

## 2.6 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・レーザ加工)、「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」のなか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。

本節では、大規模集積回路 (LSI) の高集積化を実現するためのシリコンの微細加工プロセスに絞り、10 nm 以下のシングルナノメートル領域に向けた最先端技術の現状、および開発課題について述べる。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高度化に関する取り組みに加え、極端紫外線 (EUV) リソグラフィ、ナノインプリント、原子層エッチング (ALE) などのトップダウン技術、原子層堆積 (ALD) やブロックコポリマー (block copolymer) の誘導自己組織化パターンなどを利用したボトムアップ技術などの研究開発が進められている。

積層造形・レーザ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または電子線で溶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。レーザ加工は、金属、セラミックス、ガラス、樹脂、生体などの材料に対し、除去 (切削・切断)、穴開け、曲げ、溶接・接合加工や表面加工、内部・体積加工を施すものである。いずれもデジタル・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、次世代のものづくりにおける重要な加工技術の1つとなってきた。また将来をにらみ、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。

「計測・分析」では、材料やデバイスに対する実使用下での時間分解計測、すなわち機能発現中に刻々と変化する現象の実時間または経時観測により、測定対象のナノスケール構造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る。プローブとして走査プローブ顕微鏡 (SPM)、透過型電子顕微鏡 (TEM)、放射光 X 線、中性子線、レーザなどが利用されている。応用分野の大きなトレンドとしては、二次電池 (特に、Liイオン電池) があげられるが、それ以外にも、「オペランド」という用語が初めて使われた触媒分野、エネルギー変換デバイス (太陽電池、燃料電池など)、生命科学分野 (生きた細胞、生体関連分子など) にまで測定対象が広がってきている。

「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めざす研究領域である。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、統計力学にもとづく積分方程式、連続体モデルなどがある。近年、マテリアルズ・インフォマティクスによる材料探索の高効率化や、量子コンピュータを利用する量子化学計算アルゴリズムの開発が新たな潮流となってきた。ナノテクノロジー・材料分野におけるグローバルな研究開発競争が激化するなか、計算物質科学やデータ科学を駆使したハイスループットな材料開発に大きな期待が寄せられている。

## 2.6.1 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研究開発領域である。現状のArF液浸露光技術と多重露光技術の高度化に加え、EUVリソグラフィ、ナノインプリント、ブロックコポリマー (block copolymer) の誘導自己組織化パターンなどの利用によ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、高アスペクト比パターン形成、原子層堆積・エッチング (ALD・ALE) などの研究開発課題がある。

### (2) キーワード

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、誘導自己組織化、DSA、ブロックコポリマー、多重露光、線幅バラツキ、LWR、ナノインプリント、NIL、モールド、複製テンプレート、ロールtoロール、マルチビーム描画、金属酸化物系レジスト、自由電子レーザー EUV光源、原子層堆積、ALD、原子層エッチング、ALE、選択的原子層堆積、AS-ALD、熱的原子層エッチング、Thermal ALE

### (3) 研究開発領域の概要

#### [本領域の意義]

ICT産業の発展は、CPUやメモリに代表される大規模集積回路 (Large Scale Integration : LSI) の性能向上によって支えられている。この性能向上をけん引する技術が、プロセス技術の高度化、デバイス構造の改変、材料技術の革新を含む微細加工技術である。

微細加工技術の中核を担う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 (Chemical Mechanical Polishing : CMP) などさまざまな技術を取り入れ、波長 193nm のフッ化アルゴン (ArF) エキシマレーザー光による液浸リソグラフィを用いた多重露光技術により、10nm 台の回路パターンを持つ LSI が量産されるにいたった。2019年には、波長 13.5 nmの極端紫外線 (Extreme Ultraviolet : EUV) リソグラフィの量産技術適用も始まった。一方、光リソグラフィのように露光波長による解像度の制限がない、ナノインプリント技術の実用化研究も進められている。ナノインプリントは原版となるモールド (金型) を型押しして数十 nm 単位の 3D パターンを一括加工する技術であり、従来技術と比較して大幅な低コスト化が期待できる。

最先端の半導体プロセス技術では、セルフアライメント化と高アスペクト比化も重要な進化軸となっている。セルフアライメントパターンニングでは超高選択比加工が要求され、原子層エッチング (Atomic Layer Etching : ALE) が有望な候補と目されている。トップダウン技術の先にはボトムアップ技術の登場が期待され、セルフアライメントとセルフアセンブリーを実現できる選択的原子層堆積 (Area-Selective Atomic Layer Deposition : AS-ALD) や、ブロックコポリマー (block copolymer) を用いた誘導自己組織化 (Directed Self-Assembly : DSA) パターン形成が有力候補にあがっている。3D加工を実現するには、アスペクト比に依存しない成膜、加工技術も必要となる。3D NAND型フラッシュメモリやDRAM等では、50超の超高アスペクト比の絶縁膜加工が要求されており、ドライエッチング技術分野で最重要課題の1つとなっている。高アスペクト比化に応じて加工レートや洗浄レートが低下する本質的な課題を解決するため、自己停止プロセスであるALDやALEのニーズが今後高まると予想される。

ビッグデータ処理、自動運転、人工知能 (AI)、IoT などの応用に向けて、今後もさらなる情報処理能力

の向上、低消費電力化がLSIに要求される。自己選択、自己組織化、自己停止など原子・分子レベルの自己制御技術による3D微細加工プロセスは、将来の半導体技術を支える基礎的で重要な研究開発領域である。

## [研究開発の動向]

### • 光リソグラフィ技術

ArF液浸リソグラフィによる多重露光技術では、波長限界より微細なパターン形成を可能にする反面、製造コストの高さが課題となってきた。そこでさらに波長が短いEUV光源を用いたリソグラフィの技術開発が進められ、2019年にはTSMCとSamsungがスマートフォン用16 nm (7 nm世代) ロジックデバイスの量産技術としてEUVリソグラフィの適用を開始した。今後EUVリソグラフィが半導体微細加工技術の主流になると期待される。

EUVリソグラフィ技術の研究開発項目として、①EUVレジスト材料およびプロセス技術開発、②EUVマスクの開発、③EUV光源の開発があげられる。5 nm世代以降の量産展開に向けて、これら3つの項目の研究開発が続けられている。

①レジスト材料に関しては、高解像、高感度、低LWR (line width roughness)、低アウトガスのEUV用レジスト材料が要求される。特に重要な課題が低LWRの実現である。線幅のばらつきにより回路の動作速度がばらつく。周辺回路のクロック周波数は最も遅い動作に合わせる必要があるため、苦勞して微細化しても高速動作を実現できないことになる。LWRの主要因はレジスト材料そのものにあると考えられ、化学増幅系レジストの場合、酸発生材 (photoacid generator : PAG) の不均一分布がLWRの主要因であることが明らかにされている。これまでレジスト構成材の空間的なばらつきを測定する手法がなかったが、近年、軟X線の共鳴散乱法でPAG等の凝集状態を観測できるようになった。この手法はEUV用レジストに限らず、Ar液浸リソグラフィや、後述するナノインプリント用のレジスト材料のLWR低減にも貢献すると期待される。また、さらなる高感度化、高解像度化を可能にするレジスト材料として、金属酸化物系レジストの研究開発が進められている。これは金属錯体を骨格にした2~3 nm程度の粒子サイズを有する材料であり、EUV光に対して大きな吸収断面積を有するHf、Sn、Zr、Zn等の金属が用いられている。金属含有レジストの実用化に向けた課題は保存安定性とプロセス安定性であり、特に大気中の水分に大きく影響されることが問題となっている。

