

## 2.5.7 複雑系材料の設計・プロセス

### (1) 研究開発領域の定義

材料創製の探索範囲をこれまで扱ってこなかった未開拓の領域まで大きく拡大することで、高性能・高機能化、複数機能の共存、相反する機能の両立などを実現する複雑な組成や構造を有する材料の設計技術とプロセス技術を開発する。材料の多元素化やハイエントロピー化、準安定相などの多種多様な安定相（準安定相も含む広義の意味）の設計、高効率な材料探索実験手法、プロセス中反応過程のオペランド観測、プロセス・インフォマティクス、プロセス制御による熱力学的には不安定な構造の安定化などの研究開発課題がある。

### (2) キーワード

多元素化、ハイエントロピー、ハイエントロピー合金、準安定相、カクテル効果、触媒、ナノ粒子、ハイスループット材料創製、ハイスループット計測、コンビナトリアル、データ科学、機械学習、能動学習、第一原理計算、量子化学計算、数値流体力学、化学気相成長、オペランド計測、マテリアルズ・インフォマティクス、計測インフォマティクス、プロセス・インフォマティクス、マルチスケールシミュレーション、ロボット科学者、多元系化合物半導体、カルコゲナイド、化合物薄膜太陽電池

### (3) 研究開発領域の概要

#### [本領域の意義]

近年、自動運転に代表される快適なモビリティやIoT/AIなどの利用によるSociety 5.0の実現、SDGs (Sustainable Development Goals、持続可能な開発目標)のもと、CO<sub>2</sub>削減に向けた再生可能エネルギーの大量導入や高度なエネルギーマネジメント、製品の製造・使用過程における環境負荷の低減などの様々な社会的要請に応えるべく、材料・デバイスの高性能化・高機能化に対する要求や期待がますます高まってきている。例えば、超軽量素材では高強度かつ高靱性、熱電材料では高電気伝導かつ低熱伝導、といった複数の機能の共存や相反する機能の両立などが、さらなる高性能化とともに要求されるようになってきている。これらの機能材料開発に対する高度な要求に対し、それぞれの応用分野における単純な元素構成、実現容易な安定相（結晶構造）の利用など従来の材料探索範囲での新材料開発は困難になってきている。このため、未知なる可能性を秘めている複雑な組成や未利用安定相の活用など未開拓の材料群へ対象を広げていくことが必要である。また、材料開発競争の激化から、新材料の探索から実際の材料作製に至る材料設計や作製プロセス設計も含めた開発期間の短縮も求められており、応用分野を越えた新材料創製の新たな指針の構築が必要になってきている。このような研究を進めるためには、従来型の専門家の経験や勘に頼った材料探索では、これらの複雑系材料を短時間で探索することは不可能であると考えられ、データ科学を利用した材料設計、プロセス設計、オペランド計測、ハイスループット実験などの新たな研究手法が必要である。また、革新的な複雑系材料開発のためには、原子レベルで物質の結晶構造や局所構造をミクロに設計し作り込むだけでなく、多種多様な安定相を含んだ微細組織や界面などメゾスケールの構造の制御、さらにはバルクの材料（素材）としてのマクロスケールにいたる、階層的な不均一構造について、それらの構造情報や特性の要因を明らかにし、材料設計・プロセス設計へとフィードバックすることが極めて重要となる。

複数機能の共存や相反する機能の両立など、従来の材料にはない高い付加価値を持つ複雑系材料の研究開発は、わが国の産業を支える基盤として、あるいは複雑系材料創製自身がわが国の新しい産業となりうる可能性を秘めており、今後戦略的に推進していくことが重要である。この研究開発領域では、材料探索空間を広げ

るための材料の多元素化やハイエントロピー合金、準安定相の利用、材料作製・評価を効率的に進めるハイスループット実験、作製プロセス中の現象を把握するオペランド計測、適切な製造プロセスを探索するプロセス・インフォマティクス、などを中心に記載する。この領域は、マテリアルズ・インフォマティクス、ナノ・オペランド計測などの技術とも深くかかわってくるが、これらの詳細についてはそれぞれの研究開発領域を参照されたい。

### 【研究開発の動向】

高性能化や相反する機能の両立など材料に対する高度化した要求は、半導体材料、蓄電池、磁石、構造材料、熱電材料、触媒材料などさまざまな分野にあるが、ここでは多元素化の例として多元系太陽電池材料、ハイエントロピー合金の例として触媒材料、準安定相の利用としてパワーエレクトロニクス用のワイドバンドギャップ半導体について研究開発動向を説明する。

