

## 2.5 共通基盤科学技術

ナノテクノロジー・材料分野の基礎および応用を支える「共通基盤科学技術」区分には、「加工・プロセス」(微細加工プロセス、積層造形・レーザー加工、接着)、「計測・分析」(ナノ・オペランド計測)、および「理論・計算科学」(物質・材料シミュレーション)が含まれる。

「加工・プロセス」の中でも微細加工プロセスはナノメートルレベルの加工を可能とするナノテクノロジー・材料分野を支える重要な技術領域である。半導体デバイス領域で発展したこの微細加工プロセスは、半導体分野にとどまらず、ナノメカニクス、スピントロニクス、バイオナノテクノロジーなどへの波及が進んでいる。微細化を牽引してきた「Mooreの法則」の限界が叫ばれるようになって、微細化・高集積化に向けた歩みはややテンポを遅くしているものの、10nm以下のシングルナノメートル領域に向けた微細化の技術開発として、極端紫外線(EUV)露光技術、ナノインプリント技術、自己組織化技術(DSA: Directed Self Assembly)が行われている。このように次世代の微細加工技術は研究開発が精力的に進められているが、まだ技術的課題が多く、実用化研究と合わせて、ナノレベルの欠陥の発生機構などの現象解明に繋がる基礎的な研究も重要になっている。

積層造形・レーザー加工は高付加価値の多品種少量生産やカスタムメイド生産のための技術開発領域である。積層造形は付加製造(Additive Manufacturing)、3Dプリンティングとも呼ばれ、立体物を水平に輪切りにした断面データをもとに、樹脂や金属粉などをレーザーまたは電子線で熔融させて薄い層を積み上げ、プラスチックや金属の立体物を製作する技術である。レーザー加工は、金属、セラミックス、ガラス、樹脂等の材料に対し、除去(切削・切断)、穴開け、曲げ、溶接・接合加工や表面改質を施すものである。近年は、ファイバーレーザー等の近赤外域レーザーの普及によって、レーザー加工だけでなくレーザー方式の積層造形も広がりを見せており、プロセスコスト、加工スピード、部品品質の改善が課題になっている。また、品質向上のためプロセスモニタリング、プロセスシミュレーションなどの技術も重要になっている。

接着は航空機や自動車などの輸送機器におけるCO<sub>2</sub>排出量削減を目的として、マルチマテリアル化による軽量化を実現するための重要な技術であり、実験と計算の両面アプローチにもとづくナノ～メゾ～マイクロメートルスケールでの接着メカニズムの解明と信頼性の確保、接着界面のリアルタイム計測評価手法の構築、接着や剥離が制御できる新規機能材料の開発などが求められる。これらの課題には、プロセス設計、力学的特性評価や界面分析、非破壊検査、表面処理、接着剤の設計など多様な要素があるため、機械や物理、化学等幅広い分野の専門家の連携による解決が不可欠である。

「計測・分析」では、今回は特に、材料やデバイスに対する実使用下でのナノスケール計測、すなわち機能発現中に刻々と変化する現象を直接観察することで、測定対象と機能との相関を見出すことを目的としたナノ・オペランド計測を取り上げている。この研究領域では、先端計測に向けた高い時間・空間分解能の達成、使用場に相当するモデル環境の実現、膨大な観測データからの有用情報の効率的抽出などの課題がある。最近では、「オペランド」という用語が初めて使われた触媒分野にとどまらず、生きた細胞、生体組織や半導体メモリー、太陽電池などの実デバイスにまで測定対象は急速な広がりを見せ、学界と産業界の両方において不可欠な研究手段となりつつある。

「理論・計算科学」の物質・材料シミュレーションは、物質・材料科学の基礎を支える重要

な科学技術で、量子力学や統計力学の諸知見を活かし、物質の構造、物性、材料組織、化学反応機構などを高精度に解析・予測する技術の確立を目指す研究領域である。計算の分野としては、分子系電子状態計算、固体系電子状態計算、分子シミュレーション、モンテカルロシミュレーション、統計力学に基づく積分方程式、連続体モデルなどがある。近年の計算機環境の大幅な向上と、計算プログラムの高度化により、計算物質科学、計算生命科学の分野は10年前と比較して格段に進展しており、実験結果の解釈ばかりではなく、実験の設計をする段階でのスクリーニング、スクリーニングによって得られた構造に対する物性予測などに用いられている。また、マテリアルズ・インフォマティクスや量子コンピュータへの応用に向けた研究開発が大きな流れになっている。

## 2.5.1 微細加工プロセス

### (1) 研究開発領域の定義

シングルナノメートルレベルまでのシリコンの微細加工プロセスの高度化を実現する。現状の ArF 液浸露光技術とマルチプルパターニング技術の組合せの高度化に加え、EUV リソグラフィ技術、ナノインプリント技術、ブロックコポリマー (block copolymer) の自己組織化パターン形成などの利用による従来リソグラフィ技術の限界を超えるシングルナノメートルレベルの新たなリソグラフィ技術と加工技術、およびこれらのトランジスタ・配線作製への適用性検証などの研究開発課題がある。

### (2) キーワード

微細加工、シングルナノ、リソグラフィ技術、露光装置、ArF 液浸、極端紫外線、EUV、ナノインプリント、NIL、DSA、マルチパターニング、電子線欠陥検査装置、ペリクル膜、モールド、複製テンプレート、光硬化樹脂、高分子レジスト、無機レジスト、金属酸化物系レジスト、ナノディフェクトマネージメント、高 NA 光学系、アナモルフィック光学系、Stochastic 欠陥、ショットノイズ、欠陥検査装置、自由電子レーザー EUV 光源

### (3) 研究開発領域の概要

[本領域の意義]

近年、スマートフォン、パソコン、液晶テレビ、掃除ロボットなどの情報通信機器・エレクトロニクス機器の高機能化、高性能化、低消費電力化が進んでいるが、これを支えているのが半導体の大規模集積回路 (LSI) の性能向上である。この性能向上は、基本的には半導体素子 (トランジスタ) の微細化によってもたらされており、リソグラフィ技術、プロセス技術の高度化、デバイス構造の改革 (3次元化)、材料技術の革新を含む微細加工技術の継続的な進展が牽引してきた。微細加工技術の中心となる光リソグラフィ技術は、使用する光の短波長化、縮小投影技術、近接効果補正、液浸技術など光学系やマスクの工夫、レジスト材料の改良、ケミカルメカニカルポリッシング (CMP)、ダブルパターニング技術など様々な技術を取り入れてきており、現在では波長 193nm のフッ化アルゴン (ArF) エキシマレーザー光を用いて、10nm 台の回路パターンを持つ LSI が実現されている。

しかしここ数年、次世代のリソグラフィ技術開発の困難さや、マスクコストの増大などから、微細化を牽引してきた「Moore の法則」の限界が叫ばれるようになってきた。一方で、ビッグデータ処理、自動運転、人工知能 (AI)、IoT などの情報処理能力のさらなる向上や低消費電力化の要求が高まってきており、半導体集積回路の微細化・高集積化に向けた歩みはややテンポを遅くしているものの、シングルナノメートル領域に向けた微細化の要求は大きい。

[研究開発の動向]

10nm テクノロジーノード等の先端 LSI の製造には、ArF 液浸露光技術とマルチパターニング技術を併用した加工技術が採用されており、今後もこの方式での微細化の技術開発が続けられる。しかし、マルチパターニングに伴う加工コストの高騰から、次世代の極端紫外線 (EUV) 露光技術の採用へ向けた研究開発が、急務となっている。

ArF 液浸露光技術に関しては、装置技術、光源技術等の装置に特化した研究開発はほぼ一段

落しているが、マルチパターンニングにおける高精度化や、下地基板への転写に伴う材料・プロセス技術の研究開発が続いている。

一方、EUV 露光技術に関する研究開発は、装置技術開発、マスク技術開発、マスク利用技術開発、レジスト材料技術開発と、これに伴う各種検査評価技術開発等からなり、微細化、高精度化だけでなく、実用化を見据えた、信頼性、量産性、低欠陥密度化といった観点での研究開発が注力されている。さらに、高解像度化を目的に、露光光学系の NA を 0.55 まで向上させる高 NA 光学系の開発が Carl Zeiss SMT 社 (Zeiss の露光光学系開発部門が 2016 年度に ASML 社の傘下に吸収され、EUV 露光装置の開発を推進) を中心に活発に進められている。この高 NA-EUV 露光装置では、高 NA 化により、マスクへの EUV 光の入射角度が大きくなり、マスク吸収体の影が、解像特性に影響することが予測される。このため、ASML 社は、スキャン方向の倍率を現在の 4 倍から 8 倍に拡大することによりマスクへの EUV 光の入射角度を低減し、この問題を解決する方針である。スキャン方向に垂直な方向は、マスク吸収体の影が影響しないため、従来通りの 4 倍としている。この結果、スキャン方向とそれに垂直な方向で、縮小率が 8 倍と 4 倍に変化する。これはアナモルフィック光学系と呼ばれ、ワイド型のシネマスクリーンなどの投影光学系で採用されている方式である。マスクサイズは従来のままの大きさにすることが求められているので、露光される面積は、従来のおよそ半分になる。すなわち、1 回のスキャンで露光される面積が半分になるため、スループットを大きく低下させる要因になる。このため、マスクやウエハステージのスキャン速度を大幅に向上させるなど、スループットの低下を出来るだけ抑制する技術開発に注力しているが、必ずしも十分ではない。

マスク側からも、吸収体の影の影響を減らすため、従来の TiN 系吸収体より、EUV 光の吸収が大きい材料を選択しようという動きが急である。Co や Ni がその候補として検討されているが、加工性に問題があり今後の課題となっている。ユーザー側からの問題は、スキャンフィールドが小さくなるため、大きなチップの露光に支障を来すことである。現在、一般のメモリやロジックのチップサイズは、スキャンフィールドに比べて十分に小さい。しかし、一部の GPU (Graphics Processing Unit) 等のチップでは、スキャンフィールド全体を用いるような大きなものも開発されており、今後こういった大フィールドチップに対応するため、複数の露光フィールドをつなぐ、フィールドスティッチングといった機能も必要となると考えられる。

ナノインプリント技術に関しては、量産性の向上、欠陥密度の低減を中心に、低コスト化を目的としたマスクの製造方法の改良などが進められている。欠陥密度低減に関しては、露光装置内の発塵低減や、レジスト材料中のパーティクルの低減、インプリント時の発泡抑制技術など、様々な欠陥密度低減策の開発が進められている。この結果、メモリ作製に耐えうるレベルの欠陥密度まで低減できる見込みになっている。この他、マスクとウエハの離型性制御技術やマスクの洗浄技術などの開発も進んでいる。一方、マスクは、1 対 1 の超微細高精度なものが要求され、長時間の電子線描画時間が問題となる。この問題を解決するため、電子線描画で作製したマスターマスクからインプリント技術で子マスクを作製するマスクレプリカ形成用インプリント装置の開発も行われ、マスクコストの低減が図られている。

ナノインプリント技術の国内外の動向としては以下のようになっている。韓国はナノインプリントの国際会議 Nanoimprint and Nanoprint Technology (NNT 2017) において大学からの発表が非常に多く、以前に比べて裾野が広がっている。例えば、韓国機械技術研究院 (KIMM) や Korea 大が積極的に研究開発を行っている他、Seoul 大、Pusan 大、浦項大 (POSTEC)

など多くの大学で研究が行われている。企業ではSKエレクトロニクスが東芝メモリと協力して半導体製造に向けた研究を行っている。中国ではまだ研究の初期段階のものが多いが、以前から研究を行っている香港大に加え、南方科技大、南京大、西安交通大でも研究が行われるようになっている。米国ではミシガン大、テキサス大、マサチューセッツ大などで新しい電子素子に向けた研究などが活発に行われており、キャノンナノテクノロジーズが半導体製造向けの装置を精力的に開発している。欧州では光学応用やバイオ応用に関する研究が多いが、Wuppertal大などが引き続き基礎研究を行っており、EVGとLetiが200mm一括の製造プロセスの研究を行っている。日本では、大阪府立大、東北大、産業技術総合研究所が基礎から応用にかけて研究を進めている。また、実用化を目指して、キャノンが半導体向けのナノインプリント装置、大日本印刷がそのためのテンプレート開発、東芝メモリがナノインプリント製造のプロセス開発を精力的に行っている。

ブロックコポリマーを用いた、Directed Self Assembly (DSA) 技術に関しては、欠陥低減が最大の課題であり、材料・プロセスの両面から研究開発が進められている。さらに微細性の向上を狙った相互作用パラメータ (X) の大きな新しい高X材料の開発や、像形成シミュレーション技術の高度化、形成された像の評価・検査技術の高度化などが、実用化に向けた重要な技術課題となっている。

#### (4) 注目動向

[新展開・技術トピックス]

EUUV露光においては、Stochastic欠陥が非常に注目されている。これは、EUUV露光の対象が7nmノード以降の超微細な領域に達したことにより、実際のパターン寸法も10nmレベルまたはそれ以下の寸法の実現が要求され、しかも非常に高い集積度でこれを実現する必要があることで顕在化したものである。専門家間では以前から議論されてきた課題ではあるが、実際に1つのチップ上に10nmレベルのパターンを数十億個以上形成すると、統計的ゆらぎ(Stochastic effect)に伴う欠陥が顕在化してくる。これをStochastic欠陥と呼び、何が原因でどう対策するか大きな議論となっている。最大の原因はEUUV光の入射フォトンのゆらぎ、すなわちショットノイズであるが、それとともにレジスト材料自体の不均一性や現像時の不均一性など、様々な要因が複合化していると考えられる。解決策としては露光量を増大しレジスト材料を均質化することなどが考えられるが、スループットの低下など実用的には対策が難しいのが現状である。

非常に微細で統計的な揺らぎに伴う、すなわち頻度の極端に低い欠陥を検査・評価するためには、超微細で高速な欠陥検査装置の開発が必要である。しかし現状ではこれを可能にする欠陥検査装置は無い。従来の光学式検査装置では解像度が不足し、電子線を用いる欠陥検査装置では検査速度が低すぎるという状況である。これを解決する技術として注目されているのが、マルチビームを用いた電子線欠陥検査装置である。マスク描画装置としてはマルチビーム型が実用化されつつあるが、欠陥検査装置としては未だ開発段階にあり、実用化が待たれている。この複数ビームを用いた検査装置として、ASML社の傘下に入った台湾のHMI社がマルチコラム型を開発し実用化しているとの情報もある。マルチコラム型では数本のビームを用いるが、本格的な検査装置としてはマスク描画装置と同様のマルチビーム型の開発が待たれるところである。HMI社は2018年のSPIEでマルチビーム型装置の基本となる技術開発の成果を発表し

ている。

ステップアンドリピート型のナノインプリントでは、NANDフラッシュ製造向けのナノインプリント装置が東芝メモリの四日市工場に納入され、製造プロセスへの導入が開始されようとしている。同装置では、これまでに開発したテンプレートを機械的に変形させる倍率補正の他に、テンプレートを通して光によりウエハを局所加熱して高次の歪補正を行うシステムが搭載され、光リソグラフィに匹敵する補正が可能になった点が注目に値する。また、これらの装置に用いるテンプレート複製装置の開発も進んでいる。その他、マスターテンプレートの作製においてはマルチビームの電子ビーム描画装置が実用化され、複雑で微細なパターンが非常に高速に描画できるようになった点も重要である。

ウエハー括型のナノインプリントでは、EVGの開発した200 mm ウエハ用高速インプリント装置がLetiに導入され、光リソグラフィや電子ビームリソグラフィとのミックスアンドマッチのリソグラフィの評価が進められている。国内では、ウエハー括のナノインプリント用のモールドを低コストで作製する超高速のポイントビーム型電子ビーム描画装置の開発が進んでいる。また、インプリントにおいてバブル抑止用ガスとして使用されるペンタフルオロプロパン（PFPP）よりも転写性能が良く低環境負荷のガスの利用が提案された。

[注目すべき国内外のプロジェクト]

EUVに関して、米国では2016年より5年間で5億ドル支出し、Global Foundries社とニューヨーク州立大Albany校（SUNY）でEUVリソグラフィ技術の開発を行っている。また、ローレンスバークレー国立研究所内に、Intel、Samsung、TSMC、inpriaが出資し、EUREKAと呼ぶ研究センターが形成されている。ベルギーのimecやフランスのLeti等のコンソーシアムでは、シングルナノメートルの微細加工プロセス技術開発を継続中であり、EUV露光やEB露光技術の開発を精力的に進めている。

ナノインプリント技術においては、LetiとEVGによるINSPIRE（2015.7-）プログラムが進められている。国内においては、戦略的基盤技術高度化支援事業（プロジェクト委託型）において、エリオニクスと産業技術総合研究所による「ウエハーサイズ3次元ナノインプリントモールド用超高速電子ビーム加工装置の研究開発」（2016.9-2019.3）が進められている。

## （5）科学技術的課題

EUV露光技術については、Stochastic欠陥への対策が実用化とともに重要な課題となっている。基本的な原因としては、EUV光の入射フォトン数の揺らぎが考えられるが、これに対しては、光源強度の向上が最大の課題となる。また、レジスト材料自体の吸光度の増大も重要である。現状では入射フォトンの数分の1しかレジストの光化学反応に寄与していない。このためEUV光の吸収が大きい重金属等の導入が候補として検討されている。

レジスト材料自体の均質性が問題となっている。加工寸法がナノメートルオーダーであるのに対し、レジストの分子サイズが同じ寸法オーダーであることや、酸発生剤、クエンチャーの分布が、必ずしも均質でないことが問題となる。現在主流の化学増幅系材料では、まず入射するEUV光が92eV程度のエネルギーを持っており、これがレジスト材料をイオン化し、発生した2次電子が酸発生剤に作用して酸を発生させ、この酸がレジストの反応基に作用して各種の反応を引き起こし、これによって現像液への溶解性を変化させることで像が形成される。こ

のように多段の非常に複雑な反応過程を利用しているところにも、様々な揺らぎを生じさせる原因がある。このため、もっと単純な化学反応を使うことが求められる。

化学増幅系材料とともに、金属酸化物を利用したレジスト材料に注目が集まっている。反応メカニズムは未解明な点も多いが、ドライエッチ耐性が高いという特徴とともに、非化学増幅系で反応メカニズムが単純という利点が見込まれるので注目されている。これまでに解像度は高いが感度が低い材料や、感度は非常に高いが解像性やラフネスが大きいといった材料が提案されていたが、最近では解像度が高いままで、化学増幅型に匹敵する高感度な材料も開発されており、実用化が進むことが期待される。この他の新しいレジスト材料としては、Multi-Triger 型レジストや PS-CAR という提案がなされており、高感度化と低 LWR (Line Width Roughness) 化を同時に達成しようという動きも活発である。しかし、本質的な解決策を得るまでには至っていない。

EUV 光源の高出力化という観点からは、自由電子レーザー (FEL) 光を用いた、EUV 光源の開発がある。この方式により、kW 級の高出力化の可能性もでてきた。課題としては、パルス幅がフェムト秒レベルで輝度が非常に高く、レジストのアブレーションや多層膜へのダメージが問題となると予想される。今後、SAKURA 等の実験設備を用いた検討が進められることが期待される。

DSA 技術に関しては、高 X 材料の開発と欠陥低減が重要となる。高 X 材料は、本質的な高解像力化に必要である。一方、欠陥低減に関しては材料自体の欠陥低減だけでなく、欠陥検査技術に関する観点が必要である。半導体集積回路のリソグラフィ技術としては、パターン形成後に所望のパターン形状や寸法に形成されているか検査・評価することが求められる。ここでは、非破壊の検査が必要であり、パターン形成後の形状や寸法をトップダウンで評価できることが重要となる。このため、表面では所望の形状に成形されていても、レジスト層内部で所望の形状に成形されない可能性を如何に排除するかが DSA 技術では重要となる。ガイドパターンの形状・寸法や DSA 材料とそのプロセス処理条件が最終的に形成される DSA パターンに対し 3 次元的にどのように関係するかを、正確にシミュレーションする技術が重要となる。