②マスク開発では、レチクル基板洗浄技術、多層膜成膜技術の開発に加えて、マスク欠陥検査・修正技術、並びにペリクル技術の開発が進められている。量産用露光装置では、光学系やマスク表面への炭素堆積を防止するため、真空中に水素ガスが導入される。このため、高強度EUV露光環境下ではマスクの多層膜や吸収体、ペリクル、レジストが水素化されることで、微細パターン形成に大きな影響を及ぼす。こうした実際の露光環境に耐えるマスクの開発が進められている。

③EUV光源については、高スループットを維持するため光源のさらなる高強度化が要求される。また、EUV光源として使用されるレーザープラズマ光源 (Laser Produced Plasma : LPP) はEUV光以外の波長の光 (Out of Band : OoB) も発する。OoBのうち深紫外線 (Deep Ultraviolet : DUUV) は多層膜光学系やマスク表面、マスク吸収体表面で反射され、LWR増大の要因となる。兵庫県立大学では同大学が有するニュースバル放射光施設でOoB光による影響の評価が可能な評価系の開発が進められている。

### • ナノインプリント技術

ナノインプリント技術は実用化研究の段階に進んでいる。特に円筒形のモールドを用いて連続生産を行うロールtoロール機構の研究開発がさかんになり、機能性光学フィルムの製造をはじめ、機能性表面加工、マイクロ流路への適用が進められている。最近ではナノインプリントにより形成したナノパターンの溝部分に毛細管現象を利用して機能性ナノインクを充填する手法も複数の機関で研究されており、この方法で金属パターンも形成できる。

世界のナノインプリント研究の動向は、国際会議 Nanoimprint and Nanoprint Technology (NNT) の発表状況からおおよそ知ることができる。欧州ではマイクロメートルサイズの光学デバイスの製造に力点が置かれ、200～300 mmサイズの大面積モールドによるウェハ一括パターンニング技術の開発が進められている。欧州では各国で研究が進められているが、特にドイツが充実している。Wuppertal大は基礎研究を行っているが、他の多くの機関は応用研究にシフトしている。最近特に存在感を示しているオーストリアのPROFACTOR社では光学デバイス応用の研究が行われている。この他、フランスCEAの研究機関LetiではEVG社の200mmウェハ用装置を用いた大量生産技術の研究が行われ、Schott社は同装置を利用したAR/MR（拡張現実/複合現実）用の光学デバイスの開発を進めている。オランダのPhilips社のSCIL（Surface Conformal Imprint Lithography）の装置の利用も広がっている。

米国と日本では最先端の半導体集積回路製造への応用が進められており、有効エリア30 mm角程度のモールドを用いたステップアンドリピート方式のパターン形成技術の開発が行われている。米国の大学ではプリンストン大、ミシガン大、テキサス大が歴史的に強い。最近ではマサチューセッツ大がロールtoロールに力を入れている。企業ではキヤノンナノテクノロジーズが日本のキヤノンと共同で半導体用のナノインプリントステッパーの開発を続けている。日本では、大日本印刷がキヤノンのナノインプリントステッパー用のモールドを開発し、キオクシアが四日市工場でNAND型フラッシュメモリの製造プロセスへの導入を始めている。大学では大阪府立大、東北大の発表が多い。また、産業技術総合研究所とエリオニクスが大面積モールド用の超高速電子ビーム描画装置の開発を進めている。

中国は国際会議での発表件数は多くないが、2018年からナノインプリント技術の研究開発がブームを迎えており、2019年には論文発表件数で世界トップに躍り出た。香港大学、南方科技大学、天津大学、中国科学院、大連理工大学、南京大学、廈門大学などから多くの発表がなされている。韓国からの2019年の論文発表件数は中国、日本、米国に次ぐ数であり、韓国機械技術研究院（Korea Institute of Machinery and Materials and Technology：KIMM）、Korea大を中心に研究開発が続けられている。SK Hynixは2016年から2018年にかけて東芝メモリと共同で多くの発表を行っていたが、2019年以降は発表が途絶えた。研究開発フェーズが変化したものと思われる。

#### • 原子層堆積（ALD）・原子層エッチング（ALE）技術

ALD技術の産業応用は、先端CMOSデバイスへの高誘電率（High-k）ゲート絶縁膜の導入を契機に劇的に活発化した。2007年にALD技術が量産技術に採用されたのち、2009年頃からプラズマALDによるSiO<sub>2</sub>の成膜技術が報告されるようになった。これがArF液浸リソグラフィの自己整合ダブルパターンニング（Self-Aligned Double Patterning：SADP）のスペーサーとして検討され始めた。SADP技術は2010年代の後半からフラッシュメモリやDRAM等の微細パターンニングに用いられ始め、現在では、SADPを2回繰り返すことで密度をさらに倍増するSelf-Aligned Quadruple Patterning（SAQP）も実用化されている。

ALE技術の量産展開も2010年代後半より活発化し、ロジックデバイスのSAC（Self-Aligned Contact）工程から使用され始めた。従来のドライエッチングではSiO<sub>2</sub>加工時の対SiN選択比が不十分だったが、ALE技術であればより高い選択比の加工が実現できる。ALE最大の課題は処理時間の長さである。そのためコストが重視されるメモリデバイスでは採用が見送られている。一方、最先端のロジックデバイスでは数nmの制御が要求されるため、今後ALE技術の適用が拡大すると考えられる。近年では、熱的原子層エッチング（Thermal ALE）技術の開発が日立ハイテク社を中心に活発化しており、最先端の3D FinFETの製造等に用いられつつある。

#### • 誘導自己組織化（DSA）技術

ブロックコポリマーを用いたDSA技術に関しては、欠陥低減が最大の課題である。また、さらなる高解像

度化に向けて、相互作用パラメータ ( $\chi$ ) の大きな高 $\chi$ 材料の開発も重要である。実用化に向けた技術課題として、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あげられる。

#### (4) 注目動向

##### [新展開・技術トピックス]

EUVリソグラフィ技術の量産適用がもっとも進んでいるのは台湾TSMCとみられる。TSMCは2020年より5 nm世代プロセスを用いた本格量産を開始し、このプロセスで製造されたチップを搭載した最新端末がAppleより販売された。TSMCは2022年には4 nm世代プロセスの量産を始める計画を発表している。

EUVリソグラフィでは、LWRおよびStochastic欠陥の低減が特に注目されている。実際、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。これがStochastic欠陥であり、何が原因でどう対処すべきか大きな議論となっている。EUV光の入射光子のゆらぎ、すなわちショットノイズが原因とみられていたが、2019年の2月に開催されたSPIE Advanced Lithographyの国際会議で、レジスト材料そのものに原因があるとの見解が示された。現在、レジスト構成材の空間的なばらつきを測定し低減をめざす研究が進められている。

ロールtoロールのナノインプリント技術に関する最近の報告は、毎分何mでロールを流せるか、毎分何m<sup>2</sup>の製造が可能かなど、高い生産性を競う報告が多くなっており、製造と直結する水準に達していることを伺わせる。ステップアンドリピート方式のナノインプリント技術に関しては、キヤノンナノインプリントステッパーの性能が年々着実に向上しており、半導体デバイス生産が間近に迫っている。モールド作製では、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高速に描画できるようになった。最近、200 mmウェハを1日で描画できる、ポイントビームの低コストの超高スループット電子ビーム描画装置が開発され、電子ビームによるウェハ寸法のモールドへのナノパターン作製の道が開けた。ウェハー括のナノインプリント装置もすでに販売されている。大量生産に向けて完全自動化された300 mm用UVナノインプリントリソグラフィ装置がEVG社より販売され、AR/MRウェアラブルディスプレイ用導波路の製造に用いられている。AR/MR用デバイスはナノインプリントのキラーアプリケーションになると考えられる。