多元系材料を利用することで、太陽電池における高効率化・長寿命化・高信頼化、資源制約回避などのさまざまな要求を同時に満たすことができると考えられる。バンドギャップの異なる複数の層を重ねるタンデム型の太陽電池は変換効率向上が大きく期待されている。現在普及している単結晶・多結晶シリコン (Si) との組み合わせを考えると、結晶構造としてIII-V化合物半導体やCIS(CuInSe)系が有望であるが、一方で希少資源を含むため資源問題がある。このため、新たな化合物半導体の研究開発が必要であり、これまで主に検討されてきたカルコゲナイド(硫化物、セレン化物、テルル化物)に加え、近年、CZTS(Cu<sub>2</sub>ZnSnS<sub>4</sub>、Cu<sub>2</sub>ZnSnSe<sub>4</sub>)系材料、CZTSからの派生材料系、新規カルコゲナイド材料、無機ペロブスカイト材料などが研究されている。一例として、CZTS系化合物半導体太陽電池がある。これは日本発の太陽電池であり、CIS系太陽電池のCuInSe<sub>2</sub>の派生構造であるが、InのサイトをZnおよびSnが占有する構造のため、希少金属を利用しない材料系である。ただし、変換効率は最高でも12.6%とCIS系太陽電池に比べてかなり低く、深い準位などの制御も含めた4元系の結晶成長・結晶構造の制御法の確立が望まれる。

5種以上の構成元素がおおむね等しい量において原子レベルで混合したハイエントロピー合金が近年注目を集めている。これは2004年に台湾国立清華大の葉均蔚(Jien-Wei Yeh)教授らによって提案された新しいカテゴリーの合金であり、従来の合金に比べて多種の原子が結晶格子内の原子位置において乱雑に配置されることで(配置のエントロピーが大きい)、機械的特性や高温特性に優れ、良い耐腐食性を示すため、高温ガスタービンやエンジン部品などの高温構造材料等の候補として研究が行われている。ハイエントロピーナノ合金の開発および触媒としての利用は歴史が浅く、2018年Science誌に掲載された米メリーランド大学のLiangbing(Bing)Hu教授らによるCarbothermal shock合成法を用いたものが初めての報告例とみられる。この方法では、PtNiやAuCuといった2元系、PtPdNiやAuCuSnといった3元系、PtPdCoNiFeといった5元系、PtPdCoNiFeCuAuSnの8元系ナノ粒子などが報告されている。合成法やその触媒利用に関する報告はここ2、3年で活発化している。触媒としての利用に関しては、高い熱安定性に着目したものやこれまでPtなどの貴金属が使用されてきた反応に利用したものなど多岐にわたるが、単金属触媒の論文に比べて、そのメカニズムを深く議論しているものや、系統的に組成を変化させた研究は少ない。現在の潮流としては、実験ではハイスループット装置を用いて実験数を増やすこと、第一原理計算などでは単金属の吸着エネルギーをもとに、インフォマティクスを利用した組成最適化のアプローチなどが考案されている。京都大学北川宏らのグループでは白金族6元素全てを含んだ白金族ハイエントロピー合金触媒を簡便な液相還元法で合成し、従来の触媒ではほとんど例のない、12電子反応の電気化学的エタノール完全酸化を達成しており、複雑な高難度反応に対して良い触媒が得られる可能性を示唆している。世界的には米国のグループからハイイン

## 2.5

俯瞰区分と研究開発領域  
物質と機能の設計・制御

パクトな論文がもっとも多く発表されており、次いでドイツなどの欧州、中国が続く形である。

準安定相の利用の例として、パワー半導体用のワイドバンドギャップ半導体の1つである  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  の研究開発動向について記載する。これまではワイドバンドギャップ半導体として  $\text{SiC}$  と  $\text{GaN}$  が主に研究開発されてきたが、さらに大きなバンドギャップを有し基板の作製が容易ということから酸化ガリウム ( $\text{Ga}_2\text{O}_3$ ) が最近注目されるようになってきた。この  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  はさまざまな結晶の形を持っており、コランダム構造 (菱面体晶) の  $\alpha$  型、斜方晶構造の  $\beta$  型、立方晶の  $\gamma$  型、 $\delta$  型、六方晶の  $\varepsilon$  型がある。このなかで最安定相は  $\beta$  型であり、単結晶基板が製品化されており、この上でパワーデバイス開発が世界中で活発に行われている。パワー半導体の詳細については研究開発領域「パワー半導体材料・デバイス」を参照されたい。 $\beta$  型以外の結晶構造は準安定相であり作製が難しいと考えられてきたが、デバイス構造の視点からは他の半導体とのヘテロ構造が作りやすい  $\alpha$  型が注目される。 $\text{Ga}_2\text{O}_3$  とヘテロ構造を作製できる半導体として  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 、 $\text{In}_2\text{O}_3$  が考えられるが、これらの安定相は菱面体晶 ( $\alpha$  型)、斜方晶 ( $\beta$  型)、立方晶 ( $\delta$  型) と、3つとも結晶構造が異なるため、このままの安定相を利用することはできない。しかし、もしコランダム構造 ( $\alpha$  型) の  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  と  $\text{In}_2\text{O}_3$  が実現できれば、全てコランダム構造を持つ混晶系ができ、 $\text{GaN}$  系と同様なバンドギャップのエンジニアリングによって、さまざまなデバイスへの展開が期待される。通常の MOCVD や MBE を用いた結晶成長ではサファイヤ基板上への  $\alpha$  型  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  の形成は困難であるが、ミスト CVD 法により可能となっており、すでにショットキーダイオードなどのデバイスが製品化されている。また、 $p$  型の  $\alpha$ - $\text{Ir}_2\text{O}_3$  (準安定相) と  $n$  型の  $\alpha$ - $\text{Ga}_2\text{O}_3$  とのヘテロ構造の作製などの研究も進められており、新たなデバイス機能の実現をめざしてこのような準安定相を積極的に利用していくことが行われている。

