄くした上で、さらに表層は緻密にしてろ過性能を高め、内層は疎にして透過性を高めるという急激な構造差を作る必要がある。この構造差を発現するために、凝固前のポリマー溶液内で意図的な濃度差を発生させるには、ポリマー表面の溶媒を積極的に蒸発させる必要があり、そのためにはポリマー塗布後の加熱・蒸発設備が必要となる。構造解析には放射光 (SPring-8) を活用する。また、高分子学会・成形加工学会・化学工学会・膜学会などの国内学会に加えて、国際会議にも年に 1 度程度参加して膜構造形成に関する情報収集を行い、研究開発の加速を図る。

当社では 2020 年度から 2021 年度にかけてロール to ロールで製膜可能な多目的製膜機を導入予定であり、この装置に本事業での検証に必要な設備 (コーター、加熱オーブン、排気処理設備) を追加導入する計画である。具体的には、2020 年度に加熱設備を最初に導入して、枚葉サンプル実験で、相分離シミュレーションの結果を検証する。2021 年度には多目的製膜機の導入と同時にコーター、排気処理設備も導入することで、連続製膜検証ができる体制を整える。将来的には、本設備を利用して、大面積でのサンプル提供、少量生産への適用を見込む。

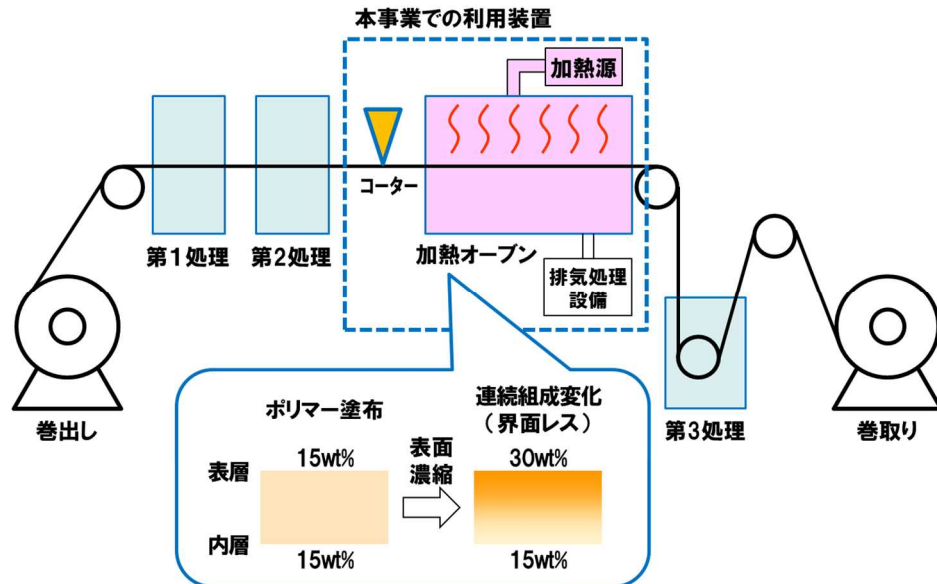


図 3.2.6-2 多目的製膜機を活用した溶媒蒸発 NIPS プロセスの概要

B) ガス分離膜用支持体の設計・試作・評価 (担当：東レ株式会社 先端材料研究所)

本プロジェクトでは、ガス分離膜用支持体の重要な構造である連続した共連続孔空隙の形成について、相分離シミュレーションを活用して形成メカニズムを本質的に解明し、プロセス条件を適正化するための試行錯誤期間を短縮することで、材料開発期間を 1/20 とする。

具体的には、支持体の製造に要する溶液紡糸における共連続孔連続した空隙を形成する紡糸条件として、原液条件 (ポリマー粘度・濃度、組成比、温度等)、凝固条件 (凝固浴組成・温度、凝固時間等)、水洗条件 (水洗温度・時間等)、乾燥条件 (乾燥温度・時間等) が挙げられ、それぞれ異なる適正条件範囲が存在し、すべてが安定範囲となって初めて連続プロセス化による均一な共連続孔形成が達成される。

本事業では、前記した多数のパラメータのうち、特に重要な要素と考えられる凝固浴浸漬、水洗および乾燥条件に着目した検討を実施するため、2019 年度の自社紡糸装置改造によって、凝固浴、水洗工程、乾燥工程におけるパラメータ制御範囲拡大および安定化を実現する予定である。

本プロジェクトの相分離シミュレーションと本設備導入・改造の組み合わせによって、これまでは研究者、技術者の技術的な経験と勘に頼って条件範囲を決定していたトライアンドエラーに伴う多大な労力を削減可能となる。更にはシミュレーションの前提に必要な安定したデータ取得を目指す。また、本材料は 2 種類の原料ポリマーを同時に用いる点に大きな特徴があり、SPring-8 による構造解析を活用し、京大と共同開発する 4 成分系の相分離理論の実験的検証も行う。加えて、相分離シミュレーションおよび機械学習による相分離構造予測の精度を、従来の定性的レベルから定量的レベルに向上させるため、外注分析による構造解析を実施する。高精度な構造データの取得により、自社設備による分析では不十分であった相分離構造の定量的データを取得でき、予測精度の大幅な改良が可能になる。また、高分子学会・化学工学会・膜学会などの学会に参加し、相分離構造制御に関する情報を収集して研究開発の加速を図る。

相分離シミュレーションの実用化により、前記の原液条件、凝固条件等のプロセス条件と得られる相分離構造の関係を明確化することができる。これにより所望の相分離構造が安定して得られ、支持体のガス透過度も安定化につながるため、品質に優れたガス分離膜用の支持体が創出可能となる。

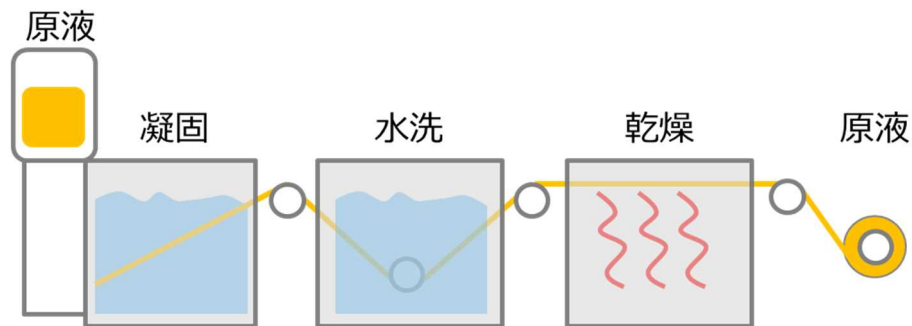


図 3.2.6-3 ガス分離膜用支持体の原糸紡糸プロセスの概要

C) マルチスケール相分離シミュレーション技術の実用化 (担当: 東レ株式会社 先端材料研究所)

耐薬品性分離膜およびガス分離膜用支持体は、いずれも高分子溶液と非溶媒を接触させることにより非対称多孔質構造を得る非溶媒誘起相分離(NIPS)プロセス(図3.2.6-4)を利用した材料である。このNIPSによる多孔質構造形成メカニズムの理解は重要であるにも関わらず、多成分系かつ拡散、高分子の変形等の複雑な物理現象が同時に起こるため、詳細な過程の実験的説明は困難であり、NIPSによる多孔質膜の開発は、経験と勘に基づく試作の繰り返しであった。

このような状況に対して、フェーズフィールド法や動的平均場法などメソスケールの場のシミュレーション手法を用いた孔形成メカニズム解明が試みられているが、現実のNIPS膜で見られるような、緻密層と支持層を有する非対称構造は再現できていない。さらに、メソスケールの場のシミュレーション手法では、官能基の違いといった化学的な詳細情報が失われる。このような場合、高分子の分子構造や溶媒種の変化などが孔形成に与える影響を分子レベルの知見に落とし込むことはできず、材料開発者に明確に伝わる設計指針を与えることができなかった。

よって、耐薬品性分離膜およびガス分離膜用支持体の材料開発期間を「1/20」以下に短縮するためには、マイクロとメソ・マクロスケールのシミュレーションを融合したマルチスケールシミュレーションにより、これらの系におけるNIPSの孔形成メカニズムを分子レベルに遡って解明し、分子論に立脚した本質的理解に基づく設計指針を材料開発者に与えることが極めて有効であり、試作回数を劇的に低減できると考える。そこで我々は、超超PJで基盤技術として開発された「マルチスケール相分離シミュレーション技術」と「拡張OCTA 汎用インターフェース」を耐薬品性分離膜およびガス分離膜用支持体に応用し、革新分離材料の開発期間の劇的な短縮を目指す。当社では、RO膜や燃料電池電解質膜といった原子・分子レベルの現象が支配的な高分子機能膜の設計に分子シミュレーションを活用した実績[1, 2]を有しており、これらの研究開発で培った知見も活用して本提案の革新分離膜の開発に取り組む。

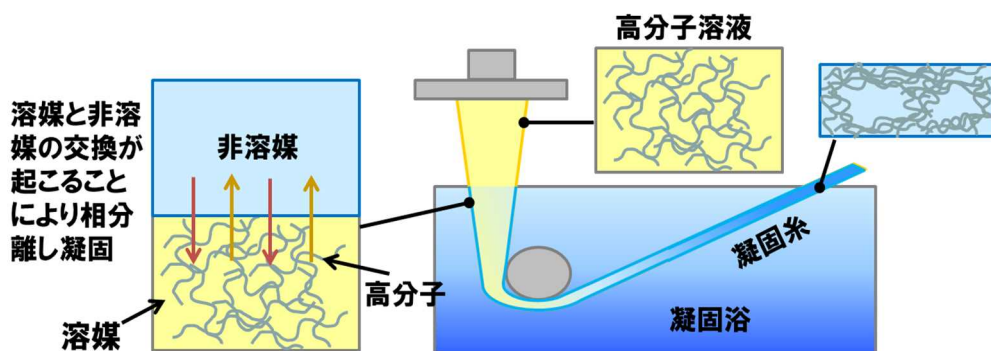


図3.2.6-4 非溶媒誘起相分離(NIPS)による多孔質膜作成の模式図

マルチスケールシミュレーションの実行手順について詳細を説明する。NIPSによる相分離現象を支配する要因として、高分子と溶媒・非溶媒との相溶性、界面を形成する場合の自由エネルギー、各成分の拡散、高分子の変形（粘弾性）が挙げられる。この中で、粘弾性以外の三要素については、分子描像が深く関わる物理量であるため分子シミュレーションから求めることができる。この三要素に関わる物理量は、混合自由エネルギー、界面過剰自由エネルギー、相互拡散係数であり、これらを全原子分子動力学(MD)シミュレーションから算出し、自己無撞着場理論（拡張OCTA）やフェーズフィールド法などの場のシミュレーションの入力パラメータとする。なおこれらの物理量の算出には超超PJ基盤技術として開発された手法[3-5]を用いる。

また全原子MDシミュレーションで得られた物理量の誤差が、場のシミュレーションにも大きく伝播することが予測される。そこで、高精度なMDを実施するため、汎用の力場パラメータを用いるだけでなく、耐薬品性分離膜およびガス分離膜用支持体のNIPS系にチューニングされた力場パラメータを開発する。我々は目的の材料にチューニングした力場パラメータを作成する技術を有しており、過去の材料開発においても活用した実績[1,2]があるが、多成分系の力場作成には分子レベルの相互作用エネルギーを高精度・高速に算出できる量子化学計算ソフトウェアが必要である。さらに、量子化学計算結果を力場パラメータ化し、自動でアサインするツールを整備することで、一連のシミュレーションが効率化され、研究開発効率の一層の向上が見込まれる。

粘弾性については、原子レベルのミクロスケールで発現する現象ではないため、実験的に得られた粘弾性の寄与を、構成方程式の追加項として場のシミュレーションに直接取り込む計画である。以上の手順により、分子レベルの情報を反映した高精度なマルチスケールNIPSシミュレーションが可能となる。以上のマルチスケールNIPSシミュレーションの概要を図3.2.6-5に示す。

このマルチスケールシミュレーションを用いた材料開発は以下の方針で行う。

- i. マルチスケールシミュレーションの準備には時間がかかるため、まず耐薬品性分離膜およびガス分離膜用支持体のプロトタイプの開発情報とモノマー構造について、ポリマー物性簡易予測ソフトを用いて、大まかな傾向を定性的に把握する。この情報を実験研究者にフィードバックし、試作・分析すべき水準のゆるやかな絞り込みを行う。
- ii. 実験研究者による試作・分析の間に、マルチスケールNIPSシミュレーションのプログラム作成・計算モデル作成・計算実行により、得られた孔形成過程・孔径分布をデータ解析ソフトで解析する。実試作で得られた細孔構造とシミュレーション結果を比較し、傾向が一致していれば次回試作方針の策定に活用する。傾向が合わない場合は、その原因を解析し、理論モデルや計算プログラムの改良にフィードバックする。

上記の方針によりNIPSシミュレーションを材料開発に導入することで、実験条件の変更が孔形成に与える影響を理解した上で試作を行えるため、開発期間を劇的に短縮できると期待する。孔形成過程・孔径分布の解析には「拡張OCTA汎用インターフェース」の利用を計画している。さらに、拡張OCTAの「AI Tool」により細孔構造を数値化し、機械学習で解析することにより、入力パラメータと細孔構造の相関を明確化する。これにより、よりの確な分子設計指針を短時間で実験研究者にフィードバックすることができ、開発速度をさらに加速する。

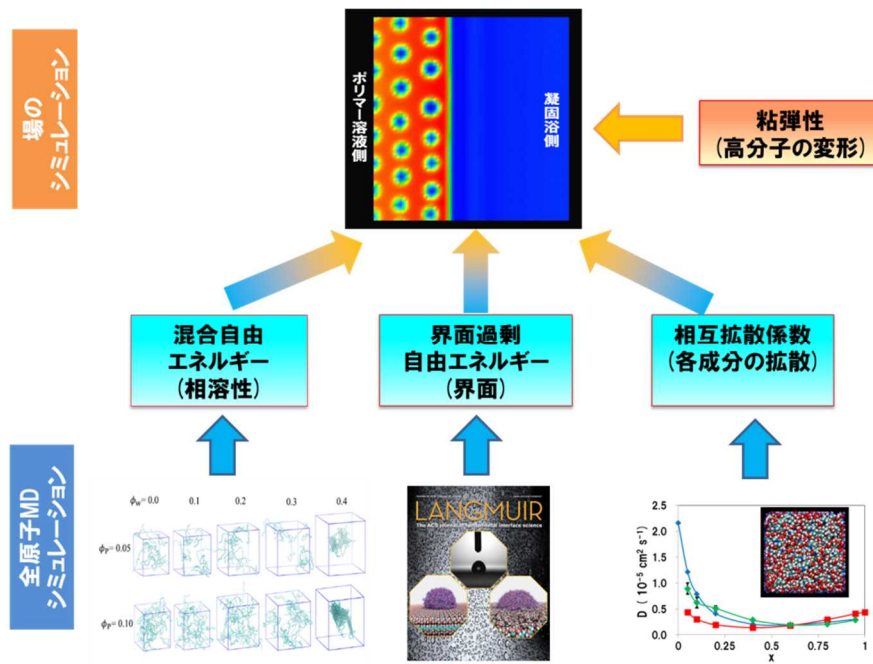


図3.2.6-5 NIPSマルチスケールシミュレーションの概要

なお、マルチスケール相分離シミュレーション技術には、米国カリフォルニア大学サンタバーバラ校のFredrickson教授をはじめ欧米の有力研究者が注目しており、今後技術開発が急ピッチで進められる可能性も考えられる。そのため、国内だけでなく海外の関連学会にも参加して最先端の研究動向を調査し、技術開発を加速する。2年目以降には、技術調査のみならず我々の研究成果も積極的に発表して、大学や企業の専門家との研究交流を促進し、研究開発をさらに加速する予定である。また、高分子シミュレーションの世界的な拠点であるシカゴ大学を事業開始後速やかに訪問し、相分離シミュレーションおよびシミュレーションと機械学習との融合について議論し研究初期の方向付けを明確化する。以後もシカゴ大や独ゲオルク・アウグスト大など有力拠点を訪問してシミュレーション技術についての議論を継続的に行い、世界動向を踏まえた最新技術の開発を目指す。

【参考文献】

[1] 茂本 勇, CICSJ Bulletin, 64, 36-39 (2017).  
 [2] 茂本 勇, 化学工業, 69, 40-47 (2018).  
 [3] T. Taddese *et al.*, *J. Chem. Phys.*, **150**, 184505 (2019).  
 [4] M. Kitabata *et al.*, *Langmuir*, **34**, 12214-12223 (2018).  
 [5] M. Kitabata *et al.*, *Langmuir*, **36**, 3633-3644 (2020).

D) マルチスケール相分離シミュレーション技術の4成分系への拡張 (担当: 東レ株式会社 先端材料研究所、国立大学法人京都大学)

ガス分離膜用支持体の NIPS 系は、原料ポリマー 2 種と良溶媒、貧溶媒から成る 4 成分系であるが、4 成分系における相分離は、まだ理論とモデルの構築が確立されていない。そこで我々は、本プロジェクトのマルチスケール相分離シミュレーション技術をベースに、4 成分系への拡張を試みる。新たな理論とモデルの構築およびテスト系でのシミュレーションは、マルチスケールシミュレーション研究で著名な京都大学大学院工学研究科化学工学専攻の谷口准教授が担当し、実際の NIPS 系での数値計算およびデータ解析は東レが担当する。2020 年度は、2 つの異なるポリマーを含む 4 成分のバルク系を対象に、新たな理論とモデルの構築を行い、2 次元シミュレーションによる検証実験を行う。また、分離膜構造の最適化には、

断面の相分離構造に加えて3次元的な連通孔の形成も再現する必要があるため、2次元系から3次元系への理論拡張を行い、より実験に近い条件での相分離構造予測を可能にする。なお、3次元シミュレーションは計算負荷が非常に大きいため、クラスター計算機を新たに購入して、実験の進展に先行してタイムリーに計算を実施する。2021年度は、4成分のNIPSプロセスを対象に、モデルとシミュレーションの拡張を行う。最終的には、4成分にも対応できるマルチスケール相分離シミュレーション技術を用いて、4成分のNIPSプロセスの最適条件をシミュレーションから導き出し、ガス分離膜用支持体における開発期間を従来の実験ベースの1/20以下まで短縮する。また、技術開発加速のため、国内外の関連学会に積極的に参加して、成果発表および研究動向調査を実施する。

#### (4) 計画

研究開発全体のスケジュールを図3.2.6-6、予算額（実績）を表3.2.6-1に示す。

事業項目	2019年度				2020年度				2021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
<b>A) 耐薬品性分離膜の設計・試作・評価</b>												
a. 新規ポリマー検討 シミュレーション 進捗を元に設計 初期製膜試験・評価												
b. 表面濃縮NIPS 枚葉試験・評価		設計・製作						▼装置導入				
c. 連続プロセス化 表面濃縮NIPS追加 連続製膜試験・評価			設計・製作								▼装置組込	
<b>B) ガス分離膜用支持体の設計・試作・評価</b>												
a. 連続プロセス改造	設計・製作			▼設備改造完了								
b. 連続プロセス試験 相分離データ取得												
c. 連続プロセス試作 安定条件範囲確認 連続試作												
<b>C) マルチスケール相分離シミュレーション技術の実用化</b>												
a. 全原子MDによるパラメータ抽出												
b. NIPSマルチスケールシミュレーション												
c. 拡張OCTAと機械学習による孔構造解析												
<b>D) マルチスケール相分離シミュレーション技術の4成分系への拡張</b>												
a. 基礎理論・モデルの構築(京大)												
b. 数値計算・データ解析(東レ)												
c. NIPS系を対象にしたモデルとシミュレーションの拡張(京大)												

図3.2.6-6 研究開発スケジュール

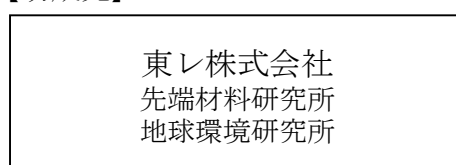
表 3.2.6-1 研究開発予算（単位：千円）

事業者	2019	2020	2021	合計
東レ株式会社	70,660	96,036	97,384	264,080
うち助成額（負担率 1/2）	35,330	49,998	49,991	135,319
うち国立大学法人京都大学 （負担率 1/1）		3,960	2,600	6,560

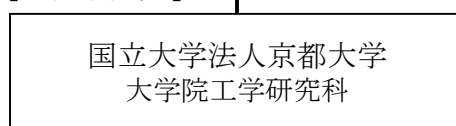
## （5）実施体制

本事業は、東レ株式会社と国立大学法人京都大学との共同研究として実施した。また、分子シミュレーションについては、岡崎進特任教授（東京大学大学院新領域創成科学研究科）の指導を受けた。

### 【助成先】



### 【共同研究先】



（相分離シミュレーション技術の拡張を共同研究）

図3.2.6-7 研究開発実施体制

## （6）研究開発成果

### A) 耐薬品性分離膜

#### ① 新規ポリマー検討

耐薬品性分離膜を実現するために、まずは化学的耐久性に優れた樹脂材料を選定した上で、2 価金属イオンを分離するためにナノレベルの孔が開いた多孔質膜をNIPS プロセスで作成しなければならない。

そこで、NIPS プロセスでナノレベルの孔を実現できる製膜条件を、課題(C,D)で開発した相分離シミュレーション技術を用いて探索した。その結果、孔を微細化するにはポリマー溶液中のポリマー濃度を高めること、および相分離時の構造成長時間を短時間化して早期に構造成長を停止することで孔の粗大化を抑制することが重要であることが分かった。

ポリマー濃度を高めることが効果的であることから、ポリマーを可能なかぎり高濃度で溶解できるポリマーと溶媒の組合せが有効との指針が得られた。ポリマーと溶媒の親和性が高いほど溶解性は高くなるため、ポリマーと溶媒の親和性を表わすパラメータである相対的エネルギー差 (RED) を計算より求めることで最適な組み合わせを検討することとした。

樹脂材料として、化学的耐久性を基準に7種類の樹脂を候補とした。さらに、NIPS で利用する溶媒として32種類を候補とした。これら7×32の組合せについて、それぞれREDを計算した。REDが小さいほど、親和性が高く溶解しやすいと考えられるため、REDが1.0より小さい組合せを1次候補とした。





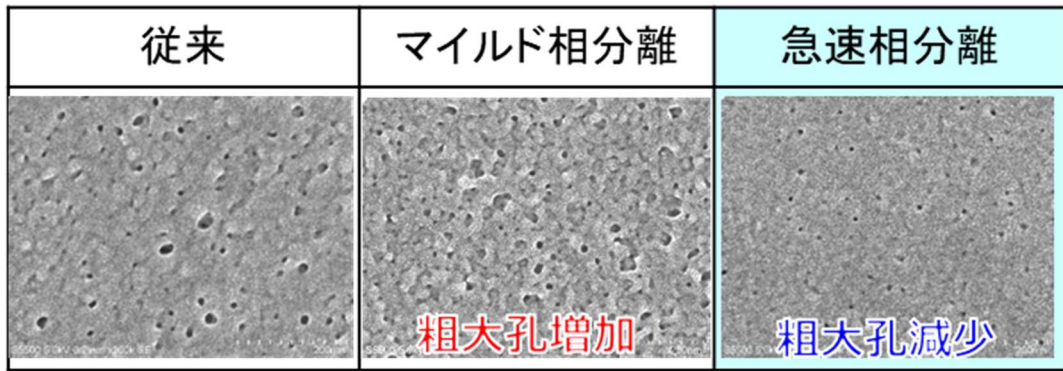
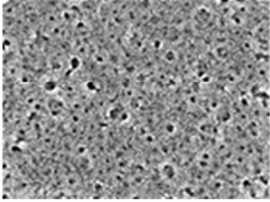
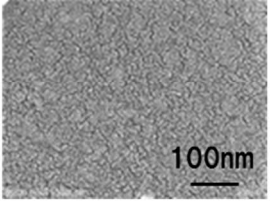
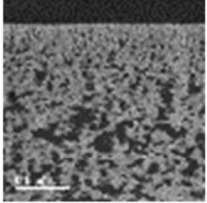
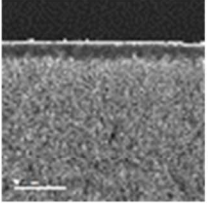


図 3.2.6-10 構造成長時間の短時間化による孔径微細化（乾式時間と表面構造）

続いて、ポリマー溶液を高濃度化したものを用いて急速相分離を行ったところ、シミュレーションから予測された通りに孔径は半分以下にまで小さくなり、2価金属イオンを除去できるようになることが確認できた。

表 3.2.6-2 ポリマー濃度と孔径、2価金属イオン除去率

	従来	高濃度
樹脂濃度	低濃度	超高濃度
相分離	従来	急速相分離
表面SEM		
断面TEM		
孔径 (nm)	6.5	2.8
膜透水性 ( $\times 10^{-12} \text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}/\text{Pa}$ )	870	0.19
2価金属イオン除去率(%)	0%	30%

孔径の画像解析においては、従来は手動で孔をマーキングしていたのに対して、自社開発の画像解析ソフトを活用して自動的に孔を認識させることにより、画像解析時間を従来の約 1/10 に短縮することに成功した。

ポリマー溶液を高濃度化した場合の課題として、溶液粘度が高くなるため塗布スジなどの欠点が発生しやすくなることが挙げられる。また、NMP 溶媒は急速相分離を行うには沸点が高すぎるため、短い乾式時間で溶媒を蒸発させるのは難しい。これらを一挙に解決するために、今回新たに選定した低粘度・

低沸点な水溶性溶媒を添加することとした。これにより、溶媒粘度が下がるとともに、短い時間での溶媒蒸発を促進させることが期待できる。

実際に製膜した結果を表 3.2.6-3 に示した。低沸点水溶性溶媒を混合することで、透水性は 2 倍強に向上しながら、2 価金属イオンの除去率も約 2 倍にまで向上することを確認した。低沸点水溶性溶媒の混合により、表面の溶媒濃縮が促進されて表面のポリマー濃度が高くなり孔径が微細化する一方で、内部のポリマー濃度は低いままに保たれたことから、膜最表面に微細な孔径を有する薄い緻密層（分離機能層）を形成できたものと推測している。

表 3.2.6-3 溶媒混合と透水性、2 価金属イオン除去率

	高濃度	高濃度 粘度改良
樹脂濃度	超高濃度	高濃度
相分離	急速相分離	急速相分離
溶媒	NMP のみ	NMP と低沸点水溶性溶媒との混合溶媒
膜透水性 ( $\times 10^{-12} \text{m}^3/\text{m}^2/\text{s}/\text{Pa}$ )	0.19	0.42
2 価金属イオン除去率(%)	30%	59%

### ③ 連続プロセス化

2020 年度から 2021 年度にかけて計画通りに多目的製膜機を設置したので、これに溶媒蒸発 NIPS に必要な設備としてコーター、加熱オープン、排気処理設備を組み込んだ。

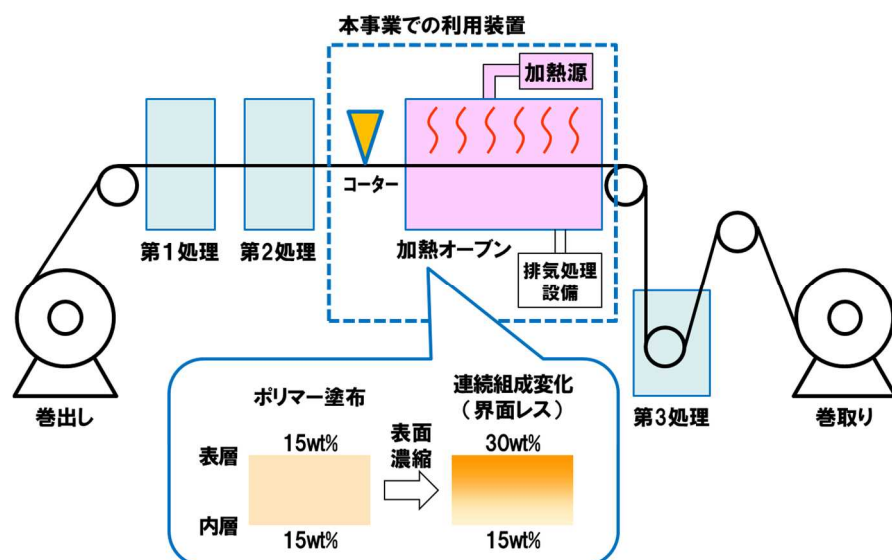


図 3.2.6-11 多目的製膜機を用いた溶媒蒸発 NIPS プロセスの概略図

コーター、加熱オープン、排気処理設備の組み込みを完了した多目的製膜機について、基材を用いた各種試運転を行い、短尺ながら搬送性、巻取り性、溶液塗布、加熱オープン内温度、風速、さらに

は発生する排気ガスの処理性能について問題ないことを確認した。

## B) ガス分離膜用支持体

本課題では、ガス分離膜用支持体の重要な構造である連通孔（共連続孔構造）の形成について、実試作に加えて相分離シミュレーション、機械学習、画像解析も活用したメカニズム解明に取り組み、本質解明および試作候補絞り込みによって試行錯誤期間を短縮することで、材料開発期間を大幅に短縮することを目標として研究開発を進めた。

ガス分離膜用支持体は、紡糸、熱処理を経て、中空糸状の多孔質炭素繊維として製造される。このガス分離膜用支持体の特性を支配する重要因子である共連続孔構造の形成を制御する紡糸条件は、主要なものだけでも、原液条件（ポリマー粘度・濃度、組成比、温度等）、凝固条件（凝固浴組成・温度、凝固時間等）、水洗条件（水洗温度・時間等）、乾燥条件（乾燥温度・時間等）の4つが挙げられる。相分離シミュレーションや機械学習を活用して共連続孔構造を予測するには、前記のパラメータを広範囲に設定して多様な条件の組合せの下に試作したサンプルを分析し、大量のデータを蓄積して解析する必要があるため、自社で保有する紡糸装置の改造により、水洗工程、乾燥工程におけるパラメータの制御範囲拡大および条件安定化を実現し、データの信頼性と再現性を大きく改善した。

改造後の紡糸装置により試作したガス分離膜用支持体について、SEM、FIB-SEM 測定により共連続孔構造の2次元、3次元画像をそれぞれ取得し、さらに機械学習を用いた画像解析により細孔直径を定量的に評価した（図 3.2.6-12）。

また、共連続孔構造のサイズ指標として、USAXS（超小角 X 線散乱：ultra-small angle X-ray scattering）測定データのギニエプロット解析から慣性半径を算出し、水銀圧入法による細孔直径の結果と良い相関が見られた。したがって、USAXS による慣性半径は、ガス分離膜用支持体中の共連続孔構造のサイズを定量的に表現できる非破壊検査が可能なパラメータであることが確認できた。そこで、ガス分離膜用支持体の製造工程を模して昇温過程における in-situ USAXS 測定を実施し、同一試料の経時変化を直接かつ連続的に捉えることにより、焼成条件による収縮挙動の違いを定量的に解明することに成功した。本検討により、従来は困難であった非破壊かつ定量的な共連続孔構造の連続したデータ取得方法を確立できた（図 3.2.6-13）。焼成条件の肝となる焼成温度について、高温になるほど共連続孔構造のサイズが小さくなる傾向を定量的に観測でき、顕微鏡観察による定性的かつ非連続的な挙動観察の結果と一致することを確認した。

これらの手法により共連続孔構造の評価・解析体系を整えた上で、新紡糸装置で試作したガス分離膜用支持体を速やかに解析し、相分離シミュレーション、機械学習の教師データとして蓄積した。

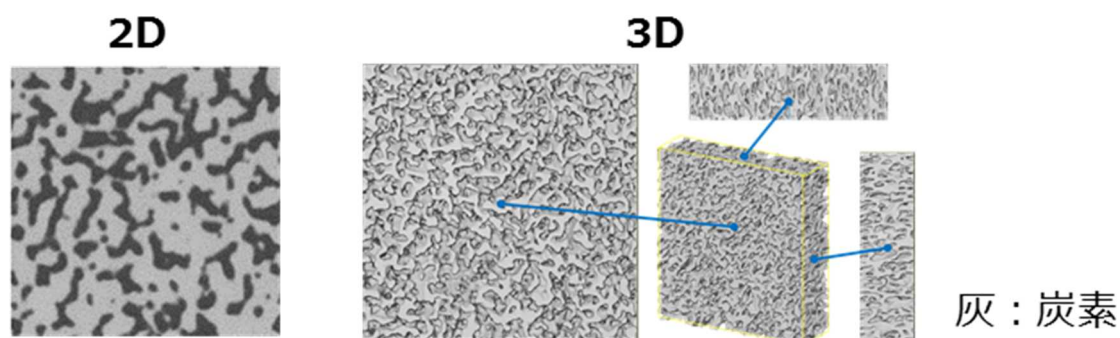


図 3.2.6-12 ガス分離膜用支持体の2次元、3次元共連続孔構造

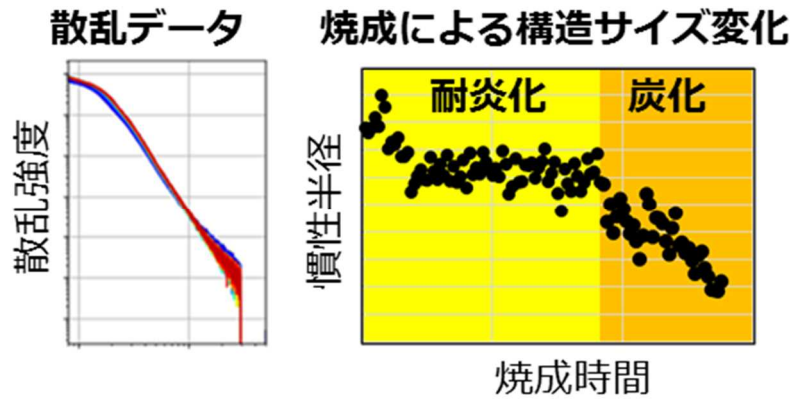


図 3.2.6-13 USAXS による構造解析

続いて、ガス分離膜用支持体の品質を安定させるため、表面開口率および繊維径斑の両物性を目標範囲内で安定的に試作可能な紡糸・熱処理条件を探索した。ここで表面開口率とは、ストロー状の中空糸であるガス分離膜用支持体の外表面積に対し、外表面に孔が開口している比率であり、値が大きいほどガス透過パスの比率が高いため、ガス分離膜とした場合のガス透過性向上が期待できる。また、繊維径斑はガス分離膜用支持体の長手方向の繊維径変化の指標であり、値が小さいほど均一膜厚のガス分離膜を製造しやすく、膜性能の安定に繋がることが期待できる。従来のプロセス条件では、両物性を安定して目標範囲内に制御できる紡糸条件範囲が未確定であり、多数の試行錯誤を伴う実験が必要であった。

紡糸・熱処理条件を効率的に探索するため、新旧紡糸装置を活用して蓄積した紡糸・熱処理条件と物性のデータを基に、相分離シミュレーションおよび機械学習を利用した。まず、表面開口率、繊維径斑の両物性について、予測値が目標を満足するような紡糸・熱処理条件範囲を設定した。その後、設定した範囲内で特に有望と想定される条件を抽出して試作、評価を実施した。このような『試作→評価・解析→学習・予測→試作』のサイクルを繰り返すことにより、教師データを追加して予測精度を向上するとともに、重要パラメータの最適化を進めた。これらの技術開発の結果、これまで研究者、技術者の技術的な経験と勘に頼って紡糸・熱処理条件の範囲を決定していた場合と比較して、実験水準数 1 / 4 で所望のガス分離膜用支持体を安定的に試作可能な紡糸・熱処理条件範囲を確定した (図 3.2.6-14)。

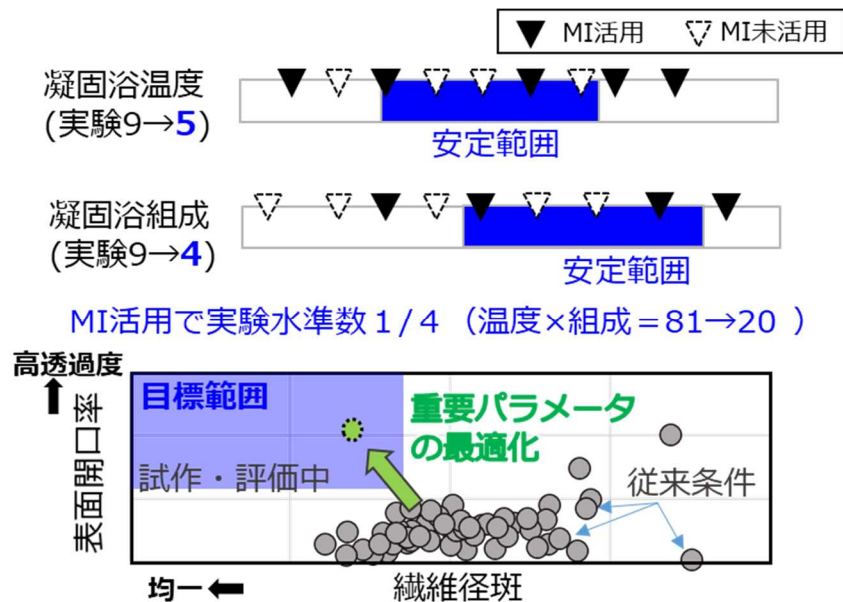


図 3.2.6-14 相分離シミュレーション、機械学習の活用による  
実験水準数の削減と安定試作範囲の確認

さらに、確定したガス分離膜用支持体が安定的に得られる紡糸・熱処理条件の範囲から、予測信頼度が高く、かつ物性発現が期待できる条件を、重要パラメータ最適化条件（最適条件）として選定した。再現性を確認する目的で、2つの異なる最適条件を選定して連続試作し、ガス分離膜用支持体の製造及び品質安定性を評価した。2つの最適条件のいずれにおいても、プロセス途上で糸が破断することなく数時間の安定した試作が可能であり、長尺糸が得られた。さらに長尺糸の抜取検査から、表面開口率、繊維径斑の両物性が、共に目標範囲内であることを確認した（図 3.2.6-15）。これにより、最適化された紡糸・熱処理条件で製造及び品質安定性に問題の無い、ガス分離膜用支持体を創出した。

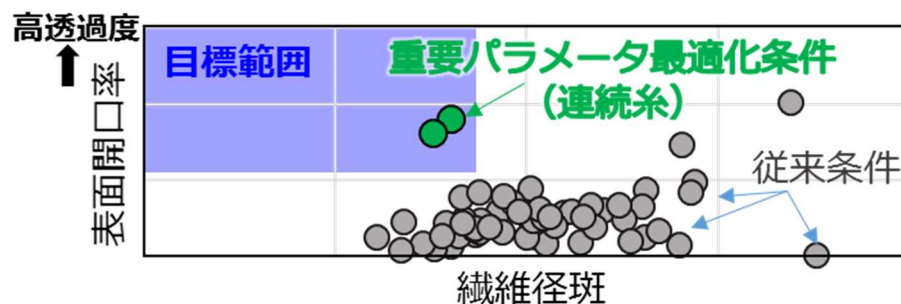


図 3.2.6-15 最適条件による連続試作及び評価結果

### c) マルチスケール相分離シミュレーション技術の実用化

本格的なシミュレーション検討に入る前に、まず実験担当者とともにポリマー・溶媒・非溶媒のリストを作成し、ポリマー物性簡易予測ソフトにより溶解度パラメータなど基礎的な物性を確認した。非溶媒誘起相分離（NIPS）への適合性が明らかに低いものを除外することで、耐薬品性分離膜およびガス分離用支持体の候補組成を緩やかに絞り込んだ。この結果を、初期試作の参考情報として実験担当者にフィードバックした。

候補組成のさらなる絞り込みには、マルチスケール相分離シミュレーションを活用した。マルチスケールシミュレーションの実行手順について概要を説明する。耐薬品性分離膜およびガス分離用支持体の

製造に用いられる NIPS では、相分離構造形成過程を支配する要因として、高分子と溶媒・非溶媒との相溶性、各成分の拡散、高分子の変形（＝粘弾性）などが挙げられる。この中で、相溶性と拡散については、分子描像が深く関わる物理量であるため、分子動力学（MD）シミュレーションから求めるのが適当である。これらを MD シミュレーションから算出し、メソスケールの相分離構造を予測するフェーズフィールド法の入力パラメータとした。これらのパラメータ計算には、超超 PJ で開発された基盤技術を用いた。また粘弾性については、原子レベルのミクロスケールで発現する現象ではなく分子描像は不要なため、実験的に得られた粘弾性の寄与を、構成方程式の追加項としてフェーズフィールドシミュレーションに直接取り込んだ。

多数の試作候補に対してマルチスケール相分離シミュレーションを行う際のボトルネックは、MD シミュレーションの実行に必要な力場パラメータの割り当て作業であった。そこで、この作業を自動化する「汎用力場自動アサインツール」を開発した。このツールはグラフィカルユーザーインターフェース（GUI）とキャラクターユーザーインターフェース（CUI）の両方を兼ね備えており、GUI で自動アサインされたパラメータの詳細確認（図 3.2.6-16）や後述するパラメータチューニングを行うことができ、さらに CUI で大量の構造ファイルに対してバッチ処理を行うこともできる。本ツールにより、高分子モデルに対して、汎用的かつ高精度な力場パラメータとして知られる GAFF および OPLS-AA を自動的に割り当てられるようになり、ハイスループット MD による相分離シミュレーションの入力パラメータ作成が実現した。

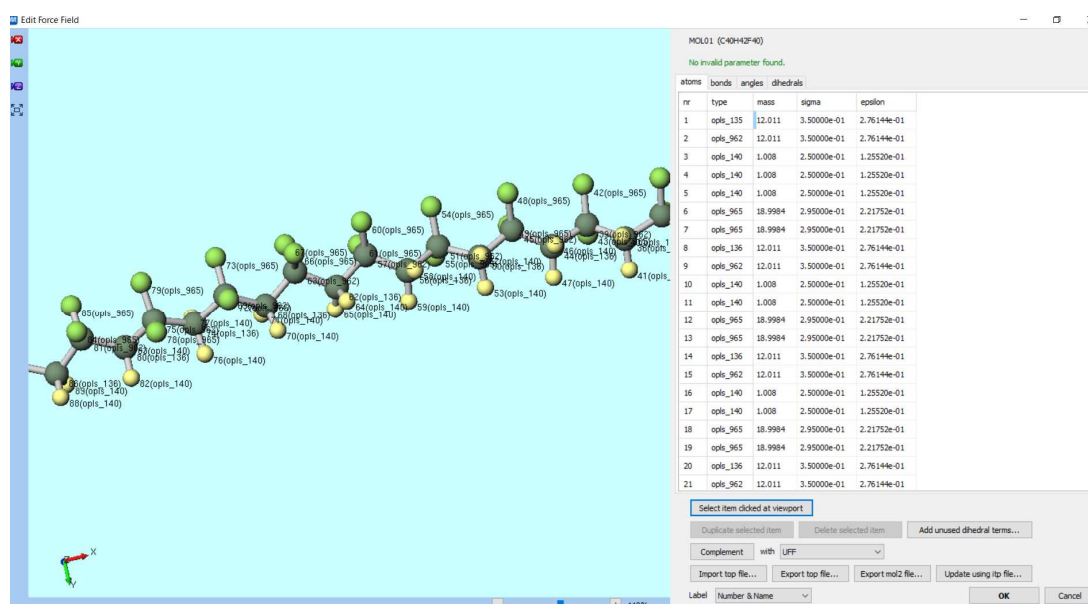


図 3.2.6-16 汎用力場自動アサインツールの GUI

また、多様な化学種を含む組成の計算を行うには、GAFF や OPLS-AA といった汎用力場では想定されていない原子の結合様式にも力場パラメータを割り当てる必要があるが、このような結合様式に汎用力場パラメータを流用すると、目的とする物性値の予測精度が低下する可能性が懸念される。そこで、厳密な量子化学計算結果に一致するように力場パラメータを自動でチューニングするプロトコルを開発した。これにより、耐薬品性分離膜およびガス分離用支持体の候補ポリマーにチューニングされた高精度な MD 計算が可能になった。本プロトコルを用いると、例えば候補ポリマー主鎖の二面角回転に関する力場パラメータを図 3.2.6-17 のように調整することができる。

上記のハイスループット MD から算出されたパラメータを入力とする相分離シミュレーションを実施

した。得られた相分離構造を実験データと比較検証しながら、候補組成の絞り込みおよびプロセス条件の最適化指針を提案した。このとき、相分離構造の孔解析に超超PJで開発された「拡張 OCTA 汎用インターフェース」の「Image Loader」を活用した。

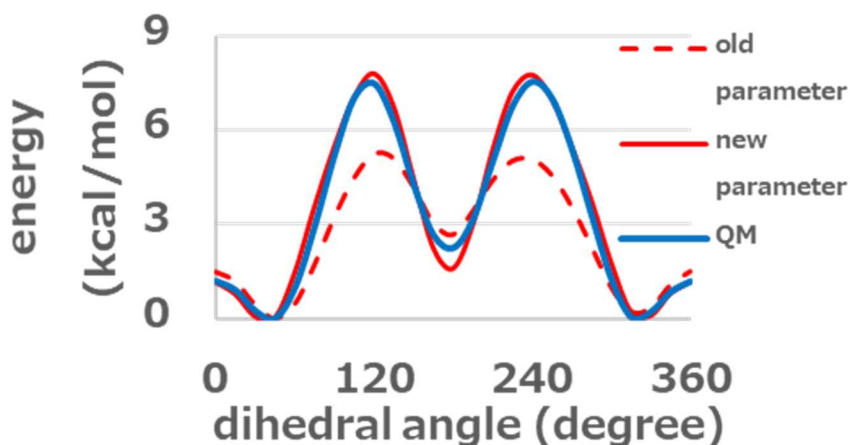


図 3.2.6-17 候補ポリマーの主鎖の二面角回転エネルギー：赤破線) 汎用力場パラメータ、赤実線) チューニング後の力場パラメータ、青実線) 量子化学計算。

試作回数が増え、試作品の電子顕微鏡画像がある程度蓄積されてきた時点で、これらの画像に「拡張 OCTA Image Loader」による孔径解析を適用した。

さらに、拡張 OCTA で抽出された表面開孔率および表面孔径を目的変数、プロセスパラメータを記述子とする機械学習モデルの構築を実施した。当初の機械学習モデルの予測精度はあまり高くなかったが、表面 SEM 画像の輝度ムラを機械学習により補正する前処理などの工夫を行うことにより、leave-one-out 交差検証による決定係数  $Q^2$  が 0.6 以上の比較的高精度なモデルの構築に成功した (図 3.2.6-18 上)。これらの学習モデルから表面開孔率と表面孔径に寄与する重大なプロセスパラメータを抽出し、プロセスの最適化指針を実験担当者にフィードバックした。なお、この機械学習モデルは「拡張 OCTA AI Tool」と独自 python スクリプトを組合せて構築した。

試作条件を絞り込んで実験を効率化するため、構築された機械学習モデルを用いてプロセスパラメータを様々に変化させる仮想実験を実施し、到達可能な表面開口率と孔径の範囲を予測した (図 3.2.6-18 下)。この中から望ましい表面開口率と孔径を達成するプロセスパラメータの組合せを実験担当者にフィードバックし、プロセス最適化に貢献した。