ALD/ALEを用いたセルフアライメントパターンニングに関して、現在、特に活発に研究されているのがArea-selective ALD (AS-ALD) 技術である。選択成長技術は以前より検討がなされているが、AS-ALDも同様に、成長の選択性に最大の課題があり、まだ半導体デバイス製造には用いられていない。特に膜の成長を決定付ける材料表面の高精度制御に関する研究が重要となる。

##### [注目すべき国内外のプロジェクト]

EUVリソグラフィ技術の開発に関して、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) で進められている。また、Intel、Samsung、TSMC、Inpriaが出資し、ローレンスバークレイ国立研究所内に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 (Electron Beam) 露光技術の開発を精力的に進めている。IMECには日本、韓国、米国から多くの半導体プロセス技術者が出向し、量産型露光装置NXE-3400Bを導入して応用研究が進められている。

国内ではEIDEC (Evolving Nano-process Infrastructure Development Center) を中心とするプロジェクトが2015年に終了して以来、進行中の国家プロジェクトはない。兵庫県立大学ではEUVリソグラフィの基

盤技術開発を目的とし、企業との共同研究の形で実質的なコンソーシアムが形成されている。光学系、レジスト、マスクにわたって、EUVリソグラフィ技術の基礎から応用まで幅広い研究開発が進められている。兵庫県立大学高度産業科学技術研究所が有するニュースバル放射光施設は、国内で大学が保有する最大の放射光施設であり、2000年の供用開始以来、多くのEUVリソグラフィ用基盤技術の研究開発が進められてきた。EUVレジストの研究では、大面積による解像度評価、EUV干渉露光系による10 nm級のパターン形成・評価、アウトガス評価、新規EUVレジスト開発、軟X線吸収分光によるレジストの反応解析、並びにレジストの透過率測定系の開発を進めてきた。EUVマスクの研究では、視野EUV顕微鏡およびEUVコヒーレントスキャトロメトリ顕微鏡による欠陥検査の開発を進めてきた。さらに、LPP方式のEUV光源パワーの向上を目的に、新たに開発した大型反射率系によるEUV光源用大型ミラーの反射率評価を進めている。兵庫県立大学以外では、QST、大阪大学、関西大学でEUVレジストの研究開発が行われている。

ナノインプリント技術に関しては、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) が進められた。またJST戦略的国際共同研究プログラム (SICORP) 「日本-ドイツ国際産学連携共同研究」(オプティクス・フォトンクス) 「プラズモニク金属ナノ構造を用いた高感度・高機能性SERS/LSPRバイオセンサーの開発」でナノインプリント技術が用いられている。

ALD/ALEに関しては、米国や欧州では国家プロジェクト等はない。韓国では半導体産業寄りの研究体制が敷かれている。産業界では、ベルギーのIMECがコンソーシアムとして業界内での存在感を示しており、特にAS-ALDの分野で活発に对外発表がなされている。

## (5) 科学技術的課題

半導体デバイスプロセスの国際会議であるInternational Electron Devices Meeting (IEDM) 2019では、1.5 nmノードの半導体デバイスの量産が2028年頃に予定されており、今後のさらなる微細加工技術の進展を期待する報告がTSMCやIntel等からあった。今後さらに微細化を進めていくための課題として、EUVリソグラフィをはじめ他のリソグラフィに共通してあげられるのがLWRの低減であり、上記(4)で列挙した研究開発項目に今後も取り組む必要がある。また、解像性能向上にはレジストのパターン倒れの抑制が必須である。基板との密着性の向上でパターン倒れを抑制する試みがあるが、抜本的な解決にはいたっていない。軟X線共鳴散乱法を用いて薄膜の単層レジストの膜構造を評価すると内部で層分離が起きていることが報告されており、まずはレジスト材料の層構造を明らかにする必要がある。また、従来のスピコート法に代わる可能性を有する、CVDやALDによる新しいレジスト成膜法を検討する必要もある。従来のウェット現像に代わってドライ現像プロセスも視野に入れた研究開発が求められる。また、EUV光源のさらなる高出力化に向けて、自由電子レーザー (FEL) 光を用いた光源の開発も重要である。この方式であればkW級の高出力化が期待できる。ただし、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、SACLA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。

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ため、この充填機構の解明が必要となる。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ため、充填に時間がかかり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と、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依然として改善の余

地がある。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、離型は常に課題となっている。ウェハー括でのモールド作製技術に関しては、50～500 nm程度の寸法のパターンを自在に加工する技術が全く未開の状態にあったが、最近開発された低コストの超高スループット電子ビーム描画装置により低コストでウェハー括用モールドがようやく作製できるようになり、新たな展開が期待できる。この領域に早く手をつけるべきである。ただし、一般のリソグラフィとは異なり、パターン配置精度がパターン寸法に劣ってもよい新発想の利用形態を考えていく必要がある。

ALD/ALEに関しては、処理時間の長さが最大の課題である。現在、量産技術では原子層レベルの理想的なALD/ALEはほとんど使用されていないが、デバイス寸法が10nm以下になると、理想的なALD/ALEの実用化が必要となる。ALD技術における近年最大のトピックスはAS-ALDである。選択成長技術はCVD等で長年研究されてきたが、完全な選択性が得られず量産化にいたらなかった。選択成長は、成長領域と非成長領域でのインキュベーション時間の差を利用したサイクル時間制御によって行われているが、表面状態に大きく左右されるため、成長プロセス途中の表面状態の把握と制御が重要な課題となる。近年、ALD単体での選択成長の困難さから、表面機能化（Surface functionalization）と選択エッチングの組み合わせで選択成長を行う研究開発が活発化している。選択エッチングとは成膜とエッチングをサイクリックに繰り返す手法であり、堆積させたくない場所に成膜してしまった残渣（欠陥）をエッチングで除去しながら成膜プロセスを行う。表面機能化に関しては自己組織化膜（Self-Assembled Monolayers：SAMs）でALD成長を不活性化させる手法が目ざされている。SAMは通常ウェット処理で成膜され、ALD成長を阻害する役割を果たす。SAM上にも部分的に成膜してしまう場合もあるが、SAMを除去する際にこの不要な膜も除去できる。AS-ALDの1つの課題は、マッシュルーム成長と呼ばれる、等方的な成長に起因した寸法の拡大である。等方成長はALDの基本原則であり根本的な解決策はないが、プラズマALD技術やエッチングとの組み合わせで、この問題を解決できないか検討されている。ALE技術に関する課題として、吸着ガスの探索、表面機能化による高選択比加工、ALEサイクルごとの表面状態や自己制御プロセスの再現性と安定性の向上、プラズマダメージの抑制などがあげられる。現在、吸着ガスには従来のエッチング用ガスを元にしたガス系が用いられており、ALEに特化したガス系の探索が求められる。またALD同様、表面状態の差によって高選択比加工を実現していることから、極めて高い精度で材料表面を制御する技術が要求される。さらに、完全な自己制御プロセスが難しく、サイクルごとの表面状態の安定性の確保、装置内壁の状態の変化に起因する再現性低下の抑制も重要な課題である。Thermal ALEもALD同様、原理的に等方性加工となる課題がある。そこでプラズマプロセスで異方的に変質層を形成し、変質層のみをThermal ALEで除去して異方性加工を行う新しい試みが提案されている。