ハイスループット材料合成については、大きな流れとして2つの方向性があげられる。1つは、コンビナトリアル合成手法を用いて、事前に絞り込んだ探索空間に存在する材料をハイスループットで作製し、同時にハイスループットで特性評価を行う方法である。もう1つは、全自動で自律的に新材料を探索していく closed loop 手法であり、「実験計画策定→合成→評価→実験計画策定」のサイクルを研究者が関与することなく行うことを特徴としている。最近ではデータ科学/人工知能技術の進展もあり、この closed loop 手法が注目されるようになってきている。特に複雑系材料探索においては、元素の組み合わせに加え多くのパラメータ (物質設計やプロセス設計など) を同時に最適化する必要があり組み合わせ数が膨大になるため、非常に有用になると考えられる。一例として、リチウムイオン電池の電池寿命を最大化する材料選定、セル製造、プロセスと制御の最適化を考える場合、寿命を評価するための実験が1回あたり数力月から数年かかる。そのため、必要とする実験の数を減らして効率的に探索空間を絞り込むために、ベイズ最適化などの最適化手法が重要となる。多次元探索空間での探索は、人間には想像しづらく、人間の能力を超えてしまうが、コンピュータは数的手法により多次元空間を最適化することが可能である。このため、複雑系材料探索では closed loop 手法は不可欠となり、自律的に動作するロボット技術が極めて重要である。すでに、主に欧州を中心にロボット科学者 (Robot Scientist) と呼ばれる自動材料合成ロボットと特性評価、材料予測とを組み合わせた研究が進展をみせている。しかし、欧米では製薬や有機系に特化しており、機能性材料についてはこれからの発展が期待される。

結晶成長過程の準安定構造や発生する結晶歪をオペランド観察する表面 X 線回折は、これまで有機金属気相成長法 (MOCVD) や分子線エピタキシー法 (MBE) を用いた半導体薄膜や金属薄膜の成長過程の研究で使われることが主流であったが、ここ数年、パルスレーザ堆積法 (PLD) やスパッタ法など成長方法が多様化している。それに伴って材料も強誘電体や有機半導体などにも応用範囲が拡大している。測定方法も、従来の CTR (Crystal Truncation Rods) 散乱や反射率測定から、集光ビームを用いた局所構造解析や X

線光子相関分光法 (XPCS) による表面構造ゆらぎのその場観察にまで発展している。積極的に準安定構造を探索するという立場から、高温高压合成法が注目されている。常圧下では準安定な構造相を、その相が最安定となる高温高压下で合成して急冷し、室温以下の低温で減圧するなどの方法により、常圧相への逆転移を抑制できれば、高压相を準安定状態で回収可能である。ダイヤモンドをはじめとする超硬材料では古くから実績が豊富であり、他の材料系への展開が期待されている。放射光X線を用いると高温高压下のその場X線回折測定が可能であり、反応の進行の様子をその場で観察できるため、高温高压法と放射光その場観察を組み合わせた物質探索研究が精力的に進められている。固相-気相反応により固相が生成するような合成反応は、原理的に高温高压合成法が有利であり、新規酸化物や水素化物、酸水素化物などが実現されている。特に、水素化物分野では新しいクラスの水素化物が多数合成されており、「水素化物ルネッサンス」とも呼べる潮流が生まれている。高温高压合成技術の進歩の一方、その場観察技術に関しては従来の白色X線回折法を利用してきたが、近年、粗大粒観察のための新しい測定手法の開発が求められている。

材料開発におけるプロセス・インフォマティクスは、蓄積したプロセスのデータを活用して目的とする材料作製の適切な製造プロセスを探索する技術であるが、その手法・アプローチは応用・アプリケーションに応じて使用するデータベースの選択によって3つに分類される。1番目は実際の試験や実験、半経験的パラメータを用いた数値流体力学計算 (Computational Fluid Dynamics : CFD) などで得られたデータを使用して製造プロセスの最適化を行うものである。材料開発の事例として、機械学習を活用したSrRuO<sub>3</sub>開発があげられる。ある程度のデータ蓄積・実績のある研究を加速する目的であればこのアプローチは有用である。2番目はマテリアルズ・インフォマティクスの延長で行われているプロセス・インフォマティクスであり、量子論にもとづく第一原理計算 (密度汎関数理論、Density Functional Theory : DFT) を用いて仮想空間において所望の物性を持つマテリアル構造・組成を予測し、得られた知見を現実空間にフィードバックする手法である。未知の材料を開拓する目的であればこのアプローチが必要であるが、第一原理計算により得られる物性値は原則として絶対零度 (0 K) における値であるため、その延長で行われるプロセス・インフォマティクスは現実空間と乖離していることを注意せねばならない。3番目が仮想空間と現実空間を結ぶマルチフィジックスシミュレーションにより得られるデータと機械学習を融合させて、製造プロセスのモデル化・定量予測を行うものである。ここで取り組む材料の多元素化やハイエントロピー化、準安定相などの多種多様な安定相の設計を具現化するには、材料製造プロセスの真のモデル化と定量予測が不可欠であり、このアプローチの進展が期待されている。