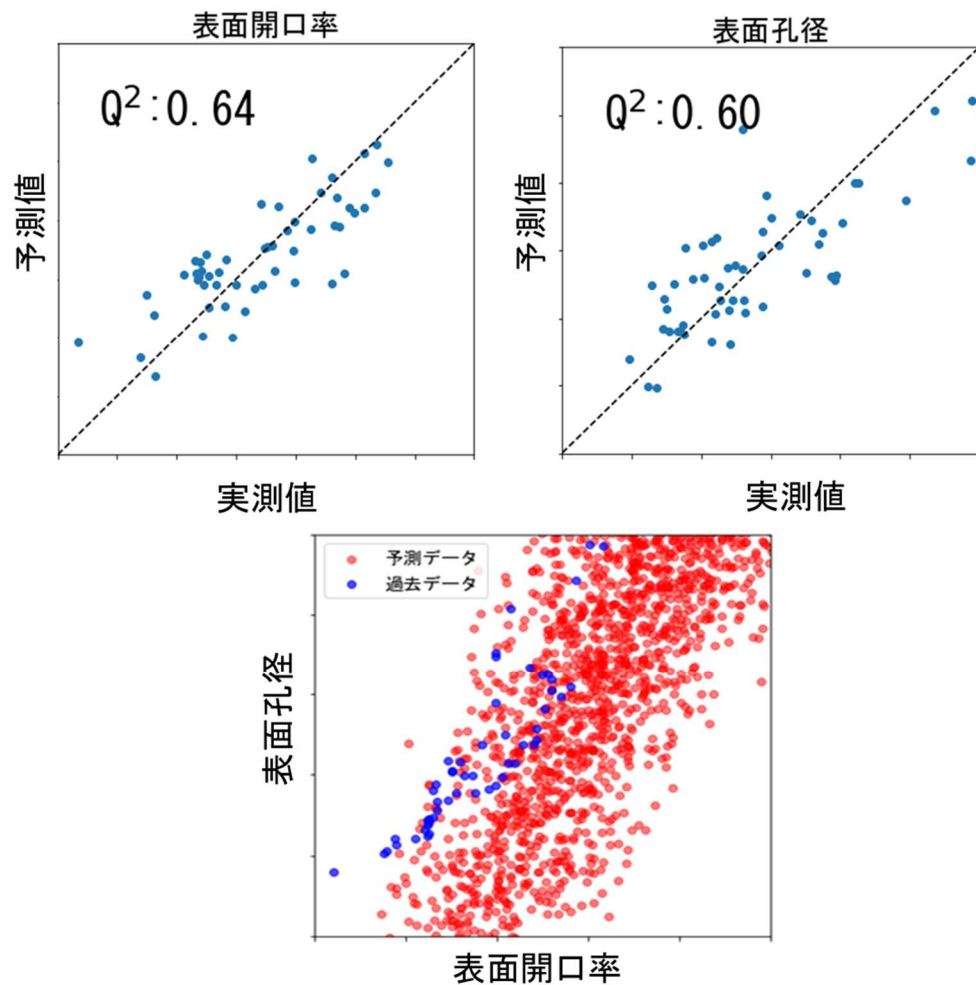


図 3.2.6-18 (左上) 表面開口率の実測値と機械学習モデルによる予測値の比較 (右上) 表面孔径の実測値と機械学習モデルによる予測値の比較 (下) 機械学習モデルを用いてプロセスパラメータを様々に変化した仮想実験の結果 (赤)、過去の試作結果 (青)

D) マルチスケール相分離シミュレーション技術の4成分系への拡張

ガス分離膜用支持体は、4成分混合溶液（ポリマーA、ポリマーB、良溶媒、貧溶媒）の相分離により形成される。しかし、4成分系の相分離に対する理論モデルや計算手法はまだ確立されていなかった。そこで2020年度は、4成分相分離シミュレーションを実施するための理論モデルと計算技術の構築に取り組んだ。理論モデル構築とテスト計算は京都大学、計算手法構築と大規模シミュレーションの実行・結果解析等は東レが担当した。

図3.2.6-19に、理論モデルの概要を示す。系の自由エネルギー $F$ を混合自由エネルギー項 $F_{\text{mix}}$ と界面自由エネルギー項 $F_{\text{int}}$ の和として表現し、各項を4成分の体積分率 $\phi_A, \phi_B, \phi_C, \phi_D$ の関数で表した。混合自由エネルギー項 $F_{\text{mix}}$ をFlory-Huggins理論から導き、界面自由エネルギー項 $F_{\text{int}}$ は濃度差勾配の2乗を体積積分した形で表した。 $F_{\text{mix}}$ に含まれる $\chi$ パラメータは異なる2成分の相互作用の大きさを表し、実験もしくは理論計算から決定した。また、溶液は非圧縮性であると仮定して、4成分の体積分率の和は常に1とした。さらに、上述の理論モデルを用いて、各成分の体積分率の時間発展をGinzburg-Landau時間依存方程式から逐次的に求める計算手法を新たに構築した。



$$F(\phi_A, \phi_B, \phi_C, \phi_D) = F_{\text{mix}}(\phi_A, \phi_B, \phi_C, \phi_D) + F_{\text{int}}(\phi_A, \phi_B, \phi_C, \phi_D)$$

**混合自由エネルギー**

$$F_{\text{mix}} = \frac{k_B T}{v_0} \int_V d\mathbf{r} \sum_{i=1}^4 \left[ \frac{\phi_i(\mathbf{r})}{N_i} \ln \phi_i(\mathbf{r}) + \sum_{j=i+1}^4 \chi_{ij} \phi_i(\mathbf{r}) \phi_j(\mathbf{r}) \right]$$

$k_B$ : Boltzmann constant  
 $T$ : Temperature

**界面エネルギー**

$$F_{\text{int}} = \frac{k_B T}{v_0} \int_V d\mathbf{r} \sum_{i=1}^4 \sum_{j=i+1}^4 \frac{\xi_{ij}^2}{2} \{ \nabla[\phi_i(\mathbf{r}) - \phi_j(\mathbf{r})] \}^2$$

$N_i$ : Polymerization degree  
 $\chi_{ij}$ : Flory-Huggins parameter  
 $\xi_{ij}$ : Interfacial thickness

**非圧縮性**

$$\phi_A(\mathbf{r}) + \phi_B(\mathbf{r}) + \phi_C(\mathbf{r}) + \phi_D(\mathbf{r}) = 1$$

図 3.2.6-19 4成分相分離シミュレーションのために構築した理論モデル

ポリマーA、ポリマーB、良溶媒、貧溶媒から成る4成分バルク系を対象に実施した2次元相分離シミュレーションの計算結果の一例を図3-20に示す。ポリマーAと貧溶媒は反発力が大きいいため、互いに反転した相分離構造が形成されている。一方、ポリマーBはポリマーAよりも貧溶媒との親和性が高いため、ポリマーA相と貧溶媒相との界面に偏在している。ポリマー相の詳細な構造内部は分離膜設計において極めて重要な情報であるが、実験では解析困難なため、計算による理論的解析が有用である。

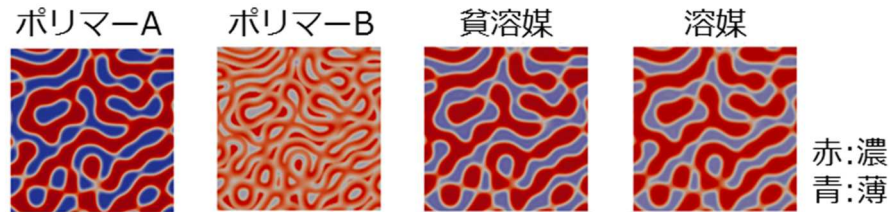


図 3.2.6-20 4成分バルク系の相分離シミュレーション（2次元）から得られた各成分の濃度分布

次のステップとして、ガス分離膜支持体の共連続構造を再現するために、相分離シミュレーション技術を2次元から3次元に拡張した。ただし、3次元では計算負荷が大幅に増大するため、図3.2.6-21で示すように、系を1軸方向に分割して並列計算を実施した。具体的には、各分割領域の計算を1つのCPU(Central Processing Unit)に割り当てて、隣接する領域の情報交換をMPI(Message Passing Interface)形式で実施できるように計算プログラムを改良し、京都大学学術情報メディアセンターのスーパーコンピュータシステム等を活用して数百個のCPUによる大規模計算を実施した。

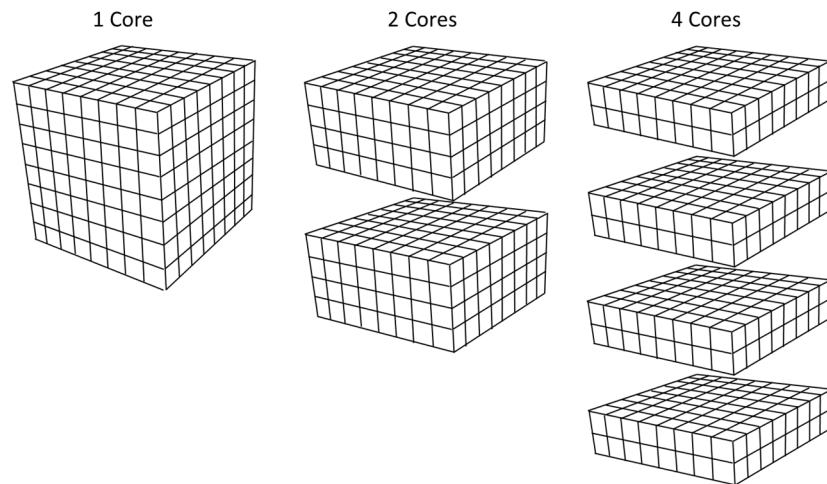


図 3.2.6-21 3次元で4成分相分離シミュレーションを実施するため並列化計算の概略図

4成分バルク系の相分離シミュレーションを3次元で実施した1例を図3.2.6-22に示す。図3.2.6-20の2次元での計算結果とは異なり、相分離ドメインが奥行き方向にも入り組んだ共連続構造が形成されている。ここで得られた3次元の相分離構造を、ガス分離膜用支持体のUSAXS測定等で得られた構造データと比較することで、モデルパラメータの一部を実験データとの合わせ込みで決定し、細孔構造を半定量的に予測できる相分離シミュレーションの基盤技術を確立した。

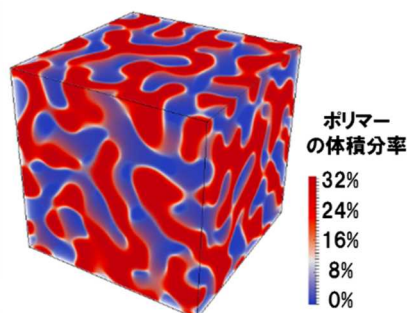


図3.2.6-22 3次元での4成分相分離シミュレーションで得られたポリマー相分離構造

2021年度は、4成分相分離シミュレーション技術をNIPS系へ拡張し、相分離シミュレーションによる分離膜の材料・プロセスの最適化を実施した。2020年度と同様に、理論モデルのNIPS系への拡張及び原理検証は京都大学、実際の分離膜を対象としたNIPS相分離シミュレーション（並列計算プログラムの作成、大規模並列計算の実施、計算結果の解析を含む）は東レが担当した。

まず、図3.2.6-23に示すように、NIPS系を模擬した計算モデルを構築し、原理検証として2次元の4成分相分離シミュレーションを実施した。NIPS系は、バルク系とは異なり、凝固浴とポリマー溶液との間に界面が存在するため、特に界面付近での溶媒、非溶媒、ポリマーの動きが相分離構造の形成に大きな影響を及ぼす。そこで本計算では、MDシミュレーションから得られた各成分の拡散定数等を用いてモデルパラメータを決定した（詳細は前節「C）マルチスケール相分離シミュレーション技術の実用化」に記載）。その結果、ポリマー溶液が凝固浴に浸った状態から計算を開始したところ、凝固浴中の貧溶媒がポリマー溶液中に流れ込み、ポリマーと貧溶媒との間で斥力が発生し、相分離が膜内部に進行していき、最終的には実験と類似した非対称な相分離構造が形成された。

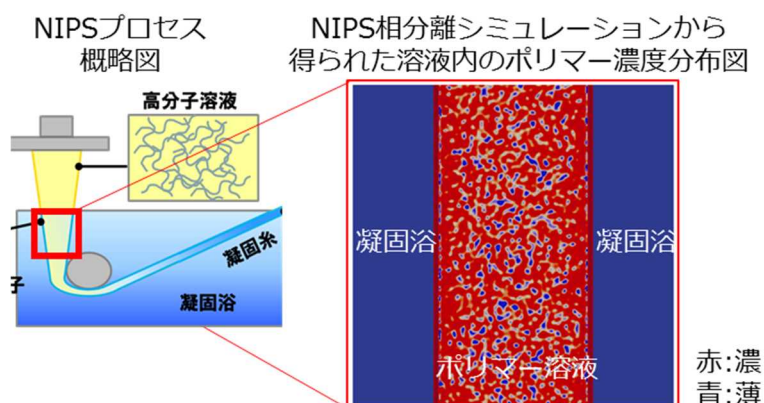


図3.2.6-23 NIPS系での4成分相分離シミュレーションの概要

しかし、2次元の計算では3次的に孔が連続した共連続構造は再現できないため、実験で得られるような膜表面の開口度や細孔分布等までは評価できない。そこで、バルク系と同様に、NIPS系に対

しても理論モデルと計算手法を3次元に拡張して、立体的な相分離構造を予測できるようにした。図3.2.6-24に3次元NIPS系で実施した4成分相分離シミュレーションの計算結果の1例を示す。相分離初期ではポリマー溶液の最表面でポリマーが濃縮し、中期では膜内部に水が浸透してスピノーダル分解が進行し、後期ではポリマーの共連続構造が形成される様子が確認できる。最終的に得られたポリマーの相分離構造に対して、膜表面と膜内部の空隙率を解析したところ、実験値と良好に一致した結果が得られ、本計算技術の汎用性が確認された。

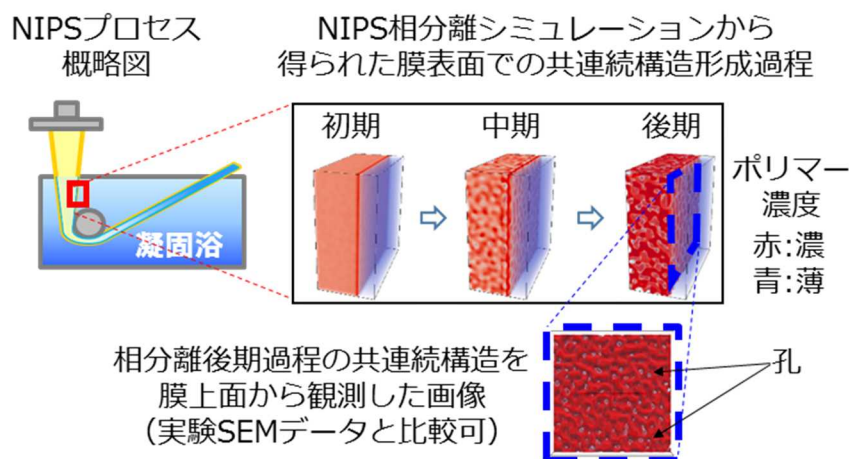


図 3.2.6-24 3次元 NIPS 系での4成分相分離シミュレーション結果

続いて、広範囲のプロセス条件下で、3次元 NIPS 系の4成分相分離シミュレーションを実施して、ガス分離膜支持体の開口向上に向けたプロセス条件絞り込みを行った。一例として、ポリマーA（主成分）とポリマーB（副成分）の比率を変化させた場合の計算結果を図3.2.6-25に示す。従来の組成比よりも、主成分ポリマーの比率を下げる、もしくは副成分ポリマーの比率を上げることで、開口率が向上する可能性が示唆された。この他のパラメータについても同様な検討を行い、合計で約240通り（ポリマー組成9通り×分子量3通り×凝固浴組成9通り）のプロセス条件に対して計算を実施した。計算結果を実験担当者にフィードバックした結果、ガス分離膜支持体の試作に要する回数と時間が大幅短縮され、短期間で目標達成に貢献した。

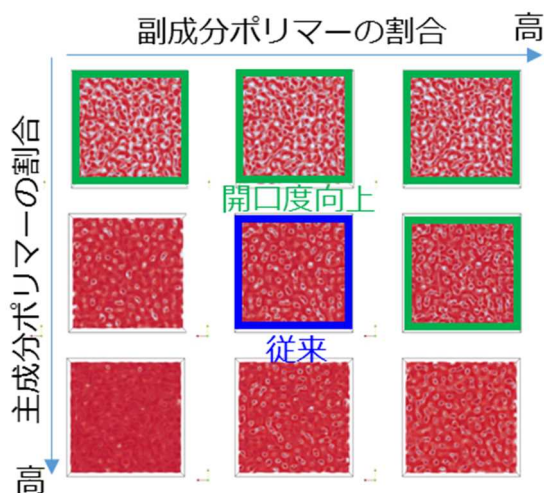


図 3.2.6-25 4成分相分離シミュレーションから得られたガス分離膜支持体の膜表面構造とポリマー組成比の関係

## (7) 成果の実用化に向けた取り組み及び見通し

### (1) 耐薬品性分離膜

#### ① 研究開発の成果を適用させるための具体的方法

廃リチウム電池からのリチウム回収用耐薬品性分離膜として、当社が製膜しモジュールに組み立てて製造、販売する。

#### ② 成果を企業化するに当たり解決すべき課題とそれらの日程

- ・ 分離膜の透水性および2価金属イオン除去率のさらなる向上：2023-25年度
- ・ 分離膜以外の部材の耐薬品性不足：2023-25年度
- ・ 生産における製膜安定性：2025-26年度
- ・ 市場規模拡大の遅れ：2026年度に判断

#### ③ 企業化する見込み、時期

2030年以降、リチウムの需要が供給を上回りリチウム不足に陥る可能性が指摘されており、2024年以降に年率20%程度の市場拡大を見込んでいる。当社としては、2024年度に試験販売を開始、2026年度からの本格事業化を計画している。

#### ④ 企業化の規模

本格事業化する2026年度に売上高2,760百万円、市場が拡大する2028年度には売上高8,000百万円を見込む。

#### ⑤ 類似品との優劣

一般的なイオン分離膜はポリアミド系のため、強酸・強アルカリ・強酸化条件下では耐久性が不十分であると考えられる。当社開発品はポリマーを抜本的に変更するものであり、耐久性の点で他社に比べて大幅な優位性を有する。

### (2) ガス分離膜用支持体

#### ① 研究開発の成果を適用させるための具体的方法

様々な用途のガス分離膜用支持体として東レ株式会社での利用、あるいは支持体そのものを他のガス分離膜メーカーへ販売する。

#### ② 成果を企業化するに当たり解決すべき課題とそれらの日程

- ・ 設計段階における品質安定化要因の把握：2023-24年度
- ・ 大量生産における品質安定性制御要因の把握：2024-25年度
- ・ 市場規模拡大の遅れ：2025年度に判断

#### ③ 企業化する見込み、時期

ガス分離プロセスの市場は、水素社会への期待や二酸化炭素分離のニーズ上昇に伴って国内・海外共に拡大しており、省エネ型プロセスへの置き換えの潜在的需要は年間数百億円の上ると推定される。当社としては、炭素繊維生産設備の転用による早期生産化により、2023年度に試験販売を開始、2025年度からの本格事業化を計画している。

#### ④ 企業化の規模

本格事業化する2025年度に売上高560百万円、市場が拡大する2030年前後には売上高10,000百万円を見込む。

#### ⑤ 類似品との優劣

従来法の蒸留法・吸収法は、加熱・冷却による相変化を伴うプロセスのためエネルギーコストが

大きいのに対して、本提案の支持体を活用した膜分離法は相変化を必要としないため、分離プロセスとして競争力を持つと予測する。

### 3.2.7 研究開発項目[4] 高速通信用次世代対応フレキシブル誘電材料の研究開発

#### (1) 事業目的

昨今の 5G 化への流れに代表されるように、スマートフォンやその他の各種モバイル等端末では、更なる大容量データの高速処理への要求が加速的に進むことが確実視されていることから、本事業にて更に高度な高周波対応を可能とする革新的な材料設計技術を構築し、他国に先駆けて短期間で高速通信用次世代対応フレキシブル誘電材料を開発し実用化を目指す。

#### (2) 事業目標

超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト（以下、超超プロジェクトと言う。）で第 1 期までに開発されたシミュレーション技術、AI 応用技術、データ群などの計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術を活用し、数 10~100 GHz の高周波領域に対応する低誘電率・低誘電正接と軽薄化を両立させたポリマー誘電材料を設計・開発する。また、寸法安定性、耐熱性、銅箔との接着性などの要求基礎特性と低誘電率・低誘電正接との機能相反性を最適化するためのポリマー材料の一次～高次構造（極性基、分子剛直性、分子間パッキング性等）やナノ空孔（自由体積）の制御技術を確立する。最終的には、現行材料対比で誘電正接 1/10 かつ誘電層膜厚 1/3 を満たす高速通信用次世代対応フレキシブル誘電材料の早期製品化を目指す。超超プロジェクトで開発された計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術と当社保有のデータを活用した短期集中的な合理的試行錯誤による材料設計から 1 回の試作にて製品化までつなげる最短開発スキームを実現化し、ラボ試作を含め通常 20 回以上実施する試作回数を 1 回まで削減することで、試作回数が 1/20 となる有用性を実証する。

#### (3) 事業による効果

本事業での目標が達成できれば、革新的な機能を有する製品を、当社保有の既存プロセスを活用して安価に大量生産することが可能となる。本事業を通じて高速通信用次世代対応フレキシブル誘電材料の市場規模を健全性を維持しながら拡大させ、素材産業の国際競争力強化の一翼を担い、我が国の経済発展に貢献したい。

#### (4) 研究開発の実績

超超プロジェクトで開発されたシミュレータ（誘電関数の計算：誘電率等の外場応答物性シミュレータ[拡張 OpenMX]、分子構造計算：汎用インターフェース[拡張 OCTA]）を活用して検討する高分子系のモノマー選定スクリーニングの基礎となる計算データの蓄積を 2020 年度第 1 四半期末まで継続的に実施し、計算データ群（データセット）を逐次アップデート。これに対して当社にて独自に開発している機械学習システムも活用して最小限の計算データから効率的に最適材料系を探索する学習回帰モデルを作成。5G の帯域（数十 GHz~100 GHz 未満）を含む広帯域で安定して相対的に最も低誘電正接となり得るポリイミド系の一つの最適解と考えられる材料系について、低誘電化が期待できる材料系に関する新規モノマーを見出し、その合成に成功。この新規モノマーを用いた製品を試作し評価を実施したところ、同様の材料系でトップレベルの低誘電性を有する現行検討品より更に 20%もの低誘電正接化が確認された。2021 年度末に、この新規モノマーについて特許出願を行った。

- |             |                               |
|-------------|-------------------------------|
| ① 最適材料系の検討  | 2020 年度第 1 四半期に新たな最適材料系を見出し完了 |
| ② 既存材料の試験   | 2020 年度第 2 四半期内に予定通り終了        |
| ③ 最適材料の設計   | 2020 年度第 4 四半期に最適材料の設計完了      |
| ④ プロセス条件の検討 | 2021 年度第 2 四半期内に予定通り完了        |

- |           |                        |
|-----------|------------------------|
| ⑤ 試作製品の製作 | 2021 年度第 3 四半期内に予定通り完了 |
| ⑥ 試作製品の評価 | 2022 年 2 月内に予定通り完了     |

#### (5) 研究開発の成果

事業項目 1 として実施した、超超プロジェクトで開発されたシミュレータを活用した「最適材料系の検討」にて、5Gの帯域（数十GHz～100 GHz未満）を含む広帯域で安定して相対的に最も低誘電正接となるポリイミド系の一つの最適解と思われる材料系を数ヵ月という短期間で見出すことができ、低誘電化が期待できる材料系に関する新規モノマーも見出し、その合成に成功。この新規モノマーを用いた製品を試作し評価を実施したところ、同様の材料系でトップレベルの低誘電性を有する現行検討品より更に20%もの低誘電正接化が確認され、目標を達成した。本研究開発にて、超超プロジェクトで開発された計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術と当社保有のデータを活用した短期集中的な合理的試行錯誤による材料設計から1回の試作にて製品化までつなげる最短開発スキームを実現し、ラボ試作を含め通常20回以上実施する試作回数を1回まで削減することで、試作回数が1/20となる有用性を実証することができた。このこともあり、超超プロジェクトの成果を他の企業でも事業に活用する動きを活発化することにも貢献できたと思う。

本事業での目標が達成できたので、革新的な機能を有する製品を、当社保有の既存プロセスを活用して安価に大量生産することが可能となる。本事業を通じて高速通信用次世代対応フレキシブル誘電材料の市場規模を健全性を維持しながら拡大させ、素材産業の国際競争力強化の一翼を担い、我が国の経済発展への貢献が期待できる。

#### (6) 成果の実用化に向けた取り組み及び見通し

本助成事業で得られる成果を活用し、高周波対応フレキシブル銅張積層板（FCCL）の実用化を目指す。高周波領域での実用化の障害となっている伝送ロスの低減メカニズム、設計思想を明らかにする事により、従来の試行錯誤的な研究開発から脱却し、高速かつ革新的な構造設計技術をもとに研究開発期間の大幅な短縮化を果たし、早期実用化へ繋げる。

## 「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。

#### 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、これまでの“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。

#### 【助成事業】

研究開発項目④基盤技術等を活用した機能性材料の開発

本研究開発は、第1期までに開発された計算機支援次世代ナノ構造設計基盤技術等を用いて、企業における製品開発を支援し、実用化を加速するための助成事業（助成率：1／2または2／3）とする。

## 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 三宅 政美を任命して、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 村山 宣光、及びサブプロジェクトリーダー 松本 裕治、濱川 聡）を選定し、各実施者はプロジェクトリーダー及びサブ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等の指揮の下、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、サブ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

2016年度から2022年度の7年間

(2016年度から2018年度までを第1期、2019年度から2022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2018年度、事後評価を第2期終了時期の2022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 データマネジメント

2019年度に採択した研究開発項目①の一部は「NEDOプロジェクトにおけるデータマネジメント基本方針」（委託者指定データを指定しない場合）を適用する。

#### ⑥ 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十五条第一号の二、三号及び九号に基づき実施する。

## 6. 基本計画の改訂履歴

(1) 2016年 3月、制定

- (2) 2017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
- (3) 2019年 2月、研究開発項目④として助成事業の追加等により、文言を追記等
- (4) 2019年 10月、プロジェクトマネジャーの変更、サブプロジェクトリーダーの追加、一部元号から西暦への変更
- (5) 2022年 3月、研究開発項目①の期間延長、及び2021年6月のサブプロジェクトリーダー追加の反映、5. その他重要事項の一部修正

## (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。第2期以降は、経済産業省の Connected Industries 政策を踏まえ、特許・論文等のすでに公開されている材料データや、素材企業が保有する材料データをAIが機械学習できる状態（構造化）にするためのツール（構造化AIツール）開発を実施する。

これにより、これまでに実施してきたシミュレータ開発によるシミュレーションデータ、実験データ創出に加え、公知材料データをAI学習に活用することにより、AIを活用した材料開発の取組を一層加速する。

### 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、論文・特許等の公開データに対する、材料データの構造化 AI ツールのプロトタイプを作成するとともに、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 2. 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 2. 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 2. 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 2. 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 2. 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 2. 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、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。

### 研究開発項目④基盤技術等を活用した機能性材料の開発

#### 1. 研究開発の必要性

日本の素材産業の優位性を確保する観点から、早期に高付加価値な材料を市場に提供することがきわめて重要である。そこで、研究開発項目①の第1期で開発されたシミュレーション手法を個社での機能性材料開発へ適用し、実用化の加速を実証する必要がある。

#### 2. 研究開発の具体的内容

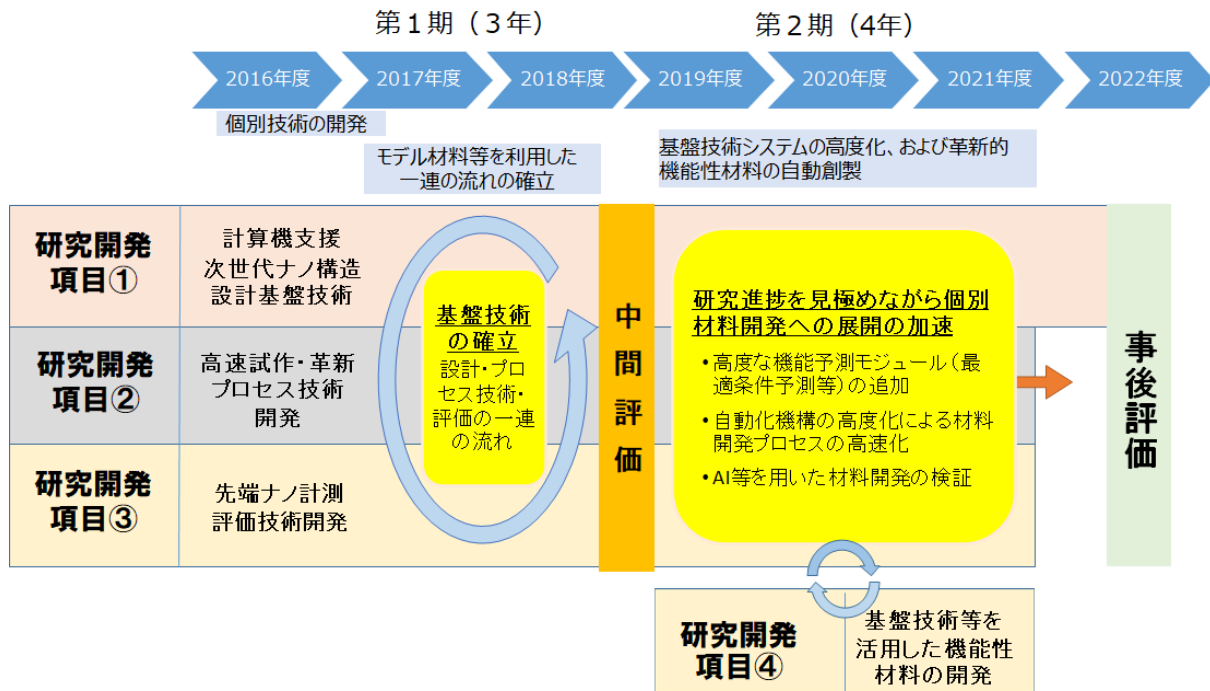
第1期の委託事業で中間目標を達成したシミュレーション手法（研究開発項目① 2. 1）～3)) をもとに、試作回数・試作期間 1/20 を可能とする課題を設定して実施する。

#### 3. 達成目標

##### 【最終目標】

第1期で確立されたシミュレーション手法を個社での機能性材料開発に適用し、その有用性（試作回数・試作期間 1/20）を実証する。

(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、非鉄金属課、  
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。

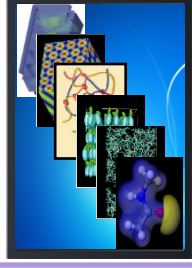
#### 条件 (対象者、対象行為、補助率等)



### 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)



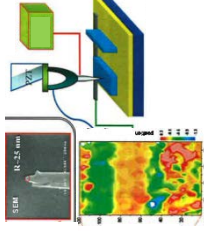
シミュレーション設計

#### 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



### 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)。

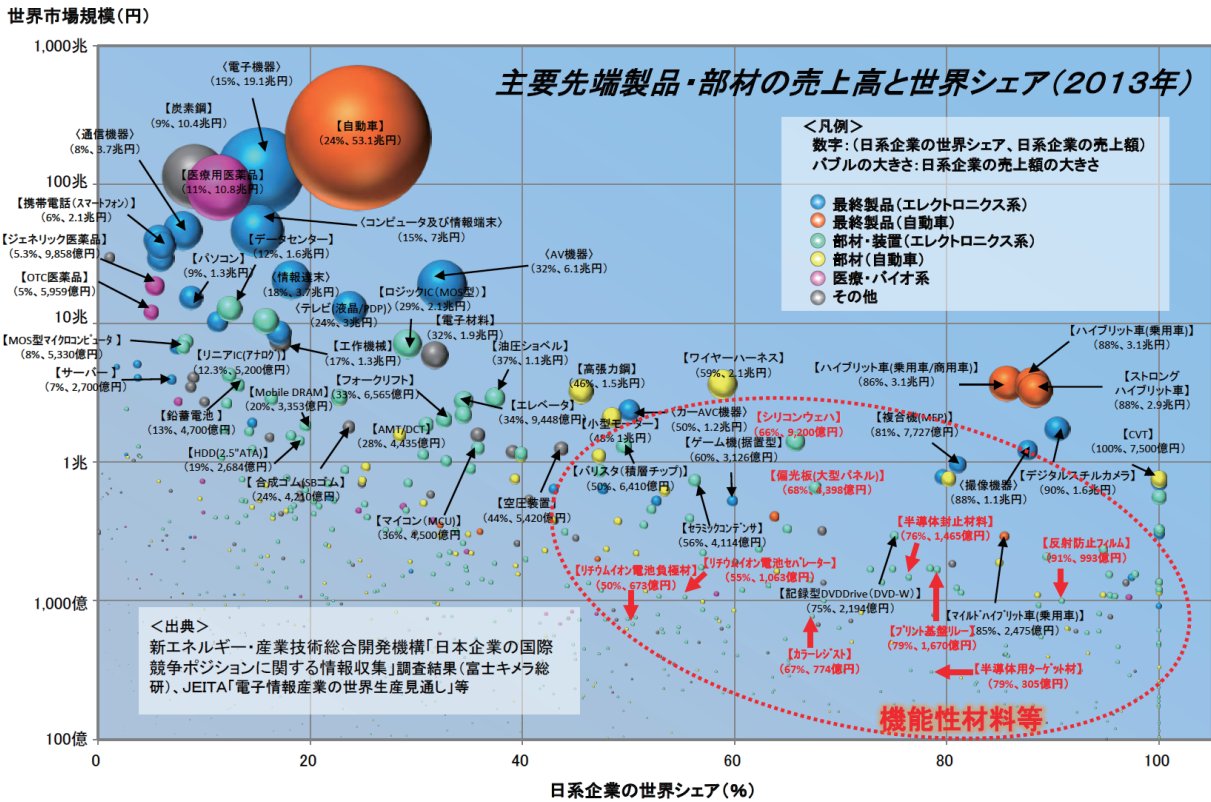


図1 主要製品・部材の市場規模と日本企業の世界シェア (2013年)  
 出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集 (NEDO, 2015)

# 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。

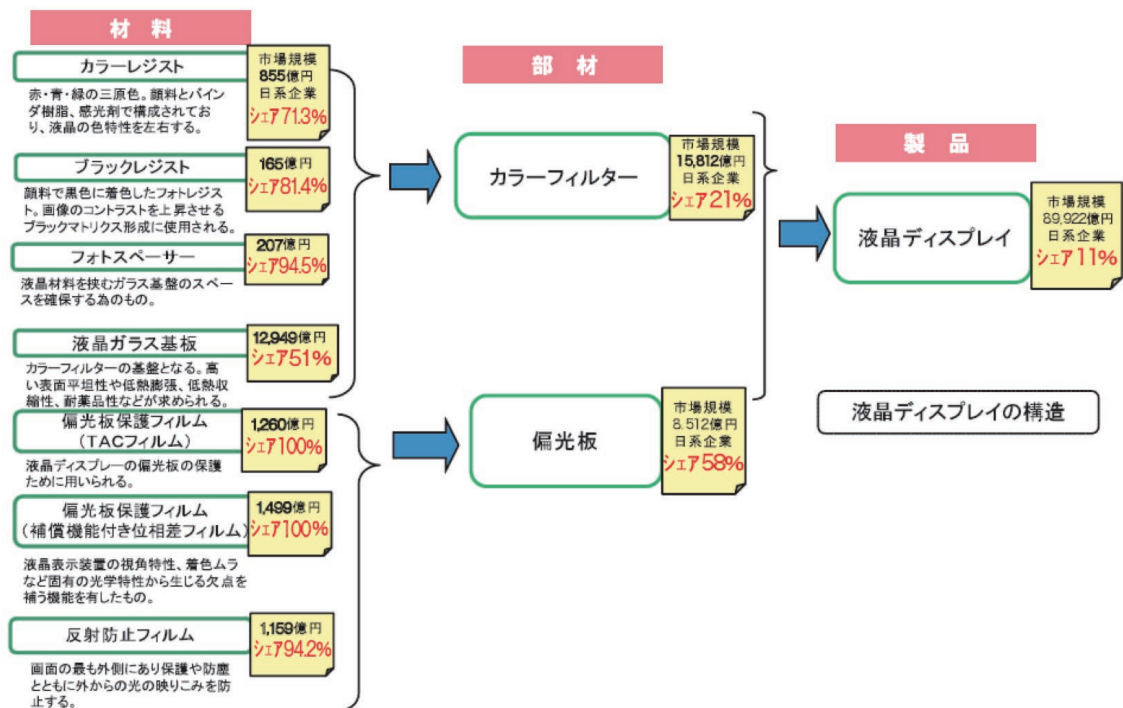


図2 液晶ディスプレイの例  
出所: ものづくり白書(経済産業省, 2012)

# 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)。

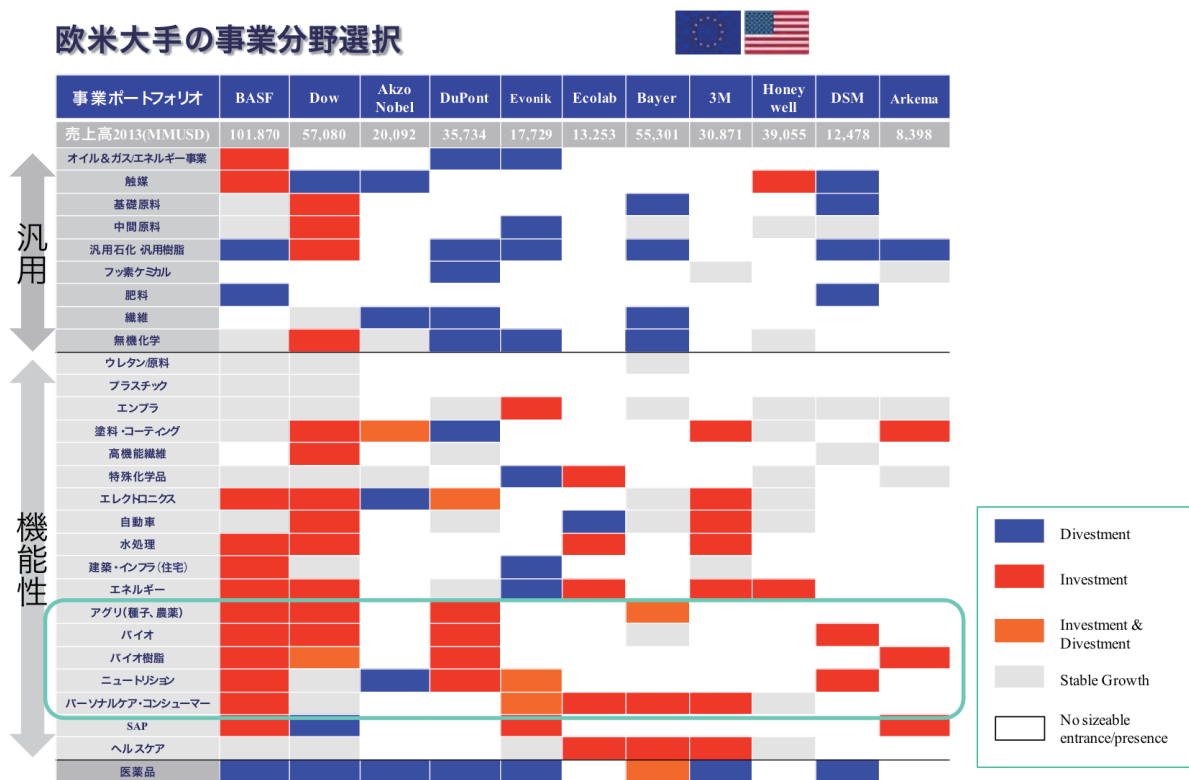


図3 欧米大手化学企業の事業分野選択事例  
出所: 各社公表資料よりみずほ銀行産業調査部作成(2015年1月時点調査)

# 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)。



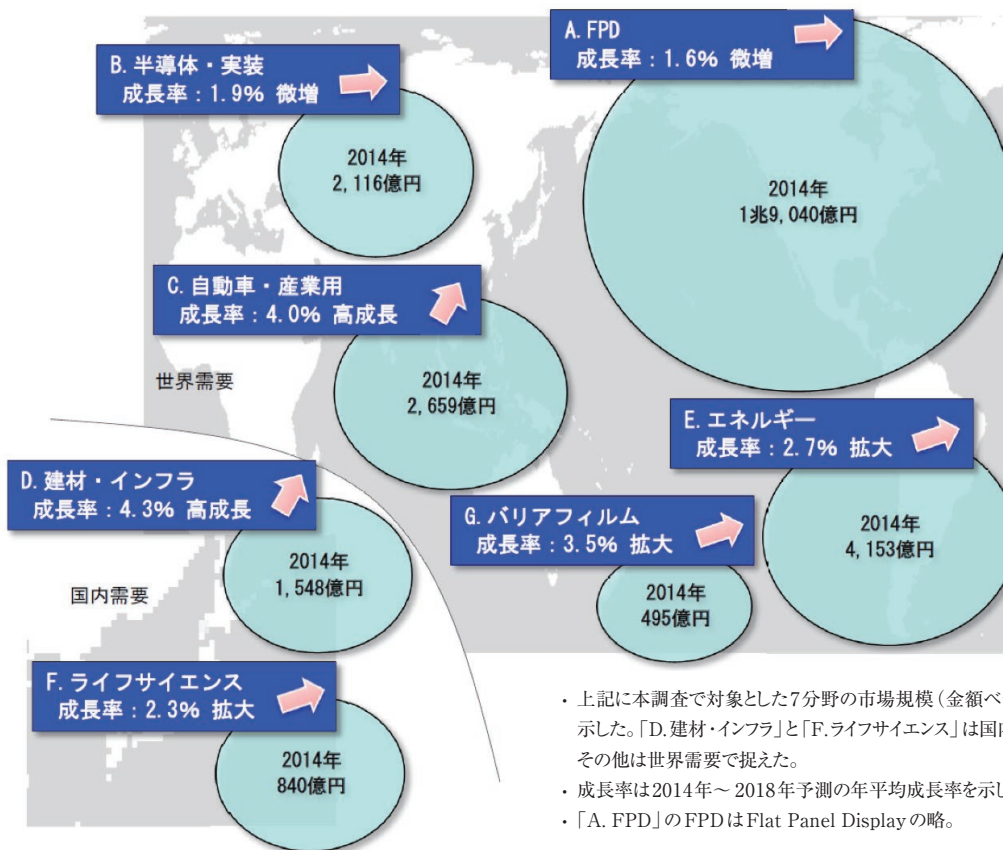
図4 国内大手化学企業の事業分野選択事例  
 出所: 各社公表資料よりみずほ銀行産業調査部作成(2015年1月時点調査)