ALD/ALE技術では、材料ごとに最適なガスケミストリーや表面処理が異なるため、材料とプロセスのデータベース化が強く求められている。また脱離物の分子量が大きいので、脱離中に分解し、加工速度が安定しない課題がある。分解反応を抑制する目的で添加するガス（Stabilizer）の検討も必要である。Thermal ALEは最新の研究分野であり、今後大いに発展する可能性を秘めている。

## (6) その他の課題

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なかで、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。日本の半導体サプライヤーは高い技術を持ちながら、その多くは生産に莫大な設備投資がかかる自社での生産をやめ、設計をしたものをファウンドリに製造委託している。しかし海外への製造委託により重要な設計思想やデータも委託先に開示されることになり、知的財産保護の観点から好ましい状

況とはいええない。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。

ALD/ALEの分野は、極めて近い研究開発分野であるにもかかわらず、国内を見渡すと両分野の連携が極めて乏しい。国内で目立った大型プロジェクトもなく、デバイスメーカー、装置メーカー、大学がそれぞれ独自に検討している状況である。ボトムアッププロセスが中心的な役割を果たす微細加工プロセス技術の新時代に向けて、国内での包括的なプロジェクトの発足が望まれる。

半導体分野を志す学生の減少も大きな問題である。大学の学生も参加できる産学連携のスキームを構築することが、わが国における先端技術の持続的発展と人材育成の観点から重要と考えられる。

(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	○	↘	<ul style="list-style-type: none"> <li>・EUVリソグラフィの基礎研究では兵庫県立大学で光学系、レジスト、マスク等の基盤技術開発の基礎研究が精力的に進められている。</li> <li>・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。</li> <li>・ALD技術は東大、芝浦工大で研究が行われているが、日本の存在感は低下傾向である。ALE技術は、名古屋大、大阪大が、国内の研究拠点となっており、精力的に研究を行っている。</li> </ul>
	応用研究・開発	◎	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・EUV用光源開発ではGigaphotonが、EUVマスク欠陥検査装置開発ではレーザーテックが精力的に進めている。また、三井化学と信越化学工業がペリクルの開発を進めている。</li> <li>・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。ナノインプリント技術については、東芝メモリ、キヤノン、大日本印刷がNANDフラッシュメモリの生産に向けて精力的に研究開発を行っている。</li> <li>・ALDでは、東京エレクトロン、日立国際電気が、High-k等を含む金属材料の熱ALD技術で世界的なシェアを有する。ALEでは、東京エレクトロンが異方性ALE（絶縁膜）の量産適用を世界に先駆けて実現。日立ハイテクも、等方的なThermal ALE技術のデバイス適応を世界に先駆けて検討中。デバイスメーカーでは、ソニーが低ダメージを目的とした研究発表を行っている。</li> </ul>
米国	基礎研究	◎	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・EUVリソグラフィに関しては無機材料を中心としたレジスト材料の開発と、そのメカニズム解析が、材料メーカーだけでなく、大学や研究機関によって積極的に進められている。</li> <li>・ナノインプリント技術は、プリンストン大、ミシガン大、テキサス大、マサチューセッツ大で精力的に研究されている。</li> <li>・AS-ALDおよびThermal ALEについて、コロラド大やスタンフォード大などが先駆的な発表を継続的に発表している。LAM Research社、Intel社等との連携も見られる。</li> </ul>
	応用研究・開発	◎	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・EUVリソグラフィの実用化が着実に進んでいる。</li> <li>・ナノインプリント技術についてはキヤノンナノテクノロジーズが引き続き米国を拠点として精力的に研究開発を進めている。ロールtoロールの研究もある。</li> <li>・Intel社の先端ロジックデバイスではALEやThermal ALE技術がFin FETの製造で用いられている。Thermal ALEは日立ハイテクの技術である。またLAM Research社の絶縁膜系のALEもコンタクト加工で用いられている。</li> </ul>

欧州	基礎研究	○	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ EUVリソグラフィについては、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。</li> <li>・ ナノインプリント技術は Wuppertal 大、PSI、Leti など研究しているが、NaPaNIL の後は大きなプロジェクトは走っていない。</li> <li>・ ALD/ALE についてはアイントホーヘン工科大で進んだ研究開発が行われており、大学研究の中心的な役割を担っている。</li> </ul>
	応用研究・開発	◎	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ ベルギーの IMEC における微細加工技術、オランダの ASM/ASML での装置開発が、半導体の微細化技術の中心として君臨している。EUV リソグラフィ、マルチビーム型描画装置や検査装置、ALD、ALE など、積極的に研究開発を進めている。</li> <li>・ ナノインプリントについては EVG および Leti がウェハ一括ナノインプリントの実用化に力を入れている。</li> <li>・ 英国の Oxford Instruments 社は、研究用途の ALD 装置を多く製造し、幅広く使用されている。</li> </ul>
中国	基礎研究	△	→	欧米や日本を追う状況に変わりはないが、大学からの研究発表がみられるようになり、近い将来、研究者や研究費の増加で基礎研究が活発化していく可能性がある。
	応用研究・開発	○	↗	各種加工技術関連装置開発、プロセス技術開発、材料開発が積極的に進められており、発表文献数にも伸びがみられる。
韓国	基礎研究	△	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・ EUVリソグラフィ技術に関しては、Hanyan 大学で EUV 用ペリクル膜の研究が進められているが、基礎研究のレベルはそれほど高くない。</li> <li>・ ナノインプリント技術では KIMM と Korea 大が基礎研究を行っている。ALD 技術については研究機関や大学で極めて活発に研究開発が行われており、国際学会発表件数も非常に多い。</li> </ul>
	応用研究・開発	◎	→	Samsung が微細加工技術の最先端技術をリードしている。ALE 技術については東京エレクトロン社、LAM Research 社の技術を用いているとみられる。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。
台湾	基礎研究	○	→	リソグラフィ技術の先端的研究の一部は台湾放射光施設で進められているが、活発に進められている状況ではない。ALD 関連の学会発表件数は比較的多い国に分類される。
	応用研究・開発	◎	→	TSMC 社は世界のファウンドリのトップ企業であり、半導体製造の量産技術で微細化のトレンドを牽引している。ALE 技術については東京エレクトロン社、LAM Research 社の技術を用いていると予想される。

(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

- ・パワー半導体材料・デバイス (ナノテク・材料分野 2.1.3)
- ・新機能ナノエレクトロニクスデバイス (ナノテク・材料分野 2.3.1)
- ・集積フォトニクス (ナノテク・材料分野 2.3.2)