#### (4) 注目動向

##### [新展開・技術トピックス]

国際動向として、エネルギー関連材料、構造材料など応用分野を横断した多元素材料やハイエントロピー材料の国際会議が活発化している。例えば、多元素材料の国際会議として、「21st International Conference on Ternary and Multinary Compounds (ICTMC-21)」[September 9-13, 2018 in Boulder, Colorado, USA] が開催されており、応用分野としては太陽光発電、熱電発電、電池、発光体、機能材料、超伝導体にわたり、3元および多元素の化合物に関連するトピックをカバーしている。また、ハイエントロピー合金に関するシンポジウムとして、TMS (The Minerals, Metals & Materials Society) やMRS (Material Research Society) などの定期大会だけでなく、「International Conference on High-Entropy Materials (ICHEM 2018)」[February 19-20, 2018 in Paris, France] など独立した国際会議としても多数開催されている。国内でも複雑系材料の設計・プロセスに関する学会活動が活発に

## 2.5

俯瞰区分と研究開発領域  
物質と機能の設計・制御

なっている。2019年10月の第48回結晶成長国内会議 (JCCG-48) においてシンポジウム「多様な安定相の成長技術と応用」、2020年3月の応用物理学会シンポジウム「多様な安定相のエンジニアリングによる多元系材料の新展開」、2020年9月の応用物理学会シンポジウム「多様な安定相のエンジニアリングの新展開～環境・エネルギーデバイスと材料の未来～」などが開催された。また、2021年3月のThe 8th Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology (CGCT-8) でジョイントセッション「Application of Diverse Stable Phases」が開催予定であり、従来の専門領域の枠を越えたコミュニティ形成が進んでいる。

多元系の太陽電池として近年注目を集めているカルコゲナイドを利用した太陽電池に、3元系のCuSbSe<sub>2</sub>化合物および2元系のSb<sub>2</sub>Se<sub>3</sub>(Sb<sub>2</sub>S<sub>3</sub>)がある。いずれもSbを利用した化合物でありその結晶構造および原子の配列や結合に大きな特徴がある。その結晶構造は直方晶系であり、ClSeとは異なり2種類の配位構造を有する疑似2次元構造をとる。また、孤立電子対を含みダングリングボンドを形成しないため、多結晶薄膜ではしばしば問題となる粒界での再結合低減が期待されている。また、有機基を含まない完全に無機材料からなるペロブスカイト化合物群は、シリコン太陽電池に迫る高い変換効率を持つ有機・無機ペロブスカイト太陽電池の安定性の問題を解決するものとして期待され、研究が活発になっている。代表的な、有機・無機ペロブスカイトのMAPbI<sub>3</sub>のMA基を1族元素で置換したCsPbI<sub>3</sub>では、15.7%の変換効率が報告されている。ただし、この系においても重金属のPbが含まれているため、有機・無機ペロブスカイト系と同様に同族のSnによる置換を進める研究も活発に進められている。

米国で毎年開催されている材料学会のイベントであるMRS fall meetingでは、2019年も2018年に引き続きハイエントロピー合金のセッションが開催されており、その他にも、World Congress on High Entropy Alloys (HEA 2019) (November 17-20, 2019, Seattle, Washington, USA) などがあり、米国や欧州でハイエントロピー合金を中心とした学会が多くなっている。多くはバルクのハイエントロピー合金に関する研究であるが、MRSなどでは数件のハイエントロピーナノ合金とその触媒利用についての講演があった。

Closed loopのハイスループット材料合成に関しては、国内外でロボットを活用した実験システムの構築が進められている。国内では、東京工業大学でTiO<sub>2</sub>薄膜の電気抵抗を全自動で自律的に最小化する無機材料合成実験を行うシステムが構築され、従来の10倍の実験効率化を実証している。カナダのプリティッシュコロンビア大学では、人工知能 (AI) アルゴリズムによって制御されたロボット「Ada」を開発している。導電性フィルム開発を対象として、溶液の混合、フィルムのキャスト、熱処理などの材料合成や、フィルムの導電性テスト、微細構造評価を自動で行い、さらに実験結果の自動解釈と次の合成条件の決定という自律的なサイクルを可能にすることで、以前は9カ月かかっていた材料開発期間を5日間に短縮可能にしている。また、英国のグラスゴー大学では、IoTに用いられる安価な機器を用いて、手頃な価格 (500ドル未満) で化学実験が可能なロボットを開発し、インターネット接続された2台のロボットで複数の化学合成プロセスを共同で行うことが可能にしている。また、リバプール大では、mobile robotic chemist と呼ばれる可搬型で自律的に実験機器間を移動し実験を行うロボットを開発した。実験装置を自動化するのではなく、自由に動くことのできるロボットで研究者・作業者の代わりに務めさせるというモジュール型のアプローチであり、今後の展開が期待される。