# 機能性材料分野の技術戦略策定に向けて

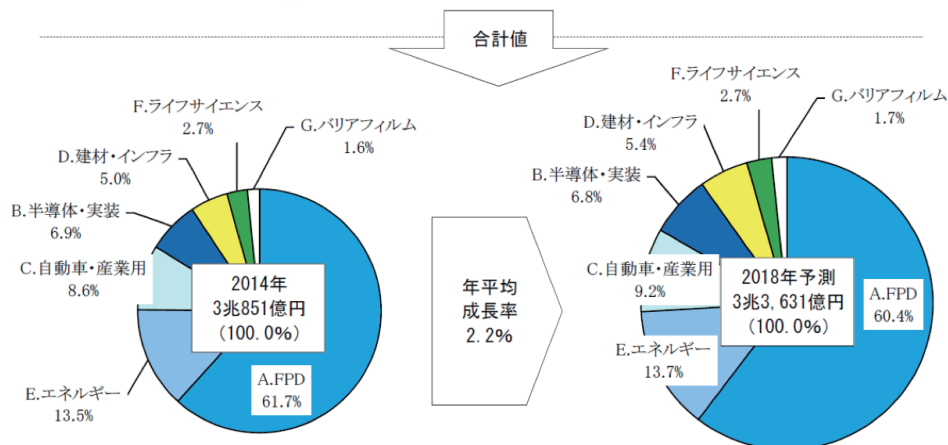
## 2-2 機能性フィルムの市場動向

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。

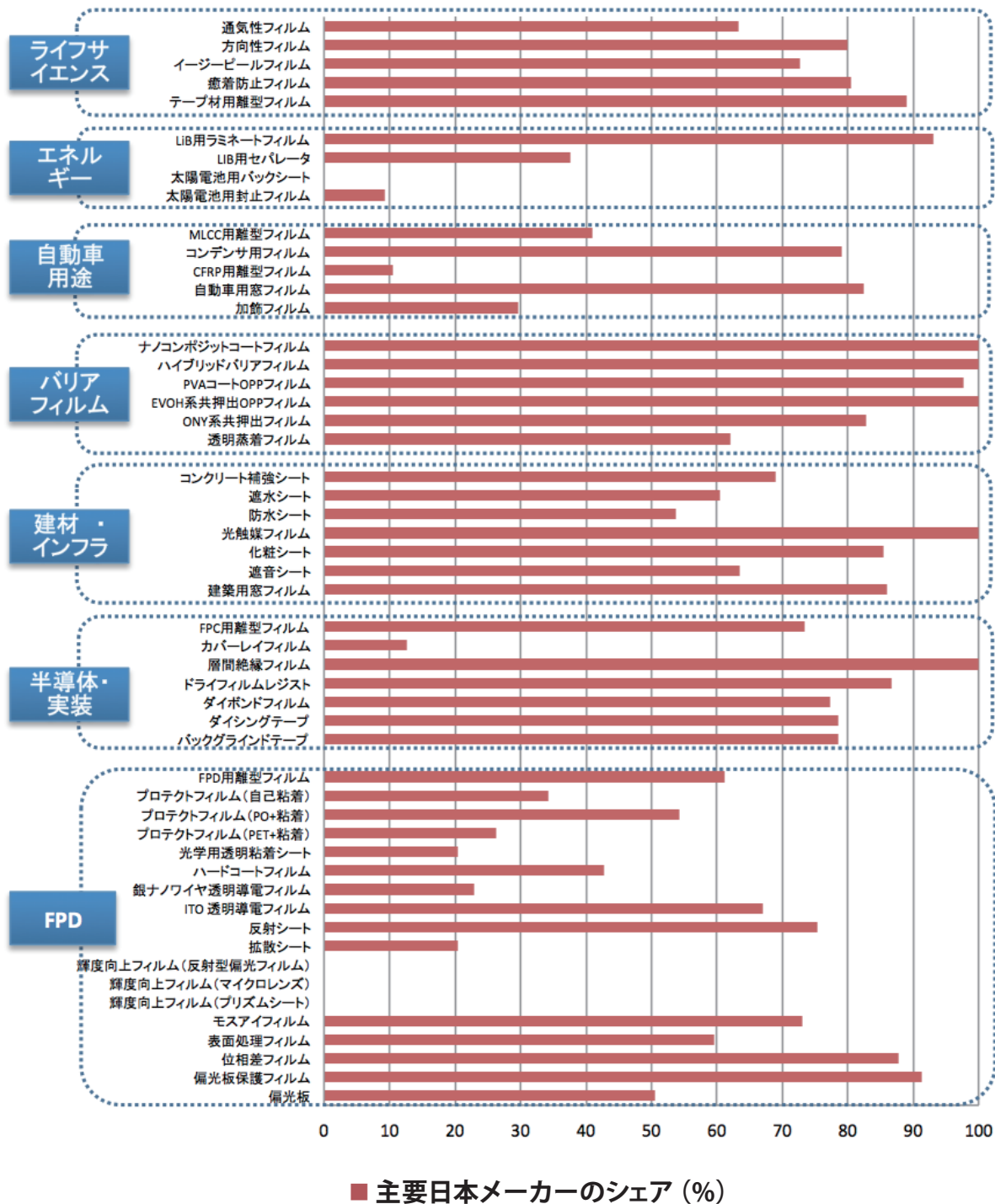


図6 機能性フィルム各品種の主要日本メーカーのシェア

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)。

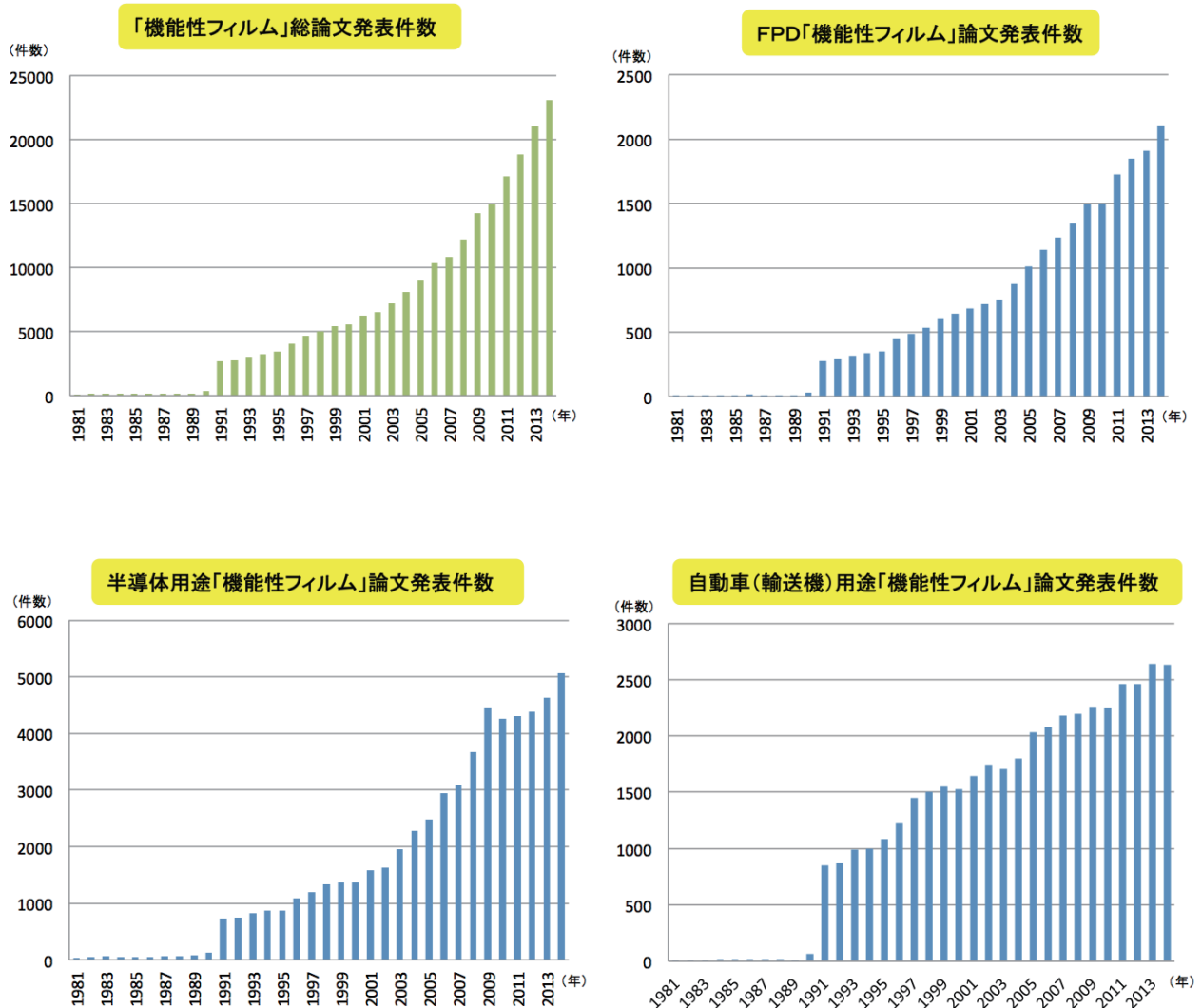


図7-1 機能性フィルムに関する論文数の年推移

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

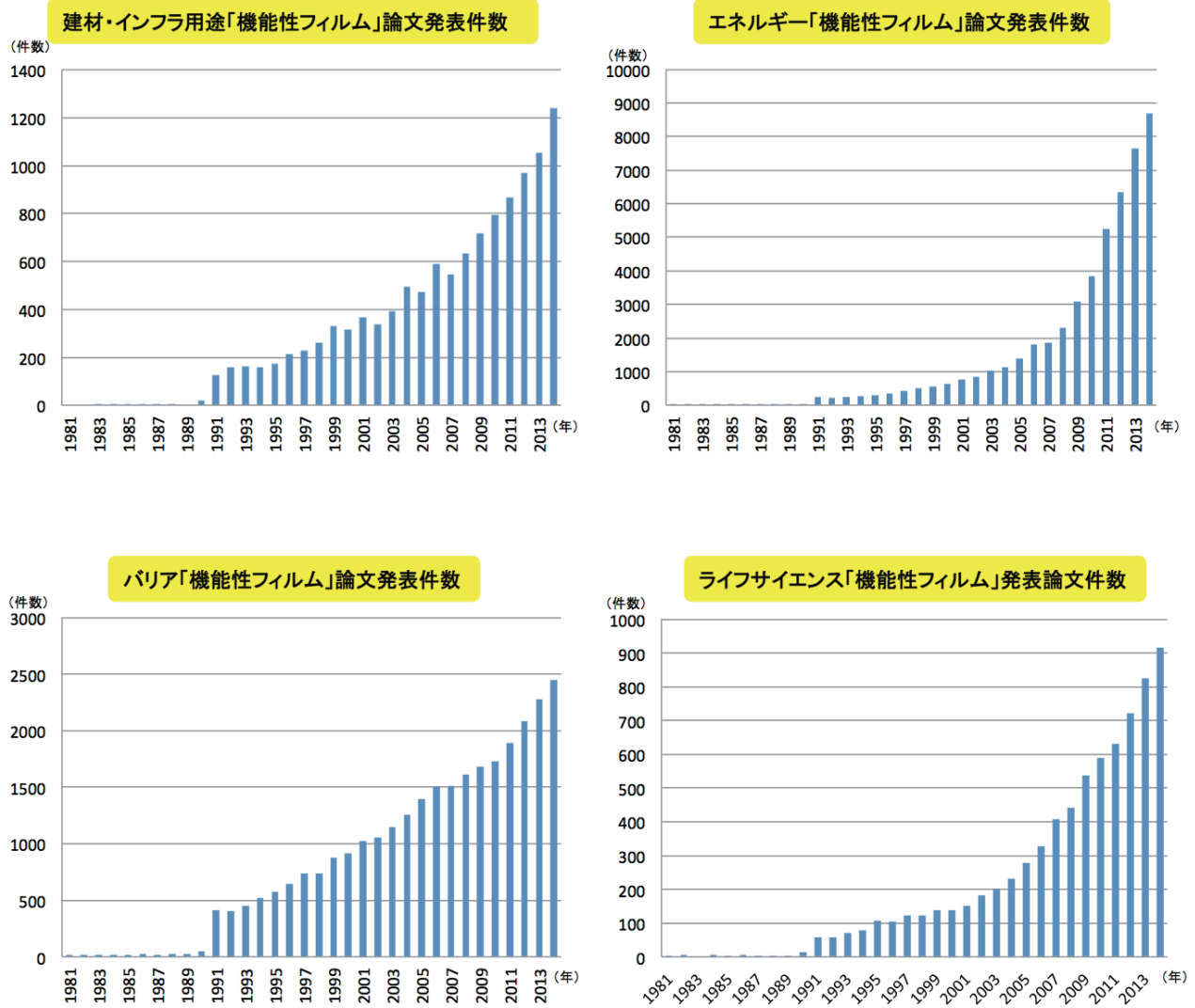


図7-2 機能性フィルムに関連する論文数の年推移

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)。

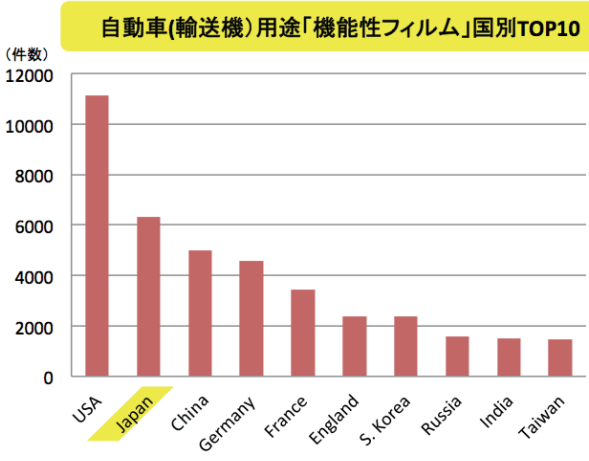
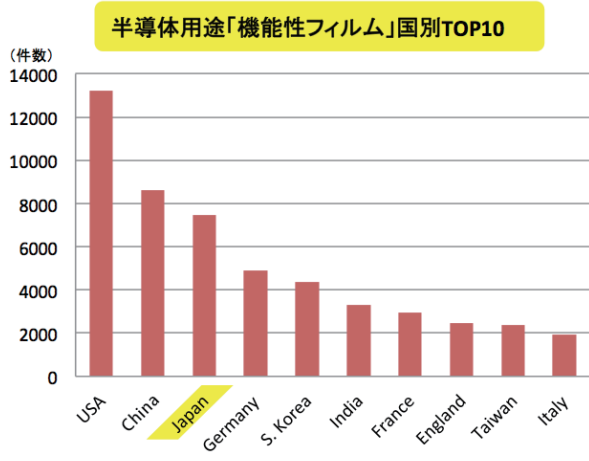
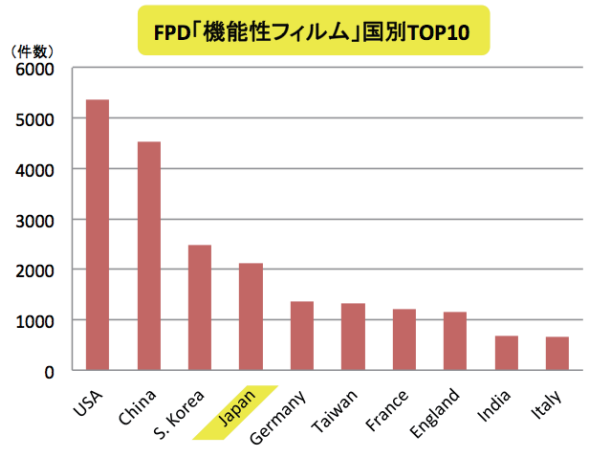
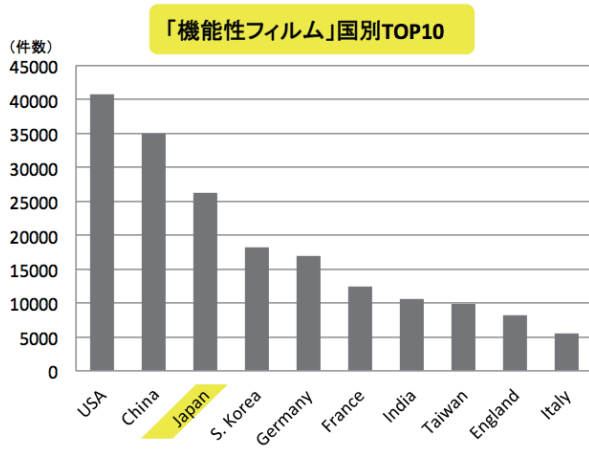


図8-1 機能性フィルムの国別発表論文数(上位10ヶ国)

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

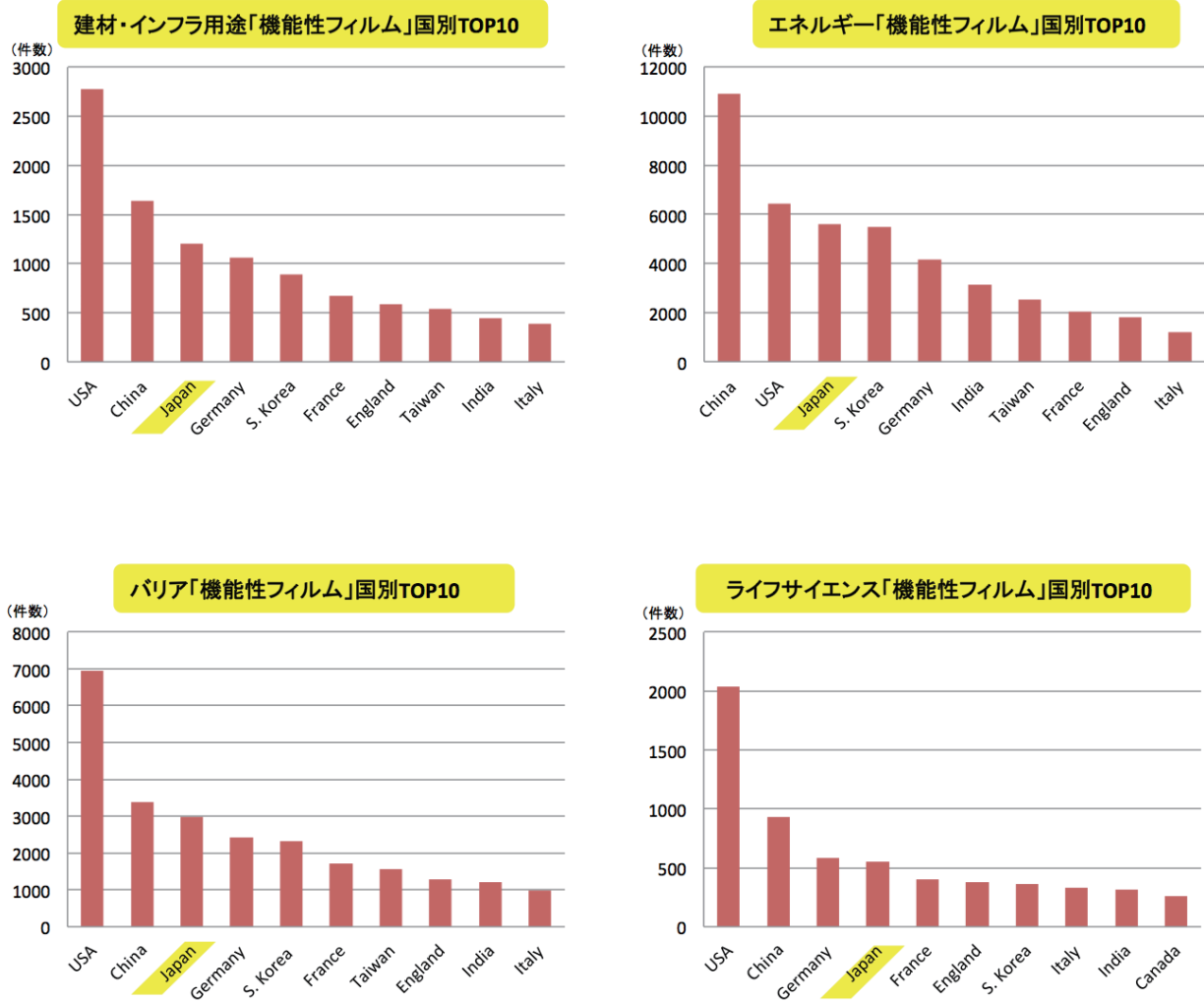


図 8-2 機能性フィルムの国別発表論文数 (上位10ヶ国)

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。

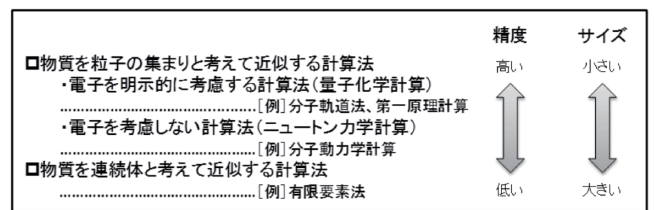


図10 計算手法の分類と特徴  
出所：NEDO 技術戦略研究センター作成（2015）

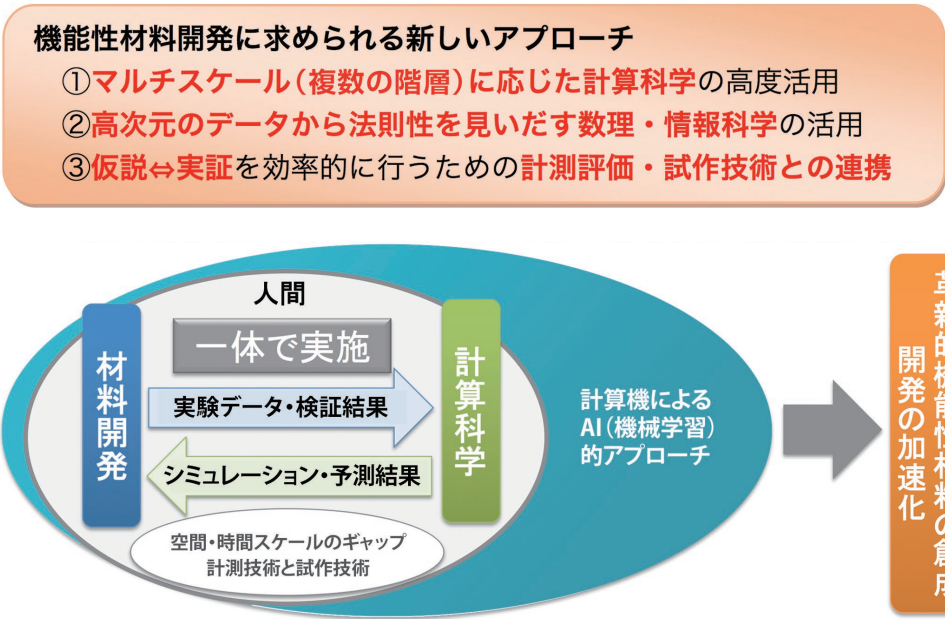


図9 機能性材料開発に求められる新たなアプローチ  
出所：NEDO 技術戦略研究センター作成（2015）

# 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

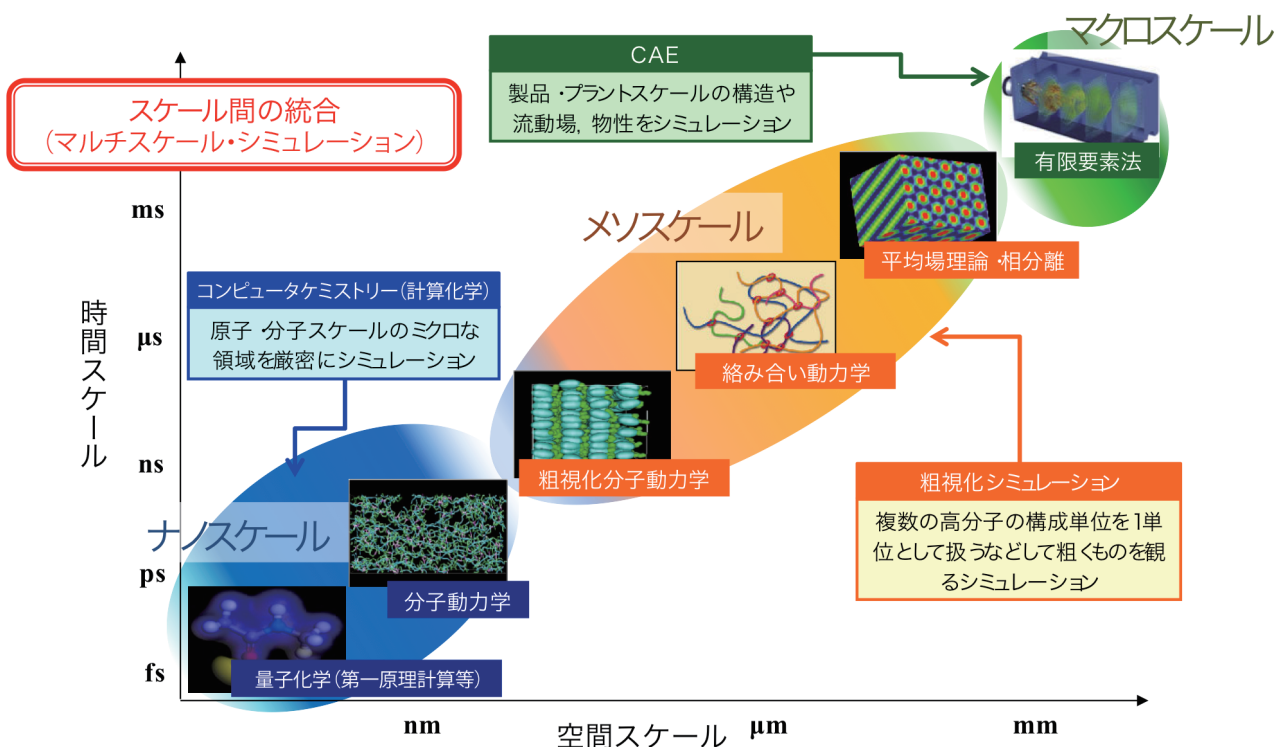


図11 高分子構造の各階層と計算手法の対応

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

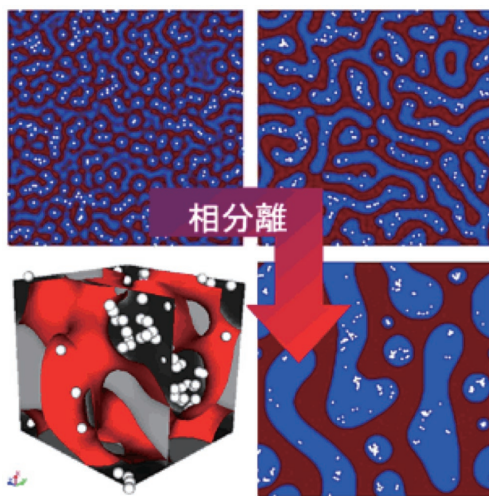


図12 粗視化シミュレーション事例

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）。

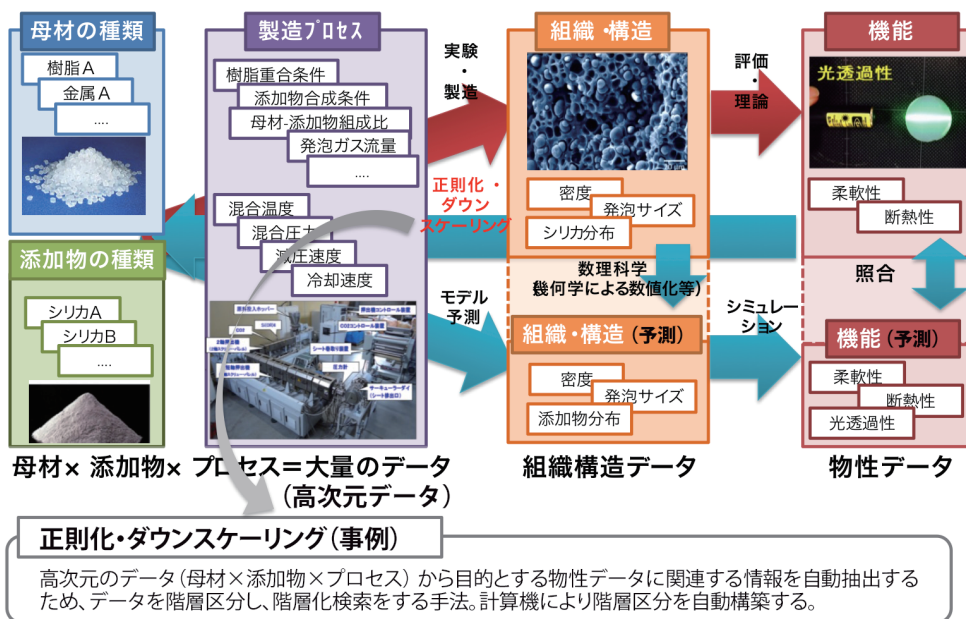
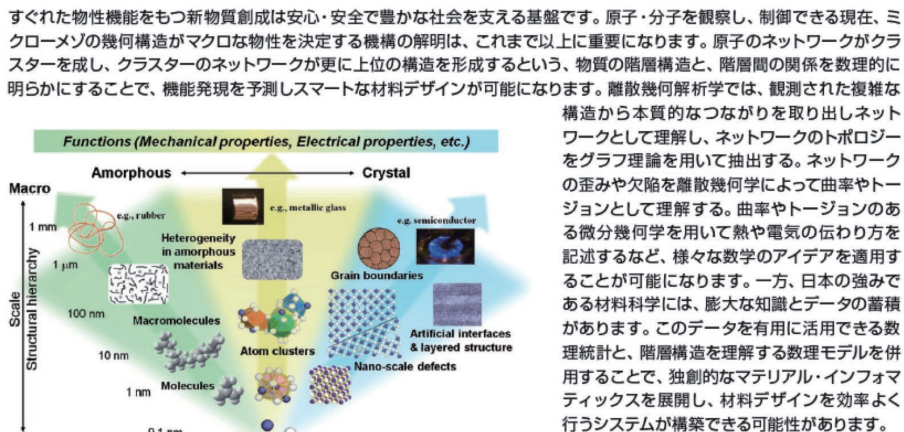


図14 素材合成・製造プロセス・構造・機能との概念図  
 出所：NEDO 技術戦略研究センター作成（2015）

## 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)。

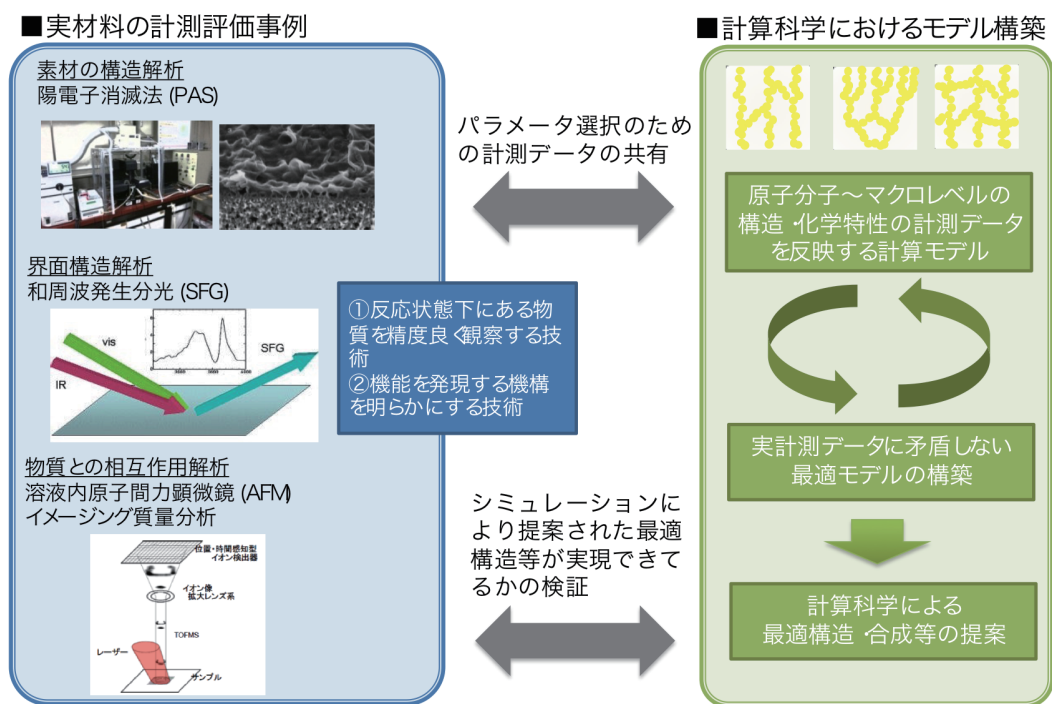


図16 計測・評価技術と計算科学との連携イメージ

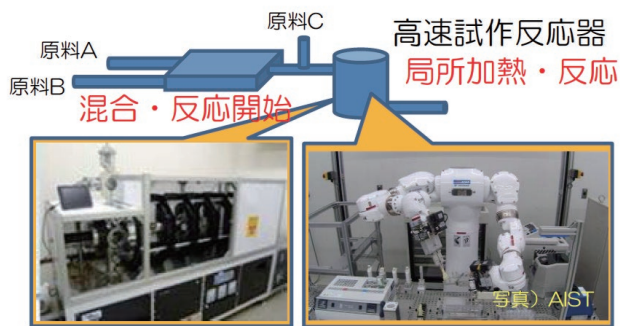
出所：産業競争力懇談会 2014年度 プロジェクト 最終報告 革新的高機能分離素材の開発（分離・除去・吸着）（2015）、東北大学大学院理学研究科 森田明弘教授発表資料（2015）等を参考に NEDO 技術戦略研究センター作成（2015）

# 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

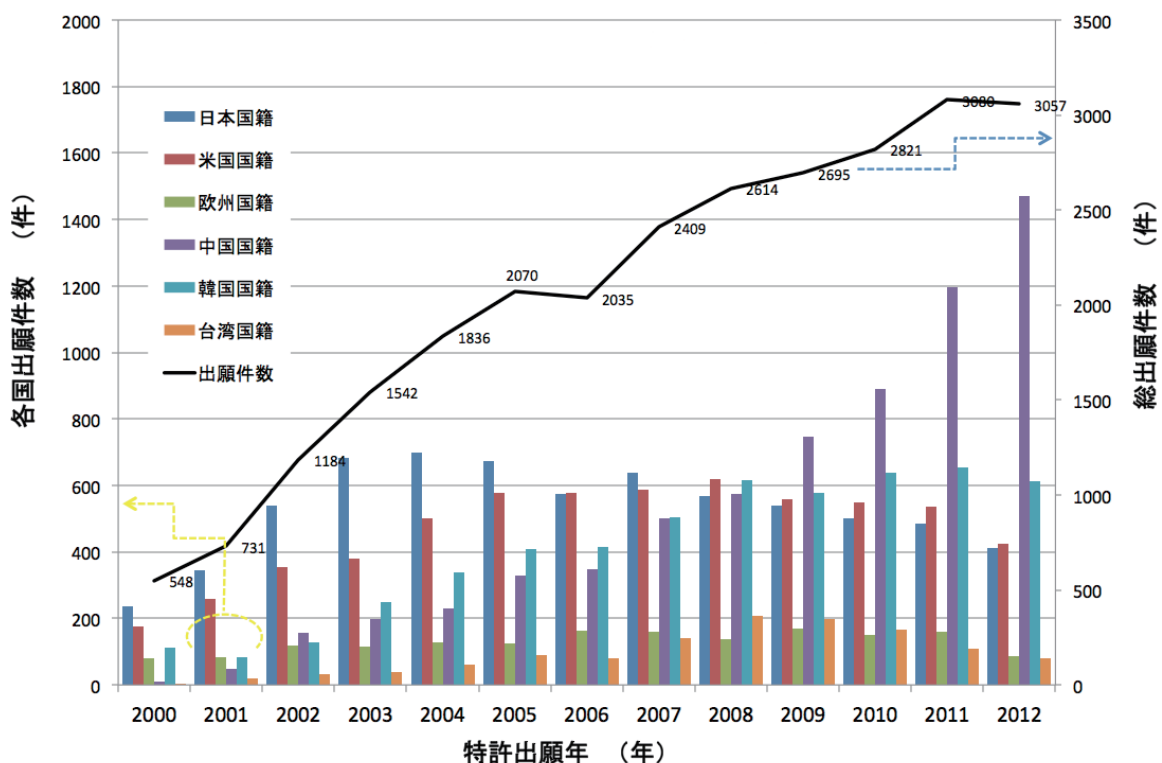


図1 ナノカーボンに関する出願人国籍別の特許出願件数推移

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。

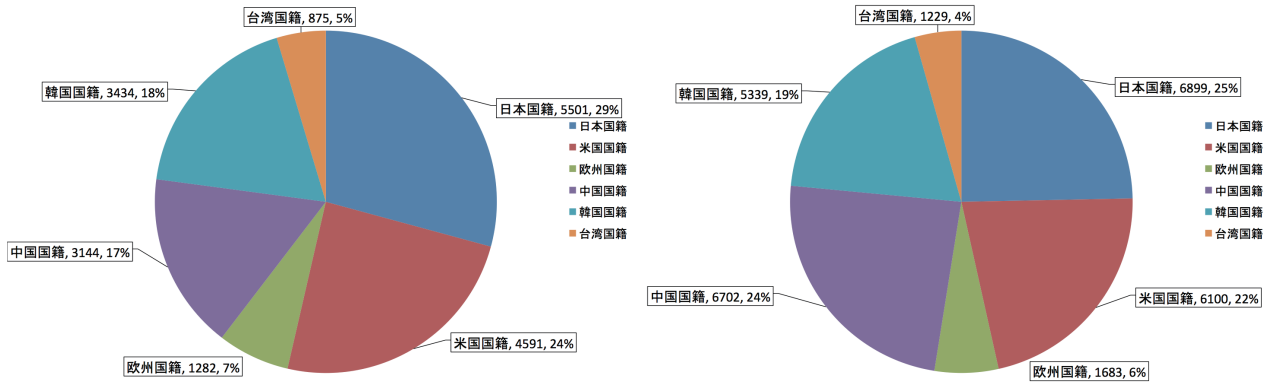


図2 ナノカーボンに関する出願人国籍別の特許出願件数・比率 (左図:2000～2009年、右図:2000～2012年)  
出所:ナノカーボンに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

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)

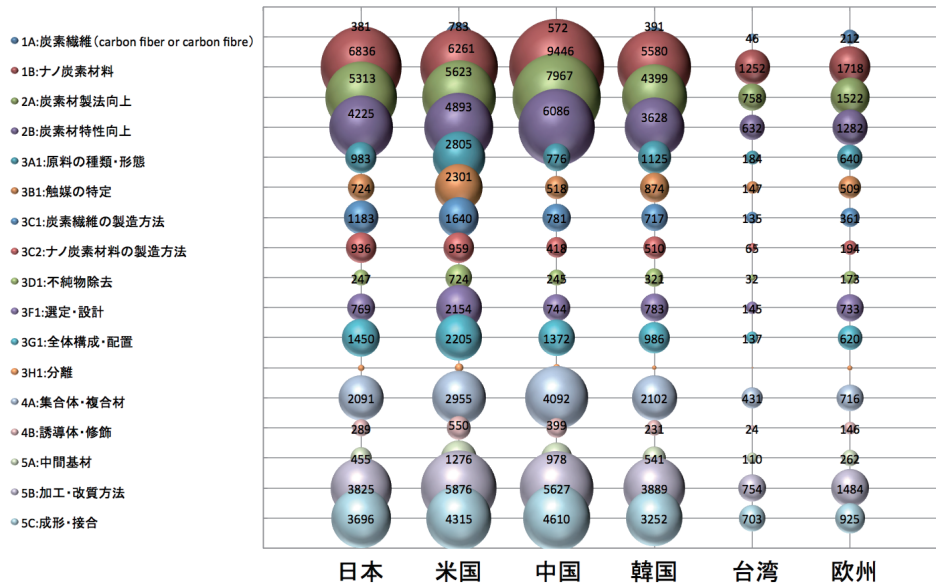


図3 ナノカーボンに関する特許出願における出願人国籍別及び技術区分別の出願件数 (2000～2012年)

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)

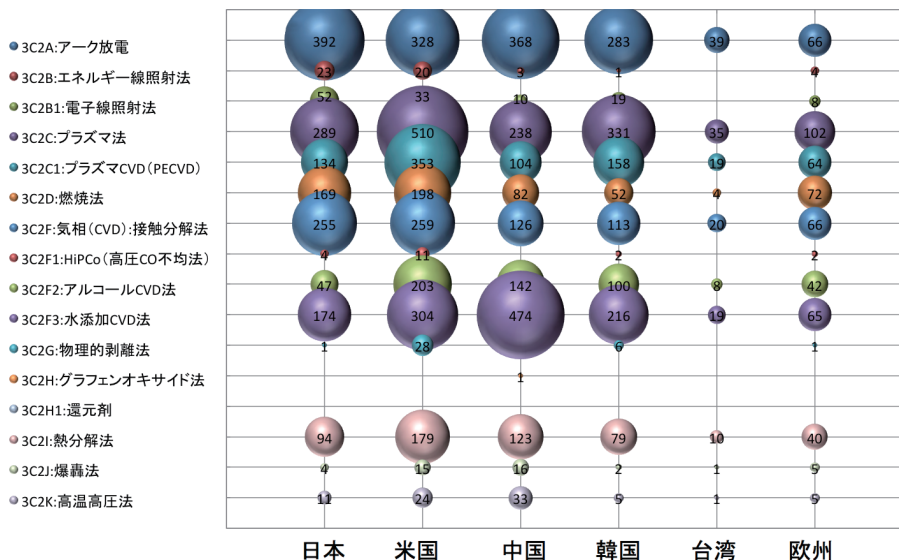


図4 ナノカーボンに関する特許出願における出願人国籍別及び製造方法別の出願件数 (2000～2012年)

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）

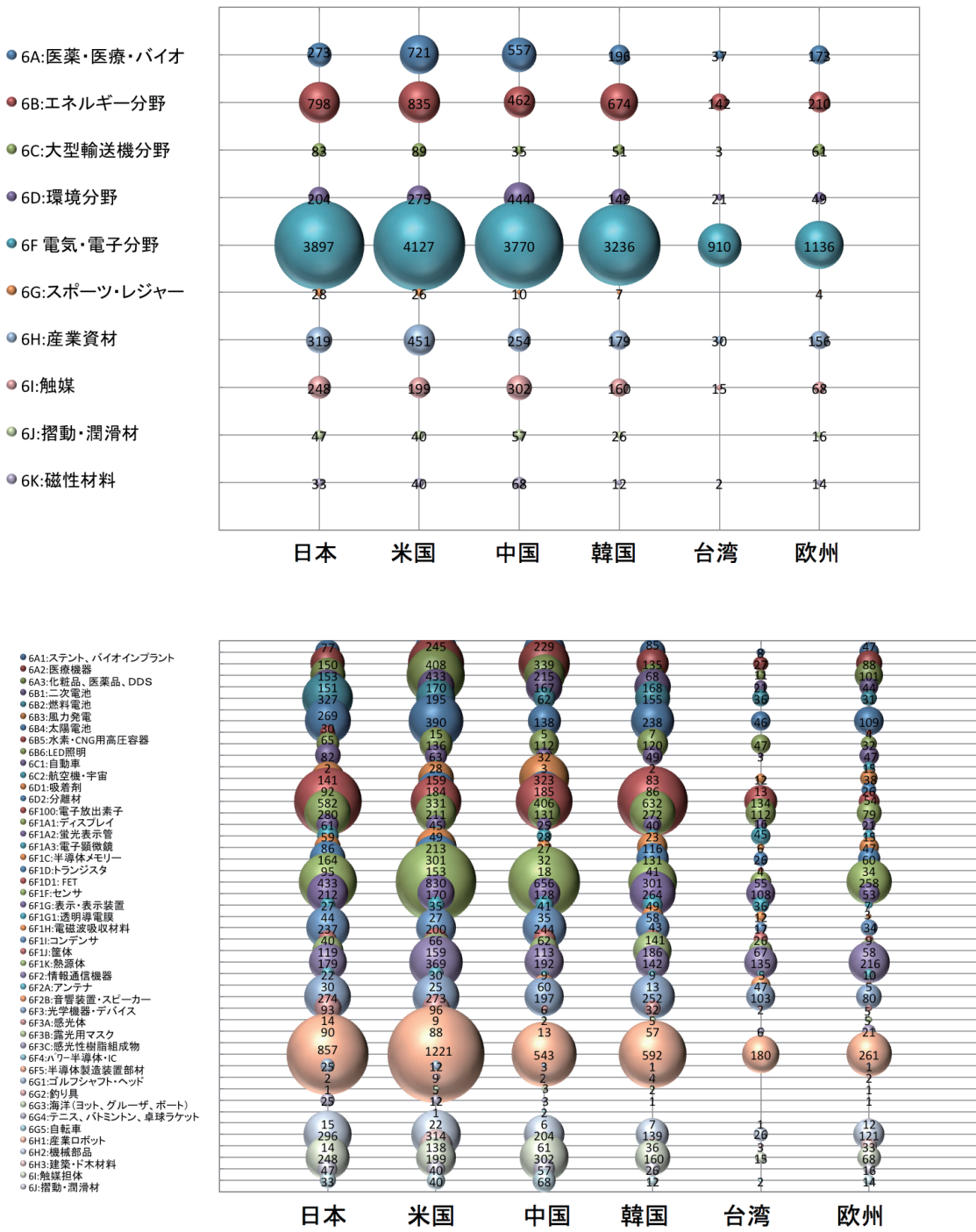


図5 ナノカーボンに関する特許出願における出願人国籍別及び応用分野別の出願件数（上図：中分類、下図：小分類）（2000～2012年）  
 出所：ナノカーボンに関する出願状況調査（NEDO, 2014）

# 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)

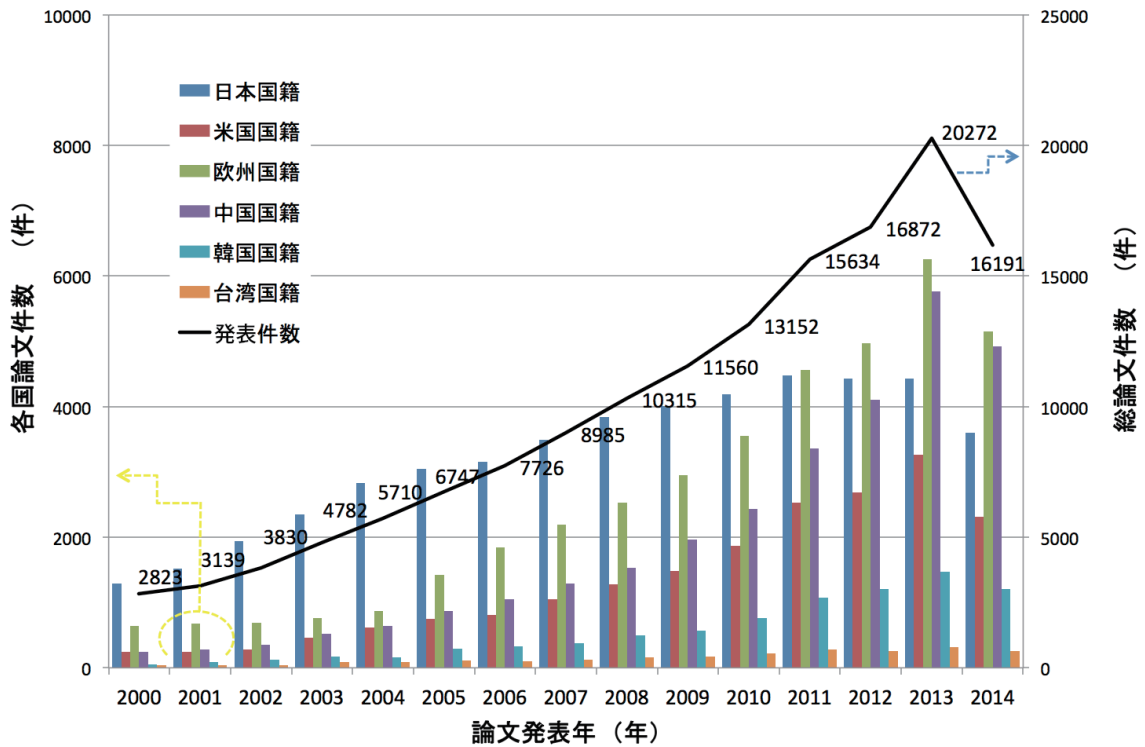


図6 ナノカーボンに関する発表者国籍別の論文発表件数推移 出所: ナノカーボンに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

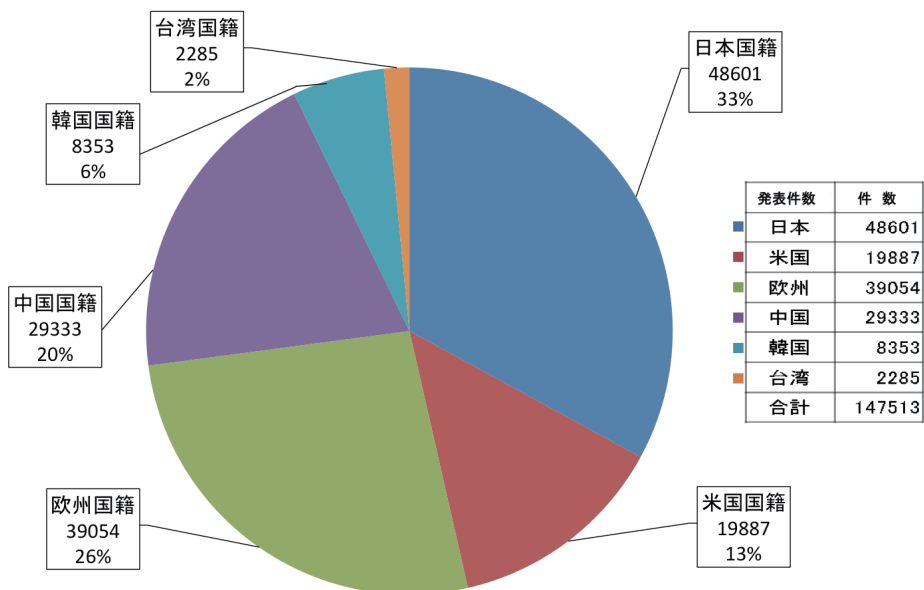


図7 ナノカーボンに関する発表者国籍別の論文発表件数・比率 (2000～2014年)

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)