ナノインプリント技術については、サブ 20nm になるとモールド側のホールパターンへの樹脂の充填が難しくなる現象があり、充填機構の解明が必要である。また、残膜厚を薄くしていくと 10nm あたりから急に樹脂の粘度が高くなる現象がある。つまり、残膜厚が極端に薄い条件では、樹脂の充填に非常に時間を要し、スループットの低下につながる。より低残膜にするには、この高粘度化機構を理解し、樹脂およびモールド表面処理の工夫が必要になる。また、高粘度化しない範囲でのプロセスが必要になる。

半導体応用ではアライメントに関してはかなり改善が見られたが、モールドの耐久性に関してはまだ改善が必要である。耐久性の低下はモールドがインプリント中に微粒子を噛み込むことが原因と考えられ、インプリント環境の更なる清浄化が必要である。また、離型は常に課題である。

## (6) その他の課題

EUV 技術の実用化に伴う課題として、高透過率 EUV 露光用保護膜 (ペリクル膜) の開発が挙げられる。パーティクルなどの欠陥発生の要因をできる限り排除しようという装置側の動きも盛んであるが、ウエハの露光中に増加する欠陥 (Adder Defects) の発生が無視できない

ため、従来の光リソグラフィで利用しているマスクのペリクル膜の開発が盛んに検討されている。ASML社は、EUV露光の実用化を進めるため、ペリクル膜自体の開発だけでなく、欠陥発生に非常に少ないペリクルのマスクへの脱着装置の開発も進めている。ペリクル膜自体は、将来的には専門のサプライヤーが開発・製造することになると思われるが、現状ではASML社が開発したPoly Si膜をベースとした材料が広く利用されている。現状のASML社のペリクル膜は基材が50nm程度の厚さを持つPoly Si薄膜で、表面と裏面にSiN膜がコーティングされており、EUV光の透過率は85%程度である。しかし、この吸収率では、250WレベルのEUV光出力にさらされると、1000℃を越える温度になってしまう。このため、実用時までには透過率を90%以上まで向上させて、温度上昇を数百度以下に抑えることが望まれている。Poly Si膜以外の材料に関しても、様々な研究開発機関で開発が行われている。代表的な材料としては、SiN系の材料やカーボンナノチューブやグラフェンがあり、imecや、韓国のHanyan大学等多くの研究機関で研究が進められている。特にカーボンナノチューブなどのカーボン系の材料はEUV光の吸収率が小さく耐熱性にも優れているので注目される。

ナノインプリントの重要な課題はモールドの低コスト化である。インプリントは低コストの微細加工技術であるが、微細パターンを有するモールドは高価である。低コストでマスターモールドを作製し、その複製モールドを使用する必要がある。半導体製造用のナノインプリントではマルチビームの電子ビーム描画装置や高性能のモールド複製装置が開発されており、課題への対応が図られている。また、インプリント環境が清浄化されることでモールドの寿命も延びるので、複製モールドのコストが多少高くても許容されるかもしれない。この半導体用ナノインプリント装置はステップアンドリピート型であり、数cm角のモールドを使用する。一方で、ウエハー括のナノインプリント装置では、マスターモールドの寸法は200mmウエハーの場合には約40倍の面積であり、この大面積に低コストで微細パターンを形成する必要があるが、これまでは利用できるパターンに大きな制約があった。このようなウエハー括のインプリントにおいて、低コストでの大面積モールドの作製とその複製技術がナノインプリントの更なる普及のための課題である。

10nmノード以降の微細加工プロセスを有している半導体メーカーが、Intel、Samsung、TSMCなどの海外企業に限られてきている中で、日本としてどのようにして微細加工プロセス技術の開発を進めて行くのか、難しい状況にある。EUVのマスク関係の技術開発やDSA技術の開発を行っていた民間コンソーシアム「EUVL基盤開発センター（EIDEC）」が2016年度より「(株)先端ナノプロセス基盤開発センター（EIDEC）」に名称を変更し、ナノレベル欠陥の改善・制御や次世代デバイスの研究開発を進めてきたが、このNDM（Nano Defect Management）プロジェクトも2018年度で終了する。今後どのような体制で先端の微細加工プロセス技術を保有し人材育成を図っていくのか、レジスト材料技術や欠陥評価技術などの優位性も考慮し、IMECなど世界のコンソーシアムとの差別化や連携も含めて検討していく必要がある。

(7) 国際比較

国・地域	フェーズ	現状	トレンド	各国の状況、評価の際に参考にした根拠など
日本	基礎研究	◎	→	従来レジストプロセスの改良や、PS-CAR 等、新規アイデアの創出に関する動きも活発である。 ナノインプリント技術に関して、大阪府立大学、東北大学、産業技術総合研究所などで各種基礎検討を続けている。極限ナノ造形・構造物性研究会ではシングルナノ領域のナノインプリントに取り組んでいる。
	応用研究・開発	○	↘	超微細レジスト材料の開発や、プロセス技術の高度化で優位を保ってきたが、無機レジスト等では、米国勢の勢いにやや押されている。マルチビーム描画装置の開発では、欧州勢にやや遅れている。 東芝メモリ、キャノン、大日本印刷が NAND フラッシュメモリの生産に向け精力的に開発を行っている。
米国	基礎研究	◎	→	無機材料を中心とした、新しいレジスト材料の開発と、そのメカニズム解析に、材料メーカーだけでなく、大学や研究機関が積極的に取り組んでいる。 ナノインプリント技術が Michigan 大、Texas 大、Massachusetts 大で精力的に研究されている。
	応用研究・開発	◎	→	マルチパターンング技術の高度化に積極的に取り組み、EUV 露光技術の実用化を着実に進めている。 Canon Nanotechnologies が引き続き米国を拠点として精力的にナノインプリントの研究開発を進めている。
欧州	基礎研究	○	→	スイスの PSI における放射光を用いた干渉露光や、Carl Zeiss SMT での高 NA 化開発等、微細化の最前線を牽引している。材料面でも Multi Triger 型など提案している。 ナノインプリント技術は Wuppertal 大、PSI、Leti などで研究しているが、NaPaNIL の後は大きなプロジェクトは走っていない。
	応用研究・開発	◎	↑	imec での微細加工技術の研究開発と、ASML での露光装置開発が、半導体の微細化技術の中心として君臨している。マルチビーム型描画装置や検査装置なども、積極的に開発を進めている。 EVG および Leti がウエハー一括ナノインプリントの実用化に力を入れている。
中国	基礎研究	○	↑	微細加工技術の研究開発の観点では、未だ日本や欧米を追いかけている状況は変わらないが、研究者の数や研究費の面で近い将来強敵となり得る力を秘めている。 これまではあまりなかった中国本土の大学からの研究発表が見られるようになった。
	応用研究・開発	○	↑	各種微細加工関連装置開発、プロセス技術開発、材料開発を積極的に進めている。
台湾	基礎研究	△	→	リソグラフィ技術の先端的研究は必ずしも活発ではない。
	応用研究・開発	◎	↑	集積回路の高集積化、微細化という意味では、TSMC が世界の Foundry のトップを走っており、微細化研究をリードしている。
韓国	基礎研究	○	→	各種研究機関、大学等での活動が活発であり、例えば、Hanyan 大学で EUV 用ペリクル膜の研究をしている。 KIMM が力を入れてナノインプリントを推進しており、大学からの研究発表も盛んである。
	応用研究・開発	◎	↑	EUV 技術の実用化では、Samsung 社が世界の最先端を走っており、微細加工分野をリードしている。 SK Hynix が東芝メモリとナノインプリントの共同研究を行っている。

(註1) フェーズ

基礎研究フェーズ：大学・国研などでの基礎研究のレベル

応用研究・開発フェーズ：研究・技術開発（プロトタイプの開発含む）のレベル

(註2) 現状 ※わが国の現状を基準にした評価ではなく、CRDS の調査・見解による評価である。

◎ 特に顕著な活動・成果が見えている、○ 顕著な活動・成果が見えている

△ 顕著な活動・成果が見えていない、× 活動・成果がほとんど見えていない

(註3)トレンド

↑：上昇傾向、→：現状維持、↘：下降傾向

## (8) 参考文献

- 1) Alberto Pirati et al., "The Future of EUV Lithography: Enabling Moores Law in the next Decade," *Proceedings of SPIE* 10143 (2017) . doi:10.1117/12.2261079
- 2) Eelco van Setten et al, "EUV High NA anamorphic imaging," *International Symposium on Extreme Ultraviolet Lithography* (2016) .
- 3) Vicky Philipsen et al., "Reducing Extreme Ultraviolet Mask Three-dimensional Effects by Alternative Metal Absorbers," *Journal of Micro/Nanolithography, MEMS, and MOEMS* 16, no. 4 (2017) . doi:10.1117/1.jmm.16.4.041002
- 4) Peter De Bisschop, "Stochastic Effects in EUV Lithography: Random, Local CD Variability, and Printing Failures," *Journal of Micro/Nanolithography, MEMS, and MOEMS* 16, no. 04 (2017) . doi:10.1117/1.jmm.16.4.041013
- 5) Peter De Bisschop and E. Hendrickx, "Stochastic effects in EUV lithography," *Proceedings of SPIE* 10583 (2018) . doi:10.1117/12.2300541
- 6) Hiroshi Matsumoto et al, "Multi-beam mask writer MBM-1000," *Proceedings of SPIE* 10584 (2018) . doi:10.1117/12.2299885
- 7) Yannick Vesters et al, "Sensitizers in EUV Chemically Amplified Resist: Mechanism of sensitivity improvement," *Proceedings of SPIE* 10583 (2018) . doi:10.1117/12.2297627
- 8) Christopher K. Ober et al, "EUV Photolithography: resist progress and challenges," *Proceedings of SPIE* 10583 (2018) . doi:10.1117/12.2302759
- 9) C. Popescu et al, "Sensitivity Enhancement of the high-resolution xMT multi-trigger resist for EUV lithography," *Proceedings of SPIE* 10143 (2017) . doi:10.1117/12.2258098
- 10) Erik R. Hosler, Obert R. Wood and William A. Barletta, "Free-electron Laser Emission Architecture Impact on Extreme Ultraviolet Lithography," *Journal of Micro/Nanolithography, MEMS, and MOEMS* 16, no. 04 (2017) : 1. doi:10.1117/1.jmm.16.4.041009
- 11) Shunya Ito et al., "Nanometer-Resolved Fluidity of an Oleophilic Monomer between Silica Surfaces Modified with Fluorinated Monolayers for Nanoimprinting," *ACS Applied Materials & Interfaces* 9, no. 7 (2017) : 6591-6598. doi:10.1021/acsami.6b15139
- 12) Takahiro Nakayama et al., "Improved Defectivity and Particle Control for Nanoimprint Lithography High-volume Semiconductor Manufacturing," *Emerging Patterning Technologies*, 2017. doi:10.1117/12.2257647
- 13) Dario L. Goldfarb, Max O. Bloomfield and Matthew Colburn, "Thermomechanical Behavior of EUV Pellicle under Dynamic Exposure Conditions," *Proceedings of SPIE* 9776 (2016) . doi:10.1117/12.2218453
- 14) Ivan Pollentier et al, "Novel membrane solutions for the EUV pellicle: better or not?," *Proceedings of SPIE* 10143 (2017) . doi:10.1117/12.2257891

## 2.5.2 積層造形・レーザー加工

### (1) 研究開発領域の定義

大量生産を追求する製造業の大半が海外へ流出した日本が生き残っていくために、高付加価値の多品種少量生産やカスタムメイド生産に対する重要性が高まっており、そのための技術開発領域である。積層造形は、立体物を水平に輪切りにした断面データをもとに、樹脂や金属粉などを用いて薄い層を積み上げて立体物を作製する技術であり、3Dプリンティングとも呼ばれる。一方、レーザー加工は、金属、セラミックス、ガラス、樹脂、生体等の材料に対し、除去（切削・切断）、塑性（曲げ）加工、接合加工や表面加工（改質）を施すものである。近年、ファイバーレーザー等の近赤外域レーザーの普及によって、レーザー方式の積層造形も広がりを見せており、プロセスコスト、加工スピード、部品品質の改善と保証が課題になっている。

### (2) キーワード

3Dプリンティング、粉末床溶融結合法、指向性エネルギー堆積法、溶融・凝固現象、プロセスモニタリング、シミュレーション、ファイバーレーザー、青色半導体レーザー、連続波（CW）レーザー、短パルスレーザー、除去（切削・切断）加工、塑性（曲げ）加工、接合加工、表面加工（改質）、異材接合、マルチ・マテリアル、純銅、品質保証、その場計測、表面微細構造、サイバー・フィジカルシステム（CPS）、人工知能（AI）

### (3) 研究開発領域の概要

[本領域の意義]

学術用語としての積層造形は、2009年にASTM F42委員会においてAdditive Manufacturing（以下ではAMと呼ぶ、和訳は付加製造）と呼ばれることになり、7つの手法に分類された。その7つとは、材料押出法（Materials Extrusion）、液槽光重合法（Vat Photo-Polymerization）、材料噴射法（Material Jetting）、結合剤噴射法（Binder Jetting）、粉末床溶融結合法（Powder Bed Fusion）、シート積層法（Sheet Lamination）、指向性エネルギー堆積法（Directed Energy Deposition）である。米国オバマ大統領が2013年の一般教書演説において、「革新的製造技術になる可能性を秘める」と言及したことで一気に一般普及が進み、今では世界的な研究開発のトレンドになっている。

従来、AMにおける原料の多くは樹脂であったが、最近では金属やセラミックスまで多彩な原料が対象になっている。設計の自由度が大きくカスタマイズしやすい、金型（鋳型）を使わない造形ができるなどの特長から、特に金属によるAMのメリットが大きい。非平衡状態の利用で鋳造材より力学特性を向上させたり、逆に複雑な鋳造用金型を製造したりする研究が発表されている。最終的な造形物はそのまま部品に使用できるため、航空機や医療分野が応用分野として先行しており、エンジンのタービンやインプラントなどへ適用され始めている。

一方のレーザー加工については、近年、レーザー発振器の高出力化・高性能化に加えて、加工用の光学系やロボット、加工装置などの周辺機器の開発も大きく進歩し、各種技術への適用が拡大している。高品質、短時間処理、多品種への対応などの産業ニーズに対して優れた解決策を提供しており、例えば、最近のスマートフォンの製造ラインにはレーザーによる微細加工技術は必須である。また、試作の加工用途から始まったパワーレーザーについても、加工用レーザーシステム市場の成長に伴い、今日では量産用途に適用されてきている。

レーザーには、固体レーザー、半導体レーザー、ファイバーレーザー、CO<sub>2</sub>レーザーをはじめとする気体レーザーなどがあり、このうち近赤外域レーザーの普及によってレーザー方式のAMが広がった。また、樹脂および金属とも、AM技術に対応した材料開発、とりわけ合金設計が重要となってきている。加えて、本技術はデジタル・マニュファクチャリング技術であることから、IoTやAIとの整合性が極めて良く、将来のものづくりにおける重要な加工技術の一つとして認識されてきている。米国のAmerica Makes、中国におけるMade in China 2025などのプロジェクトをはじめとして海外で巨額の投資がなされ、研究開発が精力的に進められていることから、我が国における次世代“ものづくり”を考える上で、本技術の研究開発の意義は非常に大きいといえる。

#### [研究開発の動向]

AMは名古屋市工業研究所から1980年に出願された特許がもとになったと言われているが、その市販装置は1987年に米国で開発された。初期の開発では、米国で1980年後半から主に樹脂を使用したAMが進展し、2012年には現在のAmerica Makesに相当する国立AMイノベーション機構(NAMII)がいち早く開設された。このような進捗と同時に、ドイツ、英国を初めとする欧州、イスラエルなどでも活発に研究され、製造技術ではこれらの国々が主導してきた。樹脂を用いたAMは、数万円の安価な装置が販売されるなど幅広く認知されているが、金属製品も同じようにAMが可能になってきた。金属のAMにおいて用いられる代表的な方法は、上述した手法の中でも粉末床熔融結合法と指向性エネルギー堆積法である。どちらも原料として金属粉末を用いるが、その供給の仕方が異なる。

粉末床熔融結合法では、台上に金属粉末を薄く一定厚で敷き詰め、熱源となるレーザーや電子ビームで必要部位の粉末を熔融後に凝固させることで固化成形部を得る。続いて、その一定厚分だけ台を下げ、また再び同じように敷き詰めた粉末の熔融・凝固を繰り返して造形する。ここでは、最後に、固化していない粉末を取り除いて造形物を取り出す必要がある。この方式は、原料としてスーパーエンブラや高弾性樹脂などを用いた製品開発に応用されるとともに、金属へと適用範囲が広がったことでインプラントなどの医療部品から、最近では航空・宇宙分野やエネルギー・産業機器分野の部品製造技術として利用されてきている。

AMの熱源としての電子ビームは、真空チャンバーが必要となる点でレーザーより扱いにくい。また、金属粉末によるスモークを抑えるために比較的粒径の大きいものを使用する必要があり、得られる製品の面粗さが大きく不利である。一方、レーザー熱源は、AM装置の種類も豊富で選択の幅が広く、粒子径の小さい金属粉を扱うことが出来るため比較的面粗さが小さい製品を作ることができる。したがって、レーザー熱源によるAM技術はナノテクノロジーへの高い応用性を有する。

金属材料への適用が可能となったのは、光源がCO<sub>2</sub>レーザーからファイバーレーザーとなったことが非常に大きいといえる。2005年頃から高出力のファイバーレーザーが実用化され始め、低価格化が進んできたことにより、現在における装置の光源は波長1030～1070 nm、出力400～500 Wのシングルモードのイッテルビウム(Yb)・ファイバーレーザーが主流となってきている。ファイバーレーザーの高出力化により、CO<sub>2</sub>レーザーでは困難であった安定で高精度の造形が可能となるとともに、鋳造用アルミニウム合金をはじめとして多くの金属材料の造形も可能となった。

一方、指向性エネルギー堆積法は、粉末をノズルから直接必要部位に供給、かつ同時に供給点に熱源を照射することで微小領域の熔融・凝固を行い、コンピュータ支援設計 (CAD) データに基づきノズル側を立体的に移動させることで固化成形部を積み上げ造形する。ここで、熱源は主にレーザービームであるが、合金ワイヤーを材料として電子ビームやアーク放電も用いられる。本手法は、金属材料への適用が主であり、その製法の特徴から単純形状で大型製品への適用が試みられている。

指向性エネルギー堆積法については、米国サンディア国立研究所 (SNL)、ドイツのフラウンホーファー研究機構傘下であるレーザー技術研究所 (ILT)、材料・ビーム技術研究所 (IWS) において、ノズルとその制御や 5 軸制御用コンピュータ支援製造 (CAM) に係る基本的な主要技術が開発された。日本では、次世代型産業用 3D プリント技術と超精密三次元造形システム技術の開発を目的として、2014 年に設立された技術研究組合次世代 3D 積層造形技術総合開発機構 (TRAFAM) が技術開発を進めている。TRAFAM では、指向性エネルギー堆積法の装置 2 機種が開発されており、500 cc/h での高速造形も可能となっており、メルトプールの形状や温度測定結果から欠陥発生との関連が検討されている。また、指向性エネルギー堆積法と切削を組合せたハイブリッド型の装置が我が国の工作機械メーカー 3 社において開発されている。

金属、セラミックス、ガラス、樹脂等を対象にしたレーザー加工は、AM に限らず、除去 (切削・切断) 加工、塑性 (曲げ) 加工、接合加工、表面加工 (改質) を施すための非常に広範な技術領域である。東西冷戦と米ソ宇宙開発戦争の最中であった 1960 年に米国でルビーレーザーが発明され、当初は宇宙・軍事産業が主導する形で材料加工分野へのレーザー応用が進められたが、1970 年代に入ってレーザー応用の裾野が民生用に広がり始めた。初期のころは、CO<sub>2</sub> レーザーで機械加工できない領域、例えば微細な穴開け、切断に主として使われ、特殊加工として位置づけられた。CO<sub>2</sub> レーザーは樹脂やガラスには吸収率が高くプリント基板の穴開けに有効であった。それに対して金属では非常に吸収率が低かったが、周辺技術を高度化することにより高品質な切断加工が実現した。