先にも述べたが、第一原理計算により得られる物性値は原則として絶対零度 (0 K) における値であるため、その延長で行われるプロセス・インフォマティクス (マテリアル製造プロセスの探索) は現実空間 (実際の実験) と乖離している。この仮想空間と現実空間の乖離を補正するために、例えば、遷移状態理論を用いた化学気相成長 (CVD) のプロセス解析が行われている。しかし、複雑な気相反応を伴うCVDプロセスを遷移

状態理論で網羅的に解析することは困難であるため、2001年に気相の自由エネルギーを考慮した第一原理計算が提案され、近年、その理論が体系化されてきている。その理論を用いてCVDにおける表面反応を第一原理的に議論し、意図しない不純物取込みのプロセス解明もなされている。

作製プロセス中のオペランド計測においては、固体/液体界面の秩序構造や成長表面の局所的なゆらぎの観察などができるようになってきている。これまで、結晶成長条件下での界面の原子配列をその場観察した報告はなかったが、フランスのESRF (European Synchrotron Radiation Facility) のグループは窒化ガリウム (GaN) のバルク成長においてCTR散乱 (X-ray crystal truncation rod scattering) をその場測定し、固体/液体界面で形成される原子の秩序構造を決定することに成功している。また、従来の表面X線回折はミリ～サブミクロンスケールの入射X線を用いることでブラッグ反射やCTR散乱をその場測定し、入射X線の照射領域に対応する結晶成長表面の平均的な構造変化を観測することが主流であったが、入射X線に位相のそろったコヒーレントX線を利用し、X線光子相関分光法 (XPCS) によって結晶成長表面の局所的な構造ゆらぎをその場観察する手法を報告している。高温高压合成法においては、高エネルギー対応の2次元検出器を用いた粗大粒の観察が可能になりつつある。高温高压法による水素吸蔵合金の開発では、最近、アルミニウムと3d遷移金属を組み合わせた合金が水素化物になることが複数発見され、従来は水素化物にはならないと考えられていた金属も水素化物を形成することが分かってきた。

#### 【注目すべき国内外のプロジェクト】

先に述べたように、国内外において、多元化合物やハイエントロピー合金など複雑系材料に関しては応用分野を越えて学会の活動が活発化しているが、複雑系材料の設計・制御による未開拓の材料創製空間への展開といった視点で、複雑系材料の設計、作製プロセス制御、オペランド計測、ハイスループット実験、プロセス・インフォマティクスなどの研究開発を統合的に含むような施策・プロジェクトはまだ存在しない。国内でこの領域に関連するものとしては、ハイエントロピー合金に関する新学術領域研究「ハイエントロピー合金～元素の多様性と不均一性に基づく新しい材料の学理～」が2018年より立ち上がり、ナノ粒子、ナノポーラス材料としての研究が進められている。また、オペランド計測に関しては、新学術領域研究「ハイドロジェノミクス」、「ハイパーマテリアル」等で、計測班といえるものが立ち上がっており、これらのなかで「その場測定」は主要なキーワードになっている。プロセス・インフォマティクスに関しては、文部科学省の「材料の社会実装に向けたプロセスサイエンス構築事業」、「省エネルギー社会の実現に資する次世代半導体研究開発～中核拠点 (主課題c) : インテリジェント・マニュファクチャリング実現のための結晶成長過程コンピュータシミュレーション技術の構築～」、「スーパーコンピュータ「富岳」成果創出加速プログラム～省エネルギー次世代半導体デバイス開発のための量子論マルチシミュレーション～」、新学術領域研究「特異構造の結晶科学 完全性と不完全性の協奏で拓く新機能エレクトロニクス ～計算科学によるヘテロボンドの理論的材料設計～」などにおいて部分的に研究開発が始動している。

新材料創出にかかわる文部科学省の「元素戦略プロジェクト」(2007年～) は産学官連携型、CREST・さきがけ (JST)、研究拠点形成型と発展して継続的に推進され、希少元素代替など多くの成果をあげてきている。一方、本研究領域は未踏材料空間の拡大をめざして、元素の多様な組み合わせや構造、結晶相まで活用していくものであり、元素戦略の発展形とみることもでき、日本の材料技術のさらなる強化に向けて、早期の施策・プロジェクト化が望まれる。なお、米国では、オバマ政権が2011年に発表した「Materials Genome Initiative (MGI)」においてマテリアルズ・インフォマティクスの推進を打ち出し、日本をはじめ世界中でマテリアルズ・インフォマティクスの取り組みが活発になった。このイニシアティブは5年間で終了し、政策上は