## 参考・引用文献

- 1) Alberto Pirati et al., "The Future of EUV Lithography : Enabling Moore's Law in the next Decade", *Proceedings of SPIE* 10143, In Extreme Ultraviolet Lithography 8 (2017) : 101430G. doi : 10.1117/12.2261079
- 2) Yannick Vesters et al, "Sensitizers in EUV Chemically Amplified Resist : Mechanism of sensitivity improvement", *Proceedings of SPIE* 10583, In Extreme Ultraviolet Lithography 9 (2018) : 1058307. doi : 10.1117/12.2297627
- 3) Christopher K. Ober et al, "EUV Photolithography : resist progress and challenges", *Proceedings of SPIE* 10583, In Extreme Ultraviolet Lithography 9 (2018) : 1058306. doi : 10.1117/12.2302759
- 4) C. Popescu et al, "Sensitivity Enhancement of the high-resolution xMT multi-trigger resist for EUV lithography", *Proceedings of SPIE* 10143, In Extreme Ultraviolet Lithography 8 (2017) : 101430V. doi : 10.1117/12.2258098
- 5) 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. 4 (2017) : 041009. doi : 10.1117/1.JMM.16.4.041009
- 6) Takeo Watanabe and Tetsuo Harada, "EUVL Research Activity at Center for EUV Lithography", *J. Photopolym. Sci. Technol.* 29, no. 5 (2016) : 737-744. doi : 10.2494/photopolymer.29.737
- 7) Keisuke Tsuda, Tetsuo Harada and Takeo Watanabe, "Development of an EUV and OoB Reflectometer at NewSUBARU Synchrotron Light Facility", *Proceedings of SPIE* 11148, In Photomask Technology 2019 (2019) : 111481N. doi : 10.1117/12.2540815
- 8) Jun Tanaka et al., "Resonant Soft X-ray Scattering for the Stochastic Origin Analysis in EUV Resist", *J. Photopolym. Sci. Technol.* 32, no. 2 (2019) : 327-331. doi : 10.2494/photopolymer.32.327
- 9) The 18th International Conference on Nanoimprint and Nanoprint Technologies, "2019 Agenda", NNT2019, <https://nnt2019.org/#agenda> (2021年1月20日アクセス).
- 10) Hirotaka Tsuda et al., "Process control technology for nanoimprint lithography", *Proceedings of SPIE* 10584, In Novel Patterning Technologies 2018 (2018) : 105841D. doi : 10.1117/12.2297332
- 11) M. Mühlberger et al., "Multilayer Multimaterial Nanoimprinting combined with Inkjet Printing", Nanoimprint and Nanoprint Technologies 2019, [https://nnt2019.org/documents/uploads/M.\\_Muehlberger\\_A.\\_R.\\_Moharana\\_H.\\_Ausserhuber\\_S.\\_Kopp\\_T.\\_Mitteramskogler\\_](https://nnt2019.org/documents/uploads/M._Muehlberger_A._R._Moharana_H._Ausserhuber_S._Kopp_T._Mitteramskogler_)

D\_Fechtig~NNT2019\_Abstract\_mmuehl.pdf (2021年1月20日アクセス).

- 12) Marc A. Verschuuren, Korneel Ridderbeek and Rob Voorkamp, "Substrate conformal imprint lithography : functional resists, overlay performance, and volume production results", *Proceedings of SPIE* 10958, In Novel Patterning Technologies for Semiconductors, MEMS/ NEMS, and MOEMS 2019 (2019) : 109580D. doi : 10.1117/12.2514757
- 13) 尹成圓 他「超高速電子ビーム描画装置及び高精度ナノインプリント技術の開発」『2019年度精密工学秋季大会』(2019) : 214-215. doi : 10.11522/pscjspe.2019A.0\_214
- 14) 応用物理学会・ナノインプリント技術研究会『ナノインプリント技術ハンドブック』(東京: オーム社, 2019), <https://www.ohmsha.co.jp/book/9784274224485/>.
- 15) K. J. Kanarik et al., "Overview of atomic layer etching in the semiconductor industry", *J. Vac. Sci. Technol. A* 33, no. 2 (2015) : 020802. doi : 10.1116/1.4913379
- 16) K. J. Kanarik, S. Tan and R. A. Gottscho, "Atomic Layer Etching: Rethinking the Art of Etch", *J. Phys. Chem. Lett.* 9, no. 16 (2018) : 4814-4821. doi : 10.1021/acs.jpcclett.8b00997
- 17) R. W. Johnson, A. Hultqvist and S. F. Bent, "A brief review of atomic layer deposition : from fundamentals to applications", *Materials today* 17, no. 5 (2014) : 236-246. doi : 10.1016/j.mattod.2014.04.026
- 18) H. C. M. Knoop et al., "Status and prospects of plasma-assisted atomic layer deposition", *J. Vac. Sci. Technol. A* 37, no. 3 (2019) : 030902. doi : 10.1116/1.5088582
- 19) M. Honda et al., "Benefits of atomic-level processing by quasi-ALE and ALD technique", *J. Phys. D : Appl. Phys.* 50, no. 23 (2017) : 234002. doi : 10.1088/1361-6463/aa6f27
- 20) K. Shinoda et al., "Thermal Cyclic Atomic-Level Etching of Nitride Films : A Novel Way for Atomic-Scale Nanofabrication", *ECS Trans.* 80, no. 3 (2017). doi : 10.1149/08003.0003ecst
- 21) A. Hirata et al., "Mechanism of SiN etching rate fluctuation in atomic layer etching", *J. Vac. Sci. Technol. A* 38, no. 6 (2020) : 0602601. doi : 10.1116/6.0000257
- 22) Y. Lee, C. Huffman and S. M. George, "Selectivity in Thermal Atomic Layer Etching Using Sequential, Self-Limiting Fluorination and Ligand-Exchange Reactions", *Chem. Mater.* 28, no. 21 (2016) : 7657-7665. doi : 10.1021/acs.chemmater.6b02543
- 23) X. Sang, E. Chen and J. P. Chan, "Patterning nickel for extreme ultraviolet lithography mask application I. Atomic layer etch processing", *J. Vac. Sci. Technol. A* 38, no. 4 (2020) : 042603. doi : 10.1116/6.0000190
- 24) X. Sang et al., "Patterning nickel for extreme ultraviolet lithography mask application. II. Hybrid reactive ion etch and atomic layer etch processing", *J. Vac. Sci. Technol. A* 38, no. 4 (2020) : 042604. doi : 10.1116/6.0000191
- 25) R. J. Gasvoda et al., "Surface prefunctionalization of SiO<sub>2</sub> to modify the etch per cycle during plasma-assisted atomic layer etching", *J. Vac. Sci. Technol. A* 37 (2019) : 051003. doi : 10.1116/1.5110907

## 2.6.2 積層造形・レーザ加工

### (1) 研究開発領域の定義

近年、重要性を増している多品種少量生産やカスタムメイド生産の高効率化、製品の高付加価値化をめざす技術を研究開発の対象とする領域である。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製作する技術であり、3Dプリンティングとも呼ばれる。最近ファイバーレーザなどの近赤外域レーザの普及により、レーザ方式の積層造形も広がりを見せている。一方レーザ加工は、金属、セラミックス、半導体、ガラス、樹脂、生体などのさまざまな材料に対し、除去（切削・切断、穴あけ）、塑性（曲げ）加工、接合加工や表面加工（改質、パターン化、マイクロ・ナノ構造化）、内部・体積加工を施すものである。短パルスレーザによる非熱的加工は、仕上がり精度が高いという利点があり、産業利用がさかんになってきている。

### (2) キーワード

3Dプリンティング、粉末床溶融結合、指向性エネルギー堆積、結合剤噴射、材料押出、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、半導体レーザ、切断加工（切削加工）、接合加工、純銅、品質保証、短波長レーザ、連続波（CW）レーザ、フェムト秒レーザ、炭酸ガスレーザ、エキシマレーザ、固体レーザ、ビーム整形、除去（切削・切断）加工、塑性（曲げ）加工、接合加工、表面加工（改質）、3次元加工、表面微細構造、品質保証、その場/オペランド計測、サイバー・フィジカルシステム（CPS）、デジタルツイン、人工知能（AI）、多光子励起、トンネル励起、緩和過程、マルチスケール、マルチフィジックス、2温度モデル、分子動力学、流体力学、時間依存密度汎関数法、電磁場解析