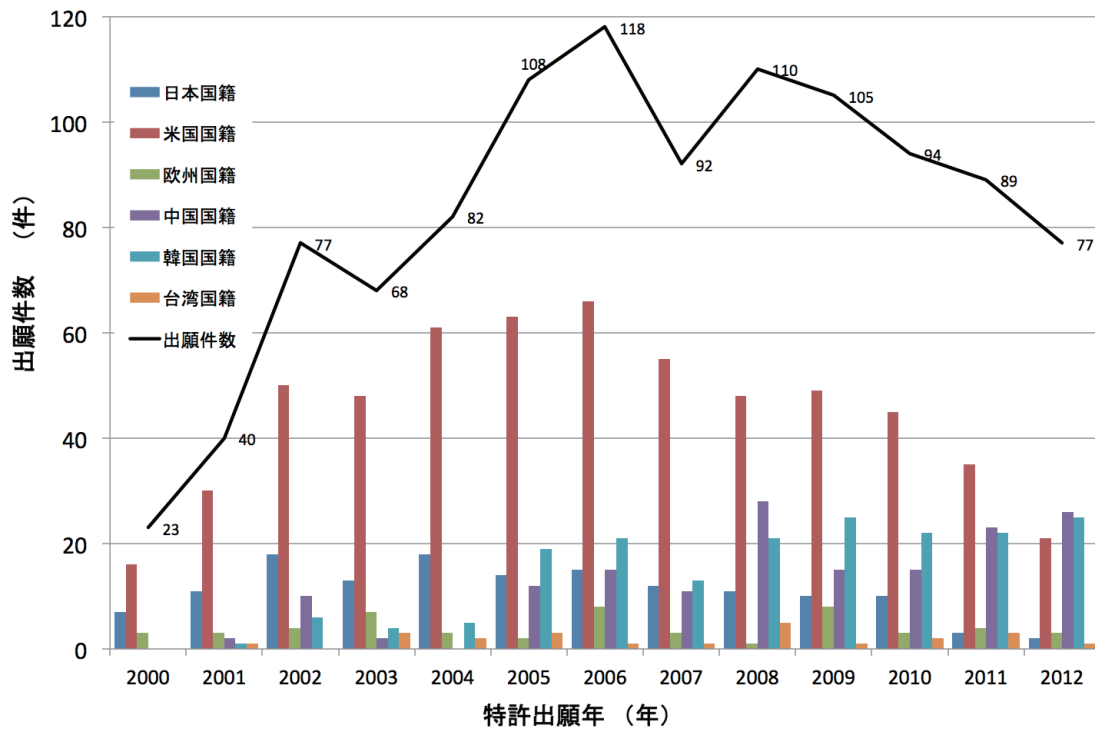


図8 単層CNTに関する出願人国籍別の特許出願件数推移

出所: 単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

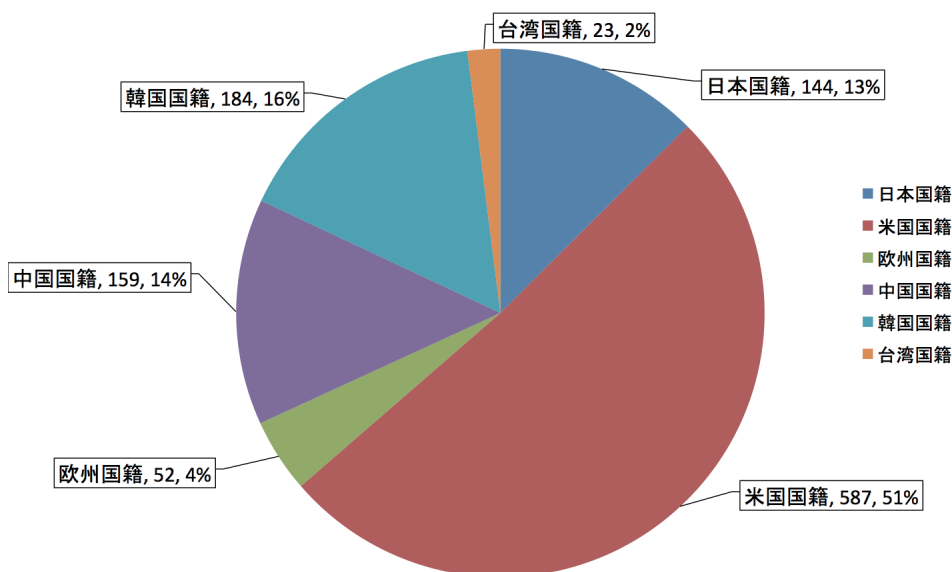


図9 単層CNTに関する出願人国籍別の出願件数・比率 (2000～2012年)

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)

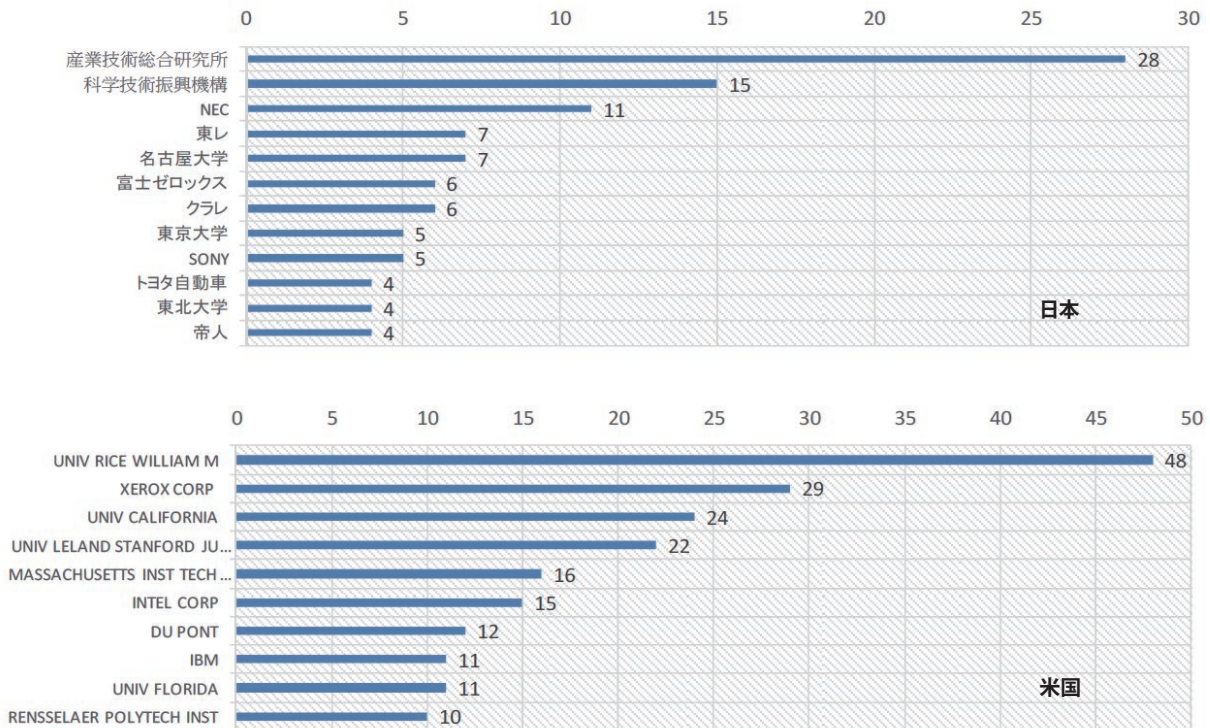


図10 単層CNTに関する日本国籍及び米国籍の出願人別出願件数ランキング (2000～2012年) (上図：日本、下図：米国)  
出所：単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# ナノカーボン材料分野の技術戦略策定に向けて

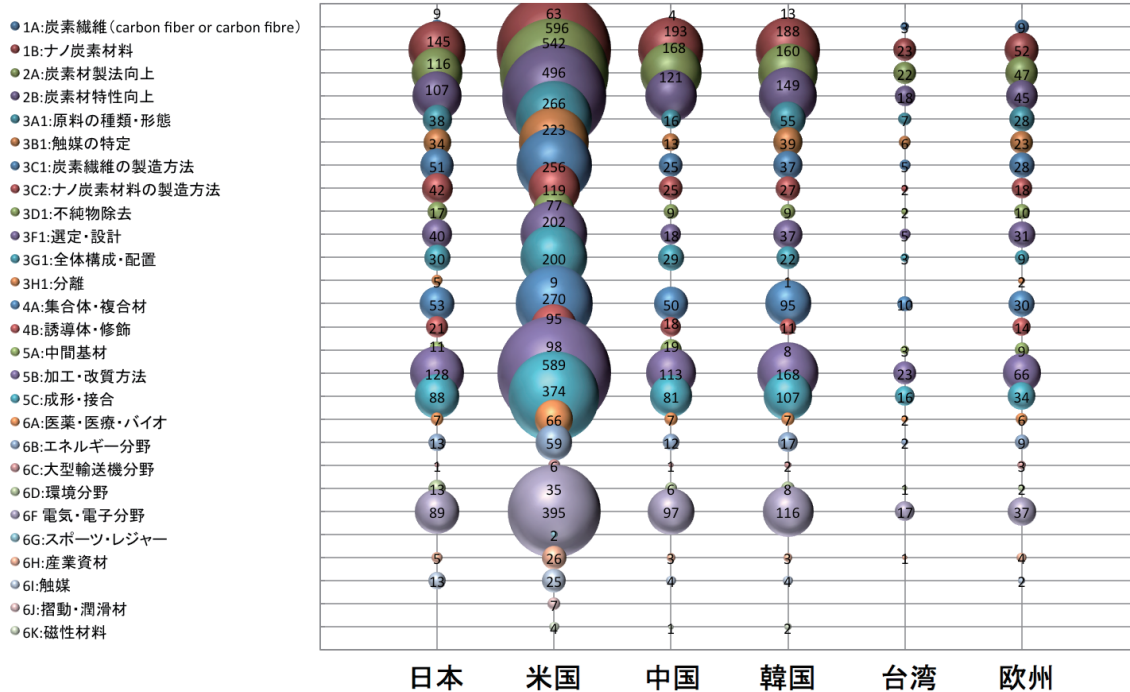


図11 単層CNTに関する特許出願における出願人国籍別及び技術区分別の出願件数 (2000～2012年)  
出所: 単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

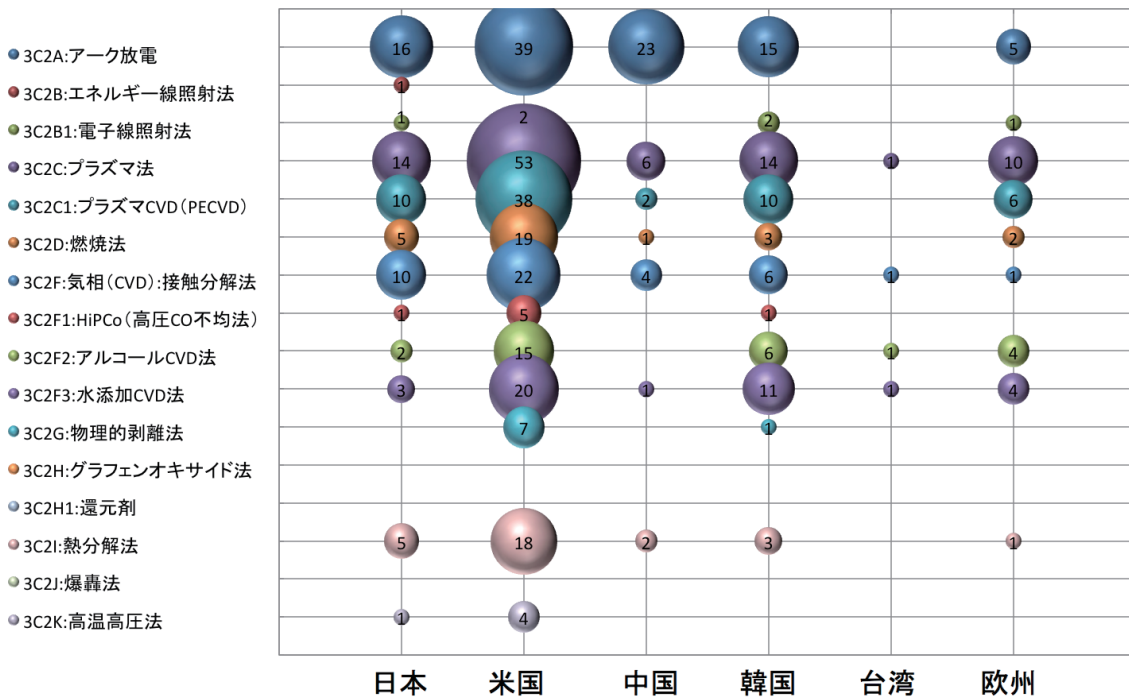


図12 単層CNTに関する特許出願における出願人国籍別及び製造方法別の出願件数 (2000～2012年)  
出所: 単層CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# 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）

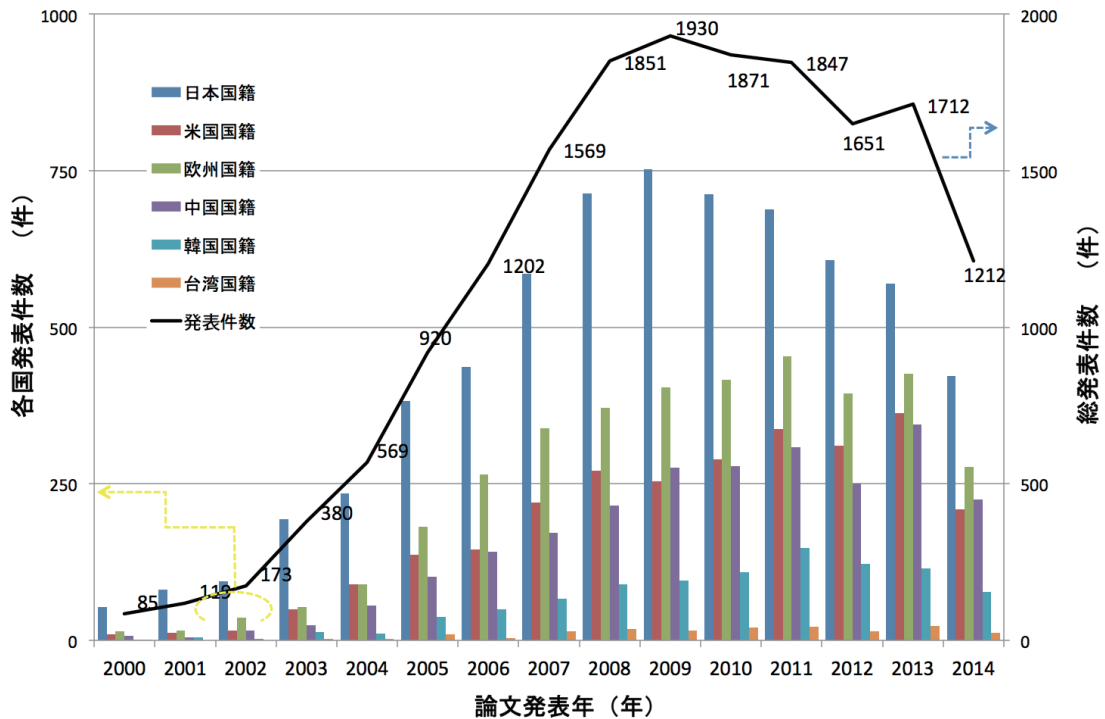


図13 単層CNTに関する発表者国籍別の論文発表件数推移

出所：単層CNTに関する出願状況調査（NEDO, 2014）

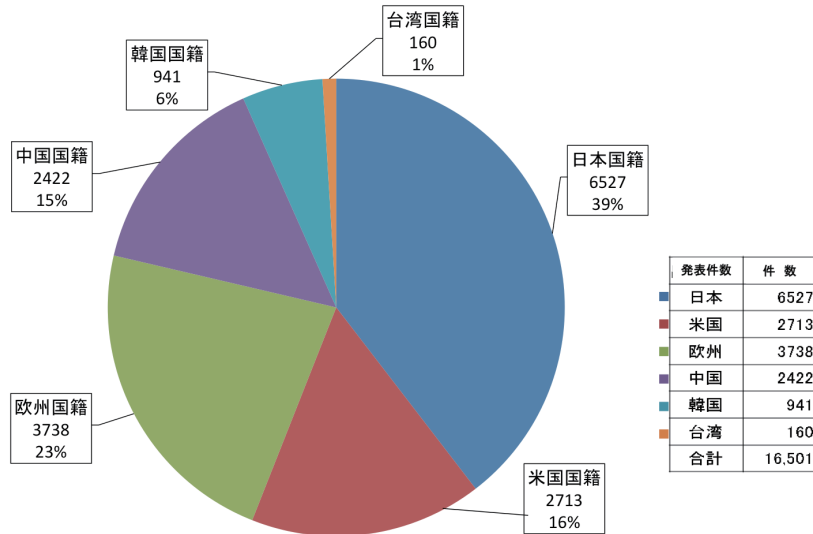


図14 単層CNTに関する発表者国籍別の論文発表件数・比率（2000～2014年）

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

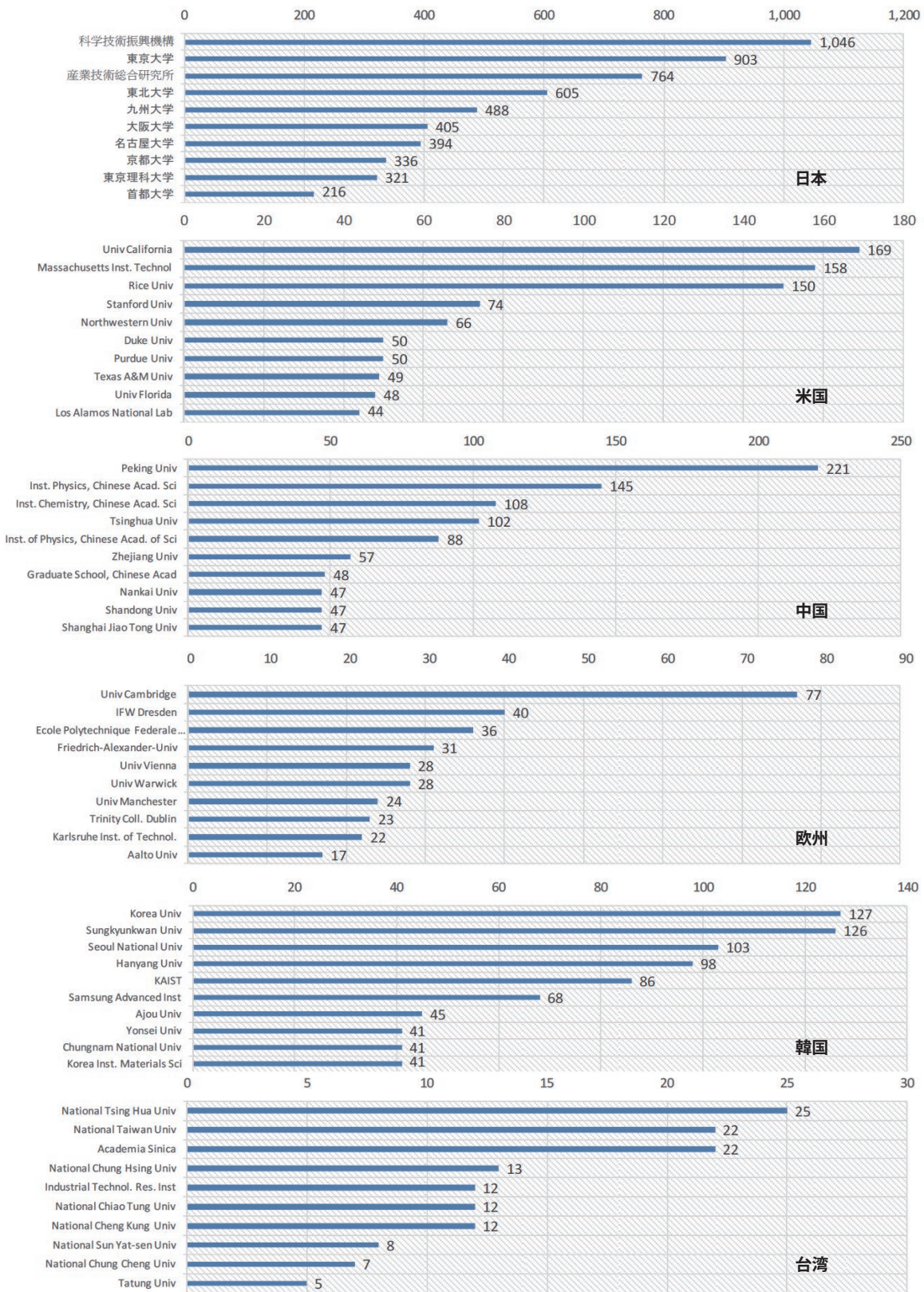


図 15 単層CNTに関する発表者国籍別及び機関別の論文発表件数ランキング (2000～2014年)  
 出所: CNTに関する出願状況調査 (NEDO, 2014)

# 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)。

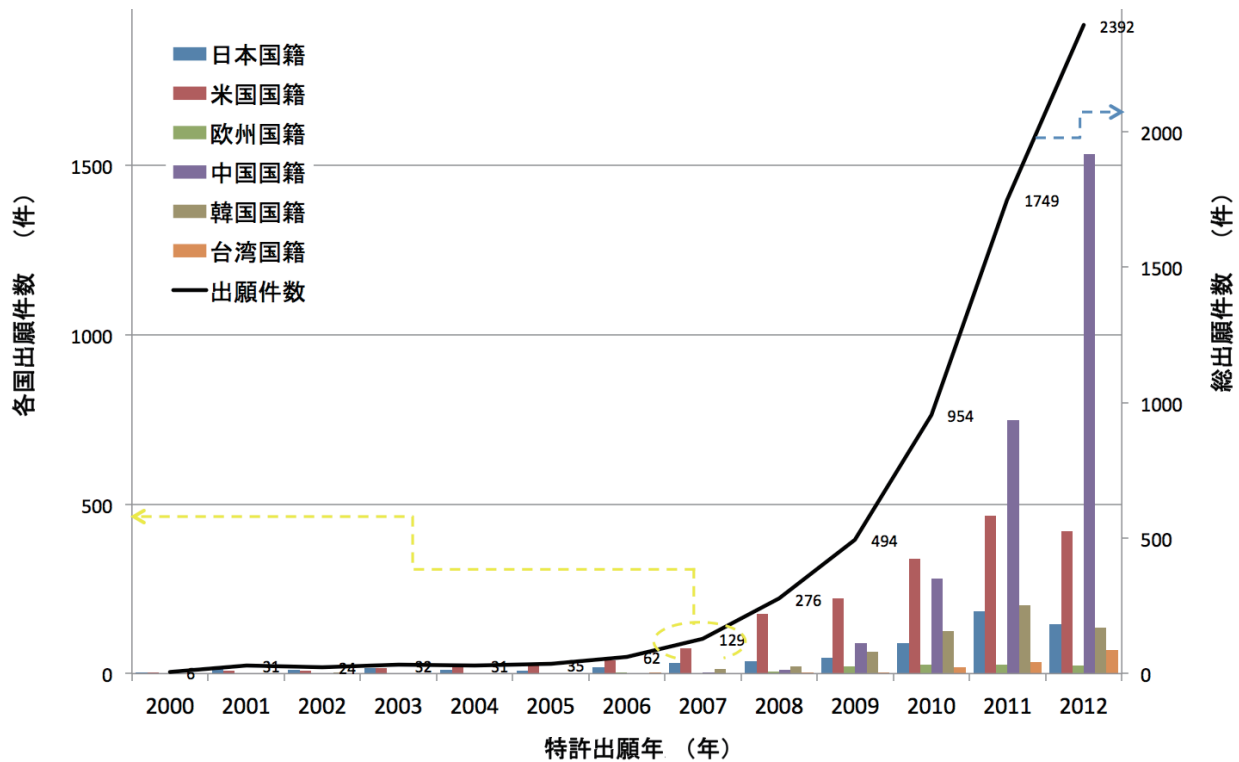


図16 グラフェンに関する出願人国籍別の特許出願件数推移

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)

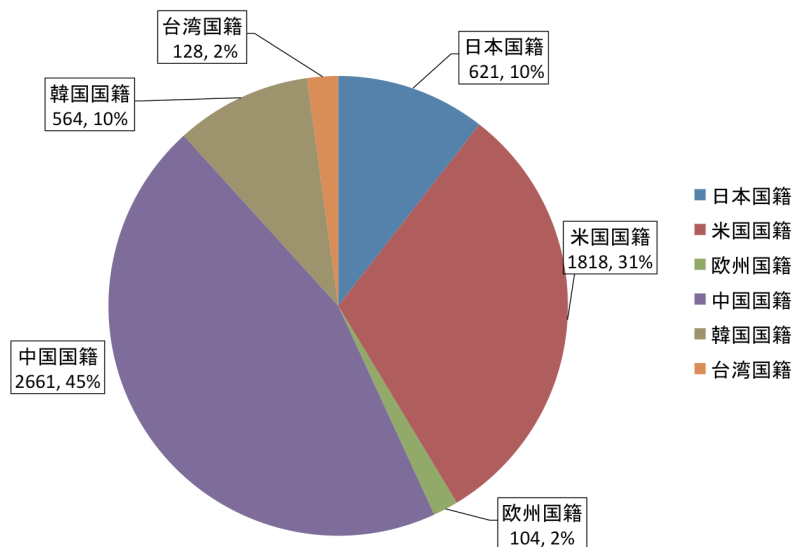


図17 グラフェンに関する出願人国籍別の出願件数・比率(2000～2012年)

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

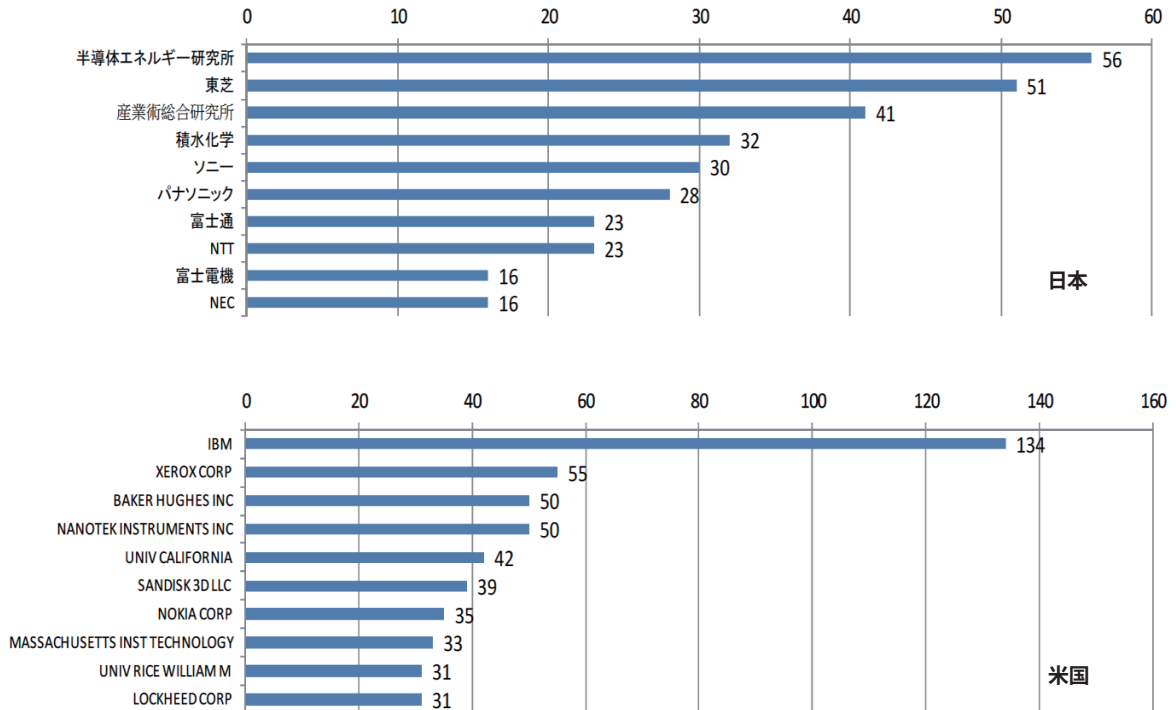


図18 グラフェンに関する日本国籍及び米国籍の出願人別出願件数ランキング (2000～2012年) (上図：日本、下図：米国)  
 出所：ナノカーボン（グラフェン）に関する出願状況調査（NEDO, 2014）

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

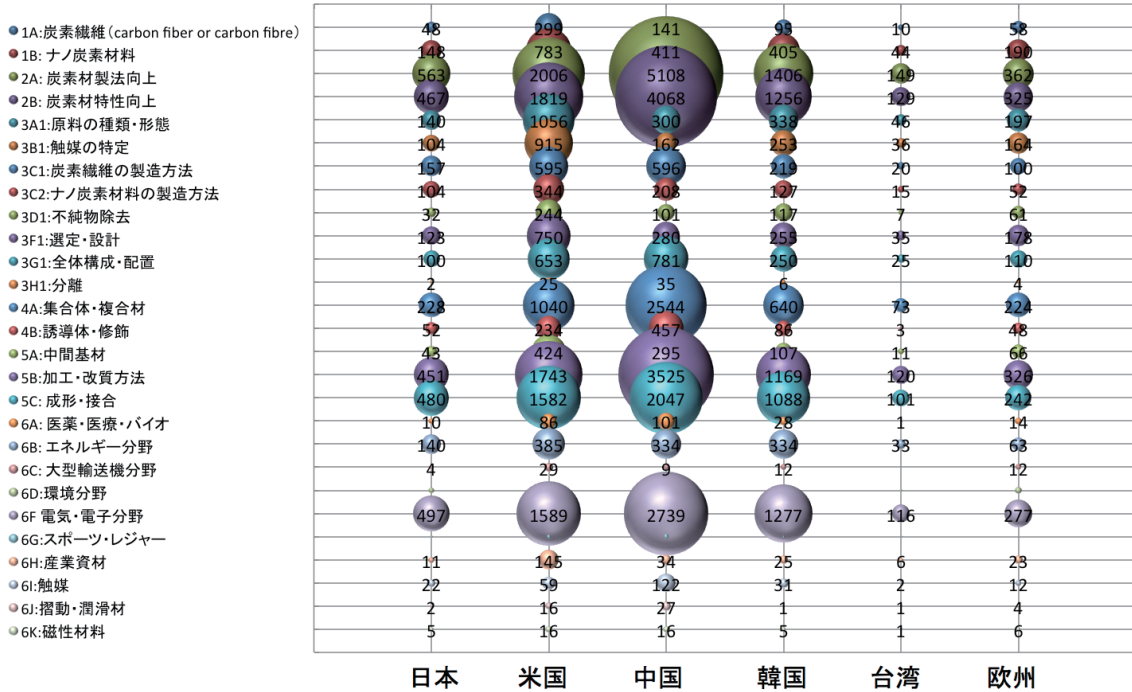


図19 グラフェンに関する特許出願における出願人国籍別及び技術区分別の出願件数 (2000～2012年)  
出所:ナノカーボン(グラフェン)に関する出願状況調査(NEDO, 2014)

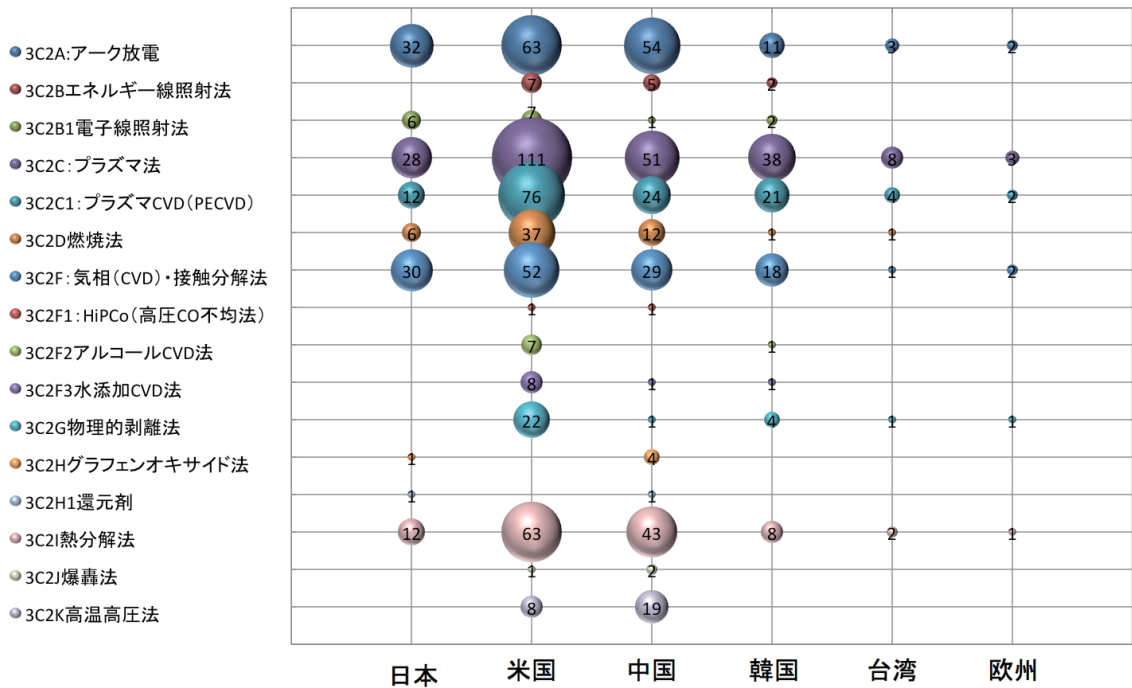


図20 グラフェンに関する特許出願における出願人国籍別及び製造方法別の出願件数 (2000～2012年)  
出所:ナノカーボン(グラフェン)に関する出願状況調査(NEDO, 2014)

# 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)

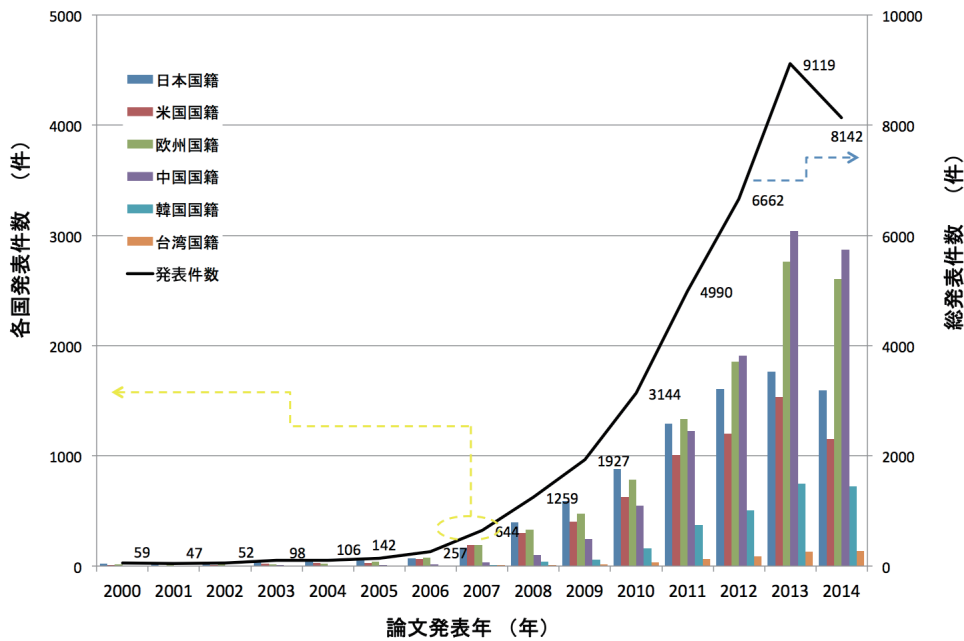


図21 グラフェンに関する発表者国籍別の論文発表件数推移

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)

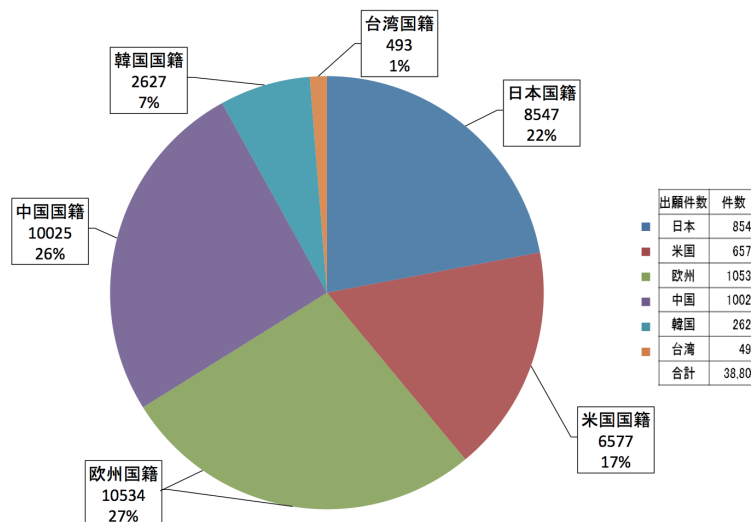


図22 グラフェンに関する発表者国籍別の論文発表件数・比率

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）

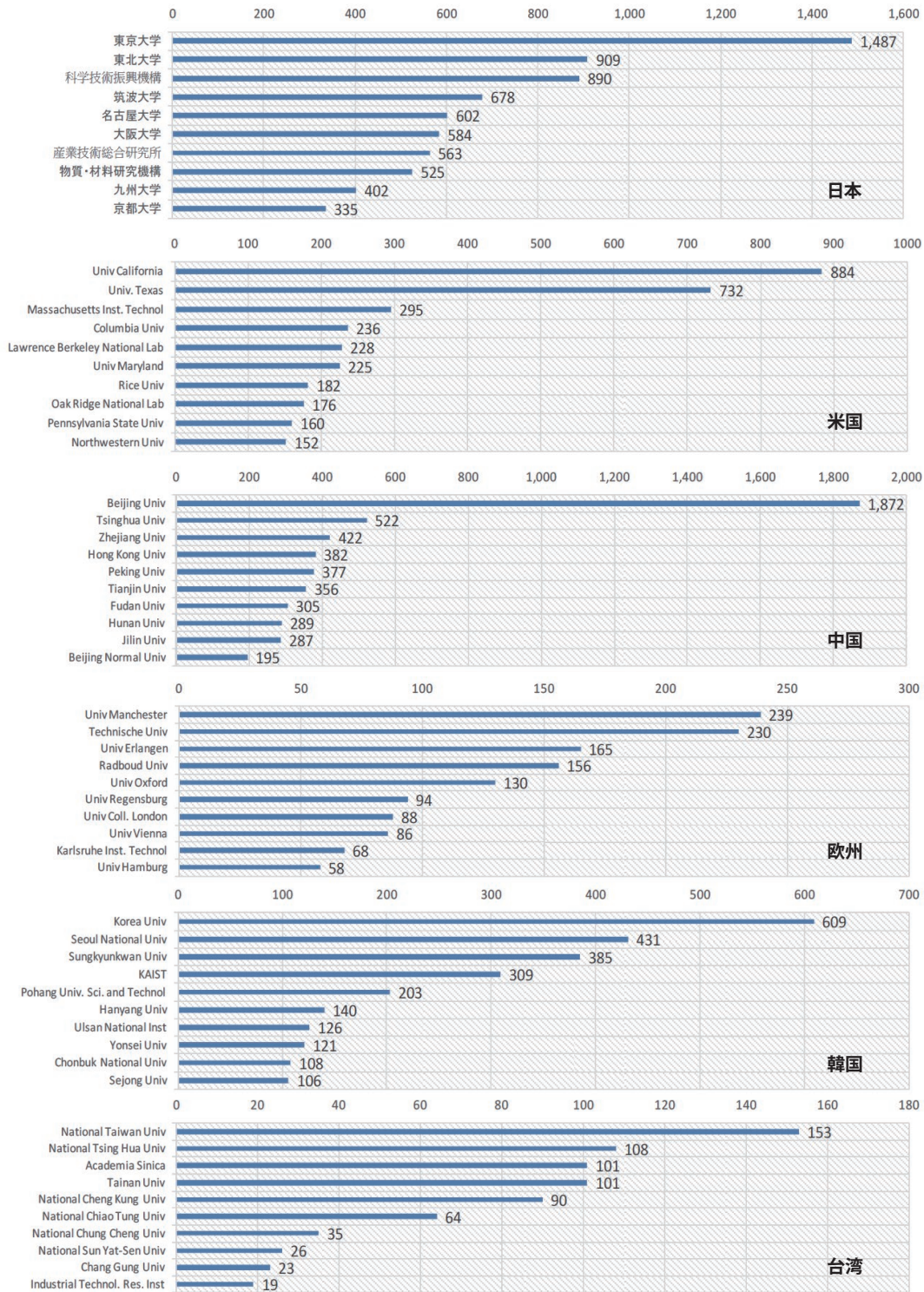


図23 グラフェンに関する発表者国籍別及び機関別の論文発表件数ランキング（2000～2014年）  
出所：ナノカーボン（グラフェン）に関する出願状況調査（NEDO, 2014）

# 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。

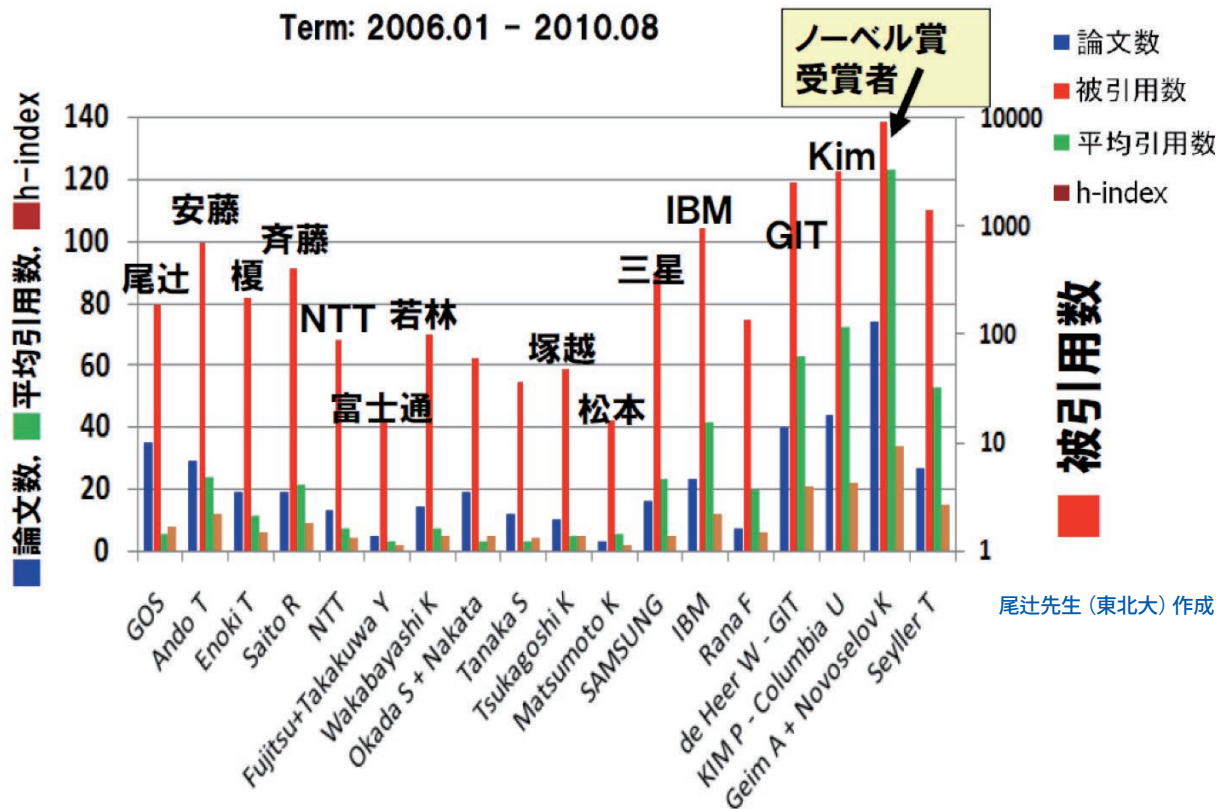


図24 グラフェン研究者又は研究機関の論文発表件数及び重要度の比較

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 ナノカーボンの産業競争力 -3 (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。

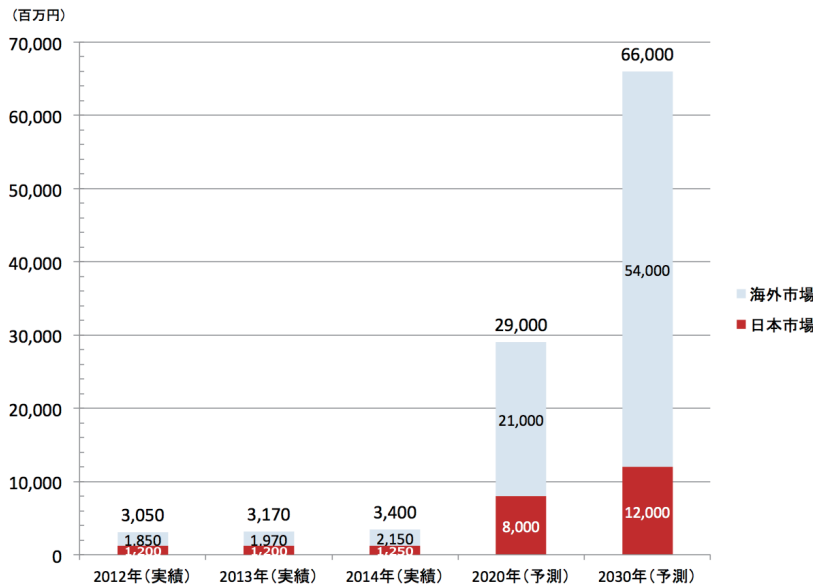
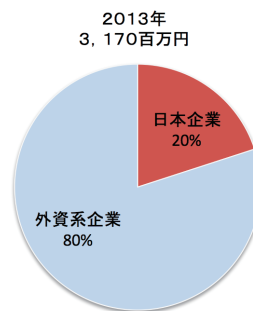


図25 CNTの世界市場規模推移及び予測

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剤用途に関する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。

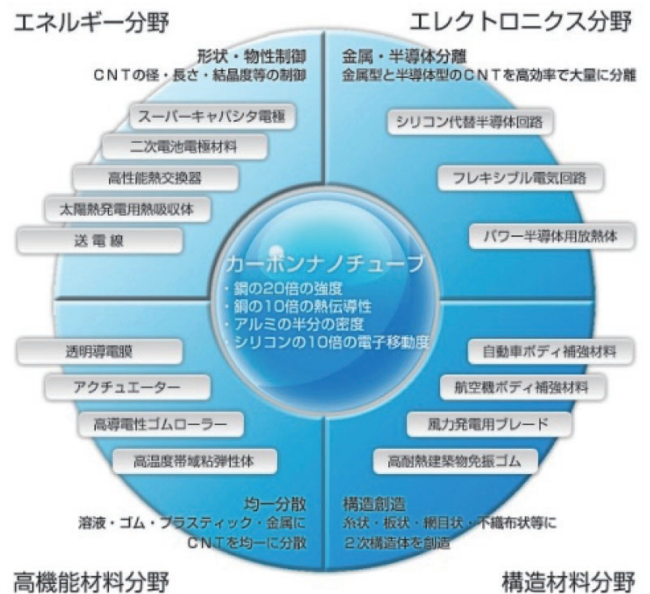


図27 CNTの応用分野と用途

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。
構造物材料	・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。