後継が顕在化していなかったが、NISTや大学での活動は大変活発で継続されており、米国大統領科学技術諮問会議（PCAST）が2020年6月に発出したレポートにおいて、ポストMGIとして強化すべきことが指摘されており、施策化の動きなどに注意しておく必要がある。

### (5) 科学技術的課題

多元系化合物薄膜太陽電池のような多元素系材料・デバイスの開発においては、性能を支配している要因を科学的に解明し、その知見にもとづき普遍的な開発指針を確立することが望まれるが、その際の重要な技術の1つが熱力学的な相の制御技術であろう。準安定相などの多種多様な安定相の設計と制御を行う指針、および実際にそれらを実現するための作製プロセス技術の創出が必須であり、マテリアルズ・インフォマティクス、プロセス中のオペランド計測、プロセス・インフォマティクス、それらにもとづく高度なプロセス制御技術の開発を進めていくことが不可欠である。

ハイエントロピー合金のナノ粒子化および触媒利用における課題としては、効率的な材料探索であり、インフォマティクスの利用や、新しい理論的な方法論、ハイスループット合成装置の利用などが必要となると考えられる。また、理論的モデルの検証には実際の構造を原子レベルで同定することも必要になると考えられる。しかし、ナノサイズと多元素ということがハードルとなり、電子顕微鏡やX線などを用いた各元素の状態を調べることは困難になると考えられる。これを乗り越えるには、材料開発の方法論だけではなく、微量の原子を正確に同定する技術の開発や検出器の性能向上などハード面での進歩も必須となると考えられる。

新たな準安定相などの新物質探索・創製に有効な高温高压合成においては、高エネルギー対応の2次元検出器を利用した高温高压その場観察技術の開発が重要になる。高温高压水素化合物探索研究は水素貯蔵やイオン伝導、高温超伝導など、インパクトが多方面にわたり、世界的にみても日本の競争力が高い分野であるので、今後も取組を強化すべきである。

複雑系材料の結晶成長プロセスは基本的には反応炉の中で、(1) 気相反応、(2) 表面反応、(3) 固相拡散などの素過程を経て進行する。これまで、個々の素過程に焦点を絞った理論解析は行われているが、それらを統合したマルチフィジックスシミュレーションはまだ完成の域に達していない。すでに要素技術は開発されているので、それらを統合した物理モデル構築が望まれる。また、反応炉内の正確なガス組成分析技術が開発されているので、マルチフィジックスシミュレーションを実装したCFD（Computational Fluid Dynamics）計算との直接比較により物理モデルの妥当性の検証および改良が期待される。これによりプロセス・インフォマティクスのフレームワークを構築し、複雑系材料への応用展開が進むと考えられる。

インフォマティクスとロボットの統合による実験の自動化に加え、コモディティ（汎用）化された計測（放射光実験であればX線回折やXAFSなど）の自動化だけでなく、先端的な計測を自動化するための必要技術について検討し開発する必要がある。物質合成・試料加工・マクロ物性測定（輸送特性、磁気特性など）・ミクロ物性測定（X線構造解析、光電子分光、XAFSなどによる電子状態解析）を一気通貫かつ自動で行うためのclosed loop統合システムの実現や、このようなシステムを用いた新物質・材料開発の加速も重要である。また、物質・材料データベースと材料合成システム、計測システムの統合も重要であり、これまで実験者のノウハウとして暗黙的に取り入れられてきた知見・知識を材料合成、計測に明示的に導入することで、実験を効率化することが可能になると期待される。

### (6) その他の課題

近年、欧米においては、先端的な分光研究者と材料・デバイス研究者の連携が活発化しており、これが関

連分野における欧米の優位性の向上につながっている。一方、これまでの日本国内における放射光計測技術の利用は、計測技術の開発を行っている研究者やその周辺に限定されることが多く、材料・デバイス研究者との密接な協力体制の整備は進んでいない。現場のニーズをくみ取る仕掛けや複眼的なアプローチで議論できる仕掛け（コミュニティの形成）を作り、政策的にもこのような連携を加速することが必要である。また、材料系、情報系の専門性を持つ人材が不足しており、企業側の人材需要に対して大学側の人材供給が追いついていない状況である。複雑系材料の設計・プロセスに関する大型プロジェクトや産学共同研究などを通して材料・情報に専門性を持つ若手・博士人材を育成していくことが必要である。