1980 年代に、紫外域のエキシマレーザーの登場により、リソグラフィに代表される超微細加工ができるようになった。CO<sub>2</sub> レーザーもエキシマレーザーもガスレーザーであるが、1990 年代になると YAG レーザーに代表される固体レーザーが市場に投入されることになった。YAG レーザーの波長は 1064 nm であり、金属への吸収率が格段に上昇する。また、光ファイバー伝送が可能になったことにより、レーザー加工の適用範囲が広がることとなった。

世界におけるレーザー加工の現場では、CO<sub>2</sub> レーザーから安価で使いやすいファイバーレーザーによる加工機への置き換えが進んでいる。そのシェアは欧米が中心であったが、近年では安価な中国メーカーのファイバーレーザー装置が市場のシェアを拡大させた。こうしてレーザー加工応用は、軽量化・低燃費化という社会的要求に直面する自動車、航空機などの輸送機器産業や、精密・超小型化要求のある医療機器産業などで多くの成果を挙げてきた。CW のファイバーレーザーは高出力化が容易であることから、原子炉コンクリート解体に向けた 100 kW 級ファイバーレーザーによる加工技術の開発も日本の独自技術として進められている。

このような近赤外域レーザーは、エネルギー吸収率の高さから、上記のとおり AM にも応用され、AM は新しいレーザー加工技術として位置づけられるようになった。レーザー方式 AM 装置の開発では、高速化と大型化、さらには高精度化、高品質化への対応が求められている。高精度化にはレーザー出力の制御や造形パターン、高速化と大型化に対しては 4 台のレーザー

を搭載するなどの多光源化により対応してきている。また、航空・宇宙分野において絶対的に安定した高品質部品の製造が求められており、プロセスモニタリングとフィードバック制御による品質保証技術が重要である。このため、プロセスモニタリングに関しては、テストベンチや市販品の改良装置に装着した高速度カメラやサーモビューワを用いてメルトプール形状のその場観察あるいは温度測定を行い、欠陥発生との関連を検討しているが、フィードバック制御までには至っていない。加えて、造形品の品質管理においては、非破壊検査手法の確立が求められているが、X線CTによる従来の検査手法で対応されているのが現状で、今後の開発が待たれる。

また一般に、レーザー性能に対する製造条件の最適範囲が小さいため、ビームや走査のパラメータのごくわずかな位置的变化が著しく加工品質に影響する。日本はファイバーレーザーの開発に遅れたが、2016年からNEDO「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」、2014年から戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)／革新的設計生産技術が開始され、各プロジェクトで強みを活かしたプロジェクトが進められている。その進展状況について、レーザー装置の高度化、特にマルチビーム、短波長レーザー、短パルスによる加工技術開発を紹介する。

高速で高精度のAMを目指す一つの方策は、複数のレーザーを搭載し同時に照射することで金属粉末を効率良く熔融し積層するものである。大阪大学を中心とする産学官の研究グループでは、6台の近赤外域半導体レーザーを用いたマルチレーザービーム加工ヘッドを製品化、複合加工機に搭載され、第28回日本国際工作機械見本市(JIMTOF2016)にて動態展示された。また、近赤外域レーザーに比べ、短波長の青色レーザーは金属の吸収率が高く、特に難加工材料の純銅に対して高効率・高品質加工が期待される。そこで、同グループは、並行して青色半導体レーザーマルチビーム加工ヘッドの開発にも取り組み、2016年までに出力20Wの青色半導体レーザーを6台搭載し、試料(加工対象物)上で6ビームを重畳できる100W級のAM装置を世界で初めて開発した。青色半導体レーザーによる多彩な純銅加工を実現するためには、高出力化・高輝度化が必要で、そのための試みも急ピッチで進んでいる。青色半導体レーザーは純銅加工だけでなくレーザー加工全体を変える可能性を有していることから、その開発競争がますます激化すると予測される。

一方、短パルスレーザーを用いた加工では、パルス幅が短くなるほど加工面への熱的影響が抑制されるため、切削面の仕上がり品質が高くなるが、パルスパワーが低く厚い材料の切断や穴あけに時間がかかる欠点がある。そのため、短パルスレーザーによる非熱的加工は、表面の加工研磨や切り出し、微細構造加工技術(表層加工)に適用され、医療等産業への応用展開が幅広い分野で進められている。また、破壊閾値を越えた飛散・剥離(アブレーション)現象を応用した加工技術が開発され、穴あけ、溶接や切断の技術から三次元微細加工、非熱加工の技術、金属ナノ粒子の生成手法にいたるまで、すでに産業ベースの利用が盛んに進んでいる。

Conference on Lasers and Electro-Optics (CLEO)、International Conference on Laser Ablation (COLA) や国際光工学会(SPIE) Photonics Westなどの主要な国際会議・展示会では、欧州(特にオーストリア、スイス、ドイツ)、米国や日本を中心にダブルパルスや多波長光の照射による材料加工の高効率化や表面微細化に関する研究成果が報告されている。これらの次世代加工技術は生体適合性の向上や軽量化材料とのマルチ・マテリアル化による異種接合のための表面処理技術として期待され、研究が加速している。また、加工を制御するためには、短パルスレーザーと物質との相互作用を理解し、その後のアブレーション現象を明らかにする短

パルスレーザーアブレーションの学理解明に関する基礎研究が鍵を握っている。本分野は現在まで地道に継続してきた日本が世界を主導しており、その重要性は広く認識されている。

例えば、短パルスレーザーにより金属等の表面におけるナノスケールの微細周期構造の形成が確認された1999年以降、その機構解明に関する研究が行われてきたが、レーザー照射された表面状態変化を高速に実時間計測（その場計測）する手段がなく、基礎物理の観点からの研究は非常に困難であった。しかし、最近になって、プラズマ相互作用の寄与が大きいことが示唆されるとともに、この周期構造をレーザービームの照射条件（照射方式、波長、遅延時間、パルス幅、偏光、フルエンス等）、固体材料の種類や表面形状によって制御できることがわかってきた。最小で波長の25分の1程度まで構造を微細化する実験も行われ、回折限界以下の加工技術への展開も期待される。

レーザー加工は実験パラメータが多いために、サイバー・フィジカルシステム（CPS）を取り入れた新しい技術開発への挑戦も行われている。Society5.0実現に向けた自動走行車開発に代表されるように、高信頼性の半導体デバイスによる品質保証、電動モーターの小型・高性能化、車体の軽量化へのマルチ・マテリアル化が求められ、それらを実現するために不可欠な研究開発の方向性である。

#### （４）注目動向

[新展開・技術トピックス]

・品質保証技術としてのプロセスモニタリングとシミュレーション

プロセスモニタリングとシミュレーションによる品質保証技術の確立が重要な研究開発課題で、装置・計測機器・ソフトウェアメーカーと大学、国立研究所がプロジェクトを組んで実施している。溶融・凝固現象の解明に向け、米国の国立標準技術研究所（NIST）やローレンス・リバモア国立研究所（LLNL）や日本の TRAFAM がテストベンチを開発して、高速度カメラやサーモビューワによりメルトプールのその場計測を詳細に行うことで欠陥発生機構の研究を進めている。最近では、米国のアルゴンヌ国立研究所（ANL）、オークリッジ国立研究所（ORNL）、SNL なども、高出力 X 線による計測でわかったメルトプール内部の溶融・凝固現象から、大きな課題となっている空隙やスパッタの発生機構を一部の金属に対して明らかにしているが、全材料に対する体系的解明は未達である。また、非常に複雑な物質-光相互作用の物理については、レーザープラズマや X 線自由電子レーザー等の超短パルス X 線による表面や内部の構造変化が実時間計測され、国内外で検討が進んでいる。

シミュレーションに関しては、溶融・凝固現象にとどまらず、組織、熱変形予測に対してマルチスケール、マルチフィジックスをベースとした研究が行われている。現状では、このように多種多様なシミュレーションを体系化したソフトウェアはまだ存在しないが、日本原子力研究開発機構が2018年に開発した SPLICE コードはそれを指向する先駆的な成果として注目される。今後、材料物性値の大量取得や計算速度の向上を進め、製品の品質向上だけでなく将来の“Digital Twin”を目指す方向性である。一方、相互作用、特にレーザーアブレーション学理の解明には、分子動力学（MD）法、時間依存密度汎関数（TDDFT）法、電磁粒子コード（Particle in Cell: PIC）によるシミュレーションが用いられている。実験との横断的連携研究により、さまざまな課題を克服し、短パルスレーザーによる効率的な超微細表層加工を早期に実現することが産業界からも望まれている。

#### ・CPS化による効率的加工技術の急速な進展

米国の General Electric (GE) 社は、航空機産業に CPS の概念を取り入れた先駆者である。部品のデジタル設計データをクラウドに送信し、それを基に細部にまで造形された構造物を作製することができる。同社は 2016 年に 10 億ドル以上の投資を行い、AM 装置メーカーであるスウェーデンのアーカム社、ドイツのコンセプトレーザー社の買収を行い、低コストな効率的加工技術の開発を加速させた。

GE 社以外に、AM 事業において多くの産業部品を手がけてきた米国のストラタシス社も航空機部品のデジタル製造に乗り出している。同社はこれまでに米国国防総省の航空・宇宙分野におけるあらゆる部品の製造を担当し、そのコストを 380 万ドル以上削減することに成功した。ドイツのシーメンス社はグループ全体で、トポロジー最適化技術を用いた 3D データの作成から、シミュレーション技術による金属や複合材料を用いた最適な積層造形プロセスの構築、AM を実際に行う機器やソフトウェア、業務提携企業が加盟するエコシステムなどを一つのプラットフォームで利用できるサービスの提供を目指している。

日本でも同様の動きが見られる。NEDO「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」の一環として、三菱電機株式会社やパナソニック株式会社、東京大学など 23 の機関は機械部品や精密部品に使うレーザー加工を人工知能 (AI) によって自動化する連携組織、「TACMI (Technological Approaches toward Cool laser Manufacturing with Intelligence) コンソーシアム」を 2017 年に立ち上げた。これまで職人の勘や経験に頼ってきた加工に関するデータを協力して収集、最適な条件を AI に学習させ、3 年以内にデータベースの整備と人手不足を補う AI 開発を目指すという。このように、レーザー加工技術の CPS 化は、これまでの大量生産加工ではなく、多様なニーズを背景にした高付加価値の多品種少量生産に重要な基礎技術につながっている。

#### ・短波長レーザーによる加工技術の実用化

青色半導体レーザーは、日本人 3 人がノーベル賞を受賞した青色発光ダイオードを発展させた技術がもとになっており、日本の強みがある技術をレーザー加工、AM へ応用するものである。NEDO「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」では、2016 年からの高出力・高輝度化を目標にした取り組みにより 100 W 級青色半導体レーザーを製品化し、2018 年 1 月からは販売開始に至った。また、第 29 回日本国際工作機械見本市 (JIMTOF2018) では、この高出力・高輝度青色半導体レーザー 3 台を含むマルチレーザービーム加工ヘッドが搭載された複合加工機が世界で初めて稼働、披露されている。青色半導体レーザー加工は、難加工材料の AM から異材 (例えば金属と樹脂) の接合加工まで幅広い応用が期待されている。

ドイツのフラウンホーファー研究機構 ILT では、2017 年から、ドイツ産業研究協会連合 (AiF) 助成のプロジェクトとして波長 515 nm の緑色レーザー熱源を開発している。銅合金や純銅の AM 加工機への適用を目指しているが、それだけでなく非鉄および宝石業界で扱う貴金属にも適用可能としている。トルンプ社は、基本波 1030 nm からの波長変換による CW 緑色レーザーを開発し、出力 1 kW の熱源として粉末床溶融結合法の AM 装置に搭載した。2018 年 11 月にドイツで開催の AM・次世代製造技術国際見本市 (Formnext 2018) において、新装置による純銅の AM が動態展示された。

#### ・難加工材料への展開

純銅に加え、ガラスや自動車・航空機部品の軽量化につながる炭素繊維強化プラスチック (CFRP) なども難加工材料である。最近では、これらの材料を対象に、短波長の超短パルスレー

ザーを用いることにより、加工時間（パルス数）は必要であるものの高品質な加工面の生成が可能になっている。軟 X 線自由電子レーザーによるガラスへの切削（除去）加工では、赤外光を用いた場合よりも一桁以上低いエネルギー（正確には照射フルエンスの閾値）で、切削面での割れやヒビのない加工面が生成されることがわかってきた。上記の TACMI コンソーシアムでは、非熱的現象に対する学理解明や CPS 型加工システムの構築、短波長・短パルスレーザー光源の開発などの課題に取り組んでいる。CFRP は軽量であることから、金属とのマルチ・マテリアル化を目指す異材接合も将来の重要技術と予想される。

AM 装置による世界初の成果としては、2015 年に、MIT メディアラボの研究チームが、原料の貯蔵容器から射出ノズルまでを約 1000℃の温度で維持できる構造とし、溶けたガラスをノズルから排出できるようにすることによってガラス対応機を開発している。この技術で作られたガラスは低温整形のため透明度が低く、衝撃にも弱いという問題があったが、2017 年にドイツのカールスルーエ工科大学と半導体関連企業アプライド・マテリアルズ社が透明性と耐久性の向上に成功している。熱処理によって高品質な石英ガラスに変換される光硬化性シリカナノ複合材料を原料に、一般の AM 装置を利用して作成できるため、スマートフォンのカメラレンズなどにも向いているという。

#### [注目すべき国内外のプロジェクト]

国内においては、経済産業省からの受託により TRAFAM が実施している「三次元造形技術を核としたものづくり革命プログラム（次世代型産業用 3D プリント技術開発および超精密三次元造形システム技術開発プログラム）」が 5 年のプロジェクトで 2014 年度より進んでいる。2017～2018 年度は、NEDO の「次世代型産業用 3D プリントの造形技術開発・実用化事業」として進められ、高付加価値な製品・部品の製造に適し、製造業へのインパクトが大きい金属用の 3D プリント技術の基盤、装置、材料の開発、および鋳造用砂型 3D プリント技術の装置、材料の開発を目指す大型プロジェクトになっている。

内閣府 SIP「革新的設計生産技術」で実施中（2014～2018 年度）の 24 課題のうち、大阪大学接合科学研究所を中心とした青色半導体レーザーによる AM 装置開発と純銅加工への展開や、横浜国立大学を中心とした 2 光子マイクロ光造形技術に関する研究が注目される。また、NEDO「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」（2016～2020 年度）では、素材の特性に合わせた高品位で効率的なレーザー加工の実現に向け、光源技術や加工プロセス技術、加工システム技術、シミュレーション技術、センシング・評価技術などを産学官連携で体系的に開発することを目的としている。

2018 年度からは、文部科学省光・量子飛躍フラッグシッププログラム（Q-LEAP）の下、光量子科学によるものづくり CPS 化拠点のフラッグシッププロジェクトが東京大学を中心として開始された。これにより、超短パルスレーザーによる除去加工の学理解明と CPS 型レーザー加工シミュレータ開発が 10 年間の大型プロジェクトで行われることになった。同時に、SIP 第 2 期「光・量子を活用した Society5.0 実現化技術」も 2022 年度までの 5 年プロジェクトで始まり、こちらでは CPS 型レーザー加工機の開発を目標に掲げている。

米国では、2012 年に始まった先進製造の取組みとして NAMII が設立され、政府からの予算 3000 万ドルと参加組織（企業 40 社、9 大学など）からのマッチングファンド 4000 万ドルで研究開発が進められた。2014 年以降は、America Makes を中心に、ロードマップに即して

設計、装置開発、材料開発、モニタリング技術開発、シミュレーション開発と多くのプロジェクトが体系的に実施されており、多くの成果が出てきている。AM分野で最も歴史ある Solid Freeform Fabrication (SFF) シンポジウムでは、2017年、2018年に500件以上の講演発表がなされ、米国機械学会 (ASME)、米国金属学会 (ASM) などの年次大会においても非常に多くの研究成果が発表されている。これらは America Makes による成果でもある。America Makes では、2018年のプロジェクトとして、大型装置の開発と後加工に関するプロジェクトを実施することとしており、実用段階での研究開発が本格化している。また、企業の動きとして、金属 AM 技術の牽引役を務める GE 社は、2017年に GE Additive 社を立ち上げ、装置と原料粉末の開発を行っている。2017年に世界最大の造形面積を有する指向性エネルギー堆積法の装置が開発されるとともに、2018年にはマルチ・マテリアルのための粉末床溶融結合法による装置開発が検討されている。

欧州では、1984年からの研究開発支援プログラム (FP1～8) によって、高分子のレーザー स्क्यान技術に始まり、その後も AM 技術に対する投資が継続している。2007～2013年の FP7 においては、60を超える課題に1億6000万ユーロの予算配賦があったのに加え、現在の FP8 (Horizon2020) では重要基盤技術 (Key Enabling Technology) の一つとして先進的な造形技術 (Advanced Manufacturing and Processing) が挙げられ、2013～2016年発足の20課題に9500万ユーロが投資されている。また、ドイツ、英国、フランス、イタリア、スペイン各国においても、着実に AM 技術に関する研究プロジェクトが実施されている。粉末床溶融結合法、指向性エネルギー堆積法とも装置メーカーが多く、フラウンホーファー研究機構などとの連携の中で、装置の改良等に関する研究やモニタリング技術やマルチ・マテリアル装置の開発などが実施されている。

3次元造形装置の市場と傾向を記した Wholers Report 2018によると、中国では AM が Made in China 2025 におけるキーテクノロジーとして位置付けられている。2017年には16億ドル、2020年までに32億ドルに及ぶ多額の投資が行われる計画で、粉末床溶融結合法、指向性エネルギー堆積法とも AM 装置の開発から販売まで進んでいる。多くの海外製装置が導入されるとともに、大学をはじめとする多くの研究拠点から論文発表が行われていることから、既に AM の技術情報が蓄積されていると推察できる。

シンガポールでは、2016年から2020年にかけて、24億ドルを研究開発に投資することが決定しており、シンガポール科学技術研究所 (A\*STAR) を中心に、幅広い分野における AM の研究開発が始まっている。

## (5) 科学技術的課題

AM 技術は、デジタル・マニュファクチャリングで将来的には “Digital Twin” を成し遂げる技術として有望視されているが、上述したように課題は山積していることから、欧米を中心に基礎的研究が活発に行われている。

モニタリング技術に関しては、粉末床や造形体におけるその場観察での欠陥検出技術、高精度・高速処理可能な画像処理技術、これに伴うフィードバック技術の開発が依然として課題となっている。一方、シミュレーションに関しては、粉体レベルにおけるマイクロ溶融・凝固シミュレーション、組織予測シミュレーションおよび熱変形予測シミュレーションを体系的に開発することと併せて、高速・高精度加工のためにシミュレーションに使用する材料物性値の大量取

得が大きな課題である。また、AMによる合金材料の作製に向けて、原子・分子レベルの設計技術をこれらのシミュレーションに組み込んで開発を進めなければならない。その現場においては、生産試験に入る前に不可欠な条件出しに、シミュレーション速度・精度の向上も重要である。