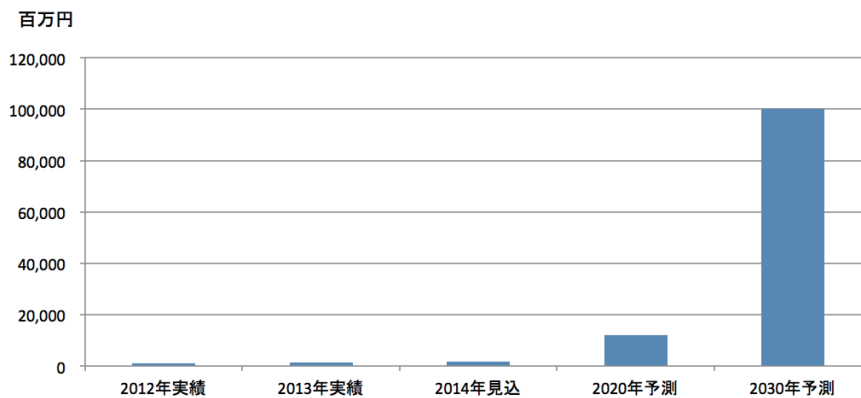


図28 グラフェンの世界市場規模推移及び予測  
出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集 (NEDO, 2014)

## 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>

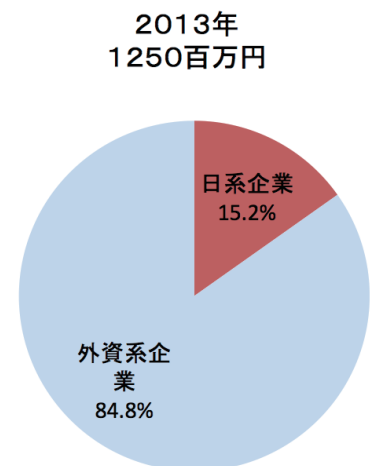


図29 グラフェンの日本企業シェア及び優位性  
出所:平成26年度 日本企業の国際競争ポジションに関する情報収集 (NEDO, 2014)

# 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。

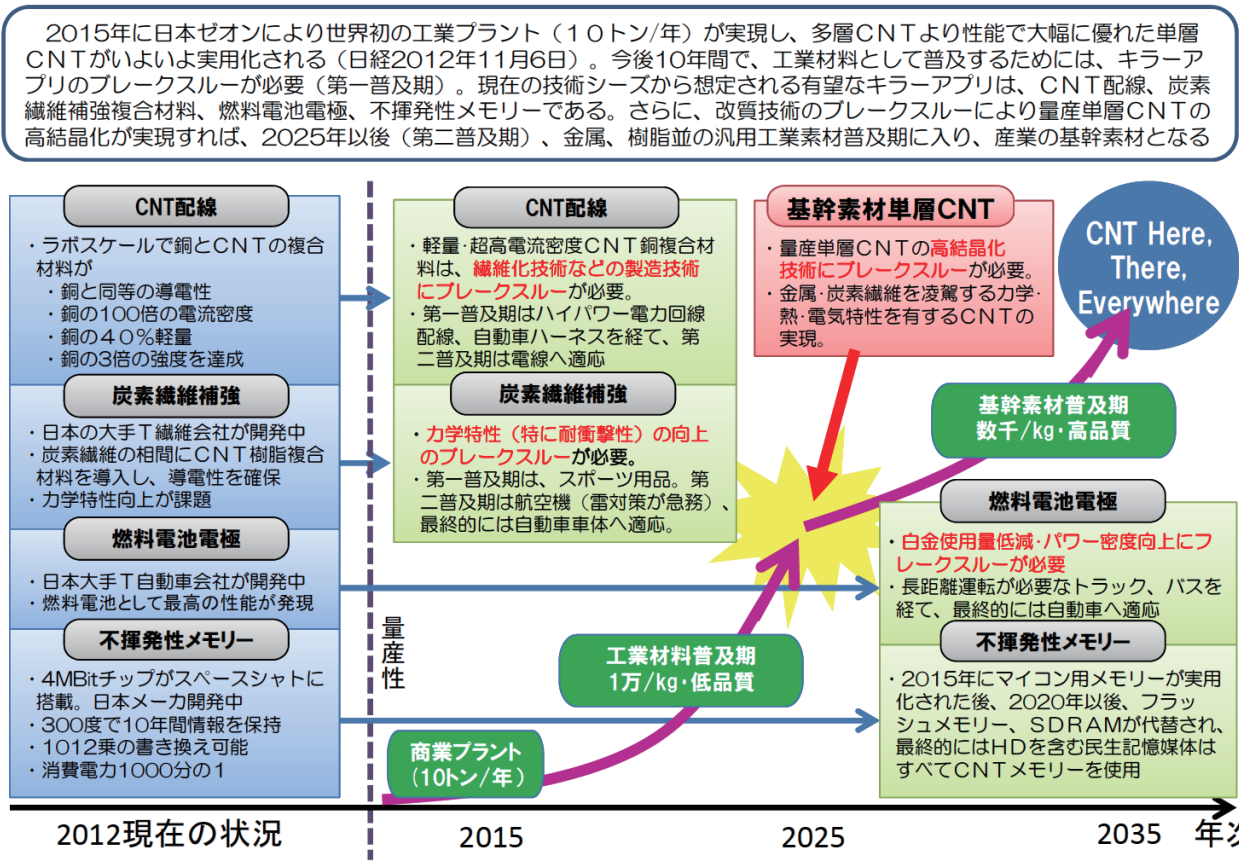


図30 単層CNTの本格的普及期から産業の基幹素材へのロードマップ

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。

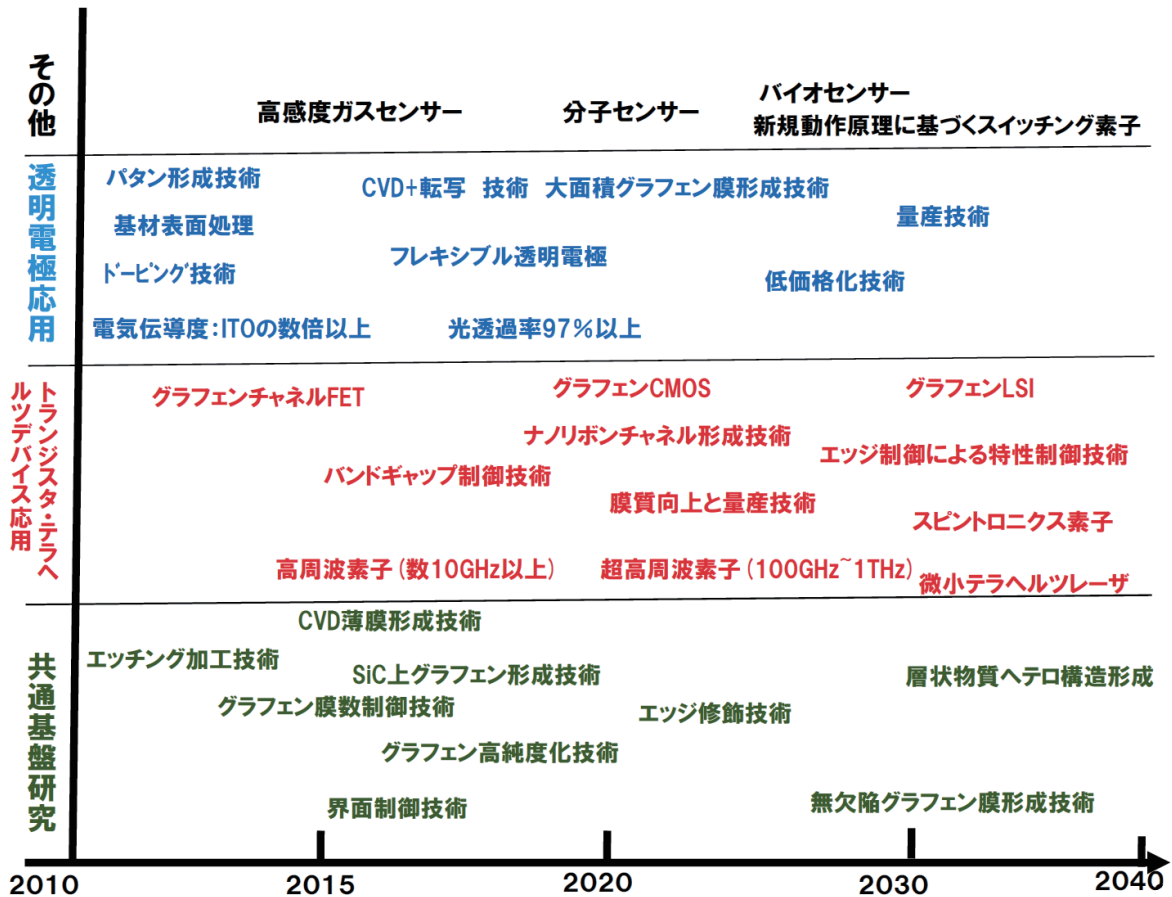


図31 グラフェン応用開発ロードマップ

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がわかる。

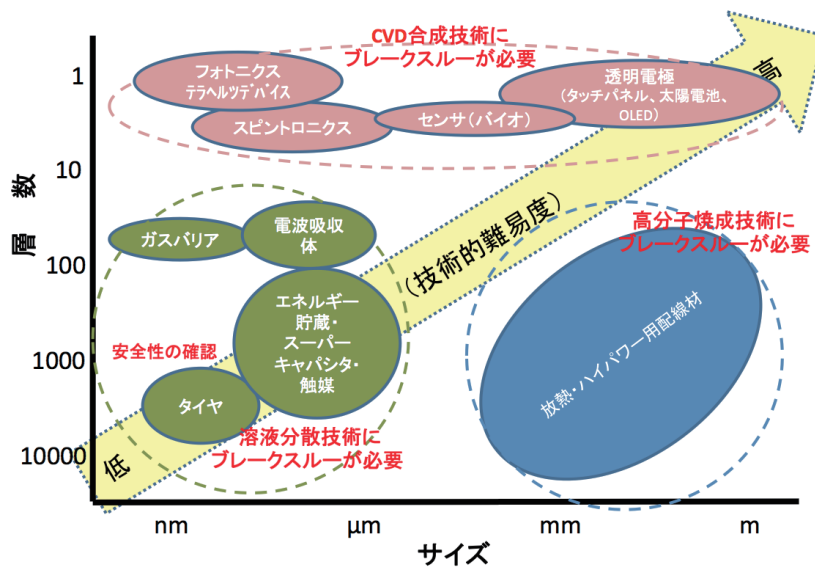


図32 各用途先に求められるグラフェンのサイズと層数及びブレイクスルー要素

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)

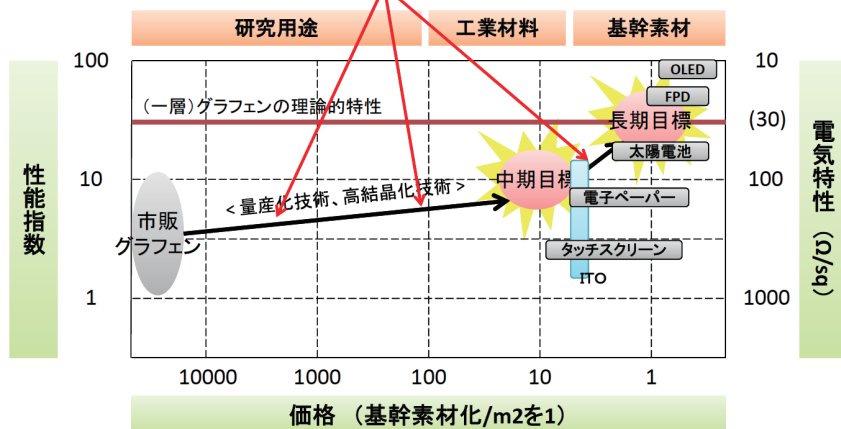


図33 グラフェンの導電膜利用におけるKPI

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。

添付資料 特許論文等リスト

研究開発項目[1][2][3] (AIST、ADMAT 担当分)

【論文】 157 報

番号	発表者	タイトル	発表誌名、ページ番号	発表年月	査読
1	O.Zhang, H.-Y. Yuan, N.Fukaya, H.Yasuda, J.- C.Choi	A Simple Zinc Catalyst for Carbamate Synthesis Directly from CO <sub>2</sub>	ChemSusChem2017,10,1501 -1508	2017/3/3	有
2	藤井 亮, 崔 準哲, 藤田賢一 (産総 研、触媒センター)	Synthesis of magnetically recoverable imidazolium hydrogen carbonate and its application as an N- heterocyclic carbene catalyst to cyanosilylation of aldehydes and ketones	Tetrahedron Letters 58 (2017) 1515-1518	2017/3/3	有
3	高木 望, 石村和也, 松井正冬, 福田良 一, 江原正博, 榊 茂 好(京大)	Core-Shell versus Other Structures in Binary Cu <sub>38</sub> - nMn Nanoclusters (M = Ru, Rh, Pd, Ag, Os, Ir, Pt, and Au; n = 1, 2, and 6) : Theoretical Insight into Determining Factors	J. Phys. Chem. C 2017, 121, 10514.10528	2017/4/26	有
4	崔 準哲, Hao-Yu Yuan, 深谷訓久, 小 野澤俊也, Zhang Qiao, 崔 星集, 安田 弘之 (産総研、触 媒センター)	Halogen-free synthesis of carbamates from CO <sub>2</sub> and amines using titanium alkoxides	Chem. Asian J. 2017, 12, 1297 - 1300	2017/5/17	有
5	松井正冬, 榊 茂好 (京大)	Embedded Cluster Model for Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> and AlPO <sub>4</sub> Surfaces Using Point Charges and Periodic Electrostatic Potential	J. Phys. Chem. C 2017, 121, 20242-20253	2017/8/21	有

6	大谷 実,西原慧径 (産総研,CD-FMat)	Hybrid solvation models for bulk, interface, and membrane: reference interaction site methods coupled with density functional theory	PHYSICAL REVIEW B 96, 115429 (2017)	2017/9/18	有
7	藤井 亮,崔 準哲, 藤田賢一(産総研, 触媒センター)	Quaternary ammonium salt-catalyzed carboxylative cyclization of propargylic amines with CO <sub>2</sub>	Tetrahedron Letters 58 (2017) 4483-4486	2017/10/7	有
8	Zhang Qiao, Yuan Hao-Yu, 深谷訓久, 安田弘之, 崔 準哲(産総研、触媒センター)	Direct Synthesis of Carbamate from CO <sub>2</sub> Using a Task-Specific Ionic Liquid Catalyst	Green Chem., 2017, 19, 5614	2017/10/24	有
9	檜貝信一(村田製作所)	セラミックス産業分野における 計算科学およびデータ科学技術への取り組み	日本化学会情報化学部会オンライン部会誌「CICSJ Bulletin」Vol.35 No.4 (2017)	2017/12/28	無
10	川島英久,梅沢真実,木島正志 (筑波大)	Site-Selective Hydrosilylation of Botryococene - The Algal Biomass Hydrocarbon Oil	ChemistrySelect 2018, 3, 273 -276	2018/1/4	有
11	Kenji Tagashira, Kazuaki Z. Takahashi, Jun-ichi Fukuda, Takeshi Aoyagi (ADMAT、九大、産総研)	Development of Coarse-Grained Liquid-Crystal Polymer Model with Efficient Electrostatic Interaction: Toward Molecular Dynamics Simulations of Electroactive Materials	Materials 2018, 11, 83	2018/1/6	有
12	Gai Kubo, Tetsuya Matsuda, Yoshihiko Sato (筑波大)	A novel basic cell modeling method for elastic-viscoplastic homogenization analysis of plain-woven laminates with nesting	International Journal of Mechanical Sciences, Volumes 146-147, 2018, Pages 497-506	2018/1/10	有
13	Mickaël Buchet, Yasuaki Hiraoka, and Ippei Obayashi (東北大)	Persistent homology and materials informatics	Nanoinformatics, Springer, 75-95	2018/1/16	有

14	山田貴壽,沖川侑揮,長谷川雅考 (産総研,ナノカーボン)	Potassium doped n-type bilayer graphene	Appl. Phys. Lett. 112, 043105 (2018)	2018/1/25	有
15	矢田 陽, 安藤康伸, 永田賢二, 松村太郎次郎, 一関咲奈, 佐藤一彦 (産総研、触媒センター)	Machine Learning Approach for Prediction of Reaction Yield with Simulated Catalyst Parameters	Chem. Lett. 2018, 47, 284–287	2018/1/31	無
16	奥 智治, 岡田雅希 M. Puripat, 畑中美穂, 諸熊奎治, 崔準哲(日本触媒、ADMAT、奈良先端、京大、産総研)	Study for the Promotion Effect of CH <sub>3</sub> I on Hydroxy-carbonylation of Cycloolefin by the Homogeneous Organo-rhodium Catalysts with PPh <sub>3</sub> Ligand	Journal of CO <sub>2</sub> Utilization 25 (2018) 1–5	2018/3/9	有
17	Jing Lu, Kazuya Ishimura (分子研), and Shigeyoshi Sakaki	Theoretical Insight into Core–Shell Preference for Bimetallic Pt–M (M = Ru, Rh, Os, and Ir) Cluster and Its Electronic Structure	J. Phys. Chem., C, 122, 9081–9090 (2018)	2018/4/5	有
18	Zhang Qiao, Yuan Hao-Yu, 深谷 訓久, 崔 準哲	Alkali Metal Salt Serves as Catalyst for the Direct Synthesis of Carbamate from CO <sub>2</sub>	ACS Sustainable Chem. Eng. 2018, 6, 6675–6681	2018/4/6	有
19	藤井亮, 崔準哲、藤谷忠博、藤田賢一	Efficient synthesis of 2-oxazolidinones and quinazoline-2,4(1H,3H)-diones from CO <sub>2</sub> catalyzed by tetrabutylammonium fluoride	Tetrahedron 74 (2018) 2914e2920	2018/4/21	有
20	南拓也、奥野好成	Number Density Descriptor on Extended-Connectivity Fingerprints Combined with Machine Learning Approaches for Predicting Polymer Properties	MRS Advances, vol.3 Issue 49(2018) ,pp. 2965–2973	2018/5/21	有

21	Carlos Romero- Muñiz, Ayako Nakata, Pablo Pou, David R. Bowler, Tsuyoshi Miyazaki and Rubén Pérez	High-accuracy large-scale DFT calculations using localized orbitals in complex electronic systems: The case of graphene-metal interfaces	J. Phys.: Condens. Matter 30 505901	2018/6/21	有
22	矢田 陽、佐藤一 彦	AIで触媒反応の収率を予 測?! —触媒開発期間の短縮へ光 —	月刊「化学」(化学同人), 73(7), 24-28 (2018)	2018/7/1	
23	李 文文, 安藤 康 伸	Construction of accurate machine learning force fields for copper and silicon dioxide	Phys. Chem. Chem. Phys., 2018, 20, 30006	2018/7/5	有
24	Hao-Yu Yuan, Zhang Qiao, 深谷 訓久, Xiao-Tao Li, 藤谷忠博、崔 準 哲	Phosgene-free Synthesis of Carbamates using CO <sub>2</sub> and Titanium Alkoxides	Bulletin of The Chemical Society of Japan, 91(10), 1481-1486 (2018)	2018/7/7	有
25	本田暁紀、井藤浩 志(産総研、分析標 準)	Applying Second and Third Resonance Frequencies to Surface Potential Measurement of Kelvin Probe Force Microscopy	e-J. Surf. Sci. Nanotech. Vol. 16 (2018) 339-342	2018/7/21	無
26	檜貝信一	電子セラミックス工業分野に おけるマテリアルズ・インフォ マティクスへの取り組みー将 来の材料研究開発のあり方 —	日本化学会 化学と工業 2018年8月号, 659-661 (2018)	2018/8/1	無
27	Haiya Yang, Masato Miyashita, and Takayuki Miyamae (産総研、ナノ材料)	Mapping Accumulated Charges at the Semiconductor/Insulator Interface of Organic Field- Effect Transistors by Sum- Frequency Spectroscopy Generation	e-J. Surf. Sci. Nanotech. Vol. 16 (2018) 364-369	2018/8/9	有

28	Chang Liu, Mitsuhiro Asato, Nobuhisa Fujima, Toshiharu Hoshino, Ying Chen and Tetsuo Mohri	Real Space Cluster Expansion for Total Energies of Pd-Rich PdX (X=Rh, Ru) Alloy, Based on Full- Potential KKR Calculations: An Approach from a Dilute Limit	Materials Transaction, 59(11), 1669-1676 (2018)	2018/9/14	有
29	Masahiro Kitabata, Tseden Taddese, Susumu Okazaki	Molecular dynamics study on wettability of poly(vinylidene fluoride) (PVDF) crystalline and amorphous surfaces	Langmuir, 34(40), 12214- 12223 (2018)	2018/10/9	有
30	Ryo Tamura, Jianbo Lin, and Tsuyoshi Miyazaki	Machine learning forces trained by Gaussian process in liquid states: Transferability to temperature and pressure	Journal of the Physical Society of Japan 88, 044601 (2019)	2018/10/12	有
31	Ryohei Seto, Giulio G. Giusteri	Normal stress differences in dense suspensions	Journal of Fluid Mechanics, 857, 200-215 (2018)	2018/10/19	有
32	矢田 陽、佐藤一 彦	人工知能(AI)による触媒反 応の収率予測技術	配管技術, 2018年12月号	2018/11/1	
33	南 拓也、川田正 晃、藤田俊雄、室 伏克己、内田 博、 大森和弘、奥野好 成	Prediction of repeat unit of optimal polymer by Bayesian optimization	MRS Advances volume 4, pages1125-1130 (2019), doi.org/10.1557/adv.2019.57 (2019)	2019/1/24	有
34	青柳岳司	高分子材料へのマテリアル ズ・インフォマティクスの適用 事例	工業材料, 67(3) 2019年3 月号	2019/2/1	無
35	Hiroma Nagaoka, Tetsuya Matsuda, Tsubasa Ogaki	Development of a decoupled multiscale analysis method for woven composites	Key Engineering Materials, 794, 89-96 (2019)	2019/2/1	有

36	Nozomi Takagi, Kazuya Ishimura, Hiroki Miura, Tetsuya Shishido, Ryoichi Fukuda, Masahiro Ehara, and Shigeyoshi Sakaki	Catalysis of Cu Cluster for NO Reduction by CO:Theoretical Insight into Reaction Mechanism	ACS Omega, 4(2), 2596- 2609 (2019)	2019/2/4	有
37	山田貴壽、沖川侑 揮、長谷川雅考	Potassium-doped n-type stacked graphene layers	Materials Research Express, 6(5), 055009 (2019)	2019/2/6	有
38	小野 巧、武学 麗、古屋 武、依田 智	Development of a Rapid Decompression System for Nanocellular Foaming at 100 MPa	J. of Supercritical Fluids 149 (2019) 26-33	2019/3/22	有
39	董文勇、堀内 伸、 山平直廣、伯川秀 樹、李勇仁	Mechanism of Reactive Compatibilization of PLLA/PVDF Blends Investigated by Scanning Transmission Electron Microscopy with EDX and EELS	ACS Appl. Polym. Mater. 2019, 1, 4, 815-824	2019/3/25	有
40	矢田 陽、佐藤一 彦	キャタリストインフォマティク スによる触媒開発	触媒技術の動向と展望20 19 p.101~112	2019/4/10	無
41	崔 準哲、深谷 訓 久	二酸化炭素を原料とするウ レタン合成	日本接着学会誌 2019年 55巻 5号 p. 175-180	2019/5/1	有
42	Tseden Taddese, Masahiro Kitabata, Susumu Okazaki	All-atom molecular dynamics study on the non-solvent induced phase separation: Thermodynamics of adding water to poly(vinylidene fluoride)/N- methyl-2- pyrrolidone solution	J. Chem. Phys. 150, 184505 (2019)	2019/5/14	有



43	山田亮、毛利哲夫	Conversion of magnetic freedoms into atomic configurational freedoms within the Cluster Variation Method	日本金属学会英文誌 2019年60巻6号 p. 915-920	2019/5/25	有
44	田村亮、毛利哲夫	Atomistic Relaxation Process in a Ni <sub>3</sub> Al Ordered Phase Using Path Probability Method with Vacancy Mechanisms	Computational Materials Science 167 (2019) 118-122	2019/5/25	有
45	松村太郎次郎, 永村直佳, 赤穂昭太郎, 永田賢二, 安藤康伸	Spectrum adapted the expectation-maximization algorithm for high-throughput peak shift analysis	SCIENCE AND TECHNOLOGY OF ADVANCED MATERIALS 2019, VOL. 20, NO. 1, 733-745	2019/6/27	有
46	Nozomi Takagi, Kazuya Ishimura, Ryoichi Fukuda, Masahiro Ehara, and Shigeyoshi Sakaki	Reaction Behavior of the NO Molecule on the Surface of an Mn Particle (M = Ru, Rh, Pd, and Ag; n = 13 and 55): Theoretical Study of Its Dependence on Transition-Metal Element	J. Phys. Chem. A 2019, 123, 32, 7021-7033	2019/7/17	有
47	Mark Z. Griffiths and Wataru Shinoda	tSPICA: Temperature- and Pressure-dependent Coarse-grained Force Field for Organic Molecules	J. Chem. Inf. Model. 2019, 59, 9, 3829-3838	2019/8/9	有
48	Zhang Qiao, 深谷訓久、藤谷 忠博、崔 準哲	Selective Carbon Dioxide Hydrosilylation Catalyzed by Zinc and Other First-Row Transition Metals	Bull. Chem. Soc. Jpn. 2019, 92, 1945-1949	2019/9/13	有
49	李文文, 安藤康伸	Dependence of a cooling rate on structural and vibrational properties of amorphous silicon: A neural network potential-based molecular dynamics study	J. Chem. Phys. 151, 114101 (2019)	2019/9/16	有

50	澤田有弘(産総研), 手塚惇平(筑波大), 松田哲也(筑波大), 松本純一(産総研)	2スケール多孔体の内部流れに対する3スケール漸近展開均質化法	第32回計算力学講演会の冊子	2019/9/16	無
51	松本純一, 澤田有弘	直交基底気泡関数要素を用いたDarcy-Brinkman式における有限要素解析	第32回計算力学講演会の冊子	2019/9/16	無
52	手塚惇平*, 長岡央磨*, 澤田有弘#, 松本純一#, 松田哲也:* 筑波大、# 産総研	多孔質体内流れに対する3スケール均質化法の開発	第32回計算力学講演会の冊子	2019/9/16	無
53	Masahisa Okada, Akihiro Takeyama, Yasusei Yamada	Thermal hysteresis control of VO <sub>2</sub> (M) nanoparticles by Ti-F co-doping	Nano-Structures & Nano-Objects 20 (2019) 100395;	2019/10/1	有
54	松尾英明、藤井亮、崔準哲、藤谷忠博、藤田賢一	Carboxylative cyclization of a propargylic amine with CO <sub>2</sub> catalyzed by PAMAM dendrimer-encapsulated gold nanoparticles	Synlett 2019; 30(16): 1914-1918	2019/10/1	有
55	中島秀朗, 森本崇宏, 周英, 小橋和文, 阿多誠介, 山田健郎, 岡崎俊也	Nonuniform functional group distribution of carbon nanotubes studied by energy dispersive X-ray spectrometry imaging in SEM	Nanoscale, 2019, 11, 21487	2019/10/16	有
56	森田裕史	マテリアルズ・インフォマティクスに活用できる「次世代高分子材料設計ソフトウェア」とその可能性	MATERIALSTAGE、2019年11月号	2019/11/1	無
57	森田裕史	超超プロジェクトで開発されたシミュレータの公開説明会と拡張 OCTA の概要	接着・接合技術コンソーシアムニュースレター	2019/11/1	無
58	土居 英男、高橋和義、田頭健司、福田順一、青柳岳司	Machine learning-aided analysis for complex local structure of liquid crystal polymers	Scientific Reports volume 9, Article number: 16370 (2019)	2019/11/8	有

59	D. R. Bowler, J. S. Baker, J. T. L. Poulton, S. Y. Mujahed, J. Lin, S. Yadav, Z. Raza and T. Miyazaki	Highly accurate local basis sets for large-scale DFT calculations in conquest	JJAP, 58, 100503 (2019)	2019/12/1	有
60	田中真司、Wei-Chih Liao、小川敦子、佐藤一彦、Christophe Coperet	DNP NMR spectroscopy of cross-linked organic polymers: rational guidelines towards optimal sample preparation	Phys. Chem. Chem. Phys., 2020, 22 (6), 3184	2019/12/12	有
61	北畑 雅弘、山本海	企業における分子シミュレーション活用事例～アロイ・ブレンドの設計に向けて～	シーエムシー出版 ポリマーアロイ・ポリマー ブレンド設計技術と実用化事例	2020/2/25	有
62	Bo Zhu, Masahiro Ehara, Shigeyoshi Sakaki	Propene Oxidation Catalysis and Electronic Structure of M <sub>55</sub> Particle (M= Pd or Rh): Differences and Similarities between Pd <sub>55</sub> and Rh <sub>55</sub>	Phys. Chem. Chem. Phys., 2020, 22, 11783–11796	2020/3/10	無
63	Masahiro Kitabata, Tseden Taddese, Susumu Okazaki	Wettability of poly(vinylidene fluoride) (PVDF) surface by good pure solvent and good-solvent/non-solvent mixed solvent: all-atom molecular dynamics study	Langmuir, vol.36,13,pp.3633–3644(2020)	2020/3/16	有
64	川島 英久、奥田 勇樹、木島 正志、藤谷 忠博、崔 準哲	Epoxidation of microalgal with hydrogen peroxide using solid heterogeneous tungsten-based catalysts	Tetrahedron, 2020, 76, 131109	2020/4/17	有
65	依田智、小野巧	超高压プロセスによるナノ発泡体の作成	成形加工, 2020, 32 (4) 117–120	2020/4/20	無
66	木村和哉、白石一馬、近藤剛弘、中村潤児、藤谷忠博	Cracking of squalene into isoprene as chemical utilization of algae oil	Green Chem., 2020, 22 (10), 3083–3087	2020/4/28	有
67	李文文、安藤 康伸	Effect of local structural disorder on lithium diffusion behavior in amorphous silicon	Phys. Rev. Materials, 2020, 4, 45602	2020/4/28	無

68	Zhang Qiao, Yuan Hao-Yu、深谷 訓久、藤谷 忠博、佐藤 一彦、崔 準哲	Calcium carbide as a dehydrating agent for the synthesis of carbamates, glycerol carbonate, and cyclic carbonates from carbon dioxide	Green Chem., 2020, 22, 4231-4239	2020/5/18	有
69	永島 裕樹、Julien Trébosc、今 喜裕、佐藤一彦、Olivier Lafon、Jean-Paul Amoureux	DNP surface- and subsurface-enhanced NMR spectroscopy of quadrupolar nuclei	J. Am. Chem. Soc. 2020, 142 (24), 10659-10672	2020/5/19	有
70	茂本 勇	シミュレーションとインフォマティクスとの連携	高分子, 2020, 69 (6), 280-282	2020/6/1	無
71	土居 英男、高橋和義、青柳 岳司	Mining of effective local order parameters for classifying crystal structures: a machine learning study	J. Chem. Phys. , 2020, 152, 214501	2020/6/1	有
72	中陳 巧勤、南 拓也、川田 正晃、藤田 俊雄、室伏 克己、内田 博、大森和弘、奥野 好成	Prediction of physical properties of thermosetting resin by using machine learning and raw material classification	MRS ADVANCES, 2020, 5 (29-30), 1567-1575	2020/6/4	有
73	藤谷 忠博、中村 功、橋口 雄太、金澤 翔一、高橋 厚	Effect of catalyst preparation method on ammonia decomposition reaction over Ru/MgO catalyst	Bull. Chem. Soc. Jpn, 2020, 93 (10), 1186-1192	2020/6/6	無
74	澤田 有弘、松田 哲也、松本 純一	2スケール多孔体の浸透流に対する3スケール均質化法	計算工学講演会論文集 25巻 D03-01号 1頁～5頁	2020/6/10	無
75	安岡 紀哉、松田 哲也、澤田 有弘、松本 純一、手塚 惇平	3スケール均質化法に基づく織物複合材料の樹脂浸透解析	計算工学講演会論文集 25巻 E12-01号 1頁～6頁	2020/6/10	無

76	小野 巧、武学 麗、堀内 伸、依田 智、古屋 武	Two-step foaming process for production of PMMA nanocellular polymer foams via ultra-high pressure and rapid depressurization	J. of Supercritical Fluids, 2020, 165, 104963	2020/6/27	有
77	南 拓也	ベイズ最適化を活用した耐 熱性ポリマーの効率的設計	材料およびプロセス開発の ためのインフォマティクスの 基礎と研究開発最前線 (シーエムシー・リサーチ) p178-p183.	2020/8/1	無
78	齋藤 健	拡張 OCTA: 高分子複合材 料のマテリアルズ・インフォマ ティクスを志向した OCTA の 機能拡張	材料およびプロセス開発の ためのインフォマティクスの 基礎と研究開発最前線 (シーエムシー・リサーチ), p76-p82	2020/8/1	無
79	中島 秀朗、森本 崇宏、小橋 和文、 岡崎 俊也	エネルギー分散型 X 線分光 法(EDS)を用いた軽元素ナノ 材料のイメージング評価技 術—走査型電子顕微鏡 (SEM)中での元素組成分析 を高空間分解能で実現—	Isotope News, 2020 年 8 月 号, No.770, pp12-15	2020/8/1	無
80	山田 貴壽、沖川 侑揮、長谷川 雅 考、渡邊 賢司、谷 口 尚	Relationship between mobility and strain in CVD graphene on h-BN	AIP Advances, 2020, 10, 085309	2020/8/5	有
81	安岡紀哉, 松田哲 也, 澤田有弘, 松 本純一	平織複合材料に対するマル チスケール樹脂浸透解析	日本機械学会 2020 年度茨 城講演会講演論文 集,2020,p.802-	2020/8/21	無
82	富永 雄一、張 朝 富、佐藤 公泰、今 井 祐介	Simultaneous attainment of particle dispersion and surface modification of Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> nanoparticles via wet-jet milling	Journal of Composite Materials, 2021, 55 (4), 521-530	2020/8/30	有
83	加藤 隆一、長谷 川 雅考	Controlled defect formation and heteroatom doping in monolayer graphene using active oxygen species under UV irradiation	Carbon, 2021, 171., 55-61	2020/9/3	有

84	Tomohisa Miyazawa, Yusuke Tanabe, Misao Hiza, Yoong-Kee Choe, Tadahiro Fujitani	Ethanol to 1,3-butadiene conversion over novel ZnO- ZrO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub> catalyst	Catal. Sci. Technol., 2020, 10, 7531	2020/9/9	有
85	Valeria Butera、田 邊 祐介、新家 雄、宮澤 朋久、藤 谷 忠博、栢沼 愛、崔 隆基	Mechanistic Investigation on Ethanol to Butadiene Conversion Reaction over Metal Oxide Clusters: A Computational Study	Int. J. Quantum Chem., 2021, 121 (5), e26494	2020/9/30	有
86	Jing Lu, Bo Zhu, 榊 茂好	O <sub>2</sub> Activation by Core-shell Ru <sub>13</sub> @Pt <sub>42</sub> Particle in Comparison with Pt <sub>55</sub> Particle: DFT Study	RSC Adv., 2020, 10, 36090- 36100	2020/9/30	有
87	土居 英男、高橋 和義	機械学習を用いた液晶ポリ マー局所構造を見分ける秩 序変数の探索	アンサンブル : 分子シミュ レーション研究会会誌, 2020, 22(4), 320-325	2020/10/1	無
88	松尾 英明、崔 準 哲、藤谷 忠博、藤 田 賢一	Silica-catalyzed carboxylative cyclization of propargylic amines with CO <sub>2</sub>	Tetrahedron Letters, 2020, 61 (48) 152557	2020/10/17	有
89	Zhang Qiao, Xiao- Tao Lin、深谷 訓 久、藤谷 忠博、佐 藤 一彦、崔 準哲	Selective N-Formylation / N-Methylation of Amines and N-Formylation of Amides and Cabamates with Carbon Dioxide and Hydrosilanes: the Promotion of Basic Counter Anion of the Zinc Catalyst	Green Chem., 2020, 22, 8414-8422	2020/10/30	有
90	矢田 陽、佐藤一 彦	キャタリストインフォーマティク ス - 触媒化学と人工知能 の融合 -	JIR 常陽産研 NEWS, 2020, (11), 8-11	2020/11/1	無

91	中島 秀朗、森本 崇宏、小橋 和文、 張 民芳、I. Sideri、 N. Tagmatarchis、 岡崎 俊也	Outer surface covalent functionalization of carbon nanohorn spherical aggregates assessed by highly spatial-resolved energy dispersive X-ray spectrometry in SEM	J. Phys. Chem. C 2020, 124, 25142–25147	2020/11/2	有
92	矢田 陽、松村 太 郎次郎、安藤 康 伸、永田 賢二、一 関 咲奈、佐藤 一 彦	Ensemble Learning Approach with LASSO for the Prediction of Reaction Rate of Catalytic Reaction	Synlett 2021, 32, 1843– 1848	2020/11/5	有
93	栢沼 愛、新家 雄、宮澤 朋久、藤 谷 忠博、崔 隆基	Theoretical study of the side reactions of the catalytic conversion of ethanol to butadiene on metal oxide catalysts	Catalysis Communications 149 (2021) 106239	2020/11/18	有
94	永井 哲郎、弦巻 周平、浦野 諒、篠 田 渉、岡崎 進	Position-Dependent Diffusion Constant of Molecules in Heterogeneous Systems as Evaluated by the Local Mean Squared Displacement	J. Chem. Theory Comput. 2020, 16 (12) 7239–7254	2020/11/29	有
95	山田 保誠	電費を抑えるスマートウイン ドウに向けた調光材料の開 発	月刊 車載テクノロジー 2 020年 11月号, vol.8, No.2, pp.54–57	2020/11/30	無
96	安岡 紀哉、松田 哲也、澤田 有弘、 松本 純一	積層ずれを有する平織複合 材料の3スケール樹脂浸透 解析	CMD2020 計カスクウェア 研究報告集, Report No. 5– 07	2020/12/7	無
97	永島 裕樹、Julien Trébosc、今 喜 裕、Olivier Lafon、 Jean-Paul Amoureux	Efficient transfer of DNP- enhanced <sup>1</sup> H magnetization to half-integer quadrupolar nuclei in solids at moderate spinning rate	Magn Reson Chem, 2021, 59(9–10):920–939, DOI: 10.1002/mrc.5121	2020/12/10	有
98	村山 宣光	超先端材料超高速開発基盤 技術プロジェクトの挑戦	セラミックデータブック2020 (工業製品技術協会), pp49– 55	2020/12/10	無

99	中陳 巧勤	人工知能(AI)活用による新材料開発実験回数的大幅低減技術	自動車技術, 2021, 75 (2), 61-66	2021/2/1	無
100	Chiho Katagiri, Takayuki Miyamae, Hao Li, Fangyuan Yang, Steven Baldelli	Direct imaging of electric field behavior in 2,7-diphenyl[1]benzo-thieno[3,2-b][1]benzothiophene organic field-effect transistors by sum-frequency generation imaging microscopy	Phys. Chem. Chem. Phys., 2021, 23, 4944-4950	2021/2/5	有
101	Yuichi Masubuchi, Dimitris Vlassopoulos, Giovanni Ianniruberto, Giuseppe Marrucci	Wall slip in primitive chain network simulations of shear startup of entangled polymers	J. Rheol. , 2021, 65(2), 213-223	2021/2/19	有
102	南 拓也、中陳 巧勤、藤田 俊雄	機械学習の活用による樹脂設計の効率化	科学と工業, 2021, 95(3), 84-89	2021/2/28	無
103	中陳 巧勤、藤田 俊雄、南 拓也	AIによるフレキシブル透明フィルム開発実験回数の低減	プラスチック, 2021年3月号(日本工業出版), 42-46	2021/3/1	無
104	安岡 紀哉、松田 哲也、澤田 有弘、松本 純一	Resin permeability analysis for woven composites using a three-scale homogenization method	14th WCCM-ECCOMAS Congress 2020, 1-8, DOI: 10.23967/wccm-eccomas.2020.287	2021/3/11	有
105	Bo Zhu, Jing Lu, Shigeyoshi Sakaki	Catalysis of Core-shell Nanoparticle M@Pt (M = Co and Ni) for Oxygen Reduction Reaction and its Electronic Structure in Comparison to Pt Nanoparticle	J. of Catalysis, Volume 397, Pages 13-26, DOI: 10.1016/j.jcat.2021.02.031	2021/3/11	有
106	乗添祐樹、川勝年洋、森田裕史	Molecular-shape- and size-independent power-law dependence of percolation thresholds on radius of gyration in ideal molecular systems	EPL, 133 (2021) 36003	2021/3/29	有



107	橋口雄太、藤谷忠博、中村功、渡辺文博、Sharmin Sultana Poly、本間徹生、徳永信、村山美乃、辻哲郎、川口達也	Continuous-flow Synthesis of Pd@Pt Core-shell Nanoparticles	Colloid Surf A Physicochem. Eng. Asp., 620 (2021) 126607	2021/4/8	有
108	青柳岳司	Evaluation of the Slip-Spring Dissipative Particle Dynamics Code for Practical Studies in Polymer Rheology	Nihon Reoroji Gakkaishi Vol.49, No.2, 79-86	2021/4/15	有
109	S. Poly、橋口雄太、A. Sultana、中村功、清水研一、安村俊作、藤谷忠博	Flow reactor approach for the facile and continuous synthesis of efficient Pd@Pt core-shell nanoparticles for acceptorless dehydrogenative synthesis of pyrimidines from alcohols and amidines	Applied Catalysis A, General 619 (2021) 118158	2021/4/15	無
110	土居英男、高橋和義、青柳岳司	Searching local order parameters to classify water structures of ice Ih, Ic, and liquid	J. Chem. Phys. 154, 164505 (2021)	2021/4/23	有
111	Marius Buerkle、Umesha Perera、中村恒夫、川田正晃、浅井美博	Deep learning approach to first-principles transport simulations	Phys. Rev. Lett. 126, 177701 (2021)	2021/4/27	有
112	Mark Z. Griffiths and Wataru Shinoda	Analyzing the Role of Surfactants on the Colloidal Stability of Nanoparticles in Oil Through Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulations	J. Phys. Chem. B 2021, 125, 23, 6315-6321	2021/5/14	有
113	Shunya Minami, Song Liu, Stephen Wu, Kenji Fukumizu, Ryo Yoshida	A general class of transfer learning regression without implementation cost	Proceedings of the AAAI Conference on Artificial Intelligence, 35(10), 8992-8999	2021/5/18	有

114	濱田信次、後藤仁志	ソフトクリスタルの機械特性評価のための結晶構造最適化法	日本結晶学会誌 63, 63-68 (2021)	2021/5/31	有
115	石坂 悠介、新井南都美、松本 和弘、永島 裕樹、竹内 勝彦、深谷 訓久、安田 弘之、佐藤 一彦、崔 準哲	Bidentate Disilicate Framework for Bis-Grafted Surface Species	Chem. Eur. J. 2021, 27, 12069.12077	2021/6/21	有
116	土居英男、高橋和義、青柳岳司	Searching for local order parameters to classify water structures at triple points	J Comput Chem. 2021;42:1720-1727.	2021/6/24	有
117	稲葉 工、森本 崇宏、山崎 悟志、岡崎 俊也	Electron scattering by Friedel oscillations in carbon nanotubes	Nano Res. 2022, 15(2): 889-897	2021/6/25	有
118	保岡悠、高橋和義、福田順一、青柳岳司	Molecular architecture dependence of mesogen rotation during uniaxial elongation of liquid crystal elastomers	Polymer 229 (2021) 123970	2021/6/30	有
119	松尾英明、崔準哲、藤谷忠博、藤田賢一	Carboxylative Cyclization of a Propargylic Amine with CO <sub>2</sub> Catalyzed by a Silica-Coated Magnetite	Chemical and Pharmaceutical Bulletin, 2021 Volume 69 Issue 7 Pages 698-701	2021/7/1	有
120	新家雄、日座操(横浜ゴム)、藤谷忠博、宮澤朋久(産総研)	High-throughput development of highly active catalyst system to convert bioethanol to 1,3-butadiene	React. Chem. Eng., 2021,6, 1381-1385	2021/7/9	有
121	Yuichi Masubuchi, Giovanni Ianniruberto, and Giuseppe Marrucci	Primitive Chain Network Simulations for Uniaxial Elongation of Entangled Melts of Symmetric and Asymmetric Star Polymers	Nihon Reoroji Gakkaishi Vol.49, No.3, 171-178	2021/7/15	有
122	Liu C, Fujita E, Katsura Y, Inada Y, Ishikawa. A, Tamura R, Kimura K, Yoshida R	Machine Learning to Predict Quasicrystals from Chemical Compositions	Adv. Mater. 2021, 33, 2102507	2021/7/19	有

123	岡田 雅希(先端素材高速開発技術研究組合) 奥 智治(株式会社日本触媒/技術委員/登録研究員) 竹内 勝彦、松本和弘、崔 準哲 (AIST)	Hydroxycarbonylation of Alkenes with Formic Acid Using RhI(CO)(PPh <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> and Quaternary Ammonium Iodide Salts	Org. Biomol. Chem., 2021,19, 8727-8734	2021/7/28	有
124	Ling Y. Lyu, Takeshi Hanada, Naohiro Yamahira, Jun Morita, Ryota Yamamoto, Ken Itomi, Takumi Adachi, Sho Kubouchi, Shin Horiuchi	Spatial distribution of silica fillers in phase-separated rubber blends investigated by three-dimensional elemental mapping	J Appl Polym Sci. 2021;138:e51443	2021/7/27	有
125	南 拓也、中陳巧勤、藤田俊雄	ポリマーの効率設計に向けたマテリアルズ・インフォマティクスの活用	マテリアルズインフォマティクスのためデータ作成とその解析、応用事例 第5章 第1節	2021/7/30	無
126	矢田 陽、佐藤一彦	人工知能を用いた触媒反応収率の予測	マテリアルズ・インフォマティクスのためのデータ構築技術と材料開発へのアプローチ (技術情報協会)	2021/7/31	無
127	北畑 雅弘	博士論文紹介「両親媒性分子会合体/溶液および固体高分子/溶液間に働く界面張力の分子論的研究」	分子シミュレーション学会誌「アンサンブル」Vol.23, No.3, July2021(通巻5号)	2021/7/31	無
128	加藤 隆一、納谷昌実、笠畑 尚喜、佐藤 主税、越野雅至、末永 和知、長谷川 雅考	Thermal management function of graphene under cryogenic temperature	Carbon 183 (2021) 970e976	2021/8/3	無