(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	○	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>・新学術領域研究をはじめ、ハイレントロピー合金という領域が表に出てきてはいるが、その触媒応用は徐々に始まった状況である。</li> <li>・その場観察についてはSPring-8、PF、UVSORなど8つの放射光施設で研究が進められている。</li> <li>・応用物理学会などで多元素化、準安定相、ハイレントロピー合金などに関する複数のシンポジウムが開催され、活動が活発化している。</li> <li>・マテリアルズ・インフォマティクスやハイスループット実験が、基礎研究にはあまり取り入れられていない。</li> </ul>
	応用研究・開発	○	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・触媒への応用に興味を示す企業が散見されるが、実際に表に出てきている状況は少ない。</li> <li>・伝統的に産業界の寄与が強い。計測分野でもSPring-8のFSBL、サンビーム、産業利用BL、豊田BLのほか、あいちシンクロトロン光センター等において産業界の利用がある他、その効率化等において企業の参画が見られる。</li> <li>・ソーラーフロンティアがNEDO事業も活用してCIS系太陽電池開発をしており、1GWスケールの量産に世界で唯一成功している。</li> <li>・主に産業界でマテリアルズ・インフォマティクスやハイスループット実験への期待が大きく、他国と比べても、これらの分野への集中的な人員配置などが行われている。</li> </ul>
米国	基礎研究	◎	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・研究成果がトップジャーナルで確認できる。特殊な方法でも製造法も量産化を狙った技術もあり、もっとも進んでいるといえる。</li> <li>・APS、ALS、NSLSIIなどを中心に計測分野の研究が進められている。米国発の技術は多数あり、Bragg-CDI法のin-operando/in-situへの投入など質の高い研究を継続的に輩出している。</li> <li>・CdTe太陽電池についてはサンショットイニシアチブの下で、基礎研究も含めて研究開発が継続して続けられている。</li> <li>・マテリアルズ・インフォマティクスやハイスループット実験についてはMGIによるアドバンテージが大きい。基礎的な領域の研究に強みがある。ロボット科学者に関する研究はあまり行われていない。</li> </ul>
	応用研究・開発	○	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・主要な研究グループには多数の企業から資金提供があるようで、応用研究も進んでいると見受けられる。</li> <li>・APSやALS、NSLS II等で産業利用プログラムが準備されている。</li> <li>・ファーストソーラー社がCdTeの太陽電池の量産に世界で唯一成功している。</li> <li>・圧倒的なAI技術と組み合わせMI分野で世界をリードしている。</li> </ul>



2.5

俯瞰区分と研究開発領域  
物質と機能の設計・制御

欧州	基礎研究	◎	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>理論をはじめ、触媒としての応用の基礎学理の構築がドイツ、デンマークを中心に進んでいる。</li> <li>ESRF、Diamond、SLSなどを中心に計測分野の研究が進められている。</li> <li>欧州では化合物太陽電池関係の国際会議が数多く開催されている。</li> <li>ロボット科学者による自律的な科学実験や材料探索について英国が圧倒的に強い。</li> </ul>
	応用研究・開発	○	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>米国同様、企業との連携があるように思われる。</li> <li>ESRFのhighlightではセラミック燃料電池や触媒等、エネルギー分野における産業利用例が紹介された。産業利用事業収入(300 M ユーロ)との記述もある (FY2018版)。</li> <li>Horizon 2020においては、CIS系太陽電池およびCZTS太陽電池の研究開発が進められた。とくに、CZTS太陽電池についてはいくつかのプロジェクトが同時に実施され現在にいたっている。</li> <li>材料分野では、産業界が積極的にロボット科学者やマテリアルズ・インフォマティクスを活用する方向性が見えていない。</li> </ul>
中国	基礎研究	○	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>米・欧に次いで、学術論文が多く見られる。トップジャーナルも散見される。</li> <li>SSRFを中心に計測分野の研究が進められおり、エネルギー、高分子分野で成果が見られる。</li> <li>化合物薄膜太陽電池に関してPVSEC、IEEE-PVSC、EU-PVSECなどでも積極的に発表しており、基礎研究の実力も高まっている。</li> <li>マテリアルズ・インフォマティクスについては、非常にさかんに研究が行われており、論文数も圧倒的に多い。中国国内でのAI技術も強い。</li> </ul>
	応用研究・開発	○	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>特別目立った動きは見られないが、米国で最先端の研究を行っているグループは中国系であることを考えると、様々な連携があると予想される。</li> <li>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。</li> <li>シリコン太陽電池はほぼ中国で生産されており、化合物薄膜太陽電池についても生産地の中心という特徴を生かして中国企業が欧米の企業を傘下に入れ、研究開発を加速させている。</li> <li>ロボット技術の進展のスピードが他国を圧倒している。</li> </ul>
韓国	基礎研究	△	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>論文ではほとんど目立った成果は見えていない。</li> <li>PLSにoperandoのプラットフォームとなるビームラインの整備が進められている。</li> <li>近年はCZTS太陽電池についても研究開発が急速に進み世界をリードしている。</li> <li>AI利用 (特に深層学習) に集中している。</li> </ul>
	応用研究・開発	△	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>論文同様目立った成果は見えていない。</li> <li>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。</li> <li>スタートアップ企業も含め化合物薄膜太陽電池そのものを生産する企業は存在しない。</li> <li>基礎研究同様に深層学習に集中している。マテリアルズ・インフォマティクスのベンチャーを立ち上げる動きはある。</li> </ul>