日本は、ファイバーレーザーの技術開発に出遅れたが、加工技術と組み合わせることで巻き返しつつある。最近、日酸TANAKA株式会社が国産12 kWファイバーレーザーの搭載を可能にしており、空間・時間制御性の向上による高品質溶接が課題である。レーザー加工において材料への光吸収率は最重要因子の一つであり、青色半導体レーザーによるAM装置が注目を集める理由でもある。今後、試料の温度上昇による光吸収率変化について実験、理論の両面から明らかにするとともに、レーザー自体のさらなる高出力・高輝度化を実現することが重要である。一方、高平均出力を有する加工用の短パルスレーザーについては、ピコ秒が市販化、さらに短いフェムト秒の超短パルスレーザーが研究開発の段階にある。加工のためのフォトンコストを下げるための世界的な開発競争は激しく、加工最適化アプリケーションとの組み合わせによる装置化が鍵であろう。

2018年度からのQ-LEAP、SIP第2期ではアブレーション等のレーザー除去加工を主眼としており、以上の課題への資金投資によってAM技術を含む接合加工技術を重点化することも求められる。AM技術はあらゆる分野における成形技術として今後の利用が拡大していくと予測される。海外では航空・宇宙分野の部品にとどまらず、ナノテク、医療、建築、デザイン分野へ幅広い応用が検討されているのに対し、我が国ではそのような傾向がほとんど見られない。今後、自動車や電機製品における金型および最終製品を中心にして、装置開発に基づく新たな展開が重要である。

#### (6) その他の課題

AM技術分野の研究開発者が不足しており、喫緊の世界的課題が人材育成である。とりわけ、金属AMにおいては、3D-CAD技術だけでなく、トポロジー最適化のような新しい設計技術、溶融・凝固現象を取り扱うのに要する材料学の知識や計測評価技術といった幅広い素養が必要となることから、実習を伴った教育が必須であろう。このため、GE社が大学に金属AM装置を導入したり、欧米の大学院が当該分野の教育プログラムを開設したりするなど、人材育成への積極的な取り組みが顕著である。また、中国においては、多くの大学に装置導入がなされるとともに、大学発のベンチャー企業も設立されることで、人材育成が進んでいる。これに対して、日本では、装置を有する大学や企業が限られることから、人材育成のための実習が非常に難しい環境にあり、体系的な方策を検討することが望ましい。

AM技術は粉末を使用しており、安全に関する法規制の下で研究開発が行われている。これから装置導入が増えるにつれて、体系的な制度確立が必要となる。

(7) 国際比較

国・地域	フェーズ	現状	トレンド	各国の状況、評価の際に参考にした根拠など
日本	基礎研究	◎	↗	TRAFAM や NEDO、SIP プロジェクトなどにより、溶融凝固現象の解析やシミュレーション技術の開発など、学理解明により高品質レーザー加工に必要な条件を特定するための基礎研究が実施され、成果として現れ始めている。レーザー除去加工（表層加工）については、複合レーザー照射によって回折限界以下の構造物ができるようになっている。また、2018年より Q-LEAP が開始され、超短パルスレーザーによる除去加工の学理解明と CPS 型レーザー加工シミュレータ開発で進展が期待される。
	応用研究・開発	○	↗	数社の工作機械メーカーにより、指向性エネルギー堆積法および粉末床溶融結合法とともに、切削とのハイブリッド型の装置開発が行われてきた。また、TRAFAM プロジェクトにおいて、指向性エネルギー堆積法による装置 2 機種が開発され上市に至っている。純銅等のレーザー加工に優位性を有する青色半導体レーザーの開発で世界をリードする。CPS 型レーザー加工の応用が 2018 年からの SIP 第 2 期で進められている。
米国	基礎研究	○	→	LLNL、ANL、ORNL、SNL や NIST などの国立研究所が、大学や企業との連携により、テストベンチを利用した溶融・凝固現象の解明、計測評価技術の開発、シミュレーション技術の開発などを実施している。持続的な推進によって多くの成果が出てきており、活性度が高い。短パルスレーザーを用いた表面微細構造については、CLEO、COLA、SPIE Photonics West など で発表はあるものの、以前と比べて目新しい成果が少ない。
	応用研究・開発	◎	→	国立研究所、大学、企業による新たな製品開発プロジェクトを実施して大きな成果が継続的に出ている。また、GE 社が新たな装置開発を実施するなど、多くの応用研究・開発が積極的に行われている。粉末床溶融結合法と指向性エネルギー堆積法以外の結合剤噴射法、材料押出法による装置開発も行われている。
欧州	基礎研究	○	→	特に、スイス、オーストリア、ドイツの大学と研究機関が着実、持続的に高効率化、微細化を目指した研究開発を行っているが、以前と比べて目新しい研究成果が少ない。学理解明に向けた研究は日本と同様の傾向にあり、高繰り返し超短パルスレーザーを用いた高次高調波光源による加工技術開発は注目される。
	応用研究・開発	◎	↗	レーザー熱源の AM 装置については、高速化のための装置開発や専用機械のための技術開発を着実に実施しており、金属 AM の分野で世界をリードしている。また、ドイツのフラウンホーファー研究機構 ILT、トルンプ社による緑色レーザー利用の試みや、新たな装置開発メーカーの誕生など動きは活発である。また、ドイツで、純銅等のレーザー加工に適した青色半導体レーザー開発、実用化のための産学連携プロジェクトが推進。
中国	基礎研究	◎	↗	AM、レーザー加工分野ともに巨額の投資が行われている。大学を中心にして装置が導入されるとともに、多くの論文発表が行われている。
	応用研究・開発	○	↗	粉末床溶融結合法、指向性エネルギー堆積法とも、AM 装置開発が積極的に行われており、多くの企業が設立されている。航空・宇宙分野に加えて、金型作製に特化した研究拠点も大学に設置されている。レーザー切断加工に対し応用指向が強い。
韓国	基礎研究	△	→	日本と同様に人材も少ないことから、顕著な研究成果は見られない。
	応用研究・開発	△	→	装置開発企業も少なく、応用研究・開発の顕著な成果は見られない。

(註 1) フェーズ

基礎研究フェーズ：大学・国研などでの基礎研究のレベル

応用研究・開発フェーズ：研究・技術開発（プロトタイプの開発含む）のレベル

(註 2) 現状 ※わが国の現状を基準にした評価ではなく、CRDS の調査・見解による評価である。

◎ 特に顕著な活動・成果が見えている、○ 顕著な活動・成果が見えている

△ 顕著な活動・成果が見えていない、× 活動・成果がほとんど見えていない

(註 3) トレンド

↗：上昇傾向、→：現状維持、↘：下降傾向

(8) 参考文献

- 1) Nicholas P. Calta et al., "An Instrument for in Situ Time-resolved X-ray Imaging and Diffraction of Laser Powder Bed Fusion Additive Manufacturing Processes," *Review of Scientific Instruments* 89, no. 5 (2018) . doi:10.1063/1.5017236
- 2) Sarah K. Everton et al., "Review of In-situ Process Monitoring and In-situ Metrology for Metal Additive Manufacturing," *Materials & Design* 95 (2016) : 431-445. doi:10.1016/j.matdes.2016.01.099
- 3) David L. Bourell, "Solid Freeform Fabrication," *Jom* 70, no. 3 (2018) : 370-371. doi:10.1007/s11837-017-2715-x
- 4) Manuela Galati and Luca Iuliano, "A Literature Review of Powder-based Electron Beam Melting Focusing on Numerical Simulations," *Additive Manufacturing* 19 (2018) : 1-20. doi:10.1016/j.addma.2017.11.001
- 5) Toshi-Taka Ikeshoji et al., "Selective Laser Melting of Pure Copper," *Jom* 70, no. 3 (2018) : 396-400. doi:10.1007/s11837-017-2695-x
- 6) Tatsunori Shibuya et al., "Deep-hole Drilling of Amorphous Silica Glass by Extreme Ultraviolet Femtosecond Pulses," *Applied Physics Letters* 113, no. 17 (2018) . doi:10.1063/1.5046125

### 2.5.3 接着技術

#### (1) 研究開発領域の定義

輸送機器、土木・建築、電機・電子・精密機器、医療などをはじめ、様々な分野において要素技術となっている接着技術に関する研究開発領域である。特に、近年は航空機や自動車などの輸送機器におけるCO<sub>2</sub>排出量削減を目的として、マルチマテリアル化による軽量化を実現するためのキーテクノロジーである異種材料接合技術に注目が集まっている。実験と計算の両面アプローチにもとづくナノ～メゾ～マイクロメートルスケールでの接着メカニズムの解明と信頼性の確保、接着界面のリアルタイム計測評価手法の構築、種々の外部刺激や特異なマイクロ形状によって接着や剥離が制御できる新規機能材料の開発などが主な研究開発課題となる。

#### (2) キーワード

構造接着、機能接着、異種材料接合、マルチマテリアル化、キッキング・ボンド

#### (3) 研究開発領域の概要

[本領域の意義]

省エネ化、低環境負荷、低消費電力化を目的として、自動車や航空機、情報機器、家電などの様々な製品に対して軽量化が進められている。たとえば自動車においては、これまでの鉄鋼に代わってアルミニウムや炭素繊維強化プラスチック (CFRP)、超ハイテンなどを組み合わせたマルチマテリアル構造の適用が検討されている。特にCFRPと異種材料の接合では、溶接などの接合方法の適用が困難なことから、機械的な締結や、接着による接合技術が用いられている。接着による接合は、接着面で応力を分散することで応力集中を回避できることや、異材の接触による電食を回避できることなどの理由から、異種材料間の接合方法としての利用が拡大することが期待されており、接着技術が将来の製造産業を支える基盤的な重要技術となる可能性が示唆されている。

上記の構造接着の他、導電性・熱伝導・難燃性などの接着以外の機能を付与し高付加価値化する機能接着に対する産業界からの期待も大きくなっている。機能接着に興味をもつユーザー企業は多種多様であり、自動車、車載機器、ディスプレイ、半導体、ジェルネイル、衛生材料、衣服や瓶のラベルなど、その出口は多岐に渡る。また、化学メーカーにおいても機能接着は競争力を維持するためのキーテクノロジーの一つとして注目されており、特に軽量で機能性を付与しやすい有機接着材料は耐環境性の向上が進むにつれ、さらにその市場規模を伸ばしていくことが予想されている。

[研究開発の動向]

接着接合では、被着体の表面と接着剤が密接に接触しているにも関わらず「キッキング・ボンド」(KBs)と呼ばれる弱い結合状態の影響や長期使用等による接合部の劣化によって破壊強度が大幅に低下する場合がある。しかしながら、接着接合部の状況を外から直接観測することが困難なため信頼性を担保できないという大きな課題を抱えている。したがって、接着接合の信頼性をいかに担保するか注目が集まっている。具体的には、界面欠陥またはキッキング・ボンドは、製造中の表面の汚染、化学反応不良、様々な環境因子またはこれらの任意の組み合わせから生じると考えられ、接着前の被着体の検査や接着後の実際接合部に生じた接着不良の

非破壊検査手法を確立することが求められている。また、衝撃や長期劣化による影響の評価手法や、これらを予測する手法の確立、信頼性を担保するための接着メカニズム解明、強度低下を引き起こす劣化のメカニズム解明などが期待されている。

一方で、生体からヒントを得た構造構築、外部刺激応答性を付与した有機接着材料の合成、3D プリンターの設計自由度などを活かした新しい機能接着技術に関する研究開発が急速に成長している。

近年、アカデミアを中心にホットとなっていた接着トピックとして、Biomimetics や Bio-inspired と呼ばれる可逆接着・吸着技術が挙げられる。これら生体模倣接着のトレンドとして、以下の3つが代表的である。

- 1) ムール貝の接着タンパク部分構造であるカテコールを使ったコーティングと接着
- 2) ヤモリの足の表面に生えた毛の密集したマイクロピラー構造を模した接着材料設計
- 3) ハスの葉の表面に見られるダブルラフネス階層構造を模した液滴吸着挙動の制御

中でも特にカテコールアミン骨格をもつドーパミン緩衝溶液を用いたコーティングは、被着体の材質に依らずポリドーパミン薄膜が形成できることから、2007年に報告されて以来、現在に到るまで注目を集めている。実際、Au、Ag、Cuなどの金属や、TiO<sub>2</sub>、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>などの金属酸化物、GaAs、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>などの半導体、ガラス、ハイドロキシアパタイトなどのセラミック、ポリエチレン、PTFE (テフロン)、PDMSなどの汎用高分子の全てにおいてポリドーパミンコートが有効であり、接着性の低い材料の表面改質に用いることができる。また、カテコール骨格を高分子鎖に導入した人工の機能接着剤が続々と開発されており、耐水接着性も注目を浴びる要因となっている。カテコール骨格が上記のようなユニバーサルな接着を発現するメカニズムとして、カテコール骨格が多種多様の相互作用（共有結合形成反応、水素結合、 $\pi$ スタッキング、カチオン- $\pi$ 相互作用、金属配位など）を実現しうる点が指摘されており、AFM（原子間力顕微鏡）を用いた分子レベルでの相互作用解析、SFA（表面力測定装置）を用いた $\mu\text{m}$ スケールでの接着力解析も進展している。

一方、有機化合物の高いデザイン性を活かして、従来の接着材料にはなかった新しい機能を付与する研究も国際的に活発化しており、特に最近では、刺激応答接着剥離技術が注目を集めている。

#### (4) 注目動向

##### [新展開・技術トピックス]

接着メカニズムとしては従来からアンカーリング効果、化学結合、物理的な相互作用、界面での絡み合いの効果などがあると提唱されてきたが、実際になにが効いているかは明からにされていなかった。しかし近年、界面分析の手法が発達してきたため、徐々にこれらの分析ができるようになってきている。この分野では、日本が先行している状況にある。接着に特化した非破壊検査の手法についても積極的に研究が進められている。またこれまで検出がむずかしいとされてきたキッシング・ボンドについても、応力発光や、Acoustic Emission (AE) を使った手法で検出が試みられている。さらに、被着体の表面処理について、ドライプロセスである大気圧プラズマ処理やレーザー処理が広く研究されている。

機能接着材料に関して、最近急速に報告数が増加している研究トピックスとして、従来の光

硬化樹脂とは異なる形での「接着技術における光の利用」が挙げられる。その材料は以下のよう  
に、①光反応骨格を利用したもの、②共有結合よりも比較的弱い可逆形成が可能な非共有  
結合を利用したもの、に整理できる。

- ①アゾベンゼン、スピロピラン、アントラセン、光酸発生剤などの光反応骨格を導入した高  
分子・超分子・液晶材料の開発と、光照射や加熱による接着（吸着を含む）と剥離の可逆  
制御（リワーク）およびガラス転移温度（ $T_g$ ）の可逆制御
- ②水素結合、 $\pi$ スタッキング相互作用、金属配位結合などによってネットワーク構造を形成  
するいわゆる超分子ポリマーの開発と、限定された範囲での光熱効果（紫外可視・近赤外  
の光照射による温度上昇）をもちいた材料の局所軟化と局所接着

さらに、まだ報告例は少ないものの、塩水・イオンや電流などの外部刺激で接着剥離を制御  
する機能接着材料の開発や、界面のマイクロ構造の形を工夫することで接着力に異方性を付与す  
る試みもあり、今後、ナノレベルでの分子設計の最適化が進めば、さらなる進展が期待できる。  
また、接着技術は界面相互作用の探求と不可分の関係にあることから、湿った臓器の表面でも  
接着できる医療材料の開発や、細胞培養基板の界面における幹細胞と基板の相互作用の制御な  
ど、医療・バイオテクノロジーへの展開も始まっている。

近年、計算アプローチによる接着科学の進展にも期待がかかっている。スーパーコンピュー  
ターの普及により大規模な MD（分子動力学）シミュレーションを実施できるようになったた  
め、これまでより大きな空間範囲（ $\sim \mu\text{m}$ ）で長い時間範囲（ $\sim$ ミリ秒）を対象とした界面現  
象の計算ができるようになった。計算コストを下げするために分子構造を抽象化した粗視化モデ  
ルと、分子構造を精密にありのまま計算する全原子モデルの両方を相補的に活用することで、  
実際の接着実験の結果と比較できるスケールの大規模シミュレーションが可能になりつつあ  
る。計算科学の強みは、実験的な分析法では評価が難しい「ナノ～メゾ～マイクロスケールを  
またぐ力の伝達情報」が一挙に入手できることである。しかし現状では、計算科学者は膨大な  
計算結果をもっているものの、そこから統計学的に意味のある情報を抽出し、実験化学者がも  
っている実験データとの擦り合わせを進めることができていないため、今後の課題となっている。

[注目すべき国内外のプロジェクト]

[日本]

国内では、企業、大学、国研が産学官で連携した接着に関する共同研究開発が複数走って  
おり、中でもこれから国内の接着技術コミュニティで中心的役割を果たすと期待される拠点が、  
2015年に産総研に設立された「接着・接合界面現象研究ラボ」、および同じく産総研に2016  
年に設立された「接着・接合技術コンソーシアム」である。大規模なプロジェクトとしては、  
NEDO が新構造材料技術研究組合（ISMA）へ委託する形で進行している「革新的新構造材料  
等技術開発」（2014～2022年度）において、継続的に構造材料の接合・接着の強度と耐久性  
を向上させる試みが行われている。また、JST 未来社会創造事業においては、大規模プロジェ  
クト型として2018年より「Society5.0の実現をもたらす革新的接着技術の開発」が開始され、  
産学官の垣根を超えた接着研究の一大ムーブメントが生まれつつある。NEDO が産業応用に  
特化したプロジェクトを進めているのに対して、JST の未来社会創造事業は、接着メカニズム  
の解明などの基礎科学の追及を研究範囲に含んでいる点が特徴的である。加えて、接着に関連

したプロジェクトとして、内閣府の革新的研究開発推進プログラム (ImPACT) 「超薄膜化・強靱化『しなやかなタフポリマー』の実現」(2014～2018年度)においては、高分子材料の飛躍的な機能向上を目指し、数多くの大学と化学企業の参画のもとで進行しており、高機能有機材料の発展に大きく貢献している。

#### [米国]

米国の製造科学センター (National Center for Manufacturing Sciences : NCMS) では、陸軍研究所と連携し、米国の産業基盤の競争力を向上させることを目的とした技術開発コンソーシアムに参加しており、可逆性接着の研究を行っている。また、この枠組みで、PPG インドустリーズは、オークランド大学 (OU) と提携して、アルミニウム、マグネシウム、および炭素繊維の複合接合部を接合するため、熱膨張、低温での硬化、クラッシュなどに耐性があり、長期間のストレスに耐える構造接着剤の開発を進めている。

#### [欧州]

2014年度から Horizon 2020 の中で、ComBoNDT プロジェクトが実施されている。航空用途において、CFRP を主材料としたマルチマテリアル設計のための接着技術が対象である。具体的には、被着体表面および接着接合部の接着前および接着後検査に適した拡張非破壊試験 (ENDT) 法の開発および強化によって、接着品質の予測評価の困難さを克服することを目的としている。これにより、生産で最大 70% の時間短縮と 50% のコスト削減、15% の軽量化、20% の燃費改善を目指している。

### (5) 科学技術的課題

接着メカニズムの体系づくりの取り組みが必要である。これには、化学的な分子論 (nm スケール) と機械工学的なバルクの連続体理論 ( $\mu\text{m}$  以上のスケール) を橋渡しできる接着の力学理論、統一的で公正な力学的特性評価手法、可能な限り微小領域までの界面分析技術、計算機によるシミュレーション技術が必要となる。同様に長期の信頼性を担保するため、劣化を短期間で評価する手法を確立する必要がある。そのため、接着接合部の劣化にもっとも影響を与える因子を明らかにして加速的に劣化が起こる環境下での試験法を確立する必要がある。また非破壊検査では、接着前と後での高速検査技術が必要となる。これらについても、同時に接着強度に影響を与える因子を調べる必要があり、接着メカニズム解析と一体での検討が望まれる。そのためには、これらの問題意識を共有できる研究者たちが分野の垣根を超えて協働する必要がある。具体的には、接着剤の精密設計ができる有機合成化学者、界面科学に精通し、AFM (原子間力顕微鏡)、SFA (表面力測定装置)、引張試験などのマルチスケールな力の計測ができる分析科学者、電子構造を踏まえた精密な DFT 計算から大規模な全原子および粗視化 MD (分子動力学) シミュレーション、CAE (Computer-aided engineering) を利用した応力集中解析まで、幅広い時空間現象を対象として扱える計算科学者などが同一のプラットフォームで密接な共同研究を進めることが期待される。