### (3) 研究開発領域の概要

#### [本領域の意義]

積層造形は、学術用語としてはAdditive Manufacturing（AM、和訳は付加製造）と呼ばれる。AMは、設計の自由度が大きく、トポロジー最適化やラティス構造などを適用した従来の加工法では不可能な形状品を造形できることから、軽量化や高機能化を大幅に改善した製品を一体化して製造できるなどの特徴を有している。このため、航空・宇宙分野、医療分野などの製品に適用されている。金属を対象とすると、これまで主に粉末床溶融結合によるジェットエンジン部品などの航空・宇宙分野、インプラントなどの医療分野、金型などが主体であったが、ここ数年で結合剤噴射や材料押出による小型精密部品への展開も可能となってきており、とりわけ自動車分野への展開が期待されている。また、従来造形が難しかった高強度アルミニウム合金や純銅、さらには耐熱・耐食材料や高融点材料などもAM装置の高機能化と材料開発により可能となっている。

加えて、AM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、次世代のものづくりにおける重要な加工技術の1つとして、すでに海外ではスマート工場のモデル化が進行している。米国、欧州、中国などにおける研究開発が実用化段階を迎えており、また昨今の新型コロナウイルス感染症流行拡大によってサプライチェーンが混乱し、3Dプリンタの有用性が再認識されたことを考えると、わが国においても積極的に導入を行うことが重要である。

20世紀の最高の発明の1つにあげられるレーザは、現在多様な分野で利用されている。その中でもレーザ加工はもっとも重要な応用の1つである。実際、レーザ加工は自由度に富み、金属、セラミックス、半導体、

ガラス、樹脂、生体などの材料に対して、除去、付加、改質、接合、微細構造化などの多様な加工が行なえるだけでなく、高品質、高解像度の空間選択的加工も実現する。また多くの場合、特殊な環境（真空、雰囲気ガス）を必要とせず、プロセス工程も削減できるため、薬品などの使用量が削減できて環境にも優しい。実際、レーザ加工は、自動車、鉄鋼、造船、航空産業などにおける厚鋼板の溶接・切断といったマクロ加工用途から、エレクトロニクス、オプトエレクトロニクス産業などにおける微細穴あけ、スクライビング、マーキング、リソグラフィといったマイクロ加工用途まで広範囲な領域で実用化されている。近年は、新しい光源の開発、レーザ発振器の高出力化・高性能化に加えて、ビーム整形技術、加工光学系やロボット、加工装置などの周辺機器の進歩も著しく、その重要性はますます増大している。

一方、ドイツのIndustrie 4.0やわが国のSociety 5.0による超スマート社会実現のためのものづくり革新において、収集データのAI処理による知のデジタル化に注目が集まっている。多くの加工パラメータの最適化が必要なレーザ加工においても、AIや深層学習との融合や、理論計算・シミュレーションにもとづいた学理解明が重要な課題として注目され、研究開発が進められている。

フェムト秒やアト秒といった極短パルスレーザによる加工は、光の伝搬、光吸収による電子励起、励起電子-格子相互作用、エネルギー輸送、加工（破壊）という異なる物理過程が、時間経過に応じて連続的に起きる。これらは違う分野として扱われてきた現象であるが、それらが連続的に起きるために、高エネルギー物理学を除くあらゆる物理過程を考慮しなくてはならないのがレーザ加工研究の理論的難しさである。このような融合は各分野の研究者が扱いにくさのために避けられてきたものである。レーザ加工という現象を扱うことで新しい分野横断的研究領域が形成され、新しい科学研究の芽がそこから生まれることが期待される。

### 〔研究開発の動向〕

金属のAMにおいて用いられる代表的な方法は、現状においても粉末床溶融結合と指向性エネルギー堆積である。粉末床溶融結合における装置開発の最近の動向をみると、熱源としてレーザの高出力化や多光源化により大型・高速化をめざした装置開発が引き続き進められている。これは、ジェットエンジンやロケットエンジンなどの航空・宇宙関連部品やタービンブレードなどエネルギー・産業機器分野に対応した大型製品が多くなってきていることに起因する。このため、深さ方向を1 m以上とした専用機の開発などが行われ、GE Additiveではジェットエンジンのハウジング造形用の特殊装置開発も行っている。

粉末床溶融結合においては、熱源としてレーザが主流であり、炭酸ガスレーザから波長1070 nmのYbファイバーレーザに主流が移り変わったことにより、造形品質の安定化と鉄系合金やニッケル基超合金などに加え、アルミニウム合金の造形が可能となり、実用に供されるようになった。しかし、今後の自動車の電動化などを見据えた際に重要な純銅の造形は、ファイバーレーザでは吸収率が低いことから難しく、短波長のレーザを適用する必要がある。最近、緑色レーザを搭載した装置開発も行われており、純銅の高密度での造形も可能となっている。また、ファイバーレーザの高出力化と低コスト化が進んだことにより多光源化も進んでいる。4台のファイバーレーザを搭載した、大面積の造形面を有する大型装置が開発されており、高速化が進んでいる。さらに、従来の装置では割れの発生しやすい高炭素濃度の鉄系材料やニッケル基合金などは造形が難しかったが、最近ではベースプレート温度を従来の200°Cから500°C、さらには700°Cまで加熱可能な装置開発が行われたことで、熱変形を抑えるとともに、割れの発生防止が可能となっており、これに伴って適用材料の範囲も大幅に広がってきた。併せて、品質の安定化を図るためのモニタリング機能を搭載した装置が増えているが、フィードバック機能については研究段階である。

電子ビームを搭載した装置はほぼ1社の独占であったが、経済産業省およびNEDOのプロジェクト

(2014～2018年度)で技術研究組合次世代3D積層造形技術総合開発機構 (Technology Research Association for Future Additive Manufacturing: TRAFAM)が開発した2機種の装置のうち、1機種の装置の販売が2019年より始まった。電子ビームの装置は、TiAlなどの酸素を嫌う高融点材料や溶接で割れが発生する材料などへの適用が有利であり、今後の展開が期待される。

一方、指向性エネルギー堆積は、これまで熱源としてレーザを使用し、粉末供給して造形する装置が多かったが、近年、熱源としてアーク放電を利用してワイヤを送給して造形する装置や、アルミニウムと銅系に限定されるもののコールドスプレイによる方式の装置が注目されている。指向性エネルギー堆積法は、これまで通り、その製法の特徴から単純形状で大型製品へ適用されている。わが国ではTRAFAMによるプロジェクトにおいて、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/時間での高速造形が可能となっている。さらに、メルトプールの形状や温度をモニタリングすることでフィードバック制御を可能とした装置の開発も行われており、造形品質の安定化につながると期待されている。

最近、従来の方式に加えて、結合剤噴射および材料押出による造形法が注目されており、装置が安価であることから装置販売の台数も大幅に伸びている。結合剤噴射はMITにより開発された技術であり、2000年頃に金属用として実用化されたが、その後は鑄造用砂型の造形に利用されている。AMの自動車分野への展開では、大手メーカーとドイツの自動車メーカーが開発を開始したことから再び注目を浴びている。製品は小型部品が中心で、造形体の密度も98%程度で材質も限定されるが、大量生産可能なことから今後大きな伸びが予測される。また、材料押出による金属材料への展開も注目されているが、いずれの方式も成形後の脱バインダ・焼結工程が必要なことに注意すべきである。すでに、金属粉末射出成形 (Metal Injection Molding: MIM) 技術を有している企業にとっては、新たな製品展開の有効な手段となりうる。

AMは、Industrie 4.0において重要な加工法として位置づけられているため、装置の周辺技術である搬送装置やロボットとの統合化をめざしたモデルシステムの構築が進められ、ドイツの自動車産業においては積極的な導入が検討されている。また、将来を睨んで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。将来のものづくりにおいて極めて重要な技術であり、すでに欧米の大手企業がAMを活用したデジタルツインの開発を行っている。