(註1) フェーズ

基礎研究：大学・国研などでの基礎研究の範囲

応用研究・開発：技術開発 (プロトタイプの開発含む) の範囲

(註2) 現状 ※日本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

◎：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

×：特筆すべき活動・成果が見えていない

(註3) トレンド ※ここ1～2年の研究開発水準の変化

↗：上昇傾向、→：現状維持、↘：下降傾向

## 関連する他の研究開発領域

- ・データに基づく問題解決 (システム・情報分野 2.1.6)
- ・パワー半導体材料・デバイス (ナノテク・材料分野 2.1.3)
- ・元素戦略・希少元素代替技術 (ナノテク・材料分野 2.5.2)
- ・マテリアルズ・インフォマティクス (ナノテク・材料分野 2.5.3)
- ・フォノンエンジニアリング (ナノテク・材料分野 2.5.4)
- ・ナノ・オペランド計測技術 (ナノテク・材料分野 2.6.3)

## 参考・引用文献

- 1) J.-W. Yeh et al., "Nanostructured High-Entropy Alloys with Multiple Principal Elements : Novel Alloy Design Concepts and Outcomes", *Advanced Engineering Materials* 6, no. 5 (2004) : 299-303. doi : <https://doi.org/10.1002/adem.200300567>
- 2) Y. Yao et al., "Carbothermal shock synthesis of high-entropy-alloy nanoparticles", *Science* 359, no. 6383 (2018) : 1489-1494. doi : [10.1126/science.aan5412](https://doi.org/10.1126/science.aan5412)
- 3) Yonggang Yao et al., "High-throughput, combinatorial synthesis of multimetallic nanoclusters", *PNAS*, 117, no. 12 (2020) : 6316-6322. doi : <https://doi.org/10.1073/pnas.1903721117>
- 4) Dongshuang Wu et al., "Platinum-Group-Metal High-Entropy-Alloy Nanoparticles", *J. Am. Chem. Soc.* 142, no. 32 (2020) : 13833-13838. doi : [10.1021/jacs.0c04807](https://doi.org/10.1021/jacs.0c04807)
- 5) P. M. Attia et al., "Closed-loop optimization of fast-charging protocols for batteries with machine learning", *Nature* 578 (2020) : 397-402. doi : <https://doi.org/10.1038/s41586-020-1994-5>
- 6) H. Suzuki et al., "Coherent strain evolution at the initial growth stage of AlN on SiC(0001) proved by in-situ synchrotron X-ray diffraction", *Appl. Phys. Express* 13, no. 5 (2020) : 055501. doi : <https://doi.org/10.35848/1882-0786/ab84bf>
- 7) R. Mohtadi and S.I. Orimo, "The renaissance of hydrides as energy materials", *Nat. Rev. Mater.* 2, no. 3 (2017) : 16091. doi : [10.1038/natrevmats.2016.91](https://doi.org/10.1038/natrevmats.2016.91)
- 8) Y. K. Wakabayashi et al., "Machine-learning-assisted thin-film growth : Bayesian optimization in molecular beam epitaxy of SrRuO<sub>3</sub> thin films", *APL Materials* 7 (2019) : 101114. doi : [10.1063/1.5123019](https://doi.org/10.1063/1.5123019)
- 9) S. Kajita et al., "A universal 3d voxel descriptor for solid-state material informatics with deep convolutional neural networks", *Scientific Reports* 7, no. 1 (2017) : 16991. doi : [10.1038/s41598-017-17299-w](https://doi.org/10.1038/s41598-017-17299-w)
- 10) Daisuke Sinohara and Shizuo Fujita, "Heteroepitaxy of Corundum-Structured  $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Thin Films on  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Substrates by Ultrasonic Mist Chemical Vapor Deposition", *Jpn. J. Appl. Phys.* 47, no. 9R (2008) : 7311. doi : <https://doi.org/10.1143/JJAP.47.7311>
- 11) B. P. MacLeod et al., "Self-driving laboratory for accelerated discovery of thin-film materials", *Science Advances* 6, no. 20 (2020) : eaaz8867. doi : [10.1126/sciadv.aaz8867](https://doi.org/10.1126/sciadv.aaz8867)

2.5

俯瞰区分と研究開発領域  
物質と機能の設計・制御

- 12) D. Caramelli et al. “Networking chemical robots for reaction multitasking”, *Nature Commun.* 9, no. 1 (2018) : 3406. doi : 10.1038/s41467-018-05828-8
- 13) *Epitaxial Growth of III-Nitride Compounds : Computational Approach*, T. Matsuoka and Y. Kangawa ed., vol. 269, Springer Series in Materials Science (Switzerland : Springer International Publishing, 2018).
- 14) A. E. F. de Jong et al., “Complex geometric structure of a simple solid-liquid interface : GaN(0001)-Ga”, *Phys. Rev. Lett.* 124 (2020) : 086101. doi : <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.124.08610115>
- 15) G. Ju, D. Xu et al., “Coherent X-ray spectroscopy reveals the persistence of island arrangements during layer-by-layer growth”, *Nat. Phys.* 15, no. 6 (2019) : 589-594. doi : <https://doi.org/10.1038/s41567-019-0448-1>