### (6) その他の課題

接着技術の課題には、プロセス設計、力学的特性評価や界面分析、非破壊検査、表面処理、

接着剤の設計など多様な要素があり、課題の解決には、機械や物理、化学等幅広い分野の専門家の連携が不可欠である。また長年の実用実績によって支えられて発展してきた技術であるため、実経験のある研究者の協力も不可欠である。これらを取りまとめられる横断的な知見を有する優れたリーダーと、受け皿となる連携促進するための組織が必要である。

この他、薬品規制への対応の問題がある。接着剤には多くの反応性物質が含まれているが、このうちエポキシの硬化剤である多価アミンのいくつかが2018年に劇物指定され、一部の接着が管理された環境でしか使用できなくなった。また、同じく接着剤で広くつかわれているビスフェノールAもREACHの規制対象となった。加えてウレタンの接着剤の主成分の一つであるジイソシアネート類にも規制が広がっており、接着剤成分については、規制の対象になっていないものを選択する必要性が生じている。

接着信頼性を確保するために、研究開発という視点以外にプロセス管理という考え方もあり、ヨーロッパではこれが進んでいる。人材教育もその一つである。前記のとおり、欧州特にドイツが中心となって接着業務作業員の資格取得を義務化する動きがあり、日本国内でも対応を検討する必要がある。

### （7）国際比較

国・地域	フェーズ	現状	トレンド	各国の状況、評価の際に参考にした根拠など
日本	基礎研究	◎	↑	東工大や九大において、力学的な評価や接着メカニズム解明などの基礎的な研究が行われている。 SIPやNEDOプロジェクトの枠組みで航空機向け複合材に関し接着剤接合技術を含む研究が行われている。またJST未来社会創造事業においても大規模プロジェクトが開始されている。
	応用研究・開発	○	↑	産総研の接着・界面現象研究ラボにおいて、基礎からアプリケーションにいたるまで産学官の連携を図りつつ研究開発が進められている。 三菱重工が中心となって、防衛装備庁安全保障研究の枠組みで、航空機用接着技術の信頼性のため、分子結合に着目したメカニズム解明を展開している。 技術研究組合ISMAが主体となって実施している新構造部材に関するNEDOプロジェクトの中で、産総研他7機関が参加して自動車車体向け接着技術の研究が行われている。 総合的な接着剤メーカーはないが、小規模な接着剤メーカーが多くあり、接着剤種類や用途で得意分野が異なる。ユーザーサイドである国内主要自動車メーカー、重工メーカーにおいても、自動車向けや航空機向けの接着技術の調査および開発が行われている。
米国	基礎研究	◎	→	接着現象の解析、接着剤の開発などの基礎研究が大学や化学メーカーを中心に行われている。 3Mなどの本分野のリーディングカンパニーを有していることが高い競争力の源泉となっている。 生体模倣材料の研究が盛んに行われている。
	応用研究・開発	○	→	接着剤メーカーとしては、3MやPPGなど。ユーザー側では、GMやフォード、ボーイングで研究開発が行われている。 フォードはダウと共同で接着技術の開発を行っている。

欧州	基礎研究	◎	→	ドイツ・フラウンホーファー生産技術・応用マテリアル研究所 (IFAM) において、評価法、表面処理や検査法、接着剤、教育など接着技術全般に関する研究を実施している。 ドイツでは国および州のサポートによって、VWAG とブラウンシュバイク工科大学とが中心となり自動車の軽量化を目指した官民共同研究実施機関オープンハイブリッドラボを設立し、国内外の連携を推進している。 オランダのデルフト工科大の接着研究所では航空宇宙向けの構造接着技術が研究されている。
	応用研究・開発	◎	→	ヘンケル (ドイツ)、ダウオートモーディブ (研究所、スイス)、シーカ (スイス)、ボスチック (フランスのアルケマの接着部門)、ノバケム (UK) などの接着剤メーカーを中心に実用化研究が進んでいる。 エアバスや、VW、BMW、ルノーなどのユーザーサイドとの共同研究も精力的に行われている。
中国	基礎研究	○	↗	主に大学や国立研究所からの論文発表数が増えている。 潤沢な研究費によって研究レベルも向上している。
	応用研究・開発	○	↗	電気自動車の軽量化を目的として、精華大学の研究開発拠点を中心に重点的な研究開発が行われている。
韓国	基礎研究	○	→	日米欧のレベルには達しないものの、ソウル大や KAIST において基礎研究が実施されている。
	応用研究・開発	○	→	主にユーザー企業で応用研究・開発が行われているが、欧米と比べるとレベルはそれほど高くない。 接着のユーザー企業は接着および周辺技術を諸外国から導入して活用しており、製品への適用も進んでいる。

(註1) フェーズ

基礎研究フェーズ：大学・国研などでの基礎研究のレベル

応用研究・開発フェーズ：研究・技術開発 (プロトタイプの開発含む) のレベル

(註2) 現状 ※わが国の現状を基準にした評価ではなく、CRDS の調査・見解による評価である。

◎ 特に顕著な活動・成果が見えている、○ 顕著な活動・成果が見えている

△ 顕著な活動・成果が見えていない、× 活動・成果がほとんど見えていない

(註3) トレンド

↗：上昇傾向、→：現状維持、↘：下降傾向

## (8) 参考文献

- 1) U.S. National Center for Manufacturing Sciences (NCMS) ,  
<https://www.ncms.org/reversible-adhesive-system-improve-maintenance-sustainment/>  
(2019年2月12日アクセス)
- 2) 「接着剤工業の市場動向」『月刊機能材料』2017年9月号 (シーエムシー出版, 2017) .
- 3) Marleen Kamperman and Alla Synytska, "Switchable Adhesion by Chemical Functionality and Topography," *Journal of Materials Chemistry* 22, no. 37 (2012) : 19390. doi:10.1039/c2jm31747h
- 4) H. Lee et al., "Mussel-Inspired Surface Chemistry for Multifunctional Coatings," *Science* 318, no. 5849 (2007) : 426-430. doi:10.1126/science.1147241
- 5) B. Kollbe Ahn et al., "High-performance Mussel-inspired Adhesives of Reduced Complexity," *Nature Communications* 6, no. 1 (2015) . doi:10.1038/ncomms9663
- 6) G. P. Maier et al., "Adaptive Synergy between Catechol and Lysine Promotes Wet Adhesion by Surface Salt Displacement," *Science* 349, no. 6248 (2015) : 628-632. doi:10.1126/science.aab0556
- 7) H. Lee, N. F. Scherer and P. B. Messersmith, "Single-molecule Mechanics of Mussel

- Adhesion," *Proceedings of the National Academy of Sciences* 103, no. 35 (2006) : 12999-13003. doi:10.1073/pnas.0605552103
- 8) B. Kollbe Ahn et al., "Surface-initiated Self-healing of Polymers in Aqueous Media," *Nature Materials* 13, no. 9 (2014) : 867-872. doi:10.1038/nmat4037
  - 9) Shotaro Ito et al., "Light-Induced Reworkable Adhesives Based on ABA-type Triblock Copolymers with Azopolymer Termini," *ACS Applied Materials & Interfaces* 10, no. 38 (2018) : 32649-32658. doi:10.1021/acsami.8b09319
  - 10) Hongwei Zhou et al., "Photoswitching of Glass Transition Temperatures of Azobenzene-containing Polymers Induces Reversible Solid-to-liquid Transitions," *Nature Chemistry* 9, no. 2 (2017) : 145-151. doi:10.1038/nchem.2625
  - 11) Shohei Saito et al., "Light-melt Adhesive Based on Dynamic Carbon Frameworks in a Columnar Liquid-crystal Phase," *Nature Communications* 7, no. 1 (2016) . doi:10.1038/ncomms12094
  - 12) Amir Mahmoud Asadirad et al., "Controlling a Polymer Adhesive Using Light and a Molecular Switch," *Journal of the American Chemical Society* 136, no. 8 (2014) : 3024-3027. doi:10.1021/ja500496n
  - 13) Tadashi Inui, Eriko Sato and Akikazu Matsumoto, "Pressure-Sensitive Adhesion System Using Acrylate Block Copolymers in Response to Photoirradiation and Postbaking as the Dual External Stimuli for On-Demand Dismantling," *ACS Applied Materials & Interfaces* 4, no. 4 (2012) : 2124-2132. doi:10.1021/am300103c
  - 14) Christian Heinzmann et al., "Light-Induced Bonding and Debonding with Supramolecular Adhesives," *ACS Applied Materials & Interfaces* 6, no. 7 (2014) : 4713-4719. doi:10.1021/am405302z
  - 15) Yanfei Ma et al, "Remote Control over Underwater Dynamic Attachment/Detachment and Locomotion," *Advanced Materials* 30, no. 30 (2018) . doi:10.1002/adma.201801595
  - 16) Mark Burnworth et al., "Optically Healable Supramolecular Polymers," *Nature* 472, no. 7343 (2011) : 334-337. doi:10.1038/nature09963
  - 17) Motoyasu Kobayashi, Masami Terada and Atsushi Takahara, "Reversible Adhesive-free Nanoscale Adhesion Utilizing Oppositely Charged Polyelectrolyte Brushes," *Soft Matter* 7, no. 12 (2011) : 5717. doi:10.1039/c1sm05132f
  - 18) Donald Haydon, "ElectRelease – Electrically Disbonding Epoxy Adhesive," *Assembly Automation* 22, no. 4 (2002) : 326-329. doi:10.1108/01445150210446175
  - 19) Michael P. Murphy, Burak Aksak and Metin Sitti, "Gecko-Inspired Directional and Controllable Adhesion," *Small* 5, no. 2 (2009) : 170-175. doi:10.1002/smll.200801161
  - 20) J. Li et al., "Tough Adhesives for Diverse Wet Surfaces," *Science* 357, no. 6349 (2017) : 378-381. doi:10.1126/science.aah6362
  - 21) Andre E. Nel et al., "Understanding Biophysicochemical Interactions at the Nano-bio Interface," *Nature Materials* 8, no. 7 (2009) : 543-557. doi:10.1038/nmat2442
  - 22) 島津彰 「産業用高分子のバルクおよび接着界面に関する分子シミュレーション」 (第4回 SPring-8 材料構造の解析に役立つ計算科学研究会 – 高分子材料開発における計算物

- 質科学とインフォマティクスの技術動向一, 2017年9月11日) .  
23) ComBoNDT, <https://combondt.eu/> (2019年2月12日アクセス)

## 2.5.4 ナノ・オペランド計測技術

### (1) 研究開発領域の定義

材料やデバイスに対する実使用下のナノスケール計測、すなわち機能発現中に刻々と変化し続ける現象、構造の直接観察によって、測定対象と機能との相関を見出すことを目的とした研究開発領域である。狭義では「時間変化」、「動作環境」、「その場」の3要素が揃う必要があるが、実際には「その場」と「オペランド」の違いは曖昧であることが多く、「オペランド」は材料分野における「その場」の代替語という広義で考えた方が実用的である。先端計測に向けた高い時間・空間分解能の達成、使用場に相当するモデル環境の実現、膨大な観測データからの有用情報の効率的抽出などの課題がある。最近では、「オペランド」という用語が初めて使われた触媒分野にとどまらず、生きた細胞、生体組織や半導体メモリー、太陽電池などの実デバイスにまで測定対象は急速な広がりを見せ、学界と産業界の両方において不可欠な研究手段となりつつある。

### (2) キーワード

オペランド計測、「その場」(in situ) 測定、走査型透過電子顕微鏡 (STEM)、分割型検出器、ピクセル検出器、電場・磁場観察、「その場」専用ホルダー、環境セル、液中セル、原子・分子計測、エネルギー分散型 X 線分析 (EDS)、電子エネルギー損失分光 (EELS)、表面・界面観察、原子分解能観察、無磁場対物レンズ、量子ビーム分析、放射光 X 線、X 線吸収分光 (XAFS)、中性子線、回折法、小角散乱法、X 線顕微鏡、コヒーレント回折イメージング (CDI)、トモグラフィ、タイコグラフィ、X 線光子相関分光法、蛍光 X 線分析 (XRF)、X 線光電子分光 (XPS)、メカノオペランド分析

### (3) 研究開発領域の概要

[本領域の意義]

多くの材料研究では、ある特異な機能が見出されたとき、その発現に至った原因が何かを究明するために、材料の構造や電子状態を計測する。ところが、そのような計測は多くの場合、機能の発現時と別環境の (いわゆる ex situ) 測定であるため、真の原因を決定できないことがままある。それを克服するために、雰囲気、温度、圧力等を制御して、実際の「動作環境」と似た状態に保って計測するのが、「その場」(いわゆる in situ) 測定である。

「その場」測定概念をより一歩進めたものが「オペランド」測定である。「オペランド」測定は材料をその機能が発現する実際の「動作環境」に置きながら、構造、電子状態、分光特性等の「時間変化」を観測する。元来、「オペランド」という用語は分光特性と機能との相関を調べる研究で用いられた経緯があるが、今日では回折法のような非分光的手法まで含め、「動作環境」での測定を広く指すときに用いられている。

実際の「動作環境」であるか否かとの意味で、「その場」と「オペランド」は包含関係にあっても、研究の意義的に上下関係にある概念ではない。すなわち、「オペランド」ができれば「その場」は必要ない、ということではない。例えば、反応より吸着の過程が律速であるような速い触媒反応を対象にすると、「オペランド」計測しても触媒周囲には何の変化も得られない。対象材料のある特性に対して意味のある (真の) 計測を行う場合、必ずしも「オペランド」である必要はない。この例で言えば、反応物の濃度を変化させ吸着を制御するなど、条件に制約をかけ

た方が有効である。

ナノスケール計測の観点では、位置分解能の向上を目指す絶え間ない努力によって、究極の原子・分子計測が可能になりつつある。尖鋭な突端を有する探針を走査することにより、レンズを使わずに形状や物性を測定する走査プローブ顕微鏡（SPM）がよく知られ、走査型トンネル顕微鏡（STM）、原子間力顕微鏡（AFM）、走査型近接場光顕微鏡（SNOM）、磁気力顕微鏡（MFM）などの例がある。また、電子顕微鏡についても、電磁レンズ系の球面収差や色収差を補正する技術が実用レベルに達するとともに、制御系の高度な安定性が実現したことにより起因して、技術進展が大きい。特に、材料内部に存在する界面、粒界、点欠陥、表面などの欠陥構造を原子レベルで観察することが可能となり、世界中の学術・産業分野において広く利用されている。

量子ビームを用いた計測は、加速器、原子炉等の大型施設を用いることにより実験室の装置では到底得られない情報を取得できる。特に、放射光を含む X 線や中性子線を用いたオペランド測定は、多くのビームラインで簡便に実施できるほど一般的になってきており、自動車に用いられている排ガス浄化触媒、二次電池をはじめとして、各種の金属、半導体、樹脂材料まで、ありとあらゆるものが対象となっている。オペランド計測において重要な量子ビームの特徴は、特定元素の電子・化学状態、結晶構造、表面～内部構造を非破壊で計測できる能力であり、これにより材料の 3 次元情報もオペランド計測で取得できる。このような量子ビームの有用性ととも、より先端的な測定や実用製品そのものの計測に対するニーズが高まってくると期待される。

#### [研究開発の動向]

##### ①走査型透過電子顕微鏡（STEM）

STEM は、原子レベルに絞った電子線を走査して像を形成する電子顕微鏡であり、現在では従来からの高分解能透過型電子顕微鏡（HRTEM）よりもサブナノスケールの解析で重要な役割を担っている。最近では、信号検出系の進展が目覚ましく、組成分析、電子状態解析、電磁場観察、歪場解析などが原子レベルで行えるようになるなど、急速な発展を遂げている。その結果、今や欠くことのできない解析手法として、世界中の大学、研究所、企業に導入されている。STEM の優れた分析能力を活かして材料における特性発現の本質に踏み込むためには、現行の静的構造観察からオペランド計測へと大きく飛躍させることが極めて重要である。

注目すべき世界動向としては、日本のグループによる分割型検出器の開発に端を発した原子レベルの位相イメージング手法の進展が挙げられる。試料各点で透過、散乱された電子を検出するための検出器として、検出面を複数の領域に分割した分割型検出器を用い、微分位相コントラスト（DPC）法により半導体 pn 接合界面や磁気スキルミオンの直接可視化、さらには原子内部電場の直接観察までもが可能となっている。また、このような背景により、検出器の分割数を極限まで小さくしたピクセル検出器の開発が欧米を中心に活況を帯びている。ピクセル検出器を用いることで電磁場計測の定量化が実現し、またタイコグラフィーなどの位相再生法の適用も可能になるため、本分野における注目度は極めて高い。現状、分割型検出器に比べ検出時間、データ量に難があるものの、今後は日進月歩に改善していく可能性が高い。

ピクセル検出器からのビッグデータと機械学習などの情報科学的手法とを融合する研究も始まっており、STEM とスパコンを繋いで大量データを高速解析するプロジェクトも立ち上が

り始めている。この分野は現在 4D STEM と総称されるようになり、学会等でも関連セッションが数多く立ち上がり、参入する若手研究者も世界的に増加している。さらに、従来の EDS、EELS 検出器にも格段の進歩があり、原子レベルの組成分析や状態解析が一般的になっている。このように検出系の性能が向上したことは、測定時間の短縮を可能にするため、オペランド計測への応用展開にも有利に働くと考えられる。

STEM でオペランド計測を実現するためには、試料を実際に近い「動作環境」に置くための専用ホルダーの導入が必須である。昨今、欧米のベンチャー企業を中心に、さまざまな試料ホルダーの開発が進展しており、液中、ガス雰囲気、通電、加熱、冷却、磁場印加、インデンテーションの下での STEM オペランド計測が可能になりつつある。また、集束イオンビーム (FIB) による加工技術も格段の進歩を遂げており、専用ホルダーに最適な形状、サイズで観察試料の作製が可能になっている。今後は、上述の STEM 観察・分析手法とオペランド手法を如何に融合して、材料・デバイス現象の本質解明に繋げるのかが重要な方向性となるであろう。

## ②放射光 X 線

粒子線である電子線、イオンビーム、中性子線や、赤外～可視・紫外、 $\gamma$  線領域の電磁波と比較して、放射光 X 線はオペランド計測のプロブとして最もニーズの高い量子ビームである。光が照射され物質と相互作用した後の透過・散乱・回折光を計測するのがオペランド計測では基本であることから、フォトンイン/フォトンアウトという言葉で括られる。

透過 X 線を検出する、もしくは吸収後の二次過程である蛍光 X 線やオージェ電子、光電子を検出する X 線吸収分光 (XAFS) は、放射光 X 線のオペランド測定として最も幅広く使用されている手法である。XAFS は元素選択性と局所構造敏感という 2 つの特徴があり、それらは特に不均一系触媒の解析と相性が良く、オペランド XAFS が決定的な情報を与える場合が多い。

初期のオペランド XAFS は、主に自動車触媒のような気体-固体界面反応の観測に使われた。その中でマイルストーンと言えるべき成果を挙げたのがフランスの欧州シンクロトロン放射光研究所 (ESRF) のグループである。その後、燃料電池の電極触媒や二次電池の電極材料に対するオペランド XAFS の報告が次々と出された。特に、電極触媒の反応は気体-液体-固体の三相界面で起こり測定対象として複雑であるが、電池開発が盛んになるにつれて電極材料のオペランド XAFS は進化を遂げてきた。初期の頃は Pt/C 電極触媒に対して欧州や米国の成果が多かったのに対し、日本の大型放射光施設 SPring-8 (Super Photon ring · 8 GeV) においても「その場」かつ「実時間分割」測定を実現したという研究報告が注目されている。