129	清水太陽、中島秀朗、小橋和文、山田健郎、畠賢治	Seamless control of the electrical property of carbon nanotube buckypapers by a simple mixing approach	Materials Letters 304 (2021) 130620	2021/8/8	有
130	本田隆(ADMAT)、室賀駿(AIST)、中島秀朗(AIST)、清水太陽(AIST)、小橋和文(AIST)、森田裕史(AIST)、岡崎俊也(AIST)、畠賢治(AIST)	Virtual Experimentations by Deep Learning on Tangible Materials	Commun Mater 2, 88 (2021)	2021/8/30	有
131	加藤 悠人、堀部雅弘	Broadband Complex Permittivity and Conductivity Measurements in the Millimeter-Wave Bands Over Variable Temperatures Using a Balanced-Type Circular Disk Resonator	Appl. Phys. Lett. 119, 092902 (2021)	2021/8/30	有
132	吉田 亮	巻頭言「特集 マテリアルズインフォマティクスの最前線」について	統計数理(2021)第 69 巻 第 1 号 1-3	2021/9/1	無
133	高橋和義、青柳岳司、福田順一	Multistep nucleation of anisotropic molecules	Nature Communications volume 12, Article number: 5278 (2021)	2021/9/6	有
134	清水太陽、小橋和文、中島秀朗、室賀駿、山田健郎、岡崎俊也、畠賢治	Supercapacitor Electrodes of Blended Carbon Nanotubes with Diverse Conductive Porous Structures Enabling High Charge/Discharge Rates	ACS Applied Energy Materials 2021, 4, 9, 9712-9720	2021/9/7	有

135	Shun Muroga	Deep learning virtual experiments for complex materials with non-periodic, undefinable, hierarchical, tangible structures -Overcoming the limitations of conventional materials and process informatics-	Nature Portfolio Device and Materials Engineering Community	2021/9/17	有
136	矢田 陽	機械学習を用いた均一系触媒反応の予測	触媒 63 巻 5 号(2021) 288 頁～ 293 頁	2021/10/10	無
137	土居英男、高橋和義、青柳岳司	Mining of effective local order parameters to classify ice polymorphs	J. Phys. Chem. A 2021, 125, 9518–9526	2021/10/22	有
138	齋藤健	直接数値シミュレーションによる $\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 粒子/PMMA 樹脂複合材料の粒子分散構造と界面相に関する研究	分子シミュレーション学会誌「アンサンブル」Vol.23, No.4, Oct 2021 (96 号)	2021/10/31	無
139	ADMAT 齋藤 健、産総研 佐藤公泰、産総研 富永雄一、産総研 今井祐介	Computational prediction of microstructures in $\alpha$ -alumina/PMMA composites and its experimental verification	Polymer Composites, 2022; 43: 339–346	2021/11/5	有
140	岡田 雅希(先端素材高速開発技術研究組合) 奥 智治(株式会社日本触媒/技術委員/登録研究員) 竹内 勝彦、松本和弘、崔 準哲(AIST)	ギ酸を原料とするカルボン酸合成技術の開発	月刊『クリーンエネルギー』2021 年 11 月号 pp.14–20	2021/11/5	無
141	森田裕史、本田隆、室賀駿、中島秀朗、清水太陽、小橋和文、岡崎俊也、畠賢治	カーボンナノチューブ不織膜における深層学習を用いた仮想実験	日本膜学会誌 11 月号 2021 年 46 巻 6 号 p. 353–358	2021/12/12	無

142	高田新吾 (ADMAT/DIC)・鈴木徹(DIC)・○竹林良浩・小野巧・依田智(産総研)	Machine learning assisted optimization of blending process of polyphenylene sulfide with elastomer using high speed twin screw extruder	Scientific Reports, 11, Article number: 24079 (2021)	2022/12/15	有
143	産総研 佐藤公泰、産総研 富永雄一、産総研 堀田裕司、産総研 今井祐介	A facile method to prepare layered solid fillers-based polymer composites with isotropic thermal conductivity	Composites Part A 154 (2022) 106776	2021/12/16	有
144	松井 正冬、中村恒夫	Plasmon Resonance and Enhanced Near-Field of Anisotropic Nanoparticle Systems: Unified Analysis by Factorization of Light-Excited Dipole Distribution	Phys. Chem. Chem. Phys., 2022, 24, 2614	2021/12/21	有
145	稲葉 工, 森本 崇宏, 岡崎 俊也	Transport property characterization of sparse CNT networks via AFM images	Surf Interface Anal.2022;1-9	2021/12/28	有
146	横浜ゴム株式会社 (日座操、新家雄) 産業技術総合研究所(藤谷忠博)	持続可能な資源からタイヤをつくる	月刊『クリーンエネルギー』 2022年1月号 pp.25-31	2022/1/5	無
147	Hiroto Ozaki, Takeshi Aoyagi	Prediction of steady flows passing fixed cylinders using deep learning	Scientific Reports volume 12, Article number: 447 (2022)	2022/1/10	有
148	土居英男、高橋和義、青柳岳司	Screening toward the Development of Fingerprints of Atomic Environments Using Bond-Orientational Order Parameters	ACS Omega 2022, 7, 5, 4606-4613	2022/1/24	有

149	Ryo Tamura, Momo Matsuda, Jianbo Lin, Yasunori Futamura, Tetsuya Sakurai, Tsuyoshi Miyazaki	Structural analysis based on unsupervised learning: Search for a characteristic low-dimensional space by local structures in atomistic simulations	Phys. Rev. B 105, 075107	2022/2/3	有
150	Takayuki Watanabe, Satoshi Yamazaki, Satoshi Yamashita, Takumi Inaba, Shun Muroga, Takahiro Morimoto, Kazufumi Kobashi and Toshiya Okazaki	Comprehensive characterization of structural, electrical, and mechanical properties of carbon nanotube yarns produced by various spinning methods	Nanomaterials 2022, 12(4), 593	2022/2/10	有
151	(ADMAT)安宅龍明	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト概要	日本ゴム協会誌 第95巻 第2号 31-33(2022)	2022/2/20	有
152	横浜ゴム株式会社 (日座操、新家雄) 産業技術総合研究所(藤谷忠博)	ハイスループットシステムを用いたエタノールからブタジエン合成の高活性触媒の開発	日本ゴム協会誌 第95巻 第2号 34-39(2022)	2022/2/20	有
153	足立拓海・糸見健・山本亮太・窪内翔・森田淳・堀内伸・森田裕史	機能性合成ゴム材料におけるインフォマティクス研究	日本ゴム協会誌 第95巻 第2号 40-46(2022)	2022/2/20	有
154	本田 隆	Soft Blends Analyze(SOBA)の開発とCNT不織膜の仮想生成	日本ゴム協会誌 第95巻 第2号 47-53(2022)	2022/2/20	有
155	保岡悠、田頭健司、高橋和義、土居英男、青柳岳司	液晶エラストマーの力学特性に関するインフォマティクス解析	日本ゴム協会誌 第95巻 第2号 54-59(2022)	2022/2/20	有
156	青柳 岳司	機能性高分子データプラットフォーム概要	日本ゴム協会誌 第95巻 第2号 60-65(2022)	2022/2/20	有

157	千賀 亮典、林 永昌、森下 茂幸、加藤 隆一、山田 貴壽、長谷川 雅考、末永 和知	Imaging of isotope diffusion using atomic-scale vibrational spectroscopy	Nature vol. 603, pp.68-72 (2022)	2022/3/2	有
-----	---	--	----------------------------------	----------	---



【学会発表・講演】 459 件

番号	発表者	タイトル	会議名	発表年月
1	A.K. Sharma,W.M.C. Sameera, M.Nakamura, K. Morokuma	Computational Insights on the Mechanism and the Origin of Enantioselectivity in Fe-catalyzed Cross-Coupling Reaction	第 10 回分子科学討論会 2016	2016/9/15
2	Atsushi Ebata, Junpei Kuwabara, Takaki Kanbara	Polymerization of algal oil model compounds using metal complex catalysts (Poster)	TGSW (Tsukuba Global Science Week) 2016	2016/9/17
3	松井正冬、榊茂好	金属クラスターと各種担体表面との相互作用の理論的研究	第 118 回触媒討論会	2016/9/22
4	MOTOKO KOTANI	Topology in Materials		2016/9/26
5	Ying Chen, Arkapol Saengdeejing , Tetsuo Mohri	An integrated study based on first-principles on elastic properties and effect of Ni-doping in Fe-Si alloy (Invited)	Mendeleev Congress	2016/10/26
6	江幡篤、桑原純平、 神原貴樹	金属錯体触媒を用いた藻類オイルモデル化合物の重合と評価(ポスター)	第 31 回高分子学会関東支部茨城地区若手の会	2016/11/11
7	小野瀬悠佑、大嶽和久、桑原純平、 神原貴樹	藻類オイルモデル化合物の重合及び構造制御(ポスター)	第 31 回高分子学会関東支部茨城地区若手の会	2016/11/11
8	檜貝信一	特別講義 超先端材料超高速基盤技術プロジェクト(超超プロ)	豊橋技術科学大学 知能・情報工学系	2016/11/17
9	榊茂好	触媒の理論化学 /計算化学研究:元素戦略的触媒開発へ貢献を目指して	第四回元素戦略に基づいた触媒設計シンポジウム	2016/11/25
10	宮崎剛	Large-scale first-principles study of Si/Ge core-shell nanowires using a linear-scaling technique.	18th Int. WS on Comput. Physics and Materials Science: Total Energy and Force methods	2017/1/12-14

11	檜貝信一	産業界からのマテリアルズ・インフォマティクス技術への大いなる期待-超超プロ・Hi-Mat の紹介-	NIMS MI2I ワークショップ	2017/1/25
12	林建波	Linear-scaling DFT study on the structural optimization and electronic properties of real size Ge/Si core-shell nanowires (Invited)	Special Session of International Workshop on Computational Science 2017	2017/2/15-18
13	安宅龍明	先端素材開発の高速化 への新しい取り組み-先端素材高速開発技術研究組合のご紹介-	国際ナノテクノロジー総合展・技術会議	2017/2/17
14	檜貝信一	産業界における高精度材料計算科学への取り組み-第一原理的計算を中心に-	RIST 第3回材料系ワークショップ	2017/2/23
15	奥田勇樹・川島英久・崔準哲・木島正志	タングステンを触媒とした過酸化水素によるスクアレンのエポキシ化反応(ポスター)	日本化学会第97春季年会(2017)	2017/3/17
16	金枝慧・川島英久・木島正志	藻類炭化水素オイルの酸化的開裂(ポスター)	日本化学会第97春季年会(2017)	2017/3/17
17	北畑雅弘	Hi-Mat Project: Introduction of Research Association of High-Throughput Design and Development for Advanced Functional Materials	Fraunhofer SCAI, IAIS, IWM	2017/3/20, 23
18	武山彰宏,岡田昌久,山田保誠,吉村和記,田澤真人	タングステンをドーブした VO2 ナノ粒子の光学特性	電気化学会第84回大会	2017/3/26
19	森田裕史	インフォマティクス技術を考えて次世代高分子材料設計ソフトウェアシステム	高分子学会 17-1 ポリマ-フロンティア 21 (依頼講演)	2017/4/17
20	時崎高志	産総研におけるナノ計測技術の開発とその活用	EIDEC ワークショップ-先端ナノ計測技術の革新とその産業展開-	2017/5/24

21	森田裕史	インフォマティクス技術を取り入れた次世代高分子材料設計法の展望	第 66 回高分子年次大会 特別セッション「高分子・今・未来」(招待講演)	2017/5/29
22	川崎一則,堀内 伸, 伯川秀樹,山平尚廣, 東海直治,懸橋理枝	クライオ走査型電子顕微鏡を用いたアミドアミノキンド型界面活性剤の会合体形成の解析	日本顕微鏡学会第 73 回 学術講演会	2017/6/1
23	宮澤朋久,田邊祐介, 崔 隆基,日座 操,藤谷忠博	天然資源からゴム材料の研究開発	第 6 回 JACI/GSC シンポジウム	2017/7/4
24	長谷川雅考,加藤隆一,沖川侑揮,山田貴壽,水谷 亘, 石原正統	Development of graphene and related materials in AIST	Graphene Malaysia 2017	2017/7/11
25	長岡央磨, 松田哲也, 大垣 翼, 久保 凱, 佐藤仁彦	均質化マクロ構成モデルに基づく平織積層板のクリープ解析	日本機械学会第 25 回茨城講演会	2017/8/29
26	Maneeporn Pripat, 畑中美穂,諸熊圭治	Theoretical Investigation of Catalytic Hydrocarboxylation of Olefins with CO <sub>2</sub>	第 11 回分子科学討論会 2017 仙台	2017/9/15
27	北畑雅弘,Taddese Tseden,岡崎 進	PVDF と溶媒の親和性に関する分子論的研究:全原子分子動力学シミュレーションによる PVDF 表面と溶媒との接触角計算	第 11 回分子科学討論会 2017 仙台	2017/9/15
28	Haiya Yang, Tomoya Sato, Masato Miyashita, and Takayuki Miyamae	A Sum-Frequency Spectroscopic Study at the Semiconductor-Insulator Interface Of Organic Filed Effect Transistors During Operation	第 11 回分子科学討論会	2017/9/15-18
29	川島英久,梅沢真実,齊藤 萌,木島正志	ヒドロシリル化反応による藻類炭化水素ポトリオコッセンの高分子化	第 66 回高分子討論会	2017/9/20
30	青柳岳司	ハイブリッド粗視化分子動力学によるポリマーブレンド界面シミュレーション	第 66 回高分子討論会	2017/9/21

31	Tseden Taddese, Masahiro Kitabata, Susumu Okazaki	Investigation of the equilibrium thermodynamic properties of the poly(vinylidene fluoride)/N-methyl-2-pyrrolidone/water ternary system: all-atom molecular dynamics simulation	第 66 回高分子討論会	2017/9/21
32	檜貝信一	無機セラミックス材料系産業分野におけるマテリアルズ・インフォマティクスへの取り組み	日本化学会 平成 29 年度関東支部講演会「マテリアルズ・インフォマティクスと AI を用いたものづくり」	2017/9/29
33	長岡央磨, 久保 凱, 松田哲也, 佐藤 仁彦, 荒井政大	トリプルスケール均質化法を用いた平織 GFRP 積層板のクリーブ解析	日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス	2017/10/7
34	大垣 翼、松田哲也	均質化マクロ構成モデルを用いた織物複合材料の非連続弾-粘塑性マルチスケール構造解析	日本機械学会 M&M2017 材料力学カンファレンス	2017/10/8
35	永澤嘉浩、今井祐介、富永雄一、堀田裕司	アルミナスラリーの乾燥工程が凝集体の解砕特性に及ぼす影響	粉体工学会 2017 年度 秋季研究発表会	2017/10/10,11
36	Gai Kubo, Tetsuya Matsuda	Multiscale analysis of damage development and strength for various woven composites with laminate mis-alignment	2nd International Conference on Computational Engineering and Science for Safety and Environmental Problems	2017/10/18
37	Haiya Yang, Tomoya Sato, Masato Miyashita, and Takayuki Miyamae	Studying the Semi-conductor-Insulator Interface in Organic Field Effect Transistors by Electric-field induced Sum-Frequency Spectroscopy	The 8th International Symposium on Surface Science (ISSS-8)	2017/10/22-26
38	本田暁紀、井藤浩志	Applying Second and Third Resonance Frequencies to Surface Potential Measurement of Kelvin Probe Force Microscopy	ISSS-8	2017/10/22-26

39	田頭健司、青柳岳司、高橋和義	粗視化モデルを用いた液晶エラストマーの緩和挙動解析	第7回ソフトマター研究会	2017/10/23-25
40	長谷川雅考	Development of plasma CVD graphene AIST	Graphene Workshop 2017	2017/11/7
41	檜貝信一	村田製作所における計算材料科学技術、および材料インフォマティクス技術への取り組み	紛体粉末冶金協会 平成29年度秋季大会「(仮)マテリアルズ・インフォマティクス・AI 関連」	2017/11/9,10
42	依田 智、武 学麗、古屋 武	急減圧が可能な高圧装置を用いたポリマー発泡体の作成と微細構造への影響	第26回ポリマー材料フォーラム	2017/11/16
43	田頭健司、青柳岳司、高橋和義	粗視化分子動力学計算を用いた液晶エラストマーの相転移挙動解析	第26回ポリマー材料フォーラム	2017/11/16,17
44	山田貴壽、沖川侑希、長谷川雅考	CVD グラフェン低抵抗化に向けた転写方法の改善	第31回ダイヤモンドシンポジウム	2017/11/20
45	村山宣光	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクトの概要	第3回キャタリストインフォマティクスシンポジウム	2017/11/22
46	矢田 陽	機械学習による触媒活性の予測技術の開発	第3回キャタリストインフォマティクスシンポジウム	2017/11/22
47	川島英久・木島正志	藻類炭化水素ボトリオコクセンの化学変換	第356回生存圏シンポジウム「第14回持続的生存圏創成のためのエネルギー循環シンポジウム-マイクロ波高度利用と先端分析化学-第7回先進素材開発解析システム(ADAM)シンポジウム-マイクロ波高度利用生存圏フラッグシップ共同研究-」	2017/11/27
48	田頭健司、青柳岳司、高橋和義	電荷を導入した液晶エラストマーモデルの相転移挙動解析	第31回 分子シミュレーション討論会	2017/11/29-12/1
49	依田 智、田積皓平、武 学麗、古屋 武	Development of super high-pressure system for 100 MPa with rapid depressurization valve and preparation of polymer foam using the system.	Super Green 2017	2017/12/1

50	北畑雅弘, Taddese Tseden, 岡崎 進	PVDF と溶媒の親和性に関する分子論的研究: PVDF 表面と溶媒との接触角計算	第 31 回分子シミュレーション討論会	2017/12/1
51	檜貝信一	先端的機能性材料の創成を目指した計算機シミュレーション技術、およびマテリアルズ・インフォマティクス技術への取り組みと期待 / Activities and expectations on computational simulation and materials informatics techniques for creation of advanced functional materials	第 27 回 日本 MRS 年次大会	2017/12/5-7
52	山田貴壽、沖川侑揮、長谷川雅考	Potassium doped bilayer graphene	IEEE International Nanoelectronics Conference 2018	2018/1/3
53	檜貝信一	依頼講演「電子セラミックス産業界からの数学者への大いなる期待」	AIMaP 公開シンポジウム「数学と産業の協働ケーススタディ」	2018/1/20
54	毛利哲夫	Post-K supercomputer projects in Japan and First principles calculations of alloy phases	Monash University セミナ	2018/1/23
55	Butera Valeria, 崔隆基, 田邊祐介, 宮澤朋久, 藤谷忠博	Catalytic Conversion of Ethanol to Butadiene: A Detailed DFT Investigation of the Complex Reaction Mechanism	Atlantic Basin Conference on Chemistry	2018/1/24
56	山本昌一、武山彰宏、山田保誠	金属絶縁体相転移に伴う VO <sub>2</sub> ナノ粒子の光学特性の評価	クロモジェニック研究会 (電気化学会・クロモジェニック研究会主催)	2018/1/26
57	宮澤朋久, 田邊祐介, 崔隆基, 日座操, 藤谷忠博	天然資源からゴム材料の研究開発	平成 29 年度産総研材料・化学シンポジウム	2018/2/2
58	矢田 陽	機械学習による触媒活性の予測技術の開発	平成 29 年度材料・化学シンポジウム	2018/2/2

59	宮澤朋久, 田邊祐介, 崔 隆基, 日座 操, 藤谷忠博	天然資源からゴム材料の研究 開発	H29 年度産総研中国セン ターシンポジウム in 岡山	2018/2/21
60	矢田 陽	機械学習による触媒活性の予 測技術の開発	平成29年度 産総研中 国センターシンポジウム in 岡山	2018/2/21
61	檜貝信一	依頼講演「将来のセラミック 材料の研究開発に向けて」	第 45 回ニューセラミック スセミナー『これからの材 料開発の在り方 ―熱を 制御するセラミックス―』	2018/2/26
62	武山 彰宏, 岡田 昌久, 山田 保誠, 吉村 和記, 田澤 真人	測定手法による VO <sub>2</sub> ナノ粒子 の相転移温度の相違	電気化学会第 85 回大会	2018/3/9
63	渡邊敬之, 山下 智, 森本崇宏, 小橋 和文, 岡崎俊也	Systematic studies on structures and properties of commercialized CNT fibers	フラーレン・ナノチューブ・ グラフェン学会	2018/3/10-12
64	本田 隆	山形大学工学部でのソフトマタ ーの国際会議 2018 “SCF calculation of particle- reinforced composites”	Bridging the Scales in Soft Matter Simulations	2018/3/15
65	崔 隆基, Butera Voleria, 田邊祐介, 宮澤朋久, 藤谷忠 博	Catalytic Conversion of Ethanol to Butadiene: A Detailed DFT Study of the Complex Reaction Mechanism	International Symposium: Computational Chemistry (CC) in ICCMSE 2018	2018/3/16
66	本田暁紀, 井藤浩 志	高次共振周波数を用いた KPFM の定量性	応用物理学会	2018/3/17
67	宮下真人, 三浦俊 明, 下位幸弘	有機半導体 C <sub>n</sub> -BTBT の溶解 度シミュレーション	第 65 回応用物理学会 春季学術講演会	2018/3/17-20
68	Haiya Yang, Masato Miyashita, and Takayuki Miyamae	Charge Accumulations in OFET Observed by SFG Spectroscopy	第 65 回応用物理学会春 季学術講演会	2018/3/17-20
69	本田 隆	SCF 法を用いた粒子ファイ ー分散構造の大規模シミュ レーション	2017 年度 高分子基礎物 性研究会・高分子計算機 科学研究会合同討論会	2018/3/20

70	藤田賢一、藤井亮、崔 準哲	マグネタイト固定化炭酸水素イミダゾリウムの合成と触媒反応への適用	日本化学会第 98 春季年会	2018/3/20
71	藤田賢一、藤井亮、崔 準哲	四級アンモニウム塩を触媒としたプロパルギルアミンのカルボキシル化-環化反応	日本化学会第 98 春季年会	2018/3/20
72	乗添祐樹、川勝年洋、森田裕史	高分子モンテカルロシミュレータの開発	2017 年度高分子基礎物性研究会・高分子計算機科学研究会 合同討論会	2018/3/20
73	毛利哲夫	Post-K supercomputer projects in Japan and Multiscale First principles calculations	EEIMVR-UFF(フルミネンセ連邦大学)	2018/3/20
74	毛利哲夫	Post-K supercomputer projects in Japan and Multiscale First principles calculations	国立技術研究所、Brazil	2018/3/21
75	矢田 陽、永田賢二、安藤康伸、佐藤一彦	機械学習によるタングステン触媒エポキシ化反応の収率予測	第 98 回日本化学会春季年会	2018/3/22
76	Jianbo Lin, David Bowler and Tsuyoshi Miyazaki	Large-scale first principle molecular dynamics on Si/Ge interface system I	日本物理学会 第73回 年次大会	2018/3/24
77	田村 亮, 林 建波, 宮崎 剛	機械学習による液体シリコン・ゲルマニウムの量子力学的力場の推定	日本物理学会 第73回 年次大会	2018/3/25
78	南 拓也、奥野好成	Number Density Descriptor on Extended-Connectivity Fingerprints Combined with Machine Learning Approaches for Predicting Polymer Properties	2018 MRS Spring Meeting & Exhibit	2018/4/2
79	佐藤一彦	AI で触媒反応の収率を予測～キャタリストインフォマティクス(触媒化学と情報科学の融合)を活用した触媒の発見への可能性～	ファインケミカルジャパン 2018: 化学 x IT セミナー	2018/4/18



80	依田 智、田積皓 平、武 学麗、古屋 武	Nanocellular foaming with rapid depressurization system from 100 Mpa	12th International Symposium on Supercritical Fluids (ISSF2018)	2018/4/22
81	Jing Lu, Kazuya Ishimura(分子研) and Shigeyoshi Sakaki	Capability of Pt55 and Ru13@Pt42 Catalysts toward the Oxygen Reduction Reaction: A First-principle Study	第 21 回理論化学討論会	2018/5/15
82	青柳岳司	高分子材料開発におけるシミ ュレーションとインフォマティク スの連携	一般社団法人近畿化学 協会 エレクトロニクス部 会 平成30年度第1回研 究会	2018/5/16
83	田頭健司、青柳岳 司	産学官連携で推進する研究開 発の紹介 ～超先端材料超高速開発基 盤技術プロジェクト～	九大物理 物性基礎論コ ロキウム	2018/5/22
84	(産総研)堀内 伸、 伯川秀樹、董 分勇 (杭州師範大学)李 勇仁	STEM による PVDF/PLLA 反 応性ブレンドの相容化機構の 解析	第61回高分子学会年次 大会	2018/5/24
85	(産総研)山平尚 廣、董 分勇、伯川 秀樹、堀内 伸 (杭州師範大学)、 李勇仁	EELS による高分子試料の化 学状態識別	日本顕微鏡学会第 74 回 学術講演会	2018/5/30
86	檜貝信一	依頼講演「セラミック材料分 野における計算科学およびデ ータ科学技術による研究開発 への取り組み」	日本鉄鋼協会・日本金属 学会 関西支部 第 1 回 マテリアルデザイン研究 会「鉄鋼・アルミニウム・ セラミックスでの先端材料 研究・開発」	2018/5/30
87	田越宏孝	超超プロジェクトの概要と活動 状況(依頼講演)	第 63 回固体 NMR・材料 フォーラム	2018/5/31
88	宮澤 朋久	エタノールからのブタジエン製 造触媒の研究開発	第 63 回固体 NMR・材料 フォーラム	2018/5/31

89	矢田 陽	機械学習を利用したタングステン触媒エポキシ化反応の収率予測	第 63 回固体 NMR・材料フォーラム	2018/5/31
90	田中真司	ポリマー担持型有機触媒の高感度固体 NMR による精密構造解析	第 63 回固体 NMR・材料フォーラム	2018/5/31
91	北 弘志(コニカミノルタ株式会社技術フェロー)	コニカミノルタにおける産学官連携の取り組みについて	第 12 回 有機光エレクトロニクス産業化研究会	2018/6/7
92	森田 淳	実験・シミュレーション・機械学習の連携に向けた OCTA システムの拡張	高分子計算機科学研究会	2018/6/11
93	矢田 陽、永田賢二、安藤康伸、松村太郎次郎、一関咲奈、佐藤一彦	機械学習による触媒反応の収率予測技術の開発	第 7 回 JACI/GSC シンポジウム	2018/6/15
94	堀部 雅弘、昆盛太郎、平野 育	Quantitative Measurement in Scanning Microwave Microscopy (走査型マイクロ波顕微鏡における定量計測)	91th ARFTG conference	2018/6/15
95	田積皓平、武 学麗、依田 智、古屋武	高圧条件下における PMMA 系樹脂の押出発泡挙動	成形加工学会第 29 年会	2018/6/20
96	Kenji Tagashira, Kazuaki Z. Takahashi, Hideo Doi, Jun-ichi Fukuda and Takeshi Aoyagi	Coarse-Grained Model of Liquid-Crystal Polymer with Efficient Electrostatic Interaction	CECAM Workshop	2018/6/25
97	本田 隆	SCF calculation of polymer composite materials	CECAM Workshop	2018/6/27
98	岡崎俊也	Nanotube-Length and Packing Density Dependences on Electrical and Mechanical Properties of Carbon Nanotube Fibres	First International Workshop on Multi-functional Nanocarbon Fibres	2018/6/28

99	堀部雅弘、平野育	Metrological Challenge for Scanning Microwave Microscopy (走査型マイクロ波顕微鏡の計測学的課題)	Conference on Precision Electromagnetic Measurements 2018	2018/7/10
100	渡邊敬之、山下智、森本崇宏、小橋和文、岡崎俊也	Study on electrical conductivities and mechanical strengths of different types of CNT fibers	NT18	2018/7/16-20
101	沖川侑揮、山田貴壽、桐原和大、谷口尚、渡邊賢治、長谷川雅考	Relationship between mobility and Raman spectra for CVD Graphene on exfoliated h-BN	NT18	2018/7/18
102	山田貴壽、沖川侑揮、長谷川雅考	Potassium doping of bilayer graphene for n-type conduction	International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications (CMCEE 2018)	2018/7/22
103	Gai Kubo, Tetsuya Matsuda, Yoshihiko Sato	A basic cell modeling method for homogenization analysis of plain-woven composites with nesting	13th World Congress on Computational Mechanics (WCCM XIII)	2018/7/22-27
104	ADMAT 田頭健司、AIST 青柳岳司、高橋和義、九州大学 福田順一	Coarse-Grained Molecular Dynamics Simulations of Charged Liquid-Crystal Elastomer	27th International Liquid Crystal Conference	2018/7/23
105	奥 智治	環境負荷低減を指向したフロ一反応用高機能性触媒の開発	第 56 回触媒研究懇談会	2018/7/26-27
106	岡田雅希、奥 智治、M.Puripat、畑中美穂、崔 準哲	Mechanistic study on hydroxycarbonylation of cycloalkene using homogeneous rhodium catalysts with PPh3 ligand	TOCAT8	2018/8/5-8
107	山田 貴壽、沖川 侑揮、長谷川雅考	Raman characterization of potassium doped n-type bilayer graphene	29th International Conference on Diamond and Nano Carbon (ICDCM 2018)	2018/9/2

108	田頭健司、高橋和義、土井英男、福田順一、青柳岳司	粗視化分子動力学計算を用いた液晶エラストマーの力学特性解析	2018 年日本液晶学会討論会	2018/9/4
109	柏木恒雄、陶 究、依田 智、中村恒夫	Flow synthesis of silver nanoparticles and its characterization of optical property	MTMS '18	2018/9/4-7
110	本田暁紀	半導体中のキャリア濃度校正への取り組み	JASIS コンファレンス	2018/9/7
111	毛利哲夫	Post-K supercomputer project in Japan and first-principles multiscale calculation on phase transformation [keynote]	International Frontier Workshop on Advanced Metallic Materials, Central South University	2018/9/9-10
112	Jing Lu、石村和也(分子研)、榑 茂好	First-Principle Study of Pt55 and Core-Shell Ru13@Pt42 Catalysts for Oxygen Reduction Reaction	第 12 回分子科学討論会 2018	2018/9/10
113	産総研:下位幸弘、三浦俊明 ADMAT: 宮下真人	有機半導体の溶解度シミュレーション: ジアルキル BTBT におけるアルキル鎖長依存性	日本物理学会 2018 年秋季大会	2018/9/11
114	Haiya Yang, Takayuki Miyamae, Masato Miyashita	Visualization of charge activities at the semiconductor/insulator interface of OFET during operation by SFG spectroscopy	第 12 回分子科学討論会 福岡	2018/9/12
115	森田 淳・山本亮太・齋藤 健・青柳岳司・森田裕史	複合材料の実験データ連携に向けた OCTA システムの拡張	第 67 回高分子討論会	2018/9/12-14
116	青柳岳司	定電圧印加下における粗視化分子動力学シミュレーション	第 67 回高分子討論会	2018/9/12-14
117	尾崎弘人、青柳岳司、山本量一	粒子が添加された 2 成分流体系の相分離シミュレーション	第 67 回高分子討論会	2018/9/12-14
118	田頭健司、高橋和義、土居英男、福田順一、青柳岳司	粗視化モデルを用いた液晶エラストマーの力学特性解析	第 67 回高分子討論会	2018/9/12

119	本田 隆	SCF calculation of polymer composite materials	第 67 回高分子討論会	2018/9/12
120	北畑雅弘, Taddese Tseden, 岡崎 進	分子動力学シミュレーションによる poly(vinylidene fluoride) (PVDF)結晶および非晶表面における濡れ性の分子論的研究	第 67 回高分子討論会	2018/9/12
121	Tseden Taddese, 北畑雅弘, 岡崎 進	The phase behavior of poly(vinylidene fluoride)/N-methyl-2-pyrrolidone/water ternary system: all-atom molecular dynamics simulations	第 67 回高分子討論会	2018/9/12
122	本田暁紀、井藤浩志	ケルビンプローブフォース顕微鏡による半導体キャリア濃度の定量性評価	日本分析化学会 第 67 年会	2018/9/12
123	矢田 陽	有機合成化学者が挑戦する AI×触媒研究	「AIと有機合成化学」第 2 回勉強会	2018/9/12
124	渡邊敬之	CNT 紡糸の特性と傾向	第 11 回ナノカーボン WG 全体会合	2018/9/13
125	渡邊敬之	市販 CNT 紡糸の特性と傾向	第 11 回ナノカーボン実用化推進研究会	2018/9/14
126	山田貴壽、沖川侑揮、長谷川雅考	カリウム添加二層グラフェンの電気特性	第 79 回応用物理学会秋季学術講演会	2018/9/18
127	Mark Griffiths, 篠田 涉	Developing a temperature-dependent coarse-grained model for non-ionic surfactant simulations	第 69 回コロイド及び界面化学討論会	2018/9/18
128	沖川侑揮、山田貴壽、桐原和大、谷口尚、渡邊賢治、長谷川雅考	熱 CVD グラフェン/h-BN の移動度とラマンスペクトルの相関関係	第 79 回応用物理学会秋季学術講演会	2018/9/19
129	上村直樹, 尾形修司, 原田洋介	TCP 分子と酸化鉄表面との第一原理分子動力学法による反応シミュレーション	日本金属学会 2018 年秋季講演大会	2018/9/19-21
130	ADMAT/DIC 鈴木 徹、AIST 依田 智	小型 2 軸押出機による試作プロセス高速化/広域化検討	化学工学会第 50 回秋季大会	2018/9/20

131	岡田雅希, 奥 智治, M.Puripat, 畑中美穂, 崔 準哲	ロジウム錯体触媒によるシクロアルケンのヒドロキシカルボニル化の反応機構に関する研究	第 122 回触媒討論会	2018/9/28
132	青柳岳司	シミュレーションによる高分子材料の高次構造と物性予測	SIP 高分子 MI クラスタシンポジウム	2018/10/1
133	矢田 陽	キャタリストインフォマティクス～触媒の自動発見を目指して～	第 2 回 産総研化学研究シンポジウム	2018/10/12
134	毛利哲夫	Post-K supercomputer project in Japan and first-principles multiscale calculation on phase transformation [invited]	ソウル大学セミナー	2018/10/16
135	山田貴壽、沖川侑揮、長谷川雅考	Potassium-doped stacked bilayer graphene	ACSIN-14	2018/10/22
136	矢田 陽	AI が予測する触媒活性	第 8 回 CSJ 化学フェスタ 2018	2018/10/25
137	南 拓也、川田正晃、藤田俊雄、室伏克己、内田 博、大森和弘、奥野好成	原料分類と機械学習を活用した熱硬化性樹脂物性予測	第 41 回ケモインフォマティクス討論会	2018/10/26
138	浅井美博	計算シミュレーションとデータ科学を活用する材料・反応設計	ケモインフォマティクス討論会	2018/10/26
139	崔 準哲	Direct Synthesis of Organic Carbamates from CO <sub>2</sub> and Amines	The Korean Society of Industrial and Engineering Chemistry(2018KSIEC Fall Meeting)	2018/11/1
140	奥野好成	昭和電工における AI 活用の取組み	CTC Forum 2018	2018/11/2
141	Tseden Taddese, 北畑雅弘, 岡崎 進	Investigation of the equilibrium thermodynamic properties of the poly(vinylidene fluoride)/N-methyl-2-pyrrolidone/water ternary system: all-atom molecular dynamics simulation	Joint Conference of EMLG/JMLG Meeting 2018	2018/11/4

142	Mark Griffiths, 篠田涉	Developing a temperature-dependent coarse grained model for aqueous non-ionic surfactant solution simulations	Joint Conference of EMLG/JMLG Meeting 2018	2018/11/4
143	Akira Yada, Kenji Nagata, Yasunobu Ando, Tarojiro Matsumura, Sakina Ichinoseki, Kazuhiko Sato	Machine Learning Approach for Prediction of Reaction Yield in Tungsten-catalyzed Epoxidation of Alkenes	8th SPJ-OCS	2018/11/9
144	山田貴壽、沖川侑揮、長谷川雅考	カリウム添加による二層グラフェンの n 型電気伝導	第 32 回ダイヤモンドシンポジウム	2018/11/14
145	沖川侑揮、山田貴壽、桐原和大、谷口尚、渡邊賢治、長谷川雅考	h-BN 上に転写した熱 CVD グラフェンの高移動度化への取り組み	第 32 回ダイヤモンドシンポジウム	2018/11/15
146	Akira Yada, Kenji Nagata, Yasunobu Ando, Tarojiro Matsumura, Sakina Ichinoseki, Kazuhiko Sato	Machine Learning Approach for Prediction of Reaction Yield with Simulated Catalyst Parameters	IFOC-9	2018/11/18
147	松村太郎次郎, 永村直佳, 赤穂昭太郎, 永田賢二, 安藤康伸	放射光走査型光電子顕微分光における スペクトルイメージングデータ解析の機械学習による高速化	2018 年日本表面真空学会学術講演会	2018/11/19
148	齋藤 健	実験及びデータ科学との連携を目指した OCTA の拡張	J-OCTA ユーザー会議 2018	2018/11/21
149	岡崎俊也	Evaluation methods for quality control of carbon nanotubes and graphene	2018 MRS Fall Meeting	2018/11/25-30
150	南 拓也、川田正晃、藤田俊雄、室伏克己、内田 博、大森和弘、奥野好成	Prediction of repeat unit of optimal polymer by Bayesian optimization	2018 MRS FALL MEETING & EXHIBIT	2018/11/25
151	ADMAT/DIC 鈴木徹、AIST 依田智、古屋 武	2 軸押出機のせん断速度が PPS 系フレッド構造に及ぼす影響	成形加工シンポジア '18	2018/11/26

152	森田裕史・田井哲朗・田積皓平・依田智・古屋 武	ナノ粒子の発泡制御効果に関する検討1:シミュレーションによる検証	成形加工シンポジア'18	2018/11/27
153	依田 智・田井哲朗・武 学麗・森田裕史・田積皓平・堀内 伸・董 文勇・新納弘之・小野 巧・古屋 武	ナノ粒子の発泡制御効果に関する検討:(2)バッチ発泡による検証	成形加工シンポジア'18	2018/11/27
154	渡邊敬之、山下智、森本崇宏、小橋和文、岡崎俊也	CNT の長さや密度に対するCNT 紡糸の導電率と引張強度の依存性	プラスチック成形加工学会第 26 回秋季大会	2018/11/27
155	齋藤 健、今井祐介、富永雄一、堀田裕司	無機フィラー分散樹脂材料作製時におけるフィラーの解砕・分散過程解明に向けた実験と数値シミュレーションの連携研究	粉体工学会 2018 年度秋期研究発表会	2018/11/28
156	北畑雅弘, Taddese Tseden, 岡崎 進	Poly(vinylidene fluoride) (PVDF)結晶および非晶表面における濡れ性の分子論的研究	第 32 回分子シミュレーション討論会	2018/11/28
157	田頭健司、高橋和義、土居英男、福田順一、青柳岳司	粗視化分子動力学計算を用いた側鎖型液晶エラストマーの力学特性解析	第 32 回分子シミュレーション討論会	2018/11/28
158	土居英男、田頭健司、高橋和義、福田順一、青柳岳司	機械学習を用いた粗視化シミュレーションにおける液晶分子の構造解析	第 32 回分子シミュレーション討論会	2018/11/29
159	山本亮太 森田 淳 森田裕史	ブレンドゴム中のフィラー分配挙動と有限要素法を用いた弾性率の相関研究	第 29 回エラストマー討論会	2018/11/29-30
160	宇部興産株式会社 横田 守久	セラミックナノ粒子材料の特性とその製造プロセス	国際粉体工業展東京 2018	2018/11/30
161	村山宣光	シミュレーションとAIを活用した新素材の高速開発	フロンティア材料フェア in 中部	2018/12/3
162	矢田 陽	人工知能で触媒反応の収率を予測	フロンティア材料フェア in 中部	2018/12/3
163	森田 淳・山本亮太	Machine Learning Method for the Determination of Young's Modulus of Composite	IPC2018	2018/12/4-7



		Materials using an Extended OCTA System		
164	土居英男, 田頭健司, 高橋和義, 福順一, 青柳岳司	Local Structure Analysis and Visualization for Liquid Crystals	IPC2018	2018/12/4-7
165	本田 隆	SCF calculation of polymer composite materials	IPC2018	2018/12/4
166	青柳岳司	Challenge to Soft Material Development by Computer Simulation and Informatics	IPC2018	2018/12/5
167	(産総研)山平尚弘、伯川秀樹、董分勇、堀内 伸、(杭州師範大)李勇仁	STEM-EDX/EELS analysis for locating the compatibilizers in PLLA/PVDF blends	IPC2018	2018/12/5
168	齋藤 健	Computational and Informatics Studies for Design of Fabrication Condition of Polymer-Filler Composite Material	IPC2018	2018/12/6
169	(産総研)董 分勇、伯川秀樹、山平尚弘、堀内 伸	Analysis of interdiffusion at PVDF and PMMA interface by STEM-EDX/EELS	IPC2018	2018/12/7
170	森田裕史	高分子材料シミュレーションシステム OCTA とマテリアルズインフォマティクス	QST 高崎サイエンスフェスタ 2018	2018/12/12
171	本田 隆	高分子複合材料の SCF 計算	2018 年度 高分子基礎物性研究会・高分子計算機科学研究会・高分子ナノテクノロジー研究会 合同討論会	2018/12/19
172	森田裕史	高分子計算科学とデータサイエンスの融合	2018 東海シンポジウム (高分子学会東海支部主催)	2019/1/10
173	毛利哲夫	Microstructure formation in alloys studied by First-	Wigner Research Inst. For Physics, Hungarian	2019/1/16

		principles Phase Field calculations	Academy of Science, Budapest, Hungary	
174	近田旬佑、檜貝信一 (ADMAT、村田製作所)、Yung-Ting Lee、尾崎泰助 (東大 物性研)、三宅隆 (産総研 CD-FMat)	Dielectric properties of polymers above GHz range: first-principles and molecular dynamics calculations	CSW2019	2019/1/16-18
175	渡辺文博、橋口雄太、中村功、藤谷忠博	白金系コアシェル触媒におけるコア金属の検討	SAT テクノロジー・ショー ケース 2019	2019/1/29
176	青柳岳司	機械学習とシミュレーションの融合による高分子材料の高次構造と物性の予測	nano tech 2019	2019/2/1
177	矢田 陽	キャタリストインフォマティクスの現状と将来への期待	新化学技術推進協会 H30 年度第 2 回特別フォーラム	2019/2/19
178	上村直樹、原田洋介、尾形修司	A DFT Study of Decomposition of TCP on Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> Surface by Molecular Dynamics Method	International Conference on Materials Science and Engineering (Mat-Science-2019)	2019/2/19
179	奥 智治 (株式会社日本触媒/技術委員)	日本触媒におけるフロー合成技術への取り組み	フロー精密合成コンソーシアム (FlowST) 第 10 回ワークショップ	2019/3/1
180	上村直樹、原田洋介、尾形修司	DFT-MD simulations of reaction mechanisms between tricresyl phosphate and Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (111) surface	APS March Meeting 2019	2019/3/4
181	岡崎俊也	ナノカーボンの状態を可視化する評価技術	第 12 回ナノカーボン実用化推進研究会	2019/3/5
182	中島秀朗	ロックイン発熱解析法を用いた機能性 CNT 複合材の評価技術と二次元ナノカーボン材料への展開	第 12 回ナノカーボン実用化推進研究会	2019/3/6

183	Sushma YADAV and T. Miyazaki	First-principles study on structural properties of hexagonal boron nitride/diamond heterostructures.	MANA International Symposium	2019/3/4-3/6
184	Jianbo LIN, Z. Raza, D. R. Bowler, and T. Miyazaki	Linear-scaling first-principles MD for structure modeling of Silicon amorphous.	MANA International Symposium	2019/3/4-3/6
185	矢田 陽、永田賢二、安藤康伸、松村太郎二郎、一関咲奈、佐藤一彦	機械学習・実験化学・計算科学の融合 -触媒反応の収率予測-	人工知能学会第2種研究会 第2回計測インフォマティクス研究会	2019/3/6
186	沖川 侑揮, 山田 貴壽, 長谷川 雅考, 渡邊 賢司, 谷口 尚	プラズマ CVD グラフェン/h-BN 積層構造の移動度及びラマン分光評価	第66回応用物理学会春季学術講演会	2019/3/9
187	小野 巧、古屋 武、依田 智	100MPa までの超高压および急速減圧を利用したナノ・マイクロセルラーの生成	化学工学会第84年会	2019/3/13
188	Sushma YADAV and T. Miyazaki	First-principles study on structural properties of hexagonal boron nitride/diamond heterostructures.	日本物理学会 第74回 年次大会	2019/3/14- 3/17
189	Jianbo LIN, Z. Raza, D. R. Bowler, and T. Miyazaki	Linear-scaling first-principles MD for structure modeling of Silicon amorphous.	日本物理学会 第74回 年次大会	2019/3/14- 3/17
190	松尾英明、崔 準哲、藤田賢一	固相固定化金ナノ粒子を触媒としたプロパルギルアミンのカルボキシル化-環化反応	日本化学会第99春季年会	2019/3/16
191	藤田賢一、松尾英明、藤井 亮、崔 準哲、	四級アンモニウム塩を触媒としたアミン類のカルボキシル化-環化反応	日本化学会第99春季年会	2019/3/16
192	矢田 陽	キャタリストインフォマティクスによるエポキシ化触媒反応の収率の予測	日本化学会 第99春季 年会	2019/3/17
193	森田裕史	ソフトウェアとしての OCTA とインフォマティクス研究の融合	高分子学会関東支部 1st FutureTrend in Polymer Science	2019/3/20

194	南 拓也	ベイズ最適化を活用した耐熱性ポリマーの効率的設計	高分子学会関東支部ワークショップ、Future Trend in Polymer Science (FTiPS)	2019/3/20
195	岡田昌久、武山彰宏、山田保誠	VO <sub>2</sub> ナノ粒子の短時間合成とサーモクロミック特性	電気化学会第 86 回大会	2019/3/29
196	上村 直樹, 原田洋介, 尾形 修司	第一原理分子動力学法による有機分子-金属表面の反応シミュレーション: Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (111) 表面上の TCP 分子の分解反応	研究会: 原子・分子レベルから連続体レベルに至るマルチスケールの理論構築と実際運用	2019/3/28
197	村山宣光	プロジェクトの概要説明	超超 PJ シミュレータ公開説明会	2019/4/12
198	今井祐介、富永雄一、堀田裕司	異方性高熱伝導粉体の球構造コンポジット化による等方高熱伝導材料の開発	粉体工学会 2019 年度春期研究発表会	2019/5/10
199	山本亮太 糸見健 森田裕史	有限要素法シミュレーションを用いたゴムブレンドのモルフォロジーと弾性率との相関についての研究	日本ゴム協会 2019 年年次大会	2019/5/23-24
200	近田旬佑、檜貝信一 (ADMAT、村田製作所)、Yung-Ting Lee、尾崎泰助 (東大 物性研)、三宅隆 (産総研 CD-FMat)	GHz 帯域における高分子の誘電スペクトルの第一原理と分子動力学計算による算出	第 68 回高分子学会 年年次大会	2019/5/29-31
201	堀内 伸、董文勇、山本亮太	STEM-EDX トモグラフィーによる SBR/IR/ シリカ 3 成分ブレンドコンポジットの相分離 3 次元構造解析	第 68 回高分子年年次大会	2019/5/29
202	森田裕史	高分子インフォマティクス研究のためのソフトウェア技術と OCTA の拡張	第 68 回高分子年年次大会	2019/5/29
203	田中真司、Wei-Chih Liao、小川敦子、佐藤一彦、Christophe Coperet	固体 DNP-NMR による架橋型ポリスチレンの官能基解析	第 68 回高分子学会年年次大会	2019/5/29