レーザ加工は、自動車、造船産業などにおける厚鋼板の溶接・切断といったマクロ加工用途から、エレクトロニクス、オプトエレクトロニクス産業などにおける微細穴あけ、スクライビング、マーキング、リソグラフィといったマイクロ加工用途まで広範囲な領域で利用されている。レーザ加工の市場動向は、わが国の経済動向と密接に連動している。すなわちレーザ加工分野は、1990年度以降長期経済低迷により厳しい状況にあったが、1995年度頃からIT産業に支えられ、エキシマレーザリソグラフィの実用化もあり、急速に成長した。その後はわが国の経済状況に連動して多少の増減を繰り返すものの、これまで順調に成長を続けている。レーザ加工分野の市場において、もっとも大きなシェアを占めるのはエキシマレーザ加工であり、約50%を占める。一方、EUVリソグラフィの実用化も現実的となりつつある。EUVリソグラフィ用光源の駆動用レーザには、炭酸ガスレーザが採用される予定である。炭酸ガスレーザ加工は、10年近く前まではエキシマレーザに次いで2位の約1/4のシェアを誇っていた。しかし、小型・堅牢、高輝度、低環境負荷の特長を有するファイバーレーザが台頭してくるにつれ、炭酸ガスレーザによる加工は年々市場が小さくなり、ついに数年前にファイバーレーザ加工とシェアが逆転した。特に、溶接・接合分野やマーキング分野での炭酸ガスレーザからファイバーレーザへの置き換わりが著しい。YAGやYVO<sub>4</sub>に代表される固体レーザも、溶接・接合分野やマーキング分野でファイバーレーザへの置き換わりが進展しているが、半導体基板、自動車、スマートフォン、ディスプレイの部品・デバイス用途の微細切断・穴あけ分野では、固体レーザの需要は拡大している。またフェ

ムト秒レーザやピコ秒レーザといった超短パルスレーザ加工も実用化されつつある。半導体レーザ加工の市場規模はまだ小さいが、年々着実に市場を拡大している。特に高輝度半導体レーザの開発や青色半導体レーザの加工への応用は、今後の成長を後押しすることが期待される。

基礎研究においては、特にマイクロ・ナノ加工において精力的に研究が進められている。そのうちフェムト秒レーザを用いた研究が60%以上を占めている。フェムト秒レーザ加工の研究分野は、3次元加工・内部加工、精密微細加工、表面マイクロ・ナノ構造化、穴あけ、切断・ダイシング、スライシング、接合、ナノ材料創成など多岐にわたる。1980年代後半から1990年代に盛んに用いられたエキシマレーザは、今日では基礎研究にはほとんど用いられていない。紫外ナノ秒レーザ光による加工は、多くの場合Qスイッチ固体レーザの3次、4次高調波が用いられる。一方、近年リソグラフィ用に開発された高出力のエキシマレーザを、加工に応用しようといった動きもある。

現在、主なレーザ加工シミュレーションは2温度モデルを基本としてKeldysh理論や電磁場解析、プラズマ物理の知見を取り入れた確率方程式を用いることが多く、ドイツのフラウンホーファー研究所のQuCutなどが代表的な公開コードである。2温度モデルは格子温度を扱うため古典分子動力学計算（古典MD）と相性のよい理論モデルである。古典MDは格子の熱を基本とした運動の記述が主であり電子から格子への熱移行を記述する2温度モデルとは自然な形での融合が可能である。特に電子励起過程が線形過程である金属については多くの報告がなされている。また、電磁場ダイナミクスや流体力学などの視点から加工現象を取り扱う流れもある。電磁波の波としての振る舞いや流体力学を利用するため、一般的な確率方程式のみによるアプローチより計算コストはかかるが、近接場といった物質構造に由来する励起場所の解析や熱伝搬の正確な記述などの利点がある。

#### (4) 注目動向

##### [新展開・技術トピックス]

###### • AMにおけるプロセスモニタリングとシミュレーション

海外では、AMにおける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が重要な研究開発課題であり、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されている。溶融凝固現象については、米国のNISTをはじめとする国立研究所が中心となり、高速度カメラやサーモビューワによるメルトプールのその場・オペランド計測、さらには超短パルスX線による表面や内部の構造変化の実時間計測を実施し、欠陥発生メカニズムが明らかになってきたが、これらの結果に基づいた品質保証のためのフィードバック制御までにはいたっていない。わが国ではTRAFAMのプロジェクトにおいて、レーザおよび電子ビームを熱源としたパウダーベッド方式における溶融凝固現象やパウダーベッドの状況を詳細にモニタリングできるテストベンチを開発し、これらのデータにもとづくフィードバック制御技術の開発をめざしており、同様の研究開発が欧米でも検討されている。

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、熱変形予測に関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開発が行われている。熱変形予測は重要であるが、現状では多くの材料に対するデータが不足しているとともに、これらの現象を体系化したソフトウェアは開発途上である。今後、AM向けシミュレーション技術の開発は、製品の品質安定化と併せて、将来のデジタルツイン実現のための大きな課題の1つである。

###### • CPS化による効率的加工技術の急速な進展

米国のGeneral Electric (GE) は、航空機産業にCPSの概念を取り入れた先駆者で、部品のデジタル設

計データをクラウド上に送信しそれをもとに細部にまで造形された構造物を作成するシステムを構築している。GE 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も航空機部品のデジタル製造に乗り出している。ドイツのシーメンスは、AM とデジタルツインを連携したシステム構築を行っている。

#### • 4次元プリンティング

3次元プリンティングはレーザー加工の重要な応用分野の1つである。3次元プリンティングは3次元の構造物を構築するが、4次元プリンティングでは構築した3次元構造物を、熱、湿度、pHといった周囲の環境変化や、電流、光などの外部刺激により、時間とともに形状や機能を変化させることができる。4次元プリンティングが提唱されたのはごく最近であるが、研究開発が活発化している。4次元プリンティングは単一材料でも複数の材料の組み合わせでも実現できるが、複数の材料を用いそれぞれの造形箇所を3次元空間的に制御して物体を作製できれば、より多様で自由度の高い4次元動作が得られる。フェムト秒レーザーを用いた2光子造形は多種類の材料を空間選択的に造形することが可能で、加工解像度がきわめて高い。それによりマイクロ・ナノスケールの異種物質からなる4次元プリンティングを実現でき、マイクロアクチュエータやマイクロロボット、さらには全く予想もつかないような応用が期待される。

#### • 複合加工技術

加工の形態は、付加加工（薄膜堆積、3Dプリンティングなど）、除去加工（エッチング、アブレーションなど）、無変形加工（改質、表面マイクロ・ナノ構造化など）の3つに分類される。それぞれの加工形態には異なった特徴があり、異なる加工形態を組み合わせることで、より複雑な構造を有する物体や、より高機能な物質の創成が期待される。金属のAMにおいては、他技術との複合化により、造形物の加工面の平坦化や構造のリペア、コーティングが行われている。2光子造形においては、より複雑で微細な3次元構造を実現するため、フェムト秒レーザーナノアブレーションとの組み合わせが試みられている。フェムト秒レーザー3次元加工では、除去加工によって作製されたマイクロ流体デバイスに、無変形加工により光導波路を集積化、あるいは付加加工（2光子造形）によりポリマーマイクロ機能素子を集積化した高機能バイオチップの作製が試みられている。このように加工技術の複合化は、これまでの単一の技術では実現できなかった構造や機能を持つ物質を作製でき、今後ますます重要になる。