特定の蛍光 X 線の収量を測定すること (部分蛍光収量法) により高いエネルギー分解能で XAFS スペクトルを取得できるが、この手法をオペランド計測に適用するという観点からも挑戦がなされ、米国のスタンフォード・シンクロトロン放射光施設 (SSRL) のグループによる表面 XAFS、SPring-8 での高分解能 XAFS の成果がある。また、通常の Pt-XAFS で用いられる硬 X 線 (およそ 4000 eV 以上) でなく、透過能力が低くオペランド測定への適用が難しかった軟 X 線 (200 ~ 4000 eV) を利用した研究も最近では発表されている。もともと軟 X 線は、そのエネルギー領域に C、N、O といった重要元素の K 吸収端だけでなく、3d 遷移金属の性質を司る 3d 軌道への 2p 軌道からの励起エネルギーも位置することから、潜在的な材料研究へのニーズが極めて高かった。SiC や  $\text{Si}_3\text{N}_4$  を軟 X 線用の窓材として用いることで、SPring-8 や極端紫外光研究施設 (UVSOR) で Fe や Mn などの「その場」XAFS の成功例がある。

X 線回折法 (XRD、より厳密には広角 X 線回折 (WAXD)) は X 線分析法の中で最も使わ

れる手法である。放射光 X 線においては、主にイメージングプレートや半導体二次元検出器が使われ、検出器を動かすことなく短時間で幅広い回折角の情報を得ることができることから、条件を細かく変更しつつ連続的に「その場」XRD を行うことが容易である。二次電池の電極材料を対象にした例が数多くあり、代表的な論文は引用回数が 1000 回を超える。環境制御下の「その場」XRD や、二体分布関数法により XRD パターンから局所構造の実空間情報を得る研究が SPring-8 で行われている。

このように X 線によるオペランド計測では電池・触媒材料の例が最も多いが、最近では高分子材料、生体材料、細胞などの新しい測定対象や機械工学等の新分野への応用も出てきており、それと同時にイメージング/顕微法への研究展開が見られる。原子や分子の空間配置を調べるための顕微法として、走査型透過 X 線顕微鏡 (STXM) やコヒーレント回折イメージング (CDI) などが知られている。局所的な構造情報が選択的に得られるという利点から、日本、米国、欧州の放射光施設では、高分解能観察に必要なコヒーレント光を扱える専用ビームラインを用いて、ナノ・イメージングや各種分光法との組み合わせによる組成マッピングの研究が進められている。応用段階への進展も見られるものの、現状では測定に時間がかかることが多く、実デバイス内の現象を時間の関数として捉える計測の実現には、もう少し時間を要するだろう。

位置選択性やデータ解釈のしやすさでは劣るものの、空間・時間分解能や試料が置かれるモデル環境の自由度が高い散乱法を主に用いるオペランド計測も継続的に行われている。例えば、小角 X 線散乱 (SAXS) 装置に紡糸装置や延伸装置などを持ち込み、高分子材料の成形過程でのナノ構造変化を観察する研究などが挙げられる。また、ダイナミクス計測においては、X 線光子相関分光法 (XPCS) の時間分解能が年々高くなってきており、可視光における同等の手法である動的散乱では見ることのできない微小な構造の速いダイナミクスや不透明試料におけるダイナミクスの「その場」観察が一般的になりつつある。

### ③中性子線

中性子線は、電子線やイオンビームと同じ粒子線であるが、オペランド計測のための性質としてはその逆で、多くの材質に対して透過能力は高く窓が問題となることは少ない。この意味では、ほぼ原子核としか反応しないことにより断面積が低く (すなわち相互作用が小さく)、実用的な現在の中性子源では低感度でスループットが悪くなる場合が多いという本質的な問題はあるものの、量子ビームプローブとしては適しており、広く研究が行われている。

オペランド計測では、広角中性子回折法 (WANS)、小角中性子散乱法 (SANS) が主に用いられている。中性子の散乱、回折は、得られたパターンを解析することで物質内部の原子の配列を調べる手法であり、これによって結晶構造の解析、金属部材の残留応力の測定やバルク材料中のナノ析出物の同定が可能となる。日本、世界問わず活発な研究分野の一つは二次電池電極の実電池計測である。例えば、充放電状態にある Li イオン実電池、車載用電池の内部を非破壊的に解析し、電極活物質における不均一性の時間変化から電池仕様の改良や電池制御システムの開発に役立てられようとしている。イメージング技術の応用分野としては、他に医療診断やヒートパイプ内の熱流体移送現象、水素貯蔵合金における水素可視化の研究があり、米国の標準技術研究所 (NIST) などで盛んである。

また、磁性研究に中性子磁気散乱法、表面と界面の観察に中性子反射率法などが開発され利用されている。さらに最近では、中性子による回折とイメージングの原理を組み合わせたブラッグエッジイメージングが新しい解析手法として期待されている。これにより、中性子イメージ

ングに基づく電池充電量の空間分布から劣化度の測定が可能となり、自動車メーカーを中心に産業界から注目が集まっている。国内では、J-PARC 物質・生命科学実験施設（MLF）のエネルギー分析型中性子イメージング装置 RADEN が知られている。

注目すべき動向としてトライボロジー（摩擦学）への展開もある。工学的見地からのトライボロジーの研究は、機械システムにおけるエネルギー損失と環境負荷の低減に期待が寄せられた背景から、主として機械分野で行われてきた。引張や圧縮を含む機械的操作の下で現象のダイナミクスを追うオペランド計測は「メカノオペランド分析」と呼称される。国内では、文部科学省の「光・量子融合連携研究開発プログラム」（2013～2017年度）により、このような「摩擦」に加えて「潤滑」の本質的理解を目指す研究が推進された。詳細は(4)注目動向において説明する。

世界で稼働している代表的な中性子線の施設は発生源別に原子炉と加速器に分けられる。中性子の計測利用のための研究炉としては、フランスのグルノーブルにあるラウエ・ランジュヴァン研究所（ILL）が最も強い中性子線を発生できる施設であり（2015年時点）、世界を主導している研究機関である。また、米国 NIST も、中性子研究センター（NCNR）に 20 MW の研究用原子炉を持ち、中性子線の高精度化と固体物理から生物、材料科学に関する研究を活発に進めている。一方、イギリスのラザフォードアップルトン研究所（RAL）とスイスのポール・シェラー研究所（PSI）が世界に先駆けて中性子源（それぞれ ISIS と SINQ）を研究炉から加速器へと移行した後、ドイツや米国、日本、中国（例えば中国科学院（CAS）傘下の CSNS）などでも加速器中性子源の研究開発が盛んになっている。加速器中性子源のうち、加速器からの陽子等の高エネルギー粒子を原子核に衝突させて、大量の中性子を発生させる核破砕反応に基づく中性子源の代表例が J-PARC（Japan Proton Accelerator Research Complex）である。2008年に運用が開始された後、2015年には 500 kW 出力を達成し、世界でも最高クラスの大強度パルス中性子源である（将来的に 1 MW まで増強予定）。一方、J-PARC のような大型施設だけでなく、使い勝手のよい小型中性子源が望まれるようになり米国インディアナ大学の LENS（Low Energy Neutron Source）や、北海道大学の HUNS（Hokkaido University Neutron Source）、理化学研究所の RANS（RIKEN Accelerator Neutron Source）など、TOF 測定のできるラボ中性子源が近年脚光を浴びている。

#### （4）注目動向

[新展開・技術トピックス]

##### ・STEM 関連技術の高度化

STEM 分割型検出器に関しては、日本において光電子増倍管（PMT）方式、欧米で半導体検出器を用いた方式が開発、既に商用装置が販売され実用化に至っている。この分割型検出器を用いた DPC 法による応用研究が盛んに進められている一方、欧米を中心にしてピクセル型検出器も商用化が既に始まっており、FEI 社、Gatan 社、Direct Electron 社、Medipix 社、Quantum Detectros 社、日本電子株式会社（JEOL）などから次々と市場導入が行われている。検出器の検出スピードを現行の 100 倍以上向上させる開発プロジェクトが米国のローレンス・バークレー国立研究所（LBNL）で展開している。オペランド計測に必要な他の関連技術として、電子線走査システムの改善と情報科学的手法の応用による STEM 高速化や、磁性材料の観察を目指す無磁場対物レンズの開発などが注目される。また、SDD 検出器を用いた EDS、CMOS 技術を応用した EELS 検出器を STEM に組み込みオペランド化する試みは未だ

黎明期であるが、注目しておくべきであろう。

・オペランド STEM 専用試料ホルダーの開発

STEM 内でオペランド計測を実現するためには、専用試料ホルダーの導入が必須である。近年、欧米のベンチャー企業を中心に、さまざまなオペランド計測用試料ホルダーが開発されている。具体的には、Protochip、DENS solutions、Hysitron (現 Bruker)、Gatan、Hummingbird Scientific など各社から通電、加熱、冷却、液中、ガス雰囲気、インデンテーション用の試料ホルダーが市場投入されている。日本では、株式会社メルビルのホルダー開発が健闘している。TEM によるオペランド計測に関しては、日本は長い伝統と実績を有してきたが、最近のオペランド用試料ホルダーの開発では欧米の後塵を拝する状況は否めない。

・新規の放射光 X 線オペランド計測

これまでオペランドに不向きと思われていた手法、例えば軟 X 線を使った XAFS や発光分析でオペランド計測を行おうとする動きがある。フォトンイン/フォトンアウトが研究の主流であることに変わりはないが、それ以外で最近新しく見えてきた XPS と共鳴 X 線非弾性散乱法によるオペランド計測について記述する。

XPS は、X 線照射で放出される電子 (光電子) の検出により元素選択的な電子状態が取得できる。通常は高真空中の試料を測定対象とするのに対し、窓の材質を  $\text{SiO}_2$  とし厚さを 15 nm まで薄くすることで、固液界面や大気圧下の「その場」測定が実現している。分析対象を広げるための長年の取り組みが、いよいよオペランド XPS を可能なものにしてきている。

一方、XAFS は元素選択的で敏感な手法だが、電子状態に関しては非占有状態の情報しか得られず、スペクトルとして観測されるのは真の電子状態密度ではなく基底状態への射影状態密度であるという制約があった。そこで、より正確で精密な電子状態を観測可能な手法として、対象元素における価電子帯の電子励起を観測する共鳴 X 線非弾性 (ラマン) 散乱法があるが、断面積が小さく測定時間がかかることから、オペランドへの適用は進展していなかった。米国の Advanced Light Source (ALS) のグループは、散乱光の検出方法を工夫することによって、Li イオン電池の正極材料である  $\text{Li}(\text{Ni}, \text{Co}, \text{Mn})\text{O}_2$  でオペランド計測を実現しつつある。

・分光・散乱法と顕微法との組み合わせ

さまざまな X 線顕微法と分光法、あるいは散乱法を組み合わせた新規計測技術が次々と報告されている。例えば、SPring-8 ではタイコグラフィと XAFS を組み合わせて従来の顕微 XAFS を凌駕する分光イメージングに成功している。米国 ALS でタイコグラフィと XAFS を組み合わせて Li イオン電池中の高分解組成マッピングを行った例、欧州 ESRF ではクラッキング触媒を対象とした同様の報告がある。また、散乱法と顕微法の組み合わせとして、散乱像を用いた高分解能化手法としてのタイコグラフィなども研究されている。さらに、ESRF のオペランド計測専用ビームラインからは、XRD とトモグラフィの組み合わせによって、リン陽極を有するナトリウムイオン電池中で特定部位の対分布関数 (PDF) を得るユニークな研究が報告されている。これらの計測法はまだリアルタイム観察に使える段階にはないが、光源の性能が向上すれば将来は実デバイス中の構造変化を実空間・時分解で観察できるようになると予想される。

・メカノオペランド分析の進展

メカノオペランド分析は、有機的な分野間融合体制の構築と推進、量子ビームプローブの高度化、ビームラインの産業利用への開放の 3 点によって活発化している。J-PARC 等に高強度ビームラインが設立され、高強度でしか実現し得ない分析にも手が届くようになったことから、

2015年以降になって研究の進展が顕著になってきた。当然ながら、動力源の飛躍的な高効率化を図りたいという各機械メーカーからのニーズの高まりにも呼応した流れであり、今後はより大きな潮流となることが見込まれる。

材料工学、トライボロジー、加工学を基礎とするメカノオペランド分析の事例として、中性子線斜入射小角散乱法を用いたトライボ環境下における摺動表面の研究がある。二面を擦り合わせながらその摺動界面に中性子線を斜入射することで得られる非弾性散乱情報から、金属材料界面のナノスケール構造変化を捉えようとする試みである。まだ開発途上の感はあるが、未摺動時との散乱プロファイルの差異は見られており、今後の展開が期待される。これは欧州でのメカノオペランド分析の一例である。

#### [注目すべき国内外のプロジェクト]

国内においては、光・量子ビーム技術の連携と施設、設備の横断的活用を目指した文部科学省の「光・量子融合連携研究開発プログラム」で、放射光 X 線、中性子線や他の光・量子ビーム技術との融合によるオペランド計測のプロジェクトが 2017 年まで進められた。これと並行し、小型中性子源として理化学研究所の RANS 開発が戦略的イノベーション創造プログラム (SIP)「インフラ維持管理・更新・マネジメント技術」のプロジェクトで進展した。現在、ナノ・オペランド計測のみに注力する大型プロジェクトは見当たらないが、JST の研究成果展開事業「先端計測分析技術・機器開発プログラム」や戦略的創造研究推進事業 ERATO 百生量子ビーム位相イメージングプロジェクト、さきがけ「エネルギー高効率利用と相界面」、科学研究費補助金の新学術領域研究「ナノ構造情報のフロンティア開拓・材料科学の新展開」、特別推進研究「原子・イオンダイナミクスの超高分解能直接観察に基づく新材料創成」の一部課題として、STEM、X 線顕微法・イメージング技術関連のプロジェクトがある。無磁場、あるいは高速化 STEM が、実際の装置開発メーカーである JEOL と東京大学との共同研究により開発中であることは注目される。また、放射光 X 線のオペランド観測については、NEDO の「固体高分子形燃料電池利用高度化技術開発事業」、「革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発」、文部科学省が実施している「元素戦略プロジェクト<研究拠点形成型>」が深く関わっている。

諸外国でも、ナノ・オペランド計測のみに注力するプロジェクトへの大規模な政府投資は見られないが、米国 LBNL における STEM 用ピクセル検出器の開発、フランス CRNS のカソードルミネッセンス (CL) 技術開発 (Attolight 社で装置市販)、ドイツの SALVE プロジェクト、英国の SuperSTEM3 などが注目に値する。欧米では、ピクセル検出器とビッグデータ解析の融合を目指すプロジェクトも動き始めており、米国の LBNL とコーネル大学、英国のオックスフォード大学とグラスゴー大学、ドイツのユーリッヒ研究所エルンスト・ルスカセンターにおける開発状況を常に注視する必要がある。また、中国が巨額な研究投資を背景として、ハイエンド STEM を精力的に導入しており、急速に実力を伸ばしている。

中国における放射光 X 線のオペランド計測は、装置開発よりも導入装置による分析応用に重点が置かれており、例えば Li イオン電池の計測などが精力的に展開中である。今後、本格的な装置開発に参入する可能性もあり、注視する必要がある。

#### (5) 科学技術的課題

STEM におけるピクセル検出器の開発は、欧米が先行している。高速かつ高感度のカメラ

はSTEM 検出器としての利用に留まらず、クライオ電子顕微鏡やオペランドTEMにも応用可能で、汎用性も極めて高い。STEMを用いたオペランド計測に関しては未だその端緒についたところであり、観察の超高速化、安定化や自動補正、像解析などのソフトウェアの充実も重要な開発要素となる。

放射光X線を利用したオペランド計測は、高い空間・時間分解能と実デバイスに近い「動作環境」の再現が求められ、光源、光学系、検出器等の性能向上とモデル環境の高度化の両輪で臨むべき対象である。また、より高いスループットを求め光源からのプローブ光子密度を増加させると、X線による試料損傷が顕在化し問題になってくるであろう。偏向電磁石光源から得られる光子密度 ( $1 \times 10^{10}$  ph/s/mm<sup>2</sup>) のレベルにおいては、電池・触媒材料のほとんどがX線の損傷を受けることなくオペランド測定が可能であるが、挿入光源から得られる光子密度 ( $> 1 \times 10^{13}$  ph/s/mm<sup>2</sup>) では一部の試料に照射損傷が既に観測されている。タンパク質の結晶構造解析では試料を冷却することで照射損傷を低減させている例が多いが、「オペランド」と名の付く限り、試料温度は動作範囲内に限られてしまい、解決が困難になっている。

また、STEM、放射光X線、中性子線によるオペランド計測すべてに共通の課題であるが、専用の試料ホルダー開発に関しても欧米の後塵を拝しており、今後の重点化が必須であると考えられる。特に、極めて難しい高圧下でのオペランド計測については、透過能力が高く窓材を容易に厚くできる中性子の技術から学ぶことも有効であろう。現状、各実験グループが個々に開発しているが、相互の情報共有により汎化した試料ホルダーの開発が求められる。

## (6) その他の課題

日本の電子顕微鏡技術は伝統があり、国内メーカーの製品は世界市場で極めて高い評価を受けている。これは、電子顕微鏡開発の黎明期から産学官で国を挙げて取り組んできた成果であると考えられる。しかし近年、電子顕微鏡の新分野、新技術を切り開く研究者層が薄いことが問題である。

人材不足の問題は、STEMだけでなく放射光X線、中性子線によるオペランド計測を含む本研究領域の全体に当てはまる。そもそも、計測の研究者は、材料・デバイス開発などの出口に直結する応用研究のサポートとしての位置づけで働くことが多く、純粋な計測研究だけを継続していくことは難しい環境にある。このような状況では次世代の顕微鏡開発・計測を担う若手研究者が育ちにくいと危惧される。

また、オペランド計測を行う上で、実デバイスの「動作環境」を再現することが計測手法・技術の研究と同程度に重要である。「動作環境」と計測が要請する実験条件とのすり合わせは、対象の材料やデバイスで行う各実験で必要になると考えられることから、今後の人的、資金的負担は増加すると予想される。しかし、最先端ナノスケール計測は、ハードウェア開発、オペレーションとともにデータ解釈にも高い知識と豊富な経験が必須であり、そのような人材を一朝一夕に育成、確保することは非常に難しい。長期的な視点に立った対策を講じなければならない。

多くのユーザーが手軽に放射光施設に立ち寄ることのできる環境作り、例えば海外の多くの施設と同様に、実験ホールを放射線管理区域から除外することも検討の価値がある。中性子線とX線との相補的利用が魅力的であることに疑いはないが、技術開発、人材育成の観点で日本原子力研究開発機構の研究用原子炉JRR-3が8年以上に渡り停止している現状をどのようにしていくのかが、課題である。