204	濱田信次、宮下真人、都築誠二、下位幸弘、小畑繁昭、中山尚史、後藤仁志	高精度量子化学計算に基づく分子間ポテンシャルに関する考察	日本コンピュータ化学会 2019年春季年会	2019/6/7
205	青柳岳司	シミュレーションとAIの連携による機能材料設計への取り組み	第67回関西CAE懇話会	2019/6/14
206	山平直廣、董文勇、伊勢翔吾、宮前孝行、堀内伸	STEM-EDX およびラマンイメージングによる高分子相互拡散現象の解析	日本顕微鏡学会第75回 学術講演会	2019/6/18
207	奥智治、岡田雅希(日本触媒)	CO <sub>2</sub> を利用する有用化学品合成技術の開発	第8回JACI/GSCシンポジウム	2019/6/24- 6/25
208	宮崎剛(NIMS)	Linear-scaling DFT simulations of complex nano-structured materials with the CONQUEST code	10th International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT 2019)	2019/6/24- 6/28
209	長谷川雅考、水谷亘、山田貴壽、石原正統、沖川侑揮	High-throughput synthesis of graphene by plasma CVD	The EuroCVD 22-Baltic ALD 16 Conference	2019/6/25
210	上村直樹、原田洋介、尾形修司	Reaction dynamics of tricresyl phosphate on Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> (111) surface: a hybrid quantum-classical simulation with coarse-grained particles	Intergranular and Interphase Boundaries in Materials 2019	2019/7/2
211	田中真司、中島裕美子、佐藤一彦	1/10000の測定時間で原子レベルの構造解析 -DNP-NMRを用いるポリマーの超高速構造解析	材料診断フェア in 広島	2019/7/2
212	宮崎剛(NIMS)	Linear-scaling DFT simulations of complex nano-structured materials using the CONQUEST code	ISTCP 2019	2019/7/16
213	青柳岳司、森田裕史	OCTA 講習会 & トレーニング 2019	計算物質科学人材育成コンソーシアム(PCoMS)ソフトウェア講習会	2019/7/17
214	小野巧・武学麗・古屋武・依田智	低温超高压条件を用いたナノセルラー製造プロセスの開発	成形加工シンポジウム'19	2019/7/17

215	矢田 陽、永田賢二、安藤康伸、松村太郎次郎、一関咲奈、佐藤一彦	Machine Learning Approach for Prediction of Reaction Yield with Simulated Catalyst Parameters	20th IUPAC International Symposium on Organometallic Chemistry Directed Towards Organic Synthesis	2019/7/22
216	Jian-Bo Lin, Z. Raza, D. R. Bowler, and T. Miyazaki	Linear-scaling ab initio molecular dynamics study of complex structure of materials with the CONQUEST code	ACCMS-10	2019/7/26
217	大島永康、満汐孝治、オローク・ブライアン、鈴木良一	産総研 電子加速器ベース低 速陽電子利用施設の現状	第 16 回日本加速器学会 年会	2019/7/31- 8/1
218	森田裕史	高分子インフォマティクス概論 と拡張 OCTA の概要	日本ゴム協会関東支部 第 17 回「若手からベテランのためのセミナー」(依頼講演)	2019/8/2
219	Junpei Tetsuka, Hiroma Nagaoka, Tetsuya Matsuda	Analysis of micro/meso/macro temperature-dependent elastoviscoplastic properties of woven composites	22nd International Conference on Composites Materials	2019/8/15
220	崔 隆基, Butera Valeria, 田邊祐介, 宮澤 朋久, 藤谷 忠博	Mechanistic Details of Ethanol to Butadiene Conversion over Metal Oxides: A DFT Study	1st International conference on noncovalent interactions	2019/9/2
221	青柳岳司	シミュレーションとインフォマティクスの融合による高分子材料開発の新展開	物質構造解析研究会第 4 回ジョイントセミナー	2019/9/5
222	山田貴壽、沖川侑揮、長谷川雅考	Improvement of electrical properties of graphene by stacking structure formation	30th International Conference on Diamond and Nano Carbon (ICDCM 2019)	2019/9/8-12
223	本田 暁紀、石田 康二、山本 亮太、窪内 翔、糸見 健、井藤 浩志	SPM による有機材料分析	JASIS コンファレンス 走査型プローブ顕微鏡を利用した先端分析技術	2019/9/3

224	T. Taddese, M. Kitabata, S. Okazaki(名大)	Molecular dynamics study of thermodynamic stability of a polymer solution; non-solvent induced phase separation of PVDF/NMP/water	Joint EMLG/JMLG 2019 conference	2019/9/9
225	本田 隆	Nano carbon composite simulator SOBA (Soft Blends Analyzer)	Physical Aspects of Polymer Science 2019	2019/9/11-9/13
226	本田 暁紀、石田 康二、山本 亮太、窪内 翔、糸見 健、井藤 浩志	ゴム複合材料の断面作製手法の構築およびナノプローブ力学物性計測	日本分析化学会 第 68 年会	2019/9/11
227	柏木 恒雄	(仮)超超 PJ におけるコニカミノルタの取組み	第 57 回炭素材料夏季セミナー	2019/9/12-9/13
228	澤田有弘(産総研), 手塚惇平(筑波大), 松田哲也(筑波大), 松本純一(産総研)	2 スケール多孔体の内部流れに対する 3 スケール漸近展開均質化法	第 32 回計算力学講演会	2019/9/16-9/18
229	松本純一(産総研), 澤田有弘(産総研)	直交基底気泡関数要素を用いた Darcy-Brinkman 式における有限要素解析	第 32 回計算力学講演会	2019/9/16-9/18
230	手塚惇平(筑波大), 長岡央磨(筑波大), 澤田有弘(産総研), 松本純一(産総研), 松田哲也(筑波大)	多孔質体内流れに対する 3 スケール均質化法の開発	第 32 回計算力学講演会	2019/9/16-9/18
231	Arpita VARADWAJ, Takashi MIYAKE	Density functional Theory Exploration of the Material Properties of Pure and Mg-substituted VO <sub>2</sub>	第 13 回分子科学討論会	2019/9/17-9/20
232	松井 正冬、中村 恒夫	プラズモン共鳴によるナノ粒子光学応答の理論的解析	第 13 回分子科学討論会	2019/9/17

233	Bo Zhu, Masahiro Ehara, Shigeyoshi Sakaki	How does Ni in Ni13@Pt42 and Ni13@Rh42 regulate electronic structure and catalytic activity of Pt55 and Rh55? The DFT insight	第 13 回分子科学討論会	2019/9/17
234	矢田 陽	Catalyst Informatics - Aiming at the Discovery of Innovative Catalyst by AI	Saudi Aramco-JCCP Symposium on Refinery of the Future	2019/9/17
235	田邊祐介、新家雄、日座操(横浜ゴム)、藤谷忠博、宮澤朋久、崔隆基(産総研)	バイオエタノールから効率的にブタジエンを生成する触媒の開発	第 124 回触媒討論会	2019/9/18-20
236	本田 暁紀、宮下真人、井藤 浩志	KPFM による有機トランジスタの表面電位のオペランド計測	第 80 回応用物理学会秋季学術講演会	2019/9/18
237	片桐 千帆, 赤池幸紀, 宮前 孝行	和周波発生分光法による有機薄膜トランジスタの電荷挙動の観測	第 80 回応用物理学会秋季学術講演会	2019/9/18-9/21
238	Sushma YADAV and Tsuyoshi Miyazaki	Interaction between Boron Nitride and H-terminated (111) diamond Surface: A First Principles Investigation	第 80 回応用物理学会秋季学術講演会	2019/9/18-9/21
239	ADMAT: 橋口雄太 産総研: 藤谷忠博、中村功	Pd@Pt コアシェル触媒のフロー合成プロセスの開発	第 124 回触媒討論会	2019/9/18
240	松村太郎次郎, 永村直佳, 赤穂昭太郎, 永田賢二, 安藤康伸	Adapted EM アルゴリズムを用いたスペクトルデータの高速度解析手法	日本地質学会第126年学術大会(2019山口)	2019/9/23
241	北畑 雅弘, Taddese Tseden, 岡崎 進	分子動力学シミュレーションによる poly(vinylidene fluoride) (PVDF) 表面における良溶媒および良/貧混合溶媒による濡れ性の分子論的研究	第 68 回高分子討論会	2019/9/25
242	尾崎弘人、青柳岳司	深層学習を用いた粒子を含む流体系における定常流れの予測	第 68 回高分子討論会	2019/9/25-9/27



243	川島 英久・渡邊 信・木島 正志	トリエトキシシリル化された藻 類オイルのガラス表面修飾へ の応用	第 68 回高分子討論会	2019/9/25
244	今井祐介、富永雄 一、堀田裕司	黒鉛および窒化ホウ素の球構 造コンポジット化による等方高 熱伝導材料の開発	第 68 回高分子討論会	2019/9/26
245	堀内伸、李勇仁	STEM-EELS によるポリマーブ レンドの反応性相容化メカニズ ムの解析	第 68 回高分子討論会	2019/9/26
246	土居英男、田頭健 司、保岡悠、高橋和 義、福田順一、青柳 岳司	機械学習を用いた液晶エラス トマーの力学特性解析	第 68 回高分子討論会	2019/9/26
247	堀内 伸	STEM-EDX-トモグラフィーによ るポリマーコンポジットの3次 元構造解析	サーモフィッシャーサイエ ンティフィック マテリアル サイエンス分析技術セミ ナー2019	2019/10/3
248	山田貴壽、沖川侑 揮、長谷川雅考	N-type conduction of K-doped stacked graphene layers	Recent Progress in Graphene & 2D materials Research (RPGR 2019)	2019/10/7
249	沖川 侑揮, 山田 貴壽, 長谷川 雅考, 渡邊 賢司, 谷口 尚	Relationship between mobility and Raman spectra for plasma CVD graphene on HTHP h-BN	Recent progress in graphene & 2D materials research(RPGR 2019)	2019/10/9
250	今井祐介、富永雄 一、堀田裕司	Fabrication of Isotropic High Thermal Conductive Polymer Composites from Graphites and Hexagonal Boron Nitrides	Collaborative Conference on Materials Science and Technology	2019/10/15- 17
251	南 拓也	ポリマー開発への機械学習活 用	CSJ 化学フェスタ	2019/10/16
252	松井 正冬	超超プロジェクトの挑戦1. プ ラズモン共鳴による光とナノ粒 子の相互作用:理論計算によ る光学応答予測	CSJ 化学フェスタ	2019/10/17
253	新納弘之	超超プロジェクトの挑戦3. ナ ノ粒子分散型発泡材料の内部 構造を精密計測するマイクロ X線CT観測	CSJ 化学フェスタ	2019/10/17

254	齋藤 健	企業で使える材料開発基盤技術を目指した実験と計算機シミュレーションの連携研究: 樹脂/無機フィラー複合材料を例に	CSJ 化学フェスタ	2019/10/17
255	森田裕史	インフォマティクス技術に対応した拡張 OCTA による順問題解析	高分子学会 19-1 高分子計算機科学研究会	2019/10/21
256	田頭健司、保岡悠、土居英男、高橋和義、福田順一、青柳岳司	粗視化分子動力学計算を用いた高分子液晶材料の力学特性予測	高分子学会 19-1 高分子計算機科学研究会	2019/10/21
257	奥野好成、中陳巧勤、南拓也、川田正晃、藤田俊雄、室伏克己、内田博、大森和弘	人工知能(AI)を用いたポリマー設計	KRI クライアントコンファレンス&ワークショップ'19	2019/10/25
258	矢田 陽	Machine Learning Approach for Prediction of Reaction Yield with Simulated Catalyst Parameters	ChemIndix2019	2019/10/29
259	T. Taddese, M. Kitabata, S. Okazaki	高分子溶液における非溶媒誘起相分離過程の自由エネルギー解析—全原子分子動力学計算	第 42 回溶液化学シンポジウム	2019/10/30
260	川島英久、渡邊信、木島正志	トリエトキシシリル基を有する藻類オイル誘導体のガラス修飾への応用	茨城地区 高分子若手の会	2019/11/1
261	矢田 陽	Machine Learning Approach for Prediction of Reaction Yield with Simulated Catalyst Parameters	第 29 回日本・サウジアラビア合同シンポジウム	2019/11/3
262	T. Taddese, M. Kitabata, S. Okazaki	Molecular dynamics study of thermodynamic stability of a polymer solution; non-solvent induced phase separation of PVDF/NMP/water	International Conference on Molecular Simulation 2019	2019/11/4

263	Mark Z. Griffiths and Wataru Shinoda	Introducing Temperature- and Pressure- Dependence to a Coarse-Grained Model for Organic Molecules: The tSPICA Force Field	International Conference on Molecular Simulation 2019	2019/11/4
264	永島 裕樹、Julien Trebosc、今 喜裕、 佐藤 一彦、Olivier Lafon、Jean-Paul Amoureux	Speeding up DNP acquisition of half-integer quadrupolar nuclei	第 58 回 NMR 討論会	2019/11/7
265	田積 皓平、田井哲 朗、依田智、武学 麗、森田裕史、堀内 伸、新納浩之、小野 巧、古屋武	マルチスケールシミュレーシ ョンによる気泡微細化技術	第 51 回オール積水技術 討論会	2019/11/8
266	齋藤 健	二軸混練押出機内におけるフ ィラーの解砕・分散過程解明に 向けた実験と数値シミュレーシ ョンの連携研究	第 9 回 HASL ユーザ会 ((株)HASL 主催の講演 会)	2019/11/14
267	川島 英久	The chemical modification of botryococcene, reactivity and selectivity	GDRI WONDER Workshop	2019/11/15
268	沖川 侑揮、山田 貴壽、長谷川 雅考、 渡邊 賢司、谷口 尚	ラマン分光法を用いた CVD グ ラフェンの移動度散乱機構の 解明	第 33 回ダイヤモンドシン ポジウム	2019/11/15
269	茂本 勇	産業界における高分子計算科 学の利用と今後の展望	第 28 回ポリマー材料フォ ーラム	2019/11/21
270	村山 宣光	シミュレーションとAIを駆使し た新素材の高速開発	日本ファインセラミックス 協会 JFCA イブニングセ ミナー	2019/11/22
271	今井祐介、富永雄 一、堀田裕司	コア-シェル型球構造コンポジ ット化による絶縁等方高熱伝 導材料の開発	第 28 回ポリマー材料フォ ーラム	2019/11/22
272	中陳 巧勤、南 拓 也、川田 正晃、藤 田 俊雄、室伏 克 己、内田 博、大森 和弘、奥野 好成	Prediction of physical properties of thermosetting resin by using machine learning and raw material classification	MRS FALL MEETING	2019/12/1- 12/6

273	Arpita VARADWAJ, Takashi MIYAKE	Theoretical Study of the Geometrical and Optoelectronic properties of VO <sub>2</sub> and Mg-VO <sub>2</sub>	2019 MRS FALL MEETING & EXHIBIT	2019/12/1-12/6
274	永村直佳, 松村太郎次郎, 赤穂昭太郎, 永田賢二, 安藤康伸	Spectrum adapted expectation-maximization algorithm for high-throughput peak shift in synchrotron X-ray operando spectromicroscopy	MRS fall meeting & exhibit	2019/12/1
275	糸見健 窪内翔 山本亮太 森田裕史 堀内伸	有限要素法シミュレーションによるブレンドゴムの構造物性相関に関するの研究	日本ゴム協会 第30回 エラストマー討論会	2019/12/9,10
276	北畑 雅弘, Taddese Tseden, 岡崎 進	Poly(vinylidene fluoride) (PVDF) 表面における良溶媒および良/貧混合溶媒による濡れ性の分子論的研究	第33回分子シミュレーション討論会	2019/12/9
277	土居英男、高橋和義、田頭健司、保岡悠、福田順一、青柳岳司	機械学習を用いた液晶エラストマー物性を特徴付ける設計変数の予測	第33回分子シミュレーション討論会	2019/12/9 - 2019/12/11
278	永村直佳, 松村太郎次郎, 赤穂昭太郎, 永田賢二, 安藤康伸	Machine Learning-Based Analysis for High-throughput Peak Detection in Synchrotron X-ray Spectromicroscopy	Material Research Meeting 2019	2019/12/10
279	保岡 悠、田頭健司、高橋和義、土居英男、青柳岳司	粗視化分子動力学法を用いた柔軟鎖液晶エラストマーの力学特性解析	第33回分子シミュレーション討論会	2019/12/11
280	土居英男、高橋和義、青柳岳司	局所的な分子記述子を用いた機械学習に基づく電荷の予測	第47回構造活性相関シンポジウム	2019/12/12-12/13
281	宮崎 剛(NIMS)	Linear-scaling DFT simulations of complex nano-structured materials with the CONQUEST code	Materials Research Meeting 2019 (MRM2019)	2019/12/12

282	土居英男、高橋和義、田頭健司、福田順一、青柳岳司	MACHINE LEARNING-AIDED LOCAL STRUCTURE ANALYSIS FOR LIQUID CRYSTAL POLYMERS	The 2nd Pacific Rim Thermal Engineering Conference	2019/12/13-12/17
283	森本崇宏	高感度アニュラー型 EDS を用いたナノカーボン材料のナノスケール表面状態評価	日立ハイテク技術セミナー	2020/1/15
284	岡崎俊也	材料開発を高速化する最新ナノカーボン分析技術	nanotech2020	2020/1/31
285	岡崎俊也	実用化のためのナノカーボン評価法開発	つくばサイエンス・アカデミー 第16回研究情報交換会	2020/2/6
286	奥野好成、中陳巧勤、南拓也、川田正晃、藤田俊雄、室伏克己、内田博、大森和弘	人工知能を用いたポリマー設計	第4回元素ブロック研究会	2020/2/7
287	藤谷忠博	バイオベース原料からのブタジエン合成	令和元年度 産総研 材料・化学シンポジウム	2020/2/14
288	永島 裕樹、今 喜裕	固体触媒の表面構造解析のための新規 DNP-NMR 技術開発	産総研 材料・化学シンポジウム	2020/2/14
289	松下敏之、橋口雄太	NEDO委託 超先端材料超高速開発基盤技術PJ:機械学習を活用するナノ材料開発のコンセプトと検討進捗	2019 年度UBEグループ技術交流会	2020/2/14
290	小野 巧	超高压および超高速減圧を利用した光透過性を有する微細発泡ポリマーの開発	令和元年度 産総研 材料・化学シンポジウム	2020/2/14
291	南 拓也	機械学習を活用した熱可塑ポリマーと熱硬化性ポリマーの設計	技術情報協会セミナー	2020/2/17
292	北 弘志(コニカミノルタ株式会社技術フェロー)	計算科学・マテリアルズインフォマティクスでの材料開発への適用	技術情報協会 セミナー	2020/2/17
293	青柳岳司	NEDO 超超プロジェクトにおける研究開発事例と今後の展開	Mi2i 最終報告会	2020/2/20

294	森田裕史	ソフトマテリアルの AI 活用先端技術	日本ゴム協会 アドバンテックセミナー 2020	2020/2/20
295	岡田雅希、奥智治、畑中美穂、崔準哲	Mechanistic study on hydroxycarbonylation of cycloalkene using homogeneous rhodium catalysts	International Conference on Artificial Intelligence(AI)-Chemistry & Industry 2020(ICA-ICI 2020)	2020/2/21
296	Hiroto Ozaki, Takeshi Aoyagi	Predicting the Steady Flow of a Fluid with Particles by Deep Learning	APS March Meeting 2020	2020/3/2 - 2020/3/6
297	土居英男, 高橋和義, 保岡遥, 田頭健司, 福田順一, 青柳岳司	Machine learning for detecting microscopic parameters characterizing mechanical properties of liquid crystal elastomers	APS March Meeting 2020	2020/3/2-3/6
298	永島裕樹、今喜裕	固体触媒の表面構造解析のための新規 DNP-NMR 技術開発	産総研 中国センターシンポジウム	2020/3/3
299	本田暁紀、石田康二、山本亮太、窪内翔、糸見健、井藤浩志	原子間力顕微鏡によるゴム複合材料の力学物性計測	第 67 回応用物理学会春季学術講演会	2020/3/12
300	加藤隆一, Moataz Mekawy, 長谷川雅考	紫外光照射下での活性酸素種による単層グラフェンへの欠陥生成制御	第 67 回応用物理学会学術講演会	2020/3/12
301	片桐千帆, 宮前孝行, H. Li, F. Yang, S. Baldelli	和周波発生分光イメージング測定を用いた DPh-BTBT 薄膜トランジスタの電界挙動観測	第 67 回応用物理学会春季学術講演会	2020/3/12-3/15
302	高田新吾 鈴木徹 (ADMAT,DIC), 竹林良浩 小野巧 依田智(産総研)	機械学習を活用したポリマブレンド材の開発	化学工学会第 85 年会	2020/3/15
303	Masahiro Kitabata, Tseden Taddese, Susumu Okazaki	Molecular dynamics study on wettability of poly(vinylidene fluoride) (PVDF) surface by non-solvent, good solvent and their mixed solvent	ACS Spring 2020 National Meeting & Exposition	2020/3/22

304	松尾英明、藤井亮、崔 準哲、藤田賢一	デンドリマー内包型金ナノ粒子を触媒とする二酸化炭素を用いたプロパルギルアミンのカルボキシル化-環化反応	日本化学会第 100 春季年会	2020/3/22
305	栗原敏弘、川島英久、木島正志	タングステン触媒を用いた過酸化水素によるポトリオコッセンのエポキシ化	日本化学会 第 100 春季年会 (2020)	2020/3/22-3/25
306	庄 智哉、川島英久、木島正志	スクアレンと m-クロロ過安息香酸のマイクロフロー反応によるスクアレンモノエポキシドの選択的生成	日本化学会 第 100 春季年会 (2020)	2020/3/22-3/25
307	栢沼 愛、宮澤朋久、田邊祐介、藤谷忠博、崔 隆基	Theoretical Study of the Side Reactions of the Catalytic Conversion of Ethanol to Butadiene	日本化学会第 100 春季年会	2020/3/23
308	田中真司、小川敦子、中島裕美子、佐藤一彦	DNP-NMR Spectroscopy for Structural Characterization of Insoluble Polymers	日本化学会第 100 春季年会	2020/3/24
309	山平 尚廣、堀内伸	ポリマー試料の電子線照射による ELNES 変化	日本顕微鏡学会第 76 回 学術講演会	2020/5/25-5/27
310	中陳 巧勤	計算科学の AI 活用	JACI&GSC シンポジウム	2020/6/10-6/11
311	永島 裕樹、Julien Trébosc、今 喜裕、佐藤 一彦、Olivier Lafon、Jean-Paul Amoureux	Observation of low-g quadrupolar nuclei by surface-enhanced NMR spectroscopy	Weekly ssNMR/DNP Zoominar	2020/6/24
312	吉田 亮	マテリアルズインフォマティクスの諸問題:スモールデータの壁を乗り越える	日本学術振興会 145 委員会 第 168 回研究会	2020/6/26
313	奥野 好成	人工知能を用いたポリマー設計	京都工芸繊維大学内の講演会	2020/7/14
314	青柳 岳司	NEDO 超超プロジェクト概要と高分子 MI に対する取り組み	JST-CRDS 主催「プロセスインフォマティクスの俯瞰 II ~材料合成プロセスへのデータ科学適用の現状と展望~ 触媒・有機材料分野」	2020/7/29

315	矢田 陽	Prediction model for catalytic reaction with artificial intelligence (AI)	Unchained Labs Virtual Asia Pacific Automation Workshop	2020/7/30
316	安岡 紀哉、松田 哲也、澤田 有弘、松本 純一	平織複合材料に対するマルチスケール樹脂浸透解析	日本機械学会 2020 年度 茨城講演会	2020/8/21
317	青柳 岳司	拡張 OCTA—計算材料科学とデータ科学融合のためのツール	東北大学 知のフォーラム 実験家のためのデータ駆動科学オンラインセミナー 「計算材料科学&マテリアルズ・インフォマティクス入門」	2020/9/7
318	吉田 亮	高分子材料研究を駆動する統計的機械学習の先進技術	第 81 回応用物理学会秋季学術講演会シンポジウム	2020/9/8
319	稲葉 工 森本 崇宏 山崎 悟志 岡崎 俊也	グラフェンで生じるフリーデル振動と多層 CNT の抵抗値の関係	日本物理学会秋季大会	2020/9/8- 9/11
320	片桐 千帆、宮前 孝行、H. Li、F. Yang、S. Baldelli	和周波分光イメージングによる DPh-BTBT 薄膜トランジスタの電界挙動	第 81 回応用物理学会秋季学術講演会	2020/9/8- 9/11
321	松下 敏之、深澤 駿、橋口 雄太	コア-シェル型金属ナノ材料開発における MI 活用検討—「超先端材料超高速開発基盤技術 PJ」での取組み—	宇部興産(株)及びグループ会社「2020 年度研究開発報告会」	2020/9/11
322	本田 隆	フィラー分散ポリマー複合材料の相分離構造シミュレーション	第 69 回高分子討論会	2020/9/16- 9/18
323	齋藤健、今井祐介、富永雄一、堀田裕司	高分子/無機フィラー複合材料の研究:機械学習による良分散性フィラーの設計	第 69 回高分子討論会	2020/9/16
324	片桐 千帆、赤池 幸紀、宮前 孝行	有機薄膜トランジスタにおける SAM 絶縁膜の表面構造が素子特性に与える影響	第 69 回高分子討論会	2020/9/16- 9/18



325	土居 英男、保岡 悠、田頭 健司、高 橋 和義、福田 順 一、青柳 岳司	機械学習を用いた液晶エラス トマーの物理的特性に関する 微視的なパラメータの検証	第 69 回高分子討論会	2020/9/18
326	田中 真司、小川 敦子、中島 裕美 子、佐藤 一彦	固体 DNP-NMR に基づく高性 能ポリマー担持型触媒の開発	第 69 回高分子討論会	2020/9/16
327	稲葉 工、森本 崇 宏、山崎 悟志、岡 崎 俊也	Linear Temperature Dependence of Nanotube Yarn Resistance	第 59 回 フラーレン・ナノ チューブ・グラフェン総合 シンポジウム	2020/9/16- 9/18
328	中島 秀朗、森本 崇宏、周 英、小橋 和文、山田 健郎、 岡崎 俊也	Imaging of functional group distribution on carbon nanomaterials with highly spatially resolved SEM-EDS	第 59 回フラーレン・ナノ チューブ・グラフェン総合 シンポジウム	2020/9/16
329	高田 新吾、鈴木 徹、竹林 良浩、小 野 巧、依田 智	機械学習を活用したポリマブ レンド材の開発	化学工学会第 51 回秋季 大会	2020/9/24
330	小野 巧、新納 弘 之、古屋 武、陶 究、依田 智	冷媒系ガス/CO <sub>2</sub> 混合系を利 用したナノセルラー製造プロセ スの検討	化学工学会第 51 回秋季 大会	2020/9/24
331	矢田 陽	キャタリストインフォマティクス による触媒反応の収率予測	化学工学会第 51 回秋季 大会	2020/9/24
332	吉田 亮	マテリアルズインフォマティク ス：黎明期からの脱却に向け て	日本化学会 講演会「イン フォマティクス技術の導入 から産業応用まで～高分子 ・機能性材料・バイオ・半 導體」	2020/9/25
333	南 拓也	機械学習の活用によるポリマ ーの効率的設計	JACI 講演会「インフォマ ティクス技術の導入から 産業応用まで～高分子・ 機能性材料・バイオ・半導 体～」	2020/9/25
334	永島 裕樹、佐藤 一彦	表面構造解析のための固体 DNP-NMR 分光法の開発	JSPS 創造機能化学 第 116 委員会「第1・第2・第 3合同分科会」	2020/10/5
335	Ryo Yoshida	Machine Learning for Materials Discovery	Bristol-ISM Data Science Seminar Series	2020/10/8

336	栗原 敏弘, 川島英久, 木島 正志	ペルオキソタンゲステン酸触媒を用いた過酸化水素によるポトリオコッセンのエポキシ化	日本化学会秋季事業 第10回 CSJ 化学フェスタ 2020	2020/10/20-10/22
337	庄 智哉, 川島 英久, 崔 準哲, 木島 正志	スクアレンと m-クロロ過安息香酸のマイクロフロー反応によるスクアレンモノエポキシドの生成	日本化学会秋季事業 第10回 CSJ 化学フェスタ 2020	2020/10/20-10/22
338	中陳 巧勤	機械学習の活用によるポリマー開発の加速	第10回 CSJ 化学フェスタ 2020	2020/10/21
339	金山 昂生, 山本 量一, 尾崎 弘人, 青柳 岳司	直接数値計算による二成分流体コロイド分散系の粘弾性の評価	第68回レオロジー討論会	2020/10/22
340	松下 敏之	宇部興産における研究開発事例の紹介	第30回記念万有福岡シンポジウム	2020/10/24
341	吉田 亮	マテリアルズインフォマティクス: 機械学習による設計と合成の自動化	CBI 学会 2020 年大会「科学実験の自動化が拓く AI 時代の創薬研究」	2020/10/28
342	吉田 亮	“材料研究を変革する統計的機械学習の先進技術	SciPy Japan 2020	2020/10/30
343	富永 雄一, 張 朝富, 佐藤 公泰, 今井 祐介	ナノ粒子の分散と表面修飾を同時に実現する湿式ジェットミルプロセス技術	粉体工学会秋季研究発表会	2020/11/18
344	今井 祐介	球構造コンポジット化による等方高熱伝導材料の開発	国際粉体工業展東京 2020	2020/11/18-11/20
345	永島 裕樹, Julien Trébosc, 今 喜裕, 佐藤一彦, Olivier Lafon, Jean-Paul Amoureux	Observation of low- $\gamma$ quadrupolar nuclei by surface-enhanced NMR spectroscopy	第59回 NMR 討論会	2020/11/18
346	田中 真司, 小川 敦子, 中島 裕美子, 佐藤 一彦	固体 DNP-NMR による高分子担持触媒の構造解析	第59回 NMR 討論会	2020/11/18
347	竹林 良浩, 小野 巧, 依田 智, 高田 新吾, 鈴木 徹	溶融混練ポリマーの近赤外分光分析	第36回近赤外フォーラム	2020/11/24

348	窪内 翔、糸見 健、足立 拓海、森 田 裕、堀内 伸	有限要素法シミュレーションを 用いたフィラー充填ブレンドゴ ムの構造物性相関に関する研 究(2)	日本ゴム協会 第 31 回 エラストマー討論会	2020/11/26- 11/27
349	糸見 健、窪内 翔、足立 拓海、森 田 裕史、堀内 伸	有限要素法シミュレーションを 用いたフィラー充填ブレンドゴ ムの構造物性相関に関する研 究(3)	日本ゴム協会 第 31 回 エラストマー討論会	2020/11/26- 11/27
350	中陳 巧勤、南 拓 也、藤田 俊雄、川 田 正晃、室伏 克 己、内田 博、大森 和弘、奥野 好成	Optimization of multiple physical properties by machine learning incorporating the concept of deviation value	MRS fall meeting 2020	2020/11/29- 12/4
351	高田 新吾、鈴木 徹、竹林 良浩、小 野 巧、依田 智	機械学習を活用したポリマブ レンド材の開発	プラスチック成形加工学 会第 28 回秋季大会 成 形加工シンポジア' 20	2020/12/1
352	田井 哲朗、田積 皓平、依田 智、小 野 巧、新納 弘之	超高压押出発泡装置を用いた 微細発泡体の連続製造プロセ スの検討	プラスチック成形加工学 会第 28 回秋季大会 成 形加工シンポジア' 20	2020/12/1- 12/2
353	依田 智、小野 巧、竹林 良浩、陶 究	ポリマーコンポジット高速開発 のための新規混練システムの 構築	プラスチック成形加工学 会第 28 回秋季大会 成 形加工シンポジア' 20	2020/12/1
354	小野 巧、新納 弘 之、古屋 武、陶 究、依田 智	CO <sub>2</sub> + HCFC-22 および CO <sub>2</sub> + HFO-1234ze(E)混合系を利 用したナノセルラー製造プロセ スの検討	プラスチック成形加工学 会第 28 回秋季大会 成 形加工シンポジア' 20	2020/12/1
355	永島 裕樹、Julien Trébosc、今喜裕、 佐藤 一彦、Olivier Lafon、Jean-Paul Amoureux	Observation of Low-g Quadrupolar Nuclei by Surface-Enhanced NMR Spectroscopy	EUROMAR 2020	2020/12/7
356	金子 敏宏、北畑 雅弘、岡崎 進	水処理用多孔膜製造過程の 最適化に向けたポリフッ化ビニ リデン-有機溶媒-水 3 成分系 の混合自由エネルギー計算	第 34 回分子シミュレーシ ョン討論会	2020/12/15

357	安岡 紀哉、松田 哲也、澤田 有弘、松本 純一	Resin permeability analysis for woven composites using a three-scale homogenization method	14th World Congress in Computational Mechanics (WCCM)	2021/1/11-1/15
358	中島 秀朗、森本 崇宏、周 英、小橋 和文、山田 健郎、岡崎 俊也	高空間分解 SEM-EDS によるナノ炭素材料の表面状態に関する元素組成分析	第 34 回ダイヤモンドシンポジウム	2021/1/12
359	産業技術総合研究所 先端素材高速開発技術研究組合	超超 PJ の成果と材料設計プラットフォーム構想 ほか	2020 年度 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト 成果報告会	2021/1/12
360	中陳 巧勤、南 拓也	機械学習の活用によるポリマー開発の加速	数値計算を活用した技術開発の業務体験(昭和電工 1day インターンシップ)	2021/1/13-1/21
361	矢田 陽	分子機能予測のための人工知能技術	第4回 食・触コンソーシアム シンポジウム	2021/1/25
362	井藤 浩志	ゴムナノコンポジット材料の力学オペランド評価	NMIJ 成果発表会	2021/2/1-2/5
363	Minami S, Liu S, Wu S, Fukumizu K, Yoshida R	A general class of transfer learning regression without implementation cost	AAAI Conference on Artificial Intelligence	2021/2/4
364	岡崎 俊也	材料開発のためのナノセルロース・ナノカーボン評価技術	プラスチック成形加工学会ナノセルロース・ナノカーボン複合材料専門委員会	2021/2/5
365	奥野 好成	人工知能を用いたポリマー設計	日本化学会 R&D 懇話会	2021/2/8
366	青柳 岳司	超超プロジェクト概要紹介	日本化学会「R&D 懇話会 214 回」AI を活用した研究開発の現状と展望～超超 PJ における研究事例～	2021/2/8
367	矢田 陽	キャタリストインフォマティクスによる触媒活性予測	日本化学会「R&D 懇話会 214 回」AI を活用した研究開発の現状と展望～超超 PJ における研究事例～	2021/2/8

368	中島 秀朗、森本 崇宏、小橋 和文、 張 民芳、Ioanna K. Sideri、Nikos Tagmatarchis、岡 崎 俊也	Visualizing outer surface functionalization of carbon nanohorn spherical aggregates by highly spatially resolved SEM-EDS	第 60 回フラーレン・ナノ チューブ・グラフェン総合 シンポジウム	2021/3/1
369	村山 宣光	超先端材料超高速開発基盤 技術プロジェクトの概要と材料 設計プラットフォーム構想	第 4 回拡大版ディールフ ローミーティング(ユニバ ーサル マテリアルズ イ ンキュベーター株式会社 主催)	2021/3/2
370	Hiroto Ozaki, Takeshi Aoyagi	Simulation and theoretical study of immiscible binary fluids with particles	APS March Meeting 2021	2021/3/15- 3/19
371	赤池 幸紀、細貝 彩子、片桐 千帆、 嶋村 彰紘、浅川 大樹、中西 大耀、 細貝 拓也、永島 裕樹	シアナミド修飾されたグラファ イト状窒化炭素薄膜の合成	第 68 回応用物理学会	2021/3/17
372	北畑 雅弘	分子シミュレーションを用いた フッ素ポリマーの界面自由エ ネルギー予測技術の開発(第 26 回技術進歩賞受賞講演)	日本化学会第 101 春季 年会	2021/3/19
373	松尾 英明、崔 準 哲、藤田 賢一	シリカを触媒とする二酸化炭 素を用いたプロパルギルアミン のカルボキシル化-環化反応	日本化学会第 101 春季 年会	2021/3/20
374	竹林 良浩、小野 巧、依田 智、高田 新吾、鈴木 徹	熔融混練ポリマーの近赤外・ ラマン分光分析	化学工学会第 86 年会	2021/3/20- 3/22
375	柏木 恒雄、竹林 良浩、小野 巧、陶 究	光機能性ナノ粒子の多検体合 成と解析	化学工学会第 86 年会	2021/3/20- 3/22
376	永島 裕樹、Julien Trébosc、今喜裕、 Olivier Lafon、 Jean-Paul Amoureux	Efficient transfer of DNP- enhanced 1H magnetization to half-integer quadrupolar nuclei in solids at moderate spinning rate	Experimental Nuclear Magnetic Resonance Conference	2021/3/30

377	松井 正冬、中村恒夫	銀ナノ粒子プラズモニク光学応答における形状・凝集効果の理論的研究	第 23 回理論化学討論会	2021/5/13
378	(産総研)永島 裕樹、(横浜ゴム)三好剛一郎、新家雄	BR/SBR ブレンドゴムの固体 NMR による架橋密度解析	第 69 回 固体 NMR・材料フォーラム	2021/5/21
379	景山大地(ADMAT/積水化成成品工業)、竹林良浩、永島裕樹、今喜裕、○依田智(産総研)	29Si-NMR と近赤外拡散反射を用いた有機修飾シリカ粒子の表面被覆率分析	第 81 回分析化学討論会	2021/5/22
380	吉田 亮	データ駆動型物質探索を加速する統計的機械学習の先進技術	異分野融合セミナー iSeminar	2021/5/25
381	今井祐介	熱伝導フィラーの形状・配向制御によるコンポジット材料の特性向上	JACI 熱マネ基盤技術 WG 第 3 回材料プロセスサブ WG	2021/5/31
382	高橋 和義	分子シミュレーションおよびデータ科学の援用による液晶エラストマー力学応答の分析	分子系の複合電子機能 第 181 委員会	2021/6/2
383	濱田信次、後藤仁志	応力印加下における分子性結晶の構造最適化と機械特性評価	日本コンピュータ化学会 2021 年春季年会	2021/6/5
384	山田 貴壽、沖川侑揮、長谷川雅考、渡邊賢司、谷口尚	Effects of strain in CVD graphene on mobility	14th International Conference on New Diamond and Nano Carbons 2020 (NDNC2020)	2021/6/7-6/9
385	横浜ゴム株式会社(新家雄、日座操)産業技術総合研究所(藤谷忠博、宮澤朋久、崔隆基)	Development of highly active catalyst system for bioethanol-to-butadiene reaction via high-throughput methods	HTCD2021	2021/6/14-6/15
386	矢田 陽	キャタリストインフォマティクスによる触媒設計	ケムステ V シンポ「マテリアルズインフォマティクス」	2021/6/14

387	室賀駿(AIST)、本田隆(ADMAT)、中島秀朗(AIST)、小橋和文(AIST)、三木康彰(AIST)、清水太陽(AIST)、森田裕史(AIST)、岡崎俊也(AIST)、島賢治(AIST)	ディーラーニング×ポリマーコンポジット仮想実験の可能性	プラスチック成形加工学会年次大会第32回年次大会(2021)	2021/6/16
388	北畑 雅弘	大規模分子シミュレーションによる高分子材料設計	2021年度産応協対話交流会講習会「富岳時代のHPC」	2021/6/24
389	吉田 亮	Introduction to Hypermaterials Informatics	The 1st International School on Hypermaterials	2021/6/24
390	青柳 岳司	AIを活用した革新的材料開発の最前線 ～超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト～	【第9回[関西]プラスチックジャパン】専門セミナー	2021/6/25
391	岡田 雅希(先端素材高速開発技術研究組合) 奥 智治(株式会社日本触媒/技術委員/登録研究員) 竹内 勝彦、松本和弘、崔 準哲(AIST)	ロジウム錯体触媒によるアルケンのヒドロキシカルボニル化に関する研究	第10回 JACI/GSC シンポジウム	2021/6/28-6/29
392	田中真司、中島裕美子、佐藤一彦	超偏極固体 NMR 分析に基づく高活性エステル交換反応用触媒の開発	第10回 JACI/GSC シンポジウム	2021/6/28
393	小橋和文	市販 CNT の分類と用途開発	CNT ウェビナー	2021/8/5,8/25
394	奥野 好成	人工知能(AI)の活用によりフレキシブル透明フィルム開発の迅速化を実証(仮)	日本ファインセラミックス協会(JFCA)シミュレーションスクール	2021/8/17
395	森田 裕史	超超プロジェクトで開発している機能性高分子材料データプラットフォームの概要	接着・接合技術コンソーシアム	2021/8/24

396	永島 裕樹、Julien Tr?bosc、Jennifer S. Gomez、Olivier Lafon、Jean-Paul Amoureux	DNP-enhanced MQMAS experiment using D-RINEPT transfer	ISMAR-APNMR2021	2021/8/23-8/27
397	矢田 陽	キャタリストインフォマティクス：触媒 × 人工知能による触媒設計	有機合成夏期セミナー「明日の有機合成化学」	2021/8/30
398	ADMAT: 齋藤健 産総研: 佐藤公泰、 富永雄一、今井祐介	アルミナ/PMMA 複合材料の粒子分散構造に関する研究：実験と計算機シミュレーションの比較による材料界面の考察	第 70 回高分子討論会	2021/9/6
399	本田隆 ADMAT (室賀駿, 中島秀朗, 清水太陽, 小橋和文, 森田裕史, 岡崎俊也, 畠賢治) AIST	CNT 不織膜作成の仮想実験	第 70 回高分子討論会	2021/9/6-9/8
400	Ling Y. Lyu, Takeshi Hanada, Naohiro Yamahira, Jun Morita, Ryota Yamamoto, Ken Itomi, Takumi Adachi, Sho Kubouchi, Shin Horiuchi	Characterization of 3D structures of multi-component rubber/silica composites by STEM-EDX tomography	第 70 回高分子討論会	2021/9/6
401	田中真司、高田慎吾、鈴木徹、中島裕美子、佐藤一彦	固体 DNP-NMR によるポリフェニレンスルフィドの末端構造解析	第 70 回高分子討論会	2021/9/6
402	岡田 雅希 (先端素材高速開発技術研究組合) 奥 智治 (株式会社日本触媒/技術委員/登録研究員) 竹内 勝彦、松本和弘、崔 準哲 (AIST)	Additive Free Hydroxycarbonylation of Alkenes with Formic Acid Catalyzed by Rhodium(III) Hydride Diiodide Complex	第 67 回有機金属化学討論会	2021/9/10



403	室賀駿(AIST)、本田隆(ADMAT)、中島秀朗(AIST)、小橋和文(AIST)、清水太陽(AIST)、森田裕史(AIST)、岡崎俊也(AIST)、島賢治(AIST)	不定形材料のマテリアルズ・プロセスインフォマティクスを実現する深層学習による仮想実験法の開発	第 82 回応用物理学会秋季学術講演会	2021/9/10
404	森本 崇宏、稲葉工、山崎 悟志、岡崎 俊也	CNT 線材特性へ影響を及ぼす各種導電機構の評価	第 82 回 応用物理学会秋季学術講演会	2021/9/10
405	赤池 幸紀、細貝彩子、永島 裕樹、秋山 陽久	アルカリ金属塩化物との焼成によるグラファイト状窒化炭素へのシアナミド基の導入	第 82 回応用物理学会(秋)	2021/9/10
406	ADMAT:山崎 悟志、AIST:飯泉 陽子、稲葉 工、森本 崇宏、岡崎 俊也、古河電工:杉原 和樹	走査型透過電子顕微鏡を用いた CNT 線材中のヨウ素の構造評価	第 82 回 応用物理学会秋季学術講演会	2022/9/11
407	島 賢治	カーボンナノチューブ社会実装最前線～最新用途・商品開発、ディープラーニングを用いた MI 研究、フルプロセス CNT 半導体デバイス～	第82回応用物理学会秋季学術講演会シンポジウム	2021/9/12
408	岡崎 俊也	遠赤外分光によるCNT長さ評価とCNT紡糸	日本機械学会 M&P 部門研究会	2021/9/15
409	本田 隆	SEM 計測における深層学習を活用したナノ炭素材料の仮想実験	第 36 回日立ハイテク材料解析テクノフォーラム	2021/9/16
410	松井 正冬、柏木恒雄、陶 究、大澤耕、重藤 知夫、時崎 高志、中村 恒夫	DDA 光学応答シミュレーションデータと Lasso 回帰を活用した銀ナノ粒子分散材の粒径・形状分布予測	第 15 回分子科学討論会	2021/9/19
411	小野 巧、竹林良浩、陶 究、柏木恒雄	ナノ粒子のフロー自動合成システムの開発と機械学習による解析	化学工学会第 52 回秋季大会	2021/9/22

412	吉田 亮	Machine Learning for Inverse Materials Design	The International Conference on Flexible and Printed Electronics 2021	2021/9/30
413	田中真司、高田新吾	固体 NMR の高性能有機材料開発への活用	プラスチック成型加工学会 環境・リサイクル専門委員会主催シンポジウム	2021/10/5
414	岡田昌久(AIST)、山本昌一(ADMAT)、山田保誠(AIST)	Two-step hydrothermal synthesis of VO <sub>2</sub> (M) nanoparticles using hydrated ammonium vanadium pentoxide nanoribbons as precursors	The 8th Asian Particle Technology	2021/10/11
415	山本 昌一、藤 正督(名古屋工業大学先進セラミックス研究センター・教授)	Continuous hydrothermal flow synthesis (CHFS) of thermochromic vanadium dioxide (VO <sub>2</sub> ) nanoparticles	The 8th Asian Particle Technology Symposium	2021/10/14
416	庄 智哉, 川島 英久, 崔 準哲, 木島 正志	マイクロフロー法を利用したスクアレンのエポキシ化およびモノエポキシドの優先的生成	日本化学会秋季事業 第11回 CSJ 化学フェスタ 2021	2021/10/19-10/22
417	栗原敏弘, 木島 正志	スクアレンの大気下加熱によるポリマーフィルム形成	日本化学会秋季事業 第11回 CSJ 化学フェスタ 2021	2021/10/19-10/22
418	遠藤 拓, 木島 正志	スクアレン-シクロデキストリン包接体のエポキシ化反応	日本化学会秋季事業 第11回 CSJ 化学フェスタ 2021	2021/10/19-10/22
419	田頭健司、保岡悠、高橋和義、土居英男、青柳岳司	粗視化空間を中心としたマルチスケール計算と機械学習を用いた電歪ソフトマテリアル開発	CSJ 化学フェスタ 2021	2021/10/21
420	青柳 岳司	高分子レオロジーの実用的研究のためのスリップスプリング散逸粒子動力学コードの評価	第 69 回レオロジー討論会	2021/10/22
421	産業技術総合研究所 今井祐介、富永雄一、佐藤公泰 ADMAT 齋藤健	透明熱伝導コンポジット材料を用いたフィラー分散構造-熱伝導特性相関解明に関する研究	第 42 回日本熱物性シンポジウム	2021/10/25-10/27

422	永島 裕樹	Observation of low- $\gamma$ quadrupolar nuclei by surface-enhanced NMR spectroscopy	solid state NMR China workshop	2021/11/3
423	高田 新吾	機械学習を活用したポリマーブレンド材の開発	プラスチック成形加工学会主催 第176回講演会	2021/11/5
424	北畑 雅弘	東レにおける分子シミュレーション技術の活用事例	コンピュータによる材料開発・物質設計を考える会 (CAMM フォーラム)	2021/11/5
425	吉田 亮	統計的機械学習による新材料創製:産学連携の現状と可能性	データサイエンスにおける産学連携シーズ ~ ROIS・統数研 産連知財セミナー ~	2021/11/16
426	景山大地 (ADMAT/積水化成成品工業)・ ○竹林良浩・依田智 (産総研)	近赤外拡散反射を用いた有機修飾シリカ粒子の修飾率の測定	第 37 回近赤外フォーラム	2021/11/18
427	田頭健司、保岡悠、高橋和義、土居英男、青柳岳司	電歪ソフトマテリアルのマルチスケール計算と機械学習を用いた材料設計	第 12 回 JFCA シミュレーションスクール	2021/11/19
428	山平尚廣、花田剛、Lingyun Lyu, 堀内伸	STEM-EDX トモグラフィーによるゴム/シリカ多成分コンポジット相分離構造の 3 次元構造解析	日本顕微鏡学会第 64 回シンポジウム	2021/11/24
429	足立拓海 窪内翔 森田裕史 堀内伸	有限要素法シミュレーションを用いたフィラー充填ブレンドゴムの構造物性相関に関する研究 (4)	日本ゴム協会 第 32 回 エラストマー討論会	2021/11/24-11/25
430	新井亮祐	Optimization method based on Gaussian mixture regression for incomplete datasets	2021 MRS Fall Meeting & Exhibit	2021/11/28
431	奥 智治	二酸化炭素あるいはその等価体を炭素源とする脂肪族カルボン酸合成に関する研究	2021 大阪大学 ICS-OTRI 触媒科学シンポジウム	2021/11/30
432	時崎高志・○竹林良浩・依田智 (産総研)	コンポジット材料の内部構造サイズ評価手法の開発	成形加工シンポジア' 21	2021/11/30-12/1

433	○竹林良浩・小野巧・依田智(産総研)・高田新吾(ADMAT/DIC)・鈴木徹(DIC)	ポリマーブレンドの近赤外・ラマン分光分析	成形加工シンポジア' 21	2021/11/30
434	ADMAT/DIC 高田新吾 DIC 鈴木徹 AIST 竹林良浩 小野巧 依田智	高速二軸押出機を用いたPPS/エラストマーブレンド材の機械学習における製造条件最適化(仮)	成形加工学会第 29 回秋季大会 成形加工シンポジア' 21	2021/11/30
435	○依田智・阿多誠介・竹林良浩・小野巧・陶究(産総研) 田井哲朗・景山大地(ADMAT/積水化成工業)	試作高速化および“見た目”と“音”の解析のための押出発泡システムの構築	成形加工学会第 29 回秋季大会 成形加工シンポジア' 21	2021/11/30
436	(ADMAT/積水化成工業)景山 大地・田井 哲朗(産総研)依田 智・小野 巧・竹林 良浩・斎藤 洋子(筑波大学)大谷 実	計算科学を活用したナノ発泡ポリマーにおけるシリカ系核剤の設計と検証	成形加工学会第 29 回秋季大会 成形加工シンポジア' 21	2021/11/30- 12/1
437	安宅龍明	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクトの挑戦 -材料開発の革新による日本の産業競争力の更なる強化	プラスチック成形加工学会 第 29 回秋季大会 (成形加工シンポジア' 21)	2021/12/1
438	嶺澤範行、北畑雅弘、岡崎進	反応力場分子動力学シミュレーションによる炭素膜の構造生成と気体拡散	第35回分子シミュレーション討論会	2021/12/1
439	金子敏宏(発表者)、北畑雅弘、岡崎進	溶媒-溶質の大量同時変換を可能とする熱力学的積分法に基づく混合自由エネルギー計算の提案	第 35 回分子シミュレーション討論会	2021/12/1

440	青柳 岳司	有機・高分子材料への MI 適用のトレンド — 超超プロジェクトなどの事例に基づく現状の成果と今後の展望 —	2021 年度 パナソニック 総合技術シンポジウム	2021/12/3
441	北畑 雅弘	大規模分子シミュレーションによる高分子設計	日本学術会議 第 11 回 計算力学シンポジウム	2021/12/6
442	藤谷忠博	ハイスループット合成・評価システムとデータ科学を活用する触媒開発	第6回材料相模セミナー	2021/12/10
443	青柳 岳司	AI 活用材料設計の事例 NEDO 超超プロジェクト成果の紹介	日本トライボロジー学会 トライボロジー技術への AI の活用を考える研究会 第 3 回研究会	2021/12/10
444	村山 宣光	AI・シミュレーションを駆使した新素材の高速開発 — 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクトの挑戦 —	ナノセルロース塾(ナノセルロースジャパン主催)	2021/12/11
445	矢田 陽	Materials and Process Informatics in Organic Synthesis and Catalyst	The Material Research Meeting 2021 (MRM2021)	2021/12/14
446	南 拓也	Accelerating the development of thermosetting flexible transparent films via machine learning	Pacificchem2021	2021/12/16- 21
447	矢田 陽	Machine learning approach for prediction of reaction yield- aiming at the discovery of innovative catalysts	International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacificchem 2021)	2021/12/20
448	畑中美穂	Activation energy database for catalyst screening	The 5th China- Japan- Korea Workshop on Theoretical and Computational Chemistry	2022/1/14
449	産業技術総合研究所 先端素材高速開発技術研究組合	超超 PJ 成果総括 ほか	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト(超超 PJ)最終成果報告会	2022/1/18- 1/19

450	本田 隆	SEM 計測における深層学習を活用したナノ炭素材料の仮想実験 ～カーボンナノチューブ膜の構造・物性評価および人工知能による性能予測～	NBCI 材料分科会	2022/2/2
451	浅井 美博	NEDO 超々プロジェクトでのデータ駆動型材料設計への取り組み	第13回材料系ワークショップ	2022/2/9
452	藤元 伸悦(日鉄ケミカル&マテリアル)	高周波対応フレキシブル誘電材料の研究開発	第13回材料系ワークショップ	2022/2/9
453	(ADMAT)安宅龍明	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクトの紹介	FIoT コンソーシアム第4回研究会	2022/2/17
454	本田 隆	SEM 計測における深層学習を活用したナノ炭素材料の仮想実験 ～カーボンナノチューブ膜の構造・物性評価および人工知能による性能予測～	プラスチック技術協会	2022/3/8
455	ADMAT:山崎 悟志、AIST: 稲葉工、小橋和文、森本崇宏、岡崎俊也	熱処理によるカーボンナノチューブの構造変化と導電性	第77回 日本物理学会年次大会	2022/3/15-3/19
456	ADMAT:山崎 悟志、AIST:飯泉 陽子、稲葉 工、森本崇宏、岡崎 俊也	X線回折によるCNT線材内におけるドーパウ素の構造解析	第69回 応用物理学会春季学術講演会	2022/3/22-3/26
457	森本 崇宏、稲葉工、岡崎 俊也	AFM 立体像を用いたスパースなCNTネットワーク構造の導電率評価	第69回応用物理学会春季学術講演会	2022/3/22-3/26
458	○藤田賢一、松尾英明、崔準哲	シリカ被覆マグネタイトを触媒とした二酸化炭素からの2-オキサゾリジノン合成	日本化学会第102春季年会	2021/3/23

459	岡田 雅希(先端素材高速開発技術研究組合) 奥 智治(株式会社日本触媒/技術委員/登録研究員) 竹内 勝彦、松本和弘、崔 準哲 (AIST)	ロジウム(III)ヒドリドジオージド錯体を触媒とした添加剤不要なギ酸によるアルケンのヒドロキシカルボニル化反応	日本化学会第 102 春季年会(2022)	2022/3/25
-----	---	---	-----------------------	-----------

【プレスリリース・報道等】 25 件

番号	タイトル	掲載誌名	発表年月
1	計算・プロセス・計測による三位一体の研究開発体制の構築により「経験と勘」に頼らない機能性新材料の研究を加速	プレスリリース	2016/9/9
2	超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト様 事例ページ	HPE社によるスパコンサービス紹介	2017/8/23
3	先端素材超高速開発技術研究組合が1,024 ノードのスーパーコンピューターを「高火力コンピューティング」から利用	さくらインターネットによるスパコンサービス紹介	2017/9/1
4	人工知能(AI)で触媒反応の州立を予測ーキャタリストインフォマティクスで触媒の発見に道ー	プレスリリース	2018/1/31
5	技術で未来拓く 50 次世代の「当たり前」実現	日刊工業新聞 10 月 18 日 23 面	2018/10/18
6	ナノ粒子でプラスチックの発泡を微細で均質にする方法を開発ー計算・プロセス・計測の三位一体の技術で発泡材料の開発が加速ー	プレスリリース	2018/11/26
7	人工知能(AI)を用いてポリマー設計・検証サイクルの試行回数を大幅低減	プレスリリース	2018/11/27
8	革新的機能性材料開発のためのマルチスケールシミュレータ群を開発ー国内産業による材料開発期間の短縮を目指して開発したシミュレータ群を公開ー	プレスリリース	2019/4/1
9	バイオエタノールからブタジエンを生成する世界最高の生産性を有する触媒システムを短期間で開発	プレスリリース	2019/7/22
10	マイクロ波加熱による機能性酸化物ナノ粒子の高速合成法を開発ー迅速試作により機能性ナノ粒子の開発期間短縮に貢献ー	プレスリリース	2019/10/15
11	カーボンナノチューブ表面官能基の均一性をバンドル構造レベルで可視化する技術を開発	プレスリリース	2019/11/5



12	石油化学新聞社による東レR&Dに関する取材	石油化学新聞社	2019/5/21
13	人工知能(AI)の活用によりフレキシブル透明フィルム開発の迅速化を実証	プレスリリース	2020/4/13
14	合成化学者のための固体 DNP-NMR	Chem-station	2020/7/9
15	ソフトアクチュエーターに必要な大変形材料の開発を加速	プレスリリース	2020/9/16
16	計算シミュレーションとAIを連携し、仮想実験環境の構築	プレスリリース	2021/4/27
17	カーボンリサイクル社会を実現する化学品原料(カルボン酸)合成技術を開発	プレスリリース	2021/6/18
18	バイオマス由来のブタジエンゴムでタイヤを試作—持続可能な原料調達でCO2削減を促進—	プレスリリース	2021/8/10
19	固体表面上の酸素原子を高分解能2次元NMRで測定する技術を開発—DNP-NMRで高速・高分解能測定を実現、材料開発期間を大幅短縮—	プレスリリース	2021/8/19
20	AIが生成した材料の構造画像を用い、物性を予測する技術を開発—材料の選定から加工・評価までを高速・高精度に再現、材料開発を加速—	プレスリリース	2021/8/30
21	ポスト5G・6Gの材料開発に向け、誘電体基板の温度特性を計測する技術を確立—幅広い温度域での低損失化が要求されるミリ波帯材料の開発に貢献—	プレスリリース	2021/8/31
22	ペトロテック座談会 「New Normal(新しい生活様式)の下での研究開発のアプローチ」	石油学会誌「ペトロテック」第44巻(2021年)9月号 pp.586-596	2021/9/1
23	液晶がナノ構造をつくる際の新現象を発見—分子が集まる動きをAIが見分ける技術で高機能材料の創製に臨む—	プレスリリース	2021/9/10

24	連続・自動合成法で PEFC 向け高性能触媒の合成に成功、高効率合成も実現ー 燃料電池の白金コスト大幅低減を目指すー	プレスリリース	2021/11/15
25	データ駆動型材料設計技術利用推進コンソーシアムの設立に向けてー高度なデータ解析技術が拓く新たな材料開発の世界へー	プレスリリース	2021/11/25

【イベント出展】 11 件

番号	月日	場所	内容	備考
1	2017/12/8	産総研(つくば)	DNP-NMR ワークショップ	
2	2018/2/14-16	東京ビッグサイト	ナノテク展:出展及びワーク ショップ	
3	2018/10/23-26	タウンホール船堀	CSJ 化学フェスタ:出展	
4	2019/10/15	東京ビッグサイト	CSJ 化学フェスタ	
5	2019/1/30-2/1	東京ビッグサイト	ナノテク展:出展	
6	2019/12/18	グランフロント大阪ナレッジキャピ タルコングレコンベンションセンタ ー	NEDO フェスタ in 関西 2019	
7	2020/1/29	東京ビッグサイト	nano tech 2020	
8	2020/10/21	オンライン	第 10 回 CSJ 化学フェスタ 2020 産学官 R&D 紹介企 画	
9	2020/12/9-11	東京ビッグサイトーオンラインハイ ブリッド開催	nano tech 2021 国際ナノテ クノロジー総合展・技術会議	
10	2021/5/26-5/28	オンライン	第 70 回高分子学会産学コミ ュニケーションセッション	
11	2022/1/26	東京ビッグサイト東ホール&会議 棟、オンライン、ハイブリッド開催	nano tech 2022 国際ナノテ クノロジー総合展・技術会議	

【受賞】6件

番号	受賞者	所属	タイトル	発表年月
1	榊 茂好	京都大学	第69回錯体化学討論会 功績賞	2019年9月
2	永島裕樹	産総研・触媒センター	日本核磁気共鳴学会、第58回 NMR 討論会 若手ポスター賞	2019/11/8
3	今井祐介、富永雄一、堀田裕司	産総研・構造材料研究部門	高分子学会、第28回ポリマー材料フォーラム 優秀発表賞	2019/11/29
4	北畑雅弘	ADMAT	日本化学会第101春季年会 技術進歩賞受賞講演	2021/3/19
5	藤谷忠博	産総研・触媒センター	触媒学会 学術賞	2021年度
6		横浜ゴム	日本ゴム協会 ゴム協会賞	2021年度

【プログラム】 17 件 (公開分のみ)

番号	名称
1	Quantum ESPRESSO への ESM-RISM 拡張
2	汎用インターフェース (通称: 拡張 OCTA)
3	誘電率等の外場応答物性シミュレータ
4	電圧印加粗視化分子動力学シミュレータ(II)(ver.10.0U2M) (通称: 拡張 COGNAC)
5	フィルター充填系コンポジットシミュレータ (ver.3.40U2M)(通称: 拡張 KAPSEL)
6	ナノカーボンコンポジット用シミュレータ Soft Blends Analyzer (SOBA)
7	電圧印加粗視化分子動力学シミュレータ(I)(ver. 11Aug17ECGMD)(通称: 拡張 LAMMPS)
8	電気・光等のキャリア輸送シミュレータ(拡張 CONQUEST)
9	反応性流体シミュレータ
10	モンテカルロフルバンドデバイスシミュレータ
11	界面原子ダイナミクス・反応シミュレータ(II) HybridQMCLT
12	DIMP
13	EMPeaks-a
14	材料設計マルチスケールシミュレータ統一ユーザインタフェース version 0.5
15	ESM-RISM(OpenMX)
16	ESM-RISM(CONQUEST)
17	Machine Learning-aided Local Structure Analyzer (ML-LSA)

【特許】 39 件

番号	出願者	出願番号	出額国	出願日	状態	名称	発明者
1	筑波大学	特願 2017-099063	国内	2017.5.18	登録	ポトリオコッセン誘導体	木島 正志・川島英久
2	産総研	特願 2017-137345	国内	2017.7.13	登録	2-オキサゾリジノン類の製造方法	藤田 賢一・崔準哲・藤井 亮
3	産総研	特願 2018-096306	国内	2018.5.18	公開	バナジウム酸化物のリボン状ナノ構造体及びその製造方法、バナジウム酸化物の薄片状ナノ構造体を含む水溶液の製造方法、並びにバナジウム酸化物ナノ粒子の製造方法	岡田 昌久・山田保誠・田澤 真人
4	産総研・横浜ゴム	特願 2018-123385	国内	2018.6.28	公開	固体触媒およびブタジエンの製造方法	田邊 祐介・日座操・宮澤 朋久・藤谷 忠博・崔隆基
5	産総研・横浜ゴム	特願 2018-123143	国内	2018.6.28	公開	固体触媒およびブタジエンの製造方法	田邊 祐介・日座操・宮澤 朋久・藤谷 忠博・崔隆基
6	昭和電工株式会社	特願 2018-207577	国内	2018.11.2	公開	ポリマー設計装置、プログラム、および方法	南 拓也・奥野好成・室伏 克己・藤田 俊雄
7	産総研・積水化成	特願 2018-213845	国内	2018.11.14	公開	(メタ)アクリル系樹脂発泡体、(メタ)アクリル系樹脂発泡体の製造方法、及び、発泡用樹脂組成物	武 学麗・依田智・森田 裕史・堀内 伸・新納弘之・田井 哲朗・田積 皓平
8	産総研	特願 2019-031588	国内	2019.2.25	公開	2-オキサゾリジノン類の製造方法	藤田 賢一・崔準哲・松尾 英明
9	産総研	特願 2019-033152	国内	2019.2.26	公開	二酸化バナジウム粒子の製造方法	岡田 昌久・武山彰宏・山田 保誠

10	昭和電工株式会社	特願 2019-538694	PCT	2019.3.5	登録	ポリマーの物性予測装置、記憶媒体、及びポリマーの物性予測方法	南 拓也・奥野好成
11	昭和電工株式会社	特願 2019-224516	国内	2019.12.12	公開	ポリマーの物性予測装置、プログラム、及びポリマーの物性予測方法	南 拓也・奥野好成
12	産総研	特願 2019-064434	国内	2019.3.28	公開	コアシェル型熱伝導性ビーズ、その製造方法、樹脂組成物及び成形体	今井 祐介・富永雄一・堀田 裕司
13	産総研	特願 2019-064433	国内	2019.3.28	公開	熱伝導性ビーズ、その製造方法、樹脂組成物及び成形体	今井 祐介・富永雄一・堀田 裕司
14	コニカミノルタ株式会社	特願 2020-540202	PCT	2019.8.6	公開	二酸化バナジウム含有粒子の製造方法	山本 昌一
15	産総研	特願 2019-199576	国内	2019.11.1	公開	樹脂発泡体の製造方法及び樹脂発泡体	小野 巧・武 学麗・依田 智
16	産総研	特願 2019-231791	国内	2019.12.23	公開	グラフェン膜の製造方法及びグラフェン膜	沖川 侑揮・山田貴壽・長谷川 雅考
17	産総研	特願 2020-010119	国内	2020.1.24	公開	カルバミン酸エステル製造方法	崔 準哲・深谷訓久・チャン チャオ
18	産総研	特願 2020-039100	国内	2020.3.6	公開	環状カーボネートの製造方法	崔 準哲・深谷訓久・チャン チャオ
19	産総研・横浜ゴム	特願 2020-100157	国内	2020.6.9	公開	ブタジエンの製造方法及びブタジエンの製造装置	新家 雄・日座操・宮澤 朋久・藤谷 忠博・崔隆基
20	産総研・横浜ゴム	特願 2020-100110	国内	2020.6.9	公開	固体触媒およびブタジエンの製造方法	新家 雄・日座操・宮澤 朋久・藤谷 忠博・崔隆基
21	昭和電工株式会社	特願 2020-101108	国内	2020.6.10	公開	物性予測装置、物性予測方法及び製造方法	中陳 巧勤・南拓也

22	産総研	特願 2020-102013	国内	2020.6.12	公開	単層グラフェンシート及びこれを用いた化学センサー並びに単層グラフェンシートの処理方法	加藤 隆一・長谷川 雅考
23	産総研	特願 2020-147460	国内	2020.9.2	公開	複合材料用原料およびその製造方法ならびに複合材料	富永 雄一・佐藤公泰・今井 祐介
24	産総研	特願 2020-148130	国内	2020.9.3	公開	ナノ発泡ポリマーの製造方法およびナノ発泡ポリマー	小野 巧・依田智・新納 弘之
25	産総研	特願 2020-151222	国内	2020.9.9	公開	シリカ触媒を使用した2-オキサゾリジノン類の製造方法	藤田 賢一・崔準哲・松尾 英明
26	(未公開)	特願 2020-175247			出願		
27	(未公開)	特願 2020-175246			出願		
28	(未公開)	特願 2021-001576			出願		
29	(未公開)	特願 2021-063513			出願		
30	(未公開)	特願 2021-063512			出願		
31	(未公開)	特願 2021-168393			出願		
32	(未公開)	特願 2021-174857			出願		
33	(未公開)	特願 2021-183310			出願		
34	(未公開)	特願 2021-185719			出願		
35	(未公開)	特願 2021-186778			出願		
36	(未公開)	特願 2021-187992			出願		
37	(未公開)	特願 2021-190413			出願		



38	(未公開)	特願 2021- 211352			出 願		
39	産総研・ DIC	特願 2021- 554637	PCT	2021.2.17	登 録	ポリアリーレンスルフィド樹脂組成物の製造条件の判定方法および樹脂組成物の製造方法	高田 新吾・鈴木 徹・山地 俊則・竹 林 良浩・小野 巧・依田 智

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（材料データ構造化 AI ツール）【委託】

【論文】9報

番号	発表者	所属	タイトル	発表誌名、ページ番号	査読	発表年月
1	松本裕治	理化学研究所	第3章 材料設計の知識探索 1節 材料設計の知識抽	「データ駆動型材料開発—オントロジーとマイニング、計測と実験装置の自動制御」（監修・奈良先端科学技術大学院大学 船津公人）株式会社エヌ・ティー・エス、55-56		2021/11
2	石井真史、岡博之、鈴木晃	物質・材料研究機構	第3章 材料設計の知識探索 2節 データ抽出と自然言語処理 第1項 高分子材料設計のための文献データの自動抽出—アノテーション概説	「データ駆動型材料開発—オントロジーとマイニング、計測と実験装置の自動制御」（監修・奈良先端科学技術大学院大学 船津公人）株式会社エヌ・ティー・エス、57-60		2021/11
3	岡博之、鈴木晃、石井真史	物質・材料研究機構	第3章 材料設計の知識探索 2節 データ抽出と自然言語処理 第2項 論文からのデータ抽出の具体例	「データ駆動型材料開発—オントロジーとマイニング、計測と実験装置の自動制御」（監修・奈良先端科学技術大学院大学 船津公人）株式会社エヌ・ティー・エス、61-67		2021/11
4	鈴木晃、岡博之、石井真史	物質・材料研究機構	第3章 材料設計の知識探索 2節 データ抽出と自然言語処理 第3項 効率的なアノテーションツール	「データ駆動型材料開発—オントロジーとマイニング、計測と実験装置の自動制御」（監修・奈良先端科学技術大学院大学 船津公人）株式会社エヌ・ティー・エス、68-72		2021/11
5	坂本浩	物質・材	第3章 材料設計の知識探索	「データ駆動型材料開発		2021/11

	一、石井 真史	料研究 機構	第 3 節 材料設計のための知識ベース構想	「データ駆動型材料開発—オントロジーとマイニング、計測と実験装置の自動制御」(監修・奈良先端科学技術大学院大学 船津公人) 株式会社エヌ・ティー・エス、73-87		
6	石垣達也	産業技術総合 研究所	第 3 章 材料設計の知識探索 第 4 節 材料設計のための自然言語処理	「データ駆動型材料開発—オントロジーとマイニング、計測と実験装置の自動制御」(監修・奈良先端科学技術大学院大学 船津公人) 株式会社エヌ・ティー・エス、88-100		2021/11
7	加藤明彦、吉川友也、進藤裕之	奈良先端科学技術大学院大学、千葉工業大学	第 3 章 材料設計の知識探索 第 5 節 高分子材料文献からの図表の抽出と読み取り	「データ駆動型材料開発—オントロジーとマイニング、計測と実験装置の自動制御」(監修・奈良先端科学技術大学院大学 船津公人) 株式会社エヌ・ティー・エス、101-110		2021/11
8	久米慧嗣 古崎晃司	大阪電気通信大学	第 3 章 材料設計の知識探索 第 6 節 材料知識探索のためのオントロジー	「データ駆動型材料開発—オントロジーとマイニング、計測と実験装置の自動制御」(監修・奈良先端科学技術大学院大学 船津公人) 株式会社エヌ・ティー・エス、111-118		2021/11
9	加藤明彦、近藤修平、進藤裕之、渡辺太郎	奈良先端科学技術大学院大学	材料科学論文の表の意味解釈 データセットの構築	言語処理学会第 28 回 年次大会、679-683		2022/03

【学会発表・講演】10件

番号	発表者	所属	タイトル	会議名	発表年月
1	山本海 北畑雅弘 茂本勇	東レ株式会社	全原子分子動力学シミュレーションを学習用データとしたポリマー基礎構造および物性の機械学習予測	第69回高分子討論会	2020/09
2	久米慧嗣, 古崎晃司	大阪電気通信大学	高分子材料オントロジーの構築に向けた Wikidata からのドメイン概念抽出	第52回セマンティックウェブとオントロジー研究会	2020/11
3	山本海 北畑雅弘 茂本勇	東レ株式会社	全原子分子動力学シミュレーションデータを用いたポリマー基礎物性の機械学習	第70回高分子討論会	2021/09
4	松本裕治、石井真史、高村大也、進藤裕之、古崎晃司	松本裕治、石井真史、高村大也、進藤裕之、古崎晃司	材料データ構造化 AI ツール開発の概要	第70回高分子討論会	2021/09/06-08
5	岡博之、鈴木晃、Foppiano Luca、坂本浩一、石井真史、船津公人	物質・材料研究機構、奈良先端科学技術大学院大学	高分子論文コーパスの研究開発と AI ツールの高度化に向けた教師データ作成技術の開発	第70回高分子討論会	2021/09/06-08
6	進藤裕之、Phi Van Thuy、加藤明彦、近藤修平、吉川友也	奈良先端科学技術大学院大学、千葉工業大学	高分子論文の図表を解析する機械学習技術の開発	第70回高分子討論会	2021/09/06-08
7	古崎晃司, 久米慧嗣	大阪電気通信大学	材料データ構造化のための大規模知識グラフを用いた高分子オントロジーの構築	第70回高分子討論会	2021/09/06-08
8	石垣達也, 上原由衣, Liu Shanshan, Topic Goran, 高村大也	産業技術総合研究所	高分子材料に関する技術文献からの機械学習を用いた知識獲得	第70回高分子討論会	2021/09

9	Shanshan LIU、石垣達也、上原由衣、高村大也、Chowdhury Mohammad Mahir Asef、上沼睦典、進藤裕之、松本裕治	産業技術総合研究所、奈良先端科学技術大学院大学、理化学研究所	Extracting Material Synthesis Procedure: A Research on Relation-Level	SciNLP 2021 ワークショップ (AKBC 2021との共同開催)	2021/10
10	Shanshan LIU、石垣達也、上原由衣、高村大也、Chowdhury Mohammad Mahir Asef、上沼睦典、進藤裕之、松本裕治	産業技術総合研究所、奈良先端科学技術大学院大学、理化学研究所	A Generative Approach for End-to-End Relation Extraction	Fifth International Workshop on SCientific DOCument Analysis (SCIDOCA2021) associated with JSAI-isAI 2021	2021/11

添付資料 特許論文等リスト

研究開発項目[3] 先端ナノ計測評価技術開発／ナノ物質計測技術開発・ナノ欠陥検査用計測標準開発  
【委託】

【論文】16報

2016年度

Date (発表日)	Meeting title (発表先)	Presentation title (タイトル)	Presenter (発表者)
2016/9/30	Applied Physics Express (APEX)	Distribution hafnia and titania cores in EUV metal resists evaluated by STEM-EELS	Minoru Toriumi, Yuta Sato, Masanori Koshino, Kazu Suenaga, Toshiro Itani
2016/11/25	Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)	Relationship between sensitizer concentration and resist performance of chemically amplified extreme ultraviolet resists in sub-10 nm half- pitch resolution region	Takahiro Kozawa, Julius Joseph Santillan, Toshiro Itani
	Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)	Shot noise limit of chemically amplified resists with photodecomposable quenchers used for extreme ultraviolet lithography)	井谷俊郎、ジュリア ウス・サンティリヤン

2017年度

Date (発表日)	Meeting title (発表先)	Presentation title (タイトル)	Presenter (発表者)
2017/6/26～29	The 34th International Conference of Photopolymer Science and Technology	Relationship between Sensitization Distance and Photon Shop Noise in Line Edge Roughness Formation of Chemically Amplified Resists Used for Extreme Ultraviolet Lithography	古澤孝弘、ジュ リアウス・サンティリヤン、井 谷俊郎
なし	Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)	Theoretical study on sensitivity enhancement in energy-deficit region of chemically amplified resists used for extreme ultraviolet lithography	古澤孝弘、ジュ リアウス・サンティリヤン、井 谷俊郎
2018/2/25-2018/3/1	SPIE advanced lithography 2018	Sensitization and reaction mechanisms of ZrO2 nanoparticle resist used for extreme ultraviolet lithography	古澤孝弘、石原 智志、山本洋 揮、ジュリアウス・サンテ イリヤン、井谷俊郎

なし	Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)	Electron-hole pairs generated in ZrO <sub>2</sub> nanoparticle resist upon exposure to extreme ultraviolet radiation	阪大：古澤孝弘、ジュリアス・サンティリヤン、井谷俊郎
なし	ACS Macro Letters	Time-Lapsed Atomic Force Microscopy of the Evolution of Perpendicular-Lamellae in Thermally Annealed High-X Block Copolymer Thin Films	東工大：Alcin Chandra 他
なし	Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)	Resist image quality control via acid diffusion constant and/or photodecomposable quencher concentration in the fabrication of 11 nm half-pitch line-and-space patterns using extreme ultraviolet lithography	阪大：古澤孝弘、ジュリアス・サンティリヤン、井谷俊郎
2017/04/05	Powder Technol., 2017, 315, 68-72.	Simultaneous Measurement of Size and Density of Spherical Particles using Two-Dimensional Particle Tracking Analysis Method	加藤晴久 中村文子 大内尚子
2017/05/25	Colloids Surf. A., 2017, 525, 7-12.	Accurate size determination of polystyrene latex nanoparticles in aqueous media using a particle tracking analysis method	加藤晴久 中村文子 大内尚子 松浦有祐
2017/10/13	Sens. Actuators, B, 2018, 256, 1078-1085.	Nanoparticle tracking velocimetry by observing light scattering from individual particles	松浦有祐 中村 文子 加藤 晴久
2018/2/23	Anal. Chem.	Determination of Nanoparticle Size Using a Flow Particle-Tracking Method	松浦有祐 中村 文子 加藤 晴久

2018 年度

Date (発表日)	Meeting title (発表先)	Presentation title (タイトル)	Presenter (発表者)
なし	Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)	Pulse radiolysis of methacrylic acid ligand for zirconia nanoparticle resist	阪大 (山田徹平・石原智志・室谷裕佐・古澤孝弘)、東大 (山下真一)、ジュリアス・サンティリヤン、井谷俊

			郎
なし	Japanese Journal of Applied Physics (JJAP)	Dependence of relationship between chemical gradient and line width roughness of zirconia nanoparticle resist on pattern duty, acid generator, and developer	阪大 (古澤孝弘・中島綾子・山田徹平・室屋裕佐)、シユリウス・サテイヤン、井谷俊郎
2018/7/5	Phys. Chem. Chem. Phys.	Determination of an accurate size distribution of nanoparticles using particle tracking analysis corrected for the adverse effect of random Brownian motion	松浦有祐 中村 文子 大内 尚子 加藤 晴久



【学会発表・講演】 71 件

2016 年度

Date (発表日)	Meeting title (発表先)	Presentation title (タイトル)	Presenter (発表者)
2016/6/24	The 33rd International Conference of Photopolymer Science and Technology	Outgas Study for EUV Alternative Resist	Eishi Shiobara
2016/7/7	次世代リソグラフィーワークショップ (NGL2016)	A new image capture method for improving EUVL patterned mask inspection throughput with Projection Electron Microscope System	Hidehiro Watanabe
2016/7/7	次世代リソグラフィーワークショップ (NGL2016)	ブロック共重合高分子の誘導自己組織化を用いたサブ 10nm 金属配線回路試作	Tsukasa Azuma
2016/7/8	次世代リソグラフィーワークショップ (NGL2016)	High-Sensitivity Metal-based Resists for EUV Lithography	Julius Joseph Santillan
2016/10/13	DSA Symposium 2016	Sub-10nm Metal Wire Circuit Fabrication using Directed Self-Assembly of Block Copolymer	笠原 佑介
2016/10/23	IEUVI Resist TWG meeting	Update of Resist Outgass Testing at EIDEC	塩原 英志
2016/10/24	2016 International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	Evaluation of etched multilayer mask for 0.33NA EUVL extension	Takashi Kamo, Kosuke Takai, Noriko Iida, Yasutaka Morikawa, Naoya Hayashi, Hidehiro Watanabe
2016/10/24	2016 International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	Recent Status of the High-NA Small Field Exposure Tool (HSFET) at EIDEC	Shunko Magoshi, Hidemi Kawai, and Satoshi Tanaka
2016/10/24	2016 International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	HSFET characterization of factors for imaging	Hidemi Kawai
2016/10/24	2016 International	The recent study of resist outgassing in the	Eishi Shiobara

	Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	hydrogen environment	
2016/10/25	2016 International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	ABI tool performance confirmation by NXE3300 printing results for native EUV blank defects at 16nm half pitch	Rik Jonckheere, Takeshi Yamane, Noriaki Takagi, Hidehiro Watanabe, Christophe Beral
2016/10/26	2016 International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	Analysis of metal resist used for extreme ultraviolet lithography	Takahiro Kozawa, Julius Joseph Santillan, Toshiro Itani
2016/10/26	2016 International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	Development and application of 'metal resist' for EUVL patterning	Julius Joseph Santillan
2016/11/8-11	29th International Microprocesses and Nanotechnology Conference	Sensitivity enhancement of chemically amplified EUV resist by adding acid generation promoters	Shinya Fujii, Kazumasa Okamoto, Hiroki Yamamoto, Takahiro Kozawa, Toshiro Itani
2016/11/14	『半導体微細パターンニング技術最前線』	ラインアンドスペース対応 DSA 技術	東 司
2016/11/18	電気学会リソグラフィ将来技術調査専門委員会	2nd DSA Symposium 報告	笠原 佑介
2016/11/18	次世代リソグラフィ研究会	2nd DSA Symposium 報告	笠原 佑介
2016/12/12-13	International Symposium on Semiconductor Manufacturing (ISSM2016)	Sub-10 nm Metal Wire Circuit Fabrication using Directed Self-Assembly of Block Copolymer	Tsukasa Azuma
2016/12/12-13	International Symposium on Semiconductor Manufacturing (ISSM2016)	Research and development of metal-based resist materials for EUVL	Julius Joseph Santillan, Toshiro Itani

2017/1/26	公益社団法人高分子学会 第26回光反応・電子用材料研究会講座および2016年度印刷・情報記録・表示研究会シンポジウム	高分子ブロック共重合体を用いた DSA リソグラフィの現状と課題	東 司
2017/2/28	2017 SPIE Advanced Lithography	An investigation on "nano-swelling" phenomenon during resist dissolution using in situ high speed stomic force microscopy	Julius Joseph Santillan, Toshiro Itani
2017/3/1	2017 SPIE Advanced Lithography	Nano Defect Management in Directed Self-Assembly of Block Copolymers	Tsukasa Azuma et al
2017/3/14-17	第64回応用物理学会春季学術講演会 (The 64th JSAP Spring Meeting.2017)	化学増幅型レジストへのスルホン化合物の添加効果 (Effect of addition of sulfones into chemically amplified resists)	岡本一将、藤井 慎哉、山本洋 揮、古澤孝弘、井谷俊郎
2017/3/14-17	第64回応用物理学会春季学術講演会 (The 64th JSAP Spring Meeting.2017)	メタルレジストのレジストの反応機構に関する研究 (Study on Reaction Mechanisms of Metal Resists)	石原智志、山本 洋揮、ジュリアス・ サンティラン、井谷 俊郎、古澤孝弘

2017 年度

Date (発表日)	Meeting title (発表先)	Presentation title (タイトル)	Presenter (発表者)
2017/4/7	Photomask Japan 2017	Application of EUV dark field image for EUVL mask fabrication	山根武、渡辺秀弘
2017/6/28	ICPST-34	In-situ Obseravation of Micro-Phase Separation Process in Directed-Self Assembly of Block Copolymers	東司、他
2017/6/28	ICPST-34	Dynamics of DSA Defects	東司、吉元健治 (京都大学)、他
2017/7/18-19	NGL ワークショップ 2017	DSA ミクロ相分離プロセスにおける欠陥ダイナミクス (Defect Dynamics in DSA Micro-phase Separation Process)	小寺克昌
2017/9/10	IEUVI Resist TWG meeting	The update of resist outgas testing for metal containing resists at EIDEC	塩原英志

2017/9/13	International Conference on Extreme Ultraviolet Lithography 2017	The effect of resist film depth inhomogeneity on the lithographic performance of metal-based resist materials	ジュリアス・サンティヤン、井谷俊郎
2017/9/13	International Conference on Extreme Ultraviolet Lithography 2017	Sensitization and reaction mechanisms of metal resist used for extreme ultraviolet lithography	古澤孝弘、ジュリアス・サンティヤン、井谷俊郎
2017/9/13	International Conference on Extreme Ultraviolet Lithography 2017	The update of resist outgas testing for metal containing resists at EIDEC	塩原英志
2017/9/18	3rd International Symposium on DSA 2017	Defect Dynamics in Self-Assembling Processes of Block Copolymers	京都大学：吉元健治
2017/9/20-22	第 66 回高分子討論会	GI-SAXS によるブロックコポリマーの自己組織化過程の解明	京都大学：重栖拓也、他
2017/9/20-22	第 66 回高分子討論会	Time-Lapsed Atomic Force Microscopy Observations of the Evolution of Perpendicular Lamellae in Thermally-Annealed Block Copolymer Thin Films	東京工業大学：Alvin Chandra、他
2017/9/20-22	第 66 回高分子討論会	In-situ AFM による誘導自己組織化プロセスの可視化	京都大学：吉元健治、他
2017/9/20-22	第 66 回高分子討論会	DSA ミクロ相分離プロセスにおける欠陥ダイナミクス (Defect Dynamics in DSA Micro-phase Separation Process)	小寺克昌
2017/9/22	15th FRAUNHOFER IISB LITHOGRAPHY SIMULATION WORKSHOP	Simulation of metal resist used for extreme ultraviolet lithography	阪大：古澤孝弘、ジュリアス・サンティヤン、井谷俊郎
2017/11/2	DSA Symposium 2017 報告	DSA Symposium 2017 報告	東司
2017/11/6-9	The 30th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2017)	Studies on Self-Assembling Processes of Block Copolymer Thin Films by using Grazing Incident Small-Angle X-ray Scattering	竹中幹人、他

2017/11/8	The 30th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2017)	Defect Dynamics of Micro-phase Separation Process in Directed Self-Assembly of Block Copolymers	東司、他
2017/11/24	17th International Conference and Exhibition on Nanomedicine and Nanotechnology in Health Care, invited	Characterization of nanomaterials in liquid phase using Particle Tracking Analysis Method	加藤晴久
2018/02/12	IFPAC2018, invited	Characterization of nanomaterials in liquid phase using diffusion analytical based sizing methods	加藤晴久 中村文子
2018/2/25	IEUVI Resist TWG meeting	The recent status of resist outgas testing at EIDEC	塩原英志
2018/2/25	IEUVI Resist TWG meeting	Sensitization and reaction mechanisms of ZrO <sub>2</sub> nanoparticle resist used for extreme ultraviolet lithography	阪大（古澤孝弘、山田徹平、石原智志、室谷裕佐、山本洋揮）、ジェリウス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/2/25-2018/3/1	2018 SPIE Advanced Lithography	Investigations on EUVL metal resist dissolution behavior using in situ high speed atomic force microscopy	ジェリウス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/2/25-2018/3/1	2018 SPIE Advanced Lithography	Characterization of metal resist for EUV lithography using Infrared-Free-Electron Laser	東京理科大学：鳥海実、川崎平康、今井貴之、築山光一、 EIDEC：ジェリウス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/2/26	SPIE advanced lithography 2018	The recent status of resist outgas testing for metal containing resists at EIDEC	塩原英志
2018/2/28	SPIE advanced lithography 2018	Defect Dynamics in Directed Self-Assembly of Block Copolymers	東司、他

2018/2/28	SPIE advanced lithography 2018	A simulation study on bridge defects in lamellae-forming diblock copolymers	佐藤寛暢、清野由里子、笠原祐介、小寺克昌、宮城賢、白石雅之、東司
2018/3/1	SPIE advanced lithography 2018	Printability estimation of EUV blank defect using actinic image	山根武、加茂隆、Rik Jonckheere

2018 年度

Date (発表日)	Meeting title (発表先)	Presentation title (タイトル)	Presenter (発表者)
2018/4/18-20	PMJ2018	Blank defect coverage budget for 16nm half-pitch single EUV exposure	Rink Jonckheere、山根武、森川泰考、加茂隆
2018/5/15	Polynat International Industries Form 2018	Development of DSA lithography for semiconductor manufacturing	笠原祐介
2018/6/25-28	The 35th International Conference of Photopolymer Science and Technology	Characterization studies on metal-based EUV resist film properties	ジュリアス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/6/25～28	The 35th International Conference of Photopolymer Science and Technology	Relationship between Resolution Blur and Shot Noise in Line Edge Roughness Formation of Chemically Amplified Resists Used for Extreme-Ultraviolet Lithography	阪大(古澤孝弘)、ジュリアス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/7/4～6	第 55 回アイソトープ・放射線研究発表会	メタルレジスト配位子の放射線化学反応機構の解明 (The elucidation of radiation-chemical reaction mechanism on ligands of metal resists)	阪大 (山田徹平・石原智志・山本洋揮・室谷裕佐・古澤孝弘)、東大 (山下真一)、ジュリアス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/7/5～6	NGL ワークショップ 2018	メタルレジスト配位子の放射線化学反応機構の解明 (The elucidation of radiation-chemical reaction mechanism on ligands of metal resists)	阪大 (山田徹平・石原智志・山本洋揮・室谷裕佐・古澤孝弘)、東大 (山下真一)、ジュリアス・サントイヤン、井谷俊郎

			郎
2018/7/5～6	NGL ワークショップ 2018	EUVL メタルレジストの現像中溶解挙動のその場観察	ジュリアス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/7/5～6	NGL ワークショップ 2018	赤外自由電子レーザーによる EUV リソグラフィ用メタルレジストの特性評価 (Characterization of metal resist for EUV lithography using Infrared Free Electron Laser)	理科大 (鳥海実・川崎平康・今井貴之・築山光一) ジュリアス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/9/17～20	2018 International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	Analysis of resist film stability of metal-based EUV resists	ジュリアス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/9/17～20	2018 International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography	Pattern formation mechanism of zirconia nanoparticle resist used for extreme ultraviolet lithography	阪大 (古澤孝弘・山田徹平・石原智志・山本洋揮・室屋裕佐) ジュリアス・サントイヤン、井谷俊郎
2018/9/18	第 79 回応用物理学会秋季学術講演会	単一ナノ粒子光散乱観察によるミクロンスケールの流速計測法の開発	松浦有祐 中村 文子 加藤 晴久
2018/10/25	プラナリゼーション CMP とその応用技術専門委員会 第 168 回研究会	液中パーティクル計測の課題とその課題克服への挑戦	富田寛
2018/11/2	第 40 回ナガセマイクroeレクトロニクスセミナー	EUVL の将来性について	内山貴之
2018/11/12	4th International Symposium on DSA (DSA Symposium 2018)	Evolution of Perpendicular Lamellae in High-X Block Copolymers via In-Situ Atomic Force Microscopy	Alvin Chandra et.al.
2018/11/12	4th International Symposium on DSA (DSA Symposium 2018)	In-situ measurement of self-assembling blockcopolymer thin film with GISAXS	Takuya Omosu et.al.

2018/11/13～16	31st International Microprocesses and Nanotechnology Conference	Reaction Mechanism of Zr Metal Resist	NIMS (山下良之・知京豊裕)、ジュリアス・サティヤン、井谷俊郎
2019/2/24～28	SPIE advanced lithography 2019	Influence of mask line width roughness on pattern defect printability	山根武、森川泰考、加茂隆
2019/2/24～28	SPIE advanced lithography 2019	Analysis of line-and-space patterns of ZrO <sub>2</sub> nanoparticle on the basis of EUV sensitization mechanism	阪大 (古澤孝弘・山田徹平・室屋裕佐) ジュリアス・サティヤン、井谷俊郎
2019/2/25	SPIE advanced lithography 2019	Mask 3D effect reduction and defect printability of etched multilayer EUV mask	加茂隆、山根武、飯田晋、森川泰考、内山貴之、馬越俊幸、田中聡
2019/2/18	日本半導体製造装置協会 (SEAJ)	高分子ブロック共重合体の誘導自己組織化を利用した半導体リソグラフィ	東司 他、
2019/8/1 (予定)	高分子学会	ブロック共重合体の誘導自己組織化を利用した半導体リソグラフィ	東司



【特許】9件

番号	出願者	出願番号	出願国	出願日	状態	名称	発明者
1	産総研	特願 2017-075193	国内	2017.4.5	公開	光学測定用フローセル	加藤 晴久・松浦有祐・中村 文子
2	産総研	PCT/JP2017/043626	PCT	2017.12.5	公開	流速分布計測方法及び粒径計測方法	加藤 晴久・松浦有祐・中村 文子
3	産総研	特願 2018-170407	国内	2018.9.12	公開	微粒子観察装置及び微粒子観察方法	加藤 晴久・松浦有祐・中村 文子
4	東芝メモリ株式会社	特願 2019-043020	国内	2019.3.8	公開	像取得装置及び像取得方法	山根 武
5	東芝メモリ株式会社 リオン株式会社	特願 2019-043031	国内	2019.3.8	公開	粒子計測方法及び検出液	冨田 寛・林 秀和・塩原 英志・近藤 郁・田淵 拓哉・坂東 和奈・近藤 聡太
6	東芝メモリ株式会社	特願 2019-047085	国内	2019.3.14	公開	パターン形成方法	東 司
7	産総研	特願 2018-559102	PCT	2019.4.18	公開	光学測定用フローセル	加藤 晴久・中村 文子
8	産総研	特願 2019-085230	国内	2019.2.25	公開	微粒子観察装置及び微粒子観察方法	松浦 有祐・加藤 晴久・中村 文子
9	産総研	特願 2018-5145916	PCT	2019.8.30	登録	微粒子観察装置及び微粒子観察方法	加藤 晴久・松浦有祐・中村 文子