(7) 国際比較

国・地域	フェーズ	現状	トレンド	各国の状況、評価の際に参考にした根拠など
日本	基礎研究	○	↑	STEM：像形成理論や分割型検出器、DPC法の研究開発に関し世界の先鞭をつけている。また、無磁場対物レンズや収差補正装置などのプロジェクトも進行。しかし、オペランド専用試料ホルダーの開発では遅れをとっている。 放射光X線：SPring-8、SACLA、PF、UVSORなどを中心に研究が進められている。世界初の大気圧XPS測定や50nm位置分解能でのタイコグラフィックXAFSなどは顕著な成果である。 中性子線：オペランド分析に必要な高度化（集光精度向上による高強度・高精度化）技術、小型中性子源の開発が理研、京大などで進んでいる。メカノオペランド分析の例がJ-PARCで見られ始めた。
	応用研究・開発	○	→	STEM：DPC法の材料・デバイス応用に関して、世界を先導する成果を報告。また、装置に関してはJEOL、日立など国内メーカーが国際競争力の高い製品を販売しており、今後も付加価値を高めるための開発を継続することが望まれる。しかし、ピクセル検出器、EELSやオペランド専用試料ホルダーの開発では欧米に遅れを取っている。 放射光X線：SPring-8においては、(株)豊田中研専用ビームライン(BL33XU)から新手法に関するプレスリリースやフロンティアソフトマター開発専用ビームラインでの製造工程計測の例などがあり、吸収法、散乱法ともに、実用化につながる研究開発が進行している。顕微法と分光法の組み合わせによる実空間計測も期待される。 中性子線：実電池内部におけるイオン（特にLiイオン）挙動や電極界面構造の把握を目指すイメージング研究が企業による専用ビームラインで進んでいる。
米国	基礎研究	◎	↑	STEM：ピクセル検出器を応用した4DSTEMという分野を確立し先導。特にLBNLが新規位相イメージングやピクセル検出器の開発、ビッグデータ解析など重要な結果を発表。コーネル大の開発したピクセル検出器がFEI社から販売され、同社のハイエンドSTEMに急速に導入され始めている。 放射光X線：APS、NSLS-II、SSRL、ALSなどが中心。2018年XAFS国際会議でのKeynote lectureを米国研究者が務め、関連書籍の発行もあるなど、引き続き高レベルにある。XPCSでナノ秒オーダーの時間分解能を実現した研究は価値が高い。 中性子線：NIST・NCNRを中心に、中性子ビームの高精度化に関する研究が活発に行われている。
	応用研究・開発	○	↑	STEM：ベンチャー企業がオペランド専用ホルダーの開発を先導しており、液中観察や電池反応観察など画期的な成果がある。EELSに関してはGatan社の独壇場である。Nion社はモノクロメーター搭載のSTEM専用機開発で異彩を放つ。 放射光X線：化学電池、水分解用光触媒、燃料電池などのエネルギー関連材料への応用が目立つ他、多様な測定対象への展開が本格化。 中性子線：電池以外に、医療診断やヒートパイプ内の熱流体移送現象、水素貯蔵合金における水素挙動の可視化等の研究にイメージング技術が利用されている。

欧州	基礎研究	◎	↗	<p>STEM：ドイツは長い電子顕微鏡開発の歴史に根ざして、収差補正技術などの基幹技術の開発において引き続き世界を先導（ウルム大学の低加速電圧 TEM など）。フランスは STEM-EELS や STEM-CL 開発を先導。英国は DPC、タイコグラフィーなど STEM 位相イメージングにおいて長い研究開発の歴史を有しており、近年のピクセル検出器の急速な進展とともに、再び存在感を増している。</p> <p>放射光 X 線：ドイツ電子シンクロトロン (DESY) の PETRA III、欧州 X 線自由電子レーザー (European XFEL) 施設の FLASH や ESRF、英国ダイアモンド放射光施設 (DLS)、スイス放射光施設 (SLS) などを中心に進められている。他にも本格稼働を待つスウェーデンの MAX IV などがある。特に、ESRF はオペランド計測に特化した、あるいはマイクロビーム専用のビームラインを備えており、早くから力を入れている。最近も関連総説が発表されるなど引き続き高レベルにある。</p> <p>中性子線：ILL は世界最高強度の中性子ビームラインを有し、回折法、小角散乱法、非弾性散乱法の高度化で世界を主導する。日本と同様、メカノオペランド分析の例が見られ始めた。</p>
	応用研究・開発	○	→	<p>STEM：オペランド専用の試料ホルダーを用いてさまざまな応用研究が進展している。既存技術の高度化や新技術の応用も堅実な展開を見せる。</p> <p>放射光 X 線：米国と同様に、エネルギー関連分野への応用が顕著である。また、回転軸受の動作中心ずれをオペランド XRD で計測した DLS の例などユニークな応用も見られる。</p> <p>中性子線：ILL に加えて、PSI-SINQ を中心にイメージング応用が進んでいる。</p>
中国	基礎研究	△	→	<p>STEM：急速にハイエンド装置の導入が進められており、今後もさらなる研究投資が行われる見込み。海外で活躍する若手研究者を自国に呼び戻し、短期間で技術的追従を達成する国内体制を構築している。</p> <p>放射光 X 線：SSRF、NSRL、BSRF で進められている。2018 年 XAFS 国際会議で NSRL の研究者が Plenary lecture を行っており、存在感が今後高まる可能性。</p> <p>中性子線：2018 年に CAS-CSNS が実運転を開始。</p>
	応用研究・開発	△	→	<p>STEM：欧米や日本から帰国した若手研究者に最新装置を提供することで活況を呈している。豊富な資金的・人的リソースにより、世界トップレベルの応用研究が進みつつある。</p> <p>放射光 X 線：関連論文に企業からの著者が入っている例は限定的である。</p> <p>中性子線：CSNS が実運転を開始し始めたばかりで顕著な成果はまだ見当たらない。</p>
韓国	基礎研究	△	→	<p>STEM：中国と同様、主軸は応用研究にあるため、基礎的な装置開発や理論研究に関しては目立った報告はない。</p> <p>放射光 X 線：POSTECH に放射光源 PLS-II、PAL-XFEL を有するが、関連の技術開発は日米欧と比較して遅れている。触媒のオペランド計測で成果はある。</p> <p>中性子線：韓国原子力研究所 (KAERI) に中性子源 HANARO を有するが、低強度でオペランド計測に適さない。</p>
	応用研究・開発	△	→	<p>STEM：ハイエンド STEM の導入は着実に行われているが、予算及び人的リソースは中国に劣る。</p> <p>放射光 X 線：触媒対象であっても関連論文に企業からの著者が入っている例は限定的である。</p> <p>中性子線：オペランド計測に適当な高強度の中性子源がなく、顕著な成果は挙がっていない。</p>

(註 1) フェーズ

基礎研究フェーズ：大学・国研などでの基礎研究のレベル

応用研究・開発フェーズ：研究・技術開発（プロトタイプの開発含む）のレベル

(註 2) 現状 ※わが国の現状を基準にした評価ではなく、CRDS の調査・見解による評価である。

◎ 特に顕著な活動・成果が見えている、○ 顕著な活動・成果が見えている

△ 顕著な活動・成果が見えていない、× 活動・成果がほとんど見えていない

(註 3) トレンド

↗：上昇傾向、→：現状維持、↘：下降傾向

## (8) 参考文献

- 1) Yi Jiang et al., "Electron Ptychography of 2D Materials to Deep Sub-ångström Resolution," *Nature* 559, no. 7714 (2018) : 343-349. doi:10.1038/s41586-018-0298-5
- 2) Naoya Shibata et al., "Electric Field Imaging of Single Atoms," *Nature Communications* 8 (2017) . doi:10.1038/ncomms15631
- 3) Naoya Shibata et al., "Direct Visualization of Local Electromagnetic Field Structures by Scanning Transmission Electron Microscopy," *Accounts of Chemical Research* 50, no. 7 (2017) : 1502-1512. doi:10.1021/acs.accounts.7b00123
- 4) Miguel A. Bañares et al., "Raman Spectroscopy during Catalytic Operations with On-line Activity Measurement (operando Spectroscopy) : A Method for Understanding the Active Centres of Cations Supported on Porous Materials," *Journal of Materials Chemistry* 12, no. 11 (2002) : 3337-3342. doi:10.1039/b204494c
- 5) Miguel A. Bañares, "Operando Methodology: Combination of in Situ Spectroscopy and Simultaneous Activity Measurements under Catalytic Reaction Conditions," *Catalysis Today* 100, no. 1-2 (2005) : 71-77. doi:10.1016/j.cattod.2004.12.017
- 6) Nozomu Ishiguro et al., "Operando Time-Resolved X-ray Absorption Fine Structure Study for Surface Events on a Pt3Co/C Cathode Catalyst in a Polymer Electrolyte Fuel Cell during Voltage-Operating Processes," *ACS Catalysis* 2, no. 7 (2012) : 1319-1330. doi:10.1021/cs300228p
- 7) Shogo Kusano et al., "Study of Catalytic Reaction at Electrode-Electrolyte Interfaces by a CV-XAFS Method," *Journal of Electronic Materials* 46, no. 6 (2017) : 3634-3638. doi:10.1007/s11664-016-5259-x
- 8) Daniel Franke, Cy M. Jeffries, and Dmitri I. Svergun. "Machine Learning Methods for X-Ray Scattering Data Analysis from Biomacromolecular Solutions," *Biophysical Journal* 114, no. 11 (2018) : 2485-2492. doi:10.1016/j.bpj.2018.04.018
- 9) Makoto Hirose et al., "Visualization of Heterogeneous Oxygen Storage Behavior in Platinum-Supported Cerium-Zirconium Oxide Three-Way Catalyst Particles by Hard X-ray Spectro-Ptychography," *Angewandte Chemie International Edition* 57, no. 6 (2018) : 1474-1479. doi:10.1002/anie.201710798
- 10) Hao Liu et al., "Intergranular Cracking as a Major Cause of Long-Term Capacity Fading of Layered Cathodes," *Nano Letters* 17, no. 6 (2017) : 3452-3457. doi:10.1021/acs.nanolett.7b00379
- 11) P. Villanueva-Perez, S. Bajt, and H. N. Chapman, "Dose Efficient Compton X-ray Microscopy," *Optica* 5, no. 4 (2018) : 450. doi:10.1364/optica.5.000450
- 12) H. Frielinghaus et al., "New Tools for Grazing Incidence Neutron Scattering Experiments Open Perspectives to Study Nano-scale Tribology Mechanisms," *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 871 (2017): 72-76. doi:10.1016/j.nima.2017.07.064

## 2.5.5 物質・材料シミュレーション

### (1) 研究開発領域の定義

量子力学や統計力学の諸知見を活かし、物質の構造、物性、材料組織、化学反応機構などを高精度に解析・予測する技術の確立を目指す研究開発領域である。原子・電子レベルの現象の解明に加えて、それらがミクロな組織や物性にどのような影響を与えているのか、メゾスコピックレベルの非線形現象がどのようにマクロな特性・反応と関係しているのか等のマルチスケールな解析を行うことによって、諸現象の制御方法を明らかにし、新たな材料の設計指標を提供する。また、極限環境下など実験的手段による解析が難しい場合に、非経験的で予言能力の高いシミュレーション技術が大きな役割を果たすことが期待される。近年、マテリアルズ・インフォマティクスや量子コンピュータへの応用に向けた研究開発が大きな流れになっている。

### (2) キーワード

計算物質探索・材料設計 (コンピュータシミュレーションマテリアルデザイン: CMD)、第一原理電子状態計算、量子化学、分子シミュレーション、(第一原理) 分子動力学法、(量子) モンテカルロ法、フェーズフィールド法、マテリアルズ・インフォマティクス、量子コンピュータ

### (3) 研究開発領域の概要

[本領域の意義]

物質の性質はその電子状態の制御と大きく関わっており、結晶構造自身の自由度に加えて電子状態における軌道自由度、電荷自由度、スピン自由度の4つの自由度を自在かつ同時に操る技術を確立することが、新規機能性物質を開発する上で極めて重要である。また、材料設計・開発におけるキーテクノロジーは“材料組織”の制御にある。材料組織とは、顕微鏡で観察されるメゾスケール (数十 nm ~ 数百 μm) の不均一パターンであり、そのパターンのサイズや形態が機械的・熱的・電氣的・磁氣的特性、そして各種機能の発現に決定的な影響を及ぼす。したがって、メゾスケールの現象をいかに正しく理解して制御するかが、多くの材料開発・設計の現場における最重要項目となっている。

近年の計算機環境の大幅な向上と、計算プログラムの高度化により、計算物質科学、計算生命科学の分野は10年前と比較して格段に進展しており、今や実験結果の解釈ばかりではなく、実験の設計をする段階でのスクリーニング、および、スクリーニングによって得られた構造に対する物性予測に用いられている。特に、その信頼度の向上、および、成功事例の蓄積に伴い、若手の実験家が自分自身で計算機を用いたモデリングを行うようになっており、計算物質科学の専門家と実験研究者の距離は以前にも増して近づいている。したがって、計算物質科学者の目指す研究の方向性は、新規の現象の解析、実験研究者の取り扱うサイズよりもさらに大規模な系、実験研究者が手に負えない複雑な現象をはらむ系、解析に多大なる時間と労力を要する系など、取り扱う問題の複雑化が進んでいる。そのような問題を解決するためには、従来よりも計算機や計算プログラムを高度化する必要があり、計算機分野と物性研究者の間で密な共同研究が数多く進められている。現在、それらを支えているのは、主に多くのプロジェクト型研究、および、科学研究費であり、それらが結実することで計算物質科学の技術基盤がより強固になり、高信頼性の物質・材料シミュレーションへとつながっていくものと考えられる。

## [研究開発の動向]

計算物質科学においては、様々なプログラムが開発され、実際にそれらを用いて数々の応用計算がなされている。以下では個々の分野においてスタンダードに使われるプログラム、およびその分野での特に優れた進展を示す。なお、人名、所属が明記してあるものは、日本の研究者によるものである。

## ●分子系電子状態計算分野

一般的によく用いられているプログラムに Gaussian (有償) があるが、他の有償プログラムとして、Spartan、Jaguar、Q-Chem、molpro、molcas、Aces III、TURBOMOLE、ADF などがある。一方、無償のプログラムとして Gamess、NWChem、Orca、Columbus、Firefly、NTChem (中嶋:理化学研究所)、Smash (石村:分子科学研究所)、Bagle などがある。各々のプログラムには得意とする計算手法、物性計算があることから、どのプログラムを使うのかは、どういった計算を志向するかに依存する。他には、SAC-CI (中辻:量子化学研究協会)、モデル空間量子モンテカルロ法および F12 (天能:神戸大学)、Divide&Conquer (DC) 法、および DC 法と密度汎関数強結合近似 (DFTB) を融合した大規模半経験的分子動力学計算手法 (中井:早稲田大学)、Fragment Molecular Orbital (FMO) 法 (北浦:理化学研究所、望月:立教大学、石川:鹿児島大学)、Matrix Product State (MPS) 波動関数法を用いた密度行列繰り込み群 (DMRG) 法 (柳井:名古屋大、倉重:京都大学) など、理論手法開発における日本の貢献度は大きい。

## ●固体系電子状態計算分野

有償ソフトウェア VASP が最もよく使われているが、他には Wein2K、Siesta、Castep、Crystal14、Phase などよく用いられる。一方で無償のプログラムとして、Quantum Espresso、CPMD、CP2K、exciting、xTAPP (山内:慶応大学、吉本:東京大学)、RSDFT (岩田:Advance Soft)、OPEN-MX (尾崎、東京大学)、R-SPACE (筑波大学)、State (森川、大阪大学)、QMAS (石橋、産業技術総合研究所)、Conquest (宮崎、物質・材料研究機構) などかなり充実している。最近では、実空間密度汎関数法をベースとした電子ダイナミクスの計算手法である Salmon (矢花:筑波大学) を用いた応用計算が注目されている。また、有田・明石 (東京大学) らによって開発されている超伝導に対する密度汎関数手法が高圧下における硫化水素の超伝導状態の解析に貢献したことが記憶に新しい。

## ●分子シミュレーション分野

数々の有償 (Amber, Charmm) や無償 (LAMPSS, Gromacs, NAMD, MODYLAS (岡崎:名古屋大学)、myPrest (中村:大阪大学)、GENESIS (杉田:理化学研究所)、Cafemol (高田:京都大学)、Marble (池口:横浜市立大学)) のソフトウェアの開発が進められている。分子動力学計算 (MD) においては、汎用グラフィカルボード (General purpose graphical processing unit; GPGPU) や Intel Xeon Phi などのメニーコア型演算加速器向けプログラムの開発が進められている。これらの中でも、LAMPSS は無機材料や金属などの固体や表面などの計算によく用いられるようになってきている。

## ●モンテカルロシミュレーション分野

格子系に関しては無償ソフトウェア DSQSS (川島:東京大学) があるが、実装の容易さや特定系に対するカスタマイズの必要性などの観点で考えた場合には定番のソフトウェアは多くない。一方で、ALPS プロジェクト (藤堂:東京大学) などモンテカルロ計算に関する様々な

ライブラリを提供する取り組みもある。また、材料科学においては、結晶成長やアモルファス構造の生成のために、動的モンテカルロ法と第一原理計算を組み合わせた研究手法が開発されるなど、構造が不規則な系に対するアプローチとして、今後も有望な方法であると考えられる。

#### ●統計力学に基づく積分方程式

溶液中の溶質の溶媒和の問題に関しては RISM-SCF や 3D-RISM (吉田:九州大学) などのプログラム開発が行なわれている。また、エネルギー表示法に基づく ERmod (松林:大阪大学) は、従来、MD 計算では時間が非常にかかる溶媒和自由エネルギーの計算を簡便に求められ、しかも、小分子から高分子まで取り扱い可能であり適用範囲は広い。さらに、固体の電子状態計算との融合により、第一原理の電気化学界面シミュレーション法が開発が進められている (大谷:産業技術総合研究所、西原:Advance Soft)。また、Boltzmann 方程式は気体などの問題ばかりでなく、電導体中の電子の運動の解析にも用いられるなど、材料科学分野でスタンダードな手法として定着している。最近ではモンテカルロ法などとの併用により、量子論効果まで含めた電導理論が開発されつつある。

#### ●連続体モデル

Micress、MMSP、OpenPhase、OCTA (土井:北京航空航天大学) などが挙げられる。主に固体などの混晶構造の解析や、ソフトマターの構造転移などの問題に適用されている。特に OCTA はミクロスケールからメゾスケールまで様々な系を取り扱うことができるソフトウェアプラットフォームであり、物質のマルチスケールシミュレーションの草分け的プログラムである。流体力学計算を用いる OpenForm は、化学反応、燃焼、熱伝導、乱流などの化学プロセスが関与する計算分野において、広く用いられるようになってきている。最近の進展として、望月・土井らにより、高分子に対して第一原理計算 (前述、FMO) 法を用いて非経験的にパラメータを決定し、そのデータを連続体モデルと接続する試みがなされており、マルチスケールシミュレーションの高度化がなされている。

#### ●その他

第一原理計算や分子動力学計算を併用する方法として、構造探索問題 (GRRM および AFIR) (前田:北海道大学)、マルチカノニカル分子動力学法 (岡本:名古屋大)、カスケード型分子動力学法 (原田:筑波大) や分子振動・フォノン分散の解析 (分子に対しては Sindo (八木:理化学研究所)、固体に対しては Phonopy (東後:京都大学) や ALAMODE (只野:東京大学)) があげられる。また、励起状態間の遷移を取り扱う surface hopping (SH) 法などの非断熱ダイナミクスに関しても、MCTDH、Newton X、PIMD、CPMD などの無償の汎用ソフトウェアが入手可能であり、様々な電子状態計算ソフトウェアと結合することにより光化学反応の解析などが実行可能である。SH 法に関しては台湾交通大の Zhu らによって開発された方法を用いることで、従来は計算時間のかかっていた非断熱結合定数が不要になるなど、光化学分野のダイナミクスに道がつけられつつある。

### (4) 注目動向

[新展開・技術トピックス]

ここ数年、物質・材料シミュレーション分野におけるマテリアルズ・インフォマティクスへの関心が急激に高まっており、例えば、カナダの A. Aspuru-Guzik、スウェーデンの R. Lindh、スイスの M. Reiher などの量子化学の第一線級の研究者が「The Matter Simulation

(R) evolution」というマテリアルズ・インフォマティクスの将来展望について記載した総説記事を ACS Central Science に寄稿している。マテリアルズ・インフォマティクスにおけるシミュレーションの役割は次の3つに大別される。

- 1) 構造や計算シミュレーション等から得られる物理量を記述子として実験データを機械学習 (深層学習、ランダムフォレスト、ガウス過程等) させることにより、未知化合物の物性や反応性を予測する。
- 2) 与えられた組成や構造に対して、Kohn-Sham 密度汎関数法のエネルギー汎関数を電子密度や構造を記述子として機械学習し、Hohenberg-Kohn 型のモデル関数を構築することで、計算時間的にネックになっていた第一原理計算のコストを削減する。
- 3) 自動有機合成機械と計測データ・計算データを融合し、リアルタイムに機械学習を行うことで、教科書に掲載されているような基本的な有機化学反応をデータセットとして、自動的に未知反応を予測する。

また、もう一つの新しい展開として、量子コンピュータへの応用がある。特に、ここ1～2年の間に50～100量子ビット程度の小中規模の量子コンピュータ (一般に Noisy Intermediate-Scale Quantum computer : NISQ と呼ばれ、ノイズがありスケールしない量子コンピュータ) の恩恵を受けられる問題・用途の探索・発見、そのためのアルゴリズム開発、概念実証が世界的に望まれている中で、NISQ コンピュータで計算するにふさわしいキラーアプリケーション候補の一つとして、量子化学計算に注目が集まっている。NISQ コンピュータで量子化学計算を実行するために完全配置間相互作用法 (FCI 法) に位相推定アルゴリズムや変分量子固有値ソルバーなどを組み合わせた手法開発が進んでいる。

今後も物質・材料シミュレーションを活用したマテリアルズ・インフォマティクスや量子コンピュータの研究がますます盛んになり、実用化に向けて産業界も巻き込むムーブメントとなること予測される。

[注目すべき国内外のプロジェクト]

[日本]

日本における大型プロジェクトとしては、京コンピュータの開発と同時に行われた文部科学省の革新的ハイパフォーマンス・コンピューティング・インフラストラクチャー (HPCI、2011～2016年度) があり、5つの戦略プログラム (分野1「予測する生命科学・医療および創薬基盤」、分野2「新物質・エネルギー創成」、分野3「防災・減災に資する地球変動予測」、分野4「次世代ものづくり」、分野5「物質と宇宙の起源と構造」) から構成されていた。これらの戦略プログラムは、京コンピュータを中心とした HPCI を活用し、画期的な成果の創出、計算科学技術の飛躍的な発展を目指すものであった。

特に本研究開発領域と関係の深い分野2においては、計算材料科学、計算物性物理学、計算化学などが集結し、計算手法開発並びに応用計算をベースとする研究者による数多くの共同研究がなされ、大きな成果が挙げられている。

HPCI 戦略プログラムと重複する形で、ポスト「京」で重点的に取り組むべき社会的・科学的課題に関するアプリケーション開発・研究開発を目的とした文部科学省のポスト「京」開発

事業（フラグシップ 2020 プロジェクト）が 2014 年度から開始されている。ここでは、5つのカテゴリ、9つの重点課題を設定している（下表）。

カテゴリ	重点課題
健康長寿社会の実現	(1) 生体分子システムの機能制御による革新的創薬基盤の構築
	(2) 個別化・予防医療を支援する統合計算生命科学
防災・環境問題	(3) 地震・津波による複合災害の統合的予測システムの構築
	(4) 観測ビッグデータを活用した気象と地球環境の予測の高度化
エネルギー問題	(5) エネルギーの高効率な創出、変換・貯蔵、利用の新規基盤技術の開発
	(6) 革新的クリーンエネルギーシステムの実用化
産業競争力の強化	(7) 次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成
	(8) 近未来型ものづくりを先導する革新的設計・製造プロセスの開発
基礎科学の発展	(9) 宇宙の基本法則と進化の解明

HPCI の戦略プログラムにおける分野 1「予測する生命科学・医療および創薬基盤」が重点課題 (1) と (2) に、分野 2「新物質・エネルギー創成」は重点課題 (5) と (7) に、分野 3「防災・減災に資する地球変動予測」は重点課題 (3) と (4) に、分野 4「次世代ものづくり」は重点課題 (6) と (8) に、分野 5「物質と宇宙の起源と構造」の一部は重点課題 (9) に引き継がれた形となっており、HPCI 戦略プログラムに属していた研究者が、引き続きポスト「京」に向けたプログラム開発と革新的な応用研究に向けて、研究を進めている。

このフラグシップ 2020 プロジェクトの特徴は、計算機やシステム作成段階から、計算科学（計算物性科学）と計算機科学（システム設計、OS・コンパイラ設計など）の間での共同設計（Co-design）が実施され、計算プログラムの最適化と計算機の選定などにおいて、両者が密に議論して設計を行っている点にある。そのため、計算機が完成した際には、速やかにそのアプリケーションが実行できる環境の提供とその維持体制がおかれており、他国には見られない日本独特の研究スタイルが実現している。

2015 年度より JST による支援の下、NIMS に情報統合型物質・材料開発研究拠点（拠点長：伊藤聡）が設立され、また、それと連携する形で戦略的創造研究推進事業のさきがけ「理論・実験・計算科学とデータ科学が連携・融合した先進的マテリアルズインフォマティクスのための基盤技術の構築」および、CREST「実験と理論・計算・データ科学を融合した材料開発の革新」の研究領域が発足し、情報科学の研究手法を物質設計に活用し、データベースの構築や機械学習により新規物質、高性能化のための物質設計指針の導出、自動探索に向けた取り組みを牽引している。特に、さきがけの支援により、化学、物性物理、材料科学の各分野で若手の育成が重点的に行われ、成果が挙がってきており今後の進展が期待できる。また、有機材料を対象としたマテリアルズ・インフォマティクスとしては、NEDO の超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクトが立ち上がり、産業技術総合研究所を中心に化学メーカー企業も参画した産学連携研究が推進されている。

その他、文部科学省の元素戦略プロジェクト＜研究拠点形成型＞（2012～2021 年度）においては、磁石材料（拠点長：広澤哲、NIMS）、触媒・電池材料（拠点長：田中庸裕、京都大学）、電子材料（拠点長：細野秀雄、東京工業大学）、構造材料（拠点長：田中功、京都大学）の各拠点において、様々な実験・計測、および計算・理論研究が有機的に連携した取り組みが精力的になされている。

## [米国]

2011年に発表された「Materials Genome Initiative (MGI)」をきっかけに、米国ではこの期間に物質・材料分野へ5年間で500百万ドルもの巨額な資金が投入され、また、経済界からも物質デザインの分野への積極的投資が行われている。MGIは2016年度で終了したが、4つのセンター(CNGMD、SUNCAT Center、CHiMaD、PRISMS)を中心に、各省の予算で研究開発が継続され、有機結晶構造探索や電子デバイス設計をマテリアルズ・インフォマティクス手法で行った研究などで本分野を世界的に牽引している。また、各国立研究所(オークリッジ、ローレンス・リバモア、アルゴンヌ、DOEなど)においては、超並列計算機の導入(Top10中4基がアメリカに設置)やその代替機の計画が進行しており、エクサフlops級(京コンピュータの100倍の演算性能)の計算機に向けて着々と研究が進行している。それに伴い、計算物質科学分野においてもGPUやIntel Xeon Phiに対するプログラム実装の論文がかなり増えてきており、すでに計算機の本格稼働にむけて研究のシーズが芽生えつつある状況である。

## [欧州]

欧州科学財団(European Science Foundation: ESF)は2009年にMaterials Science and Engineering Expert Committee(MatSEEC)を組織し、欧州各国において物質材料科学分野に集中的な支援を行ってきている。MatSEECでは第4部会(WG4)としてComputational Techniques, Methods and Materials Designが選定されている。一方で、2012年にPartnership for Advanced Computing in Europe(PRACE)が組織され、2020年までの9年間にわたって、計算科学の諸分野への支援がなされる計画である。参加国は25カ国で、特に、計算機システムに関してはBSC(スペイン)、CINECA(イタリア)、GCS(ドイツ)、GENCI(フランス)の各国研究機関が担当する。PRACEでは物質科学における研究動向調査が行われており、当該分野における重点課題として「強相関電子系」、「ソフトマター」、「量子化学」、「光化学(励起状態)」、「第一原理に基づくデバイス設計」、「ナノ構造形成」を挙げ、2020年までの達成目標としている。また、欧州ではIntegrated Computational Materials Engineering expert group(ICMEg)を中心に物質、構造材料、機械などの産業分野における計算科学分野の連携研究も重層的に進められている。

## [アジア諸国]

中国においては、計算物質科学研究に関する論文が格段に増加しており、質の高さでも日本を凌駕している。これは、論文に対しての給与外の金銭的なインセンティブがあることに起因していると考えられ、今後もこの勢いは益々顕著になっていく傾向にあると考えられる。超並列計算機環境も、世界のTop2と3を占めており、応用計算に多くの資源が供給されている。一方、プログラム開発に関してはまだまだ途上であり、計算物質科学分野においては中国発のプログラムは多くはないが、千人計画によって欧米から戻ってきた研究者も増加し、また、欧米でリタイアした研究者を研究室ごと引き抜くなど、大胆な政策を行っており、計算物質科学分野における中国の存在感はますます高まることが予想される。

シンガポールに関しては、国外の研究者にインセンティブを与えることで積極的に誘致し、また、アジアでいち早く大学のグローバル化を進めてきた効果もあり、研究力がここ数年で格段にレベルが上がっている。

韓国、台湾においても当該分野への関心が高まっており、中国やシンガポールと同様に海外

からの研究者の積極的な獲得を通じ、研究レベルの向上を図っている途上にあると考えられる。特に韓国では電気・電子材料に、台湾では基礎研究への投資が多くなされている。

中央アジアにおいては、サウジアラビアが海外の研究者の積極的誘致や計算機環境の向上に勤めており、質の高い論文も出始めている。今後のさらなる発展に期待が持てる。

### (5) 科学技術的課題

近年の計算機環境、計測・分析機器の進展および理論・計算手法の向上により、ナノ、メゾ、マクロといったそれぞれのスケールにおける物質・材料の組織や特性の詳細が明らかになってきている。第一原理に基づく分子シミュレーションや統計力学理論（溶液論、フェイズフィールド法）との融合によって、より高度なマルチスケールモデリング計算手法を開発し、より現実の系に則したナノ構造体における反応や物性の制御がシミュレートできる環境を整えることが重要である。そのためには、物理・化学・材料科学の諸分野の力を結集するだけでなく、数学・化学工学・機械工学などの分野、さらには情報科学技術分野とも融合する必要がある。特に、マテリアルズ・インフォマティクスに関しては、まだまだ米国の技術に遅れをとっている中で、フォロワーとして同じ方向を進むのか、あるいは独自路線を開拓するのかの岐路に立たされている。日本の強みである基礎理論・計算プログラム開発、および材料開発・合成技術の融合を目指した研究体制を構築する必要がある。

計算物質科学の裾野は広がっており、宇宙・惑星科学、地球科学、海洋科学領域などにおける極限環境下での特異な物質・物性に関して、その基礎研究に計算物質科学の研究手法をもっと適用していくべきである。他にも、分子生物学、構造生物学、薬学、医学などの生命科学の諸分野でも計算物質科学との共同研究は可能である。これらの分野においては、従来の研究領域とは異なる条件や要請があり、それらを解決するための手法開発が必要となるであろう。

### (6) その他の課題

計算物質科学の分野における「個々」の日本の研究者の層は非常に厚く、研究の独自性やプログラムの機能も欧米に引けを取らない一方で、研究のフォロワー、および、ユーザーが少ない（シェアが小さい）ことが一番の難点である。現状を打破するためには、個々の研究を一つに束ねる核となる施策と、国際共同研究への支援策が課題である。特に、計算物質科学コミュニティと実験コミュニティとの強固な結びつきを支援する研究プロジェクトを継続することで、実験側のニーズに即した課題解決が可能になると考えられる。

一方で、発想を大きく転換し、海外の主要オープンソースの開発に積極的に参入する、という戦略も取りうる。欧米においては、コード開発のための研究会が頻繁に開催されており、その場に積極的に参加し、パッケージのある部分だけでも我が国が主導権をとることができれば、欧米諸国から日本で研究を行うことを希望する研究者が増えると期待され、それによって日本の計算物質科学分野の底上げが期待される。そもそも海外の主要なオープンソースは多国籍で開発されており、その中に日本が入り込むことは十分に可能である。

そのためには、グローバルで活躍できる人材育成・活用体制の構築が必要である。特にイノベーションの本質は人であることから、グローバルな視点を備えた計算物質科学のエキスパートが、産業の強化・革新、新産業の創出を担う企業において活躍できる場を設けることが政策的にみて極めて肝要であると考えられる。

(7) 国際比較

国・地域	フェーズ	現状	トレンド	各国の状況、評価の際に参考にした根拠など
日本	基礎研究	◎	↑	従来から電子状態計算法の開発が盛んであり、高い独自性を発揮している。特に近年では、京コンピュータ開発に関連して超並列電子状態プログラムの開発でも世界をけん引している。量子化学計算においては反応経路自動探索プログラム GRRM が注目を集め、電子状態計算と化学反応とを結びつける理論開発において世界に先駆けている。一方、GPGPU などの演算加速器へのプログラム対応については諸外国から完全に立ち後れていると言える。機械学習による物質探査を行う、マテリアルズ・インフォマティクスが大きく発展している。
	応用研究・開発	○	↑	国の大型予算プロジェクトに参画する研究者の増加にともない、プロジェクトドリブな応用研究が増えつつある。理論と実験、さらに産官学が合同でチームを作ることが一般的になりつつある。材料系・製薬系のメーカーにおいて、物質・材料シミュレーションの重要性が高く認識され、計算部門を単独で持つ企業や、実験と計算を掛け持ちする研究者や、計算物質科学者の雇用が増えつつある。超超プロジェクトなど、産官連携のプログラムにより、出口を見ずえた応用研究の取り組みがスタートしている。
米国	基礎研究	◎	↑	商用のプログラム、無償プログラムが充実し、新理論の導入やバージョンアップが盛んに進められている。優秀な研究者が世界中から集まり、新しい理論開発が極めて活発である。固体系の第一原理計算に関する新しい計算理論の開発の最前線であり、ソフトウェアはいくつか開発されている。ただし、パッケージ化されたものはあまり見られない。欧州主導の開発に参画している研究者もいる。分子シミュレーション専用計算機 ANTON により様々なタンパク質の機能解析が進められている。マテリアルズ・インフォマティクス分野について、様々な研究がなされており、世界を大きくリードしている。
	応用研究・開発	◎	↑	GPU 化への対応を含めてプログラム開発および公開などが活発である。主に手法開発に取り組んできた研究者が、最近ではエネルギー材料や電子デバイスなどの応用研究も手がけている。物質・材料シミュレーションのソフトウェア開発自身が一つの産業として定着しており、様々な高機能ソフトウェアメーカーが存在する。タミフルの薬剤設計の例に見るように、産業界においてシミュレーション分野の貢献が大きくなっている。材料組織のデータベースの分野で、材料組織の三次元解析ソフトの DREAM.3D が定番ソフトの地位を確立しつつある。
欧州	基礎研究	◎	↑	EU 全体としてのプロジェクトを推進し、活発な研究開発が行われている。計算の高速化や高精度化を目指した電子状態計算ソフトウェアが充実している。反応解析ソフトウェア開発も進んでいる。機械学習による物質探査を行う、マテリアルズ・インフォマティクスが欧米を中心に大きく発展している。
	応用研究・開発	◎	↑	欧州を中心に開発されたソフトウェアは有償で公開されているなど、ソフトウェア開発そのものが産業の一部となっている。特に、分子系および固体系共に電子状態研究やダイナミクスの研究においては、企業内での注目度も高く、将来的に産業に大きく貢献する可能性が高い。状態図分野では、スウェーデン王立工科大で開発した Thermo-Calc が世界のスタンダードとなっている。フェーズフィールド法のソフト開発では、ドイツが大きく先行している。物質・材料シミュレーション分野のソフトウェア開発への注目度は大きい。

中国	基礎研究	○	↑	一般的な中国発の方法論および計算プログラムは、現状はそれほど多くはない。一方、日欧米へ留学していた研究者が本国へ戻り活躍し始めており、今後は方法論およびプログラムの開発力が向上していく可能性がある。 マテリアルズ・インフォマティクス分野の研究も盛んになってきている。
	応用研究・開発	○	↑	海外から呼び戻した研究者を中心に質の高い論文を次々と発表し始めており、今後は応用研究へシフトしていく可能性がある。
韓国	基礎研究	△	→	欧米や日本へ留学して帰国した研究者が引き続き海外で開発しているプログラムへ貢献している程度である。 フェーズフィールド法関連の基礎研究に対する韓国の貢献度は大きい、一部の著名な研究者に限定されている。
	応用研究・開発	△	→	一部の巨大企業を中心に、シミュレーション部門を強化している様子も見受けられ、将来的には産業化へ寄与する可能性が高い。

(註1) フェーズ

基礎研究フェーズ：大学・国研などでの基礎研究のレベル

応用研究・開発フェーズ：研究・技術開発（プロトタイプの開発含む）のレベル

(註2) 現状 ※わが国の現状を基準にした評価ではなく、CRDSの調査・見解による評価である。

◎ 特に顕著な活動・成果が見えている、○ 顕著な活動・成果が見えている

△ 顕著な活動・成果が見えていない、× 活動・成果がほとんど見えていない

(註3) トレンド

↑：上昇傾向、→：現状維持、↓：下降傾向

## (8) 参考文献

- 1) 物質科学シミュレーションのポータルサイト,  
<https://ma.issp.u-tokyo.ac.jp/> (2019年2月12日アクセス)
- 2) 理化学研究所 計算科学研究センター 量子系分子科学研究チーム,  
<https://www.r-ccs.riken.jp/jp/overview/lab/cmsrt.html> (2019年2月12日アクセス)
- 3) Scalable Molecular Analysis Solver for High-performance computing systems (SMASH),  
<http://smash-qc.sourceforge.net> (2019年2月12日アクセス)
- 4) 認定NPO 法人量子化学研究協会研究所,  
<http://www.qcri.or.jp> (2019年2月12日アクセス)
- 5) アドバンスソフト株式会社, <http://www.advancesoft.jp> (2019年2月12日アクセス)
- 6) HPCI 戦略プログラム 分野「予測する生命科学・医療および創薬基盤」ソフトウェア一覧,  
<http://www.scls.riken.jp/scruise/software.html> (2019年2月12日アクセス)
- 7) ALPS プロジェクト,  
[http://alps.comp-phys.org/mediawiki/index.php/Main\\_Page/ja](http://alps.comp-phys.org/mediawiki/index.php/Main_Page/ja) (2019年2月12日アクセス)
- 8) OCTA, [http://octa.jp/index\\_jp.html](http://octa.jp/index_jp.html) (2019年2月12日アクセス)
- 9) NPO 法人量子化学探索研究所, <http://iqce.jp> (2019年2月12日アクセス)
- 10) High performance computer infrastructure (HPCI),  
<http://www.hpci-office.jp> (2019年2月12日アクセス)
- 11) 新エネルギー・産業技術総合開発機構 超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト,  
[https://www.nedo.go.jp/activities/ZZJP\\_100119.html](https://www.nedo.go.jp/activities/ZZJP_100119.html) (2019年2月12日アクセス)
- 12) 科学技術振興機構 さきがけ研究領域「理論・実験・計算科学とデータ科学が連携・融合した先進的マテリアルズインフォマティクスのための基盤技術の構築」,  
[https://www.jst.go.jp/kisoken/presto/research\\_area/ongoing/bunyah27-4.html](https://www.jst.go.jp/kisoken/presto/research_area/ongoing/bunyah27-4.html) (2019

年 2 月 12 日アクセス)

- 13) 科学技術振興機構 CREST 研究領域「実験と理論・計算・データ科学を融合した材料開発の革新」,  
[https://www.jst.go.jp/kisoken/crest/research\\_area/ongoing/bunyah29-3.html](https://www.jst.go.jp/kisoken/crest/research_area/ongoing/bunyah29-3.html) (2019 年 2 月 12 日アクセス)
- 14) "Information Science for Materials Discovery and Design," Springer Series in Materials Science, 2016. doi:10.1007/978-3-319-23871-5 / 『翻訳 マテリアルズインフォマティクス：～探索と設計～』 ((株) エヌ・ティー・エス, 2017) .