#### • マイクロ・ナノ表面階層構造の作製

直線偏光のパルスレーザー光を物質に照射すると、物質表面に周期構造（Laser-Induced Periodic Surface Structure：LIPSS）が形成されることはよく知られている。形成される構造の周期は、レーザー光照射条件（波長、パルス幅、フルエンスなど）、材料、照射雰囲気依存するが、波長～波長の1/10程度である。このうち波長～波長の1/2程度のは低空間周波数LIPSS、1/2波長～波長の1/10程度のは高空間周波数LIPSSと呼ばれている。特に高空間周波数LIPSSは超短パルスレーザーに特有の構造であり、2000年代前半にその形成が初めて報告された。LIPSSに関する研究は今日でも多くの研究者が携わっており、LIPSS形成のメカニズムと応用に2極化している。実用的な応用には大面積の処理が重要であるが、直描技術や多光束干渉技術を用いると、大面積処理が可能になるだけでなく、マイクロ・ナノ階層構造が構築され、材料表面を高機能化できる。さらに最近では、照射条件を調整することにより、LIPSS内にさらに周期の短い（50 nm以下、波長の数十分の1）超高空間周波数LIPSSや特異的な形状のナノ構造（人工擬似微細生物構造）も形成できることが報告されている。このようなマイクロ～ナノサイズの多様な構造から形成される階層構想は、これまでにない光学特性（着色、吸収、偏光依存性など）、濡れ性（超疎水性、超親水性）、抗菌、抗ウイルス、生体親和性などの機能を付与することが期待でき、この後さらに研究開発が活発化すると考えられる。

### • ビーム整形加工技術

加工の高品質化、高効率化、高解像度化を実現するため、レーザービームを整形し加工を行うことが近年のトレンドとなっており、特に欧州では、国家的プロジェクトとして研究開発が進められている。ファイバーレーザーによる金属加工で、材質や板厚に応じてレーザー光を空間的に最適なビーム形状に制御することで、加工速度の向上、厚板の高速安定加工、ドロスの低減、ベベルの低減、面粗度の向上が実現した。また、集光したスポットが長い距離伝搬するベッセルビームの利用は、高アスペクト比穴あけ加工やガラス・半導体基板切断用途においてトレンドになっている。以上は、空間的なビーム整形の例であるが、時間的なビーム整形（パルス整形）も、高品質化、高効率化、高解像度化に有用である。特に、超短パルスレーザーのバーストモードは、加工の高品質・高効率化を実現し、広く研究開発が行われている。従来のバーストモードは、バースト内のイントラパルスの繰り返し周波数はMHz領域であったが、2016年にGHzバーストを用いたアブレーション冷却という概念が論文発表され、大きな話題となった。GHzバーストアブレーションでは、加工領域外に熱が拡散する前にレーザーエネルギーを全て物質に投与してアブレーションを完了することができ、ターゲット材料内部の平均温度を低下させる効果がある（アブレーション冷却）。この冷却効果により、最適条件では加工領域周辺部に発生する熱影響領域や損傷を回避することが可能となる。同時に、アブレーション閾値を下げる効果もあり、加工効率も改善される。この論文に触発され、現在GHzバーストモードアブレーション研究は活発化している。

### • 電子-レーザー相互作用にもとづくレーザー加工シミュレーション

ここ10年ほどの間に、電子-レーザー相互作用の微視的記述にもとづいたレーザー加工シミュレーションが出現した。筑波大学が公開しているSALMONでは多電子ダイナミクスを記述できる時間依存密度汎関数法と電磁場ダイナミクスを記述するMaxwell方程式を融合したマルチスケール計算が可能であり、半導体誘電体表面および界面での電子励起過程を経験的パラメータ無しで計算することが可能である。2012年にSALMONの基本となる論文が出版されて以降、同手法を用いたレーザー加工シミュレーションが実施され、また同様のプログラムが幾つか提案されている。レーザー加工の初期過程解明や最適化に向けた強力なツールとなる可能性がある。

### [注目すべき国内外のプロジェクト]

国内におけるAMのプロジェクトでは、経済産業省からの受託によりTRAFAMが実施した「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プリンタ技術開発及び超精密三次元造形システム技術開発プログラム）」（2014～2018年度）、NEDO「次世代型産業用3Dプリンタの造形技術開発・実用化事業」（2017～2018年度）、ならびに内閣府SIP「革新的設計生産技術」（2014～2018年度）の24課題が終了した。TRAFAMのプロジェクトにおいては、電子ビームPBF方式2機種とレーザーPBF方式1機種、ならびにレーザーDED方式の2機種を開発し、すでに3機種は販売を開始した。またSIPでは、大阪大学接合科学研究所を中心に青色半導体レーザーによるAM装置開発と純銅加工技術の開発が行われた。TRAFAMでは、AM技術の企業への展開を図るため、NEDO「積層造形部品開発の効率化のための基盤技術開発事業」（2019～2021年度）でモニタリング・フィードバック技術開発、ならびにデータベース構築を進めている。また、SIP「統合型材料開発システムによるマテリアル革命」（2018～2022年度）で、マテリアルズインテグレーション（MI）技術を三次元積層造形へ展開するためのプロジェクトが物質・材料研究機構を中心に実施されており、Ni基合金やTiAl合金を対象として、プロセスの最適化、MIによる最適合金設計、組織予測や強度予測などを可能とする研究開発が進められている。

レーザー加工に関しては、NEDO「高輝度・高効率次世代レーザー技術開発」(2016～2020年度)で、①深紫外・ピコ秒レーザーによる加工技術の開発、②高出力パルスレーザーによる新しい加工技術の開発、③次々世代加工光源技術の開発、④最適条件を導くレーザー加工プラットフォームの構築、⑤短波長レーザーによる加工技術の開発、の5テーマに取り組んでいる。SIP「光・量子を活用したSociety 5.0実現化技術」(2018～2022年度)では、①CPS型レーザー加工機システム研究開発、②空間光制御技術開発、③フォトリソグラフィの開発が進む。Q-LEAP「次世代レーザー：光量子科学によるものづくりCPS化拠点(STELLA)」(2018～2027年度)は、前半の5年はAI-CPS型レーザー加工技術開発、後半の5年は学理解明をもとに、学理CPS型レーザー加工技術の開発をめざしている。これら3プロジェクトは共通する点も多く、COIプログラム「コヒーレントフォトン技術によるイノベーション拠点」(2013～2021年度)やTACMIコンソーシアムも含めて連携を図ることで、Industrie 4.0やSociety 5.0による超スマート社会実現に向け、特にCPS型レーザー加工技術の実現に向けたシナジー効果が期待される。

米国では、America MakesのプロジェクトがAMの実用化を睨んだ研究開発に移行しているとともに、GE Additiveなど企業が中心となって実用化のための研究開発を実施している。

欧州では、Horizon 2020プロジェクト後のRoadmap 2030を作成し、AMへの取り組みが引き続き行われており、実用的なプロジェクトが数多く実施されているのが特徴である。レーザー加工に関しても、Horizon 2020で関連プログラムが提供されている。プロジェクトテーマは、超短パルスレーザー加工と応用、ビーム整形加工などであり、合計で年間約1億ユーロの資金が提供されている。2020年12月現在、次期フレームワークのHorizon Europeプログラムが議論されており、年間約1億ユーロがレーザー加工に配賦される予定であるが、実用的な応用とリンクしていることが要求される。さらに、欧州グリーンディールと完全なデジタル製造技術に対応する必要がある。ドイツでは、2012年にフォトニクスに関する国家プログラムが、年間予算約1億ユーロの10年プログラムとして更新された。このプログラムは「Photonikforschung」と呼ばれ、超短パルスレーザーとそのマイクロ加工への応用、電気自動車製造応用の緑と青色高出力レーザー、積層造形用のプロセスチェーンなど、さまざまなホットピックを支援している。最新の公募(Effilas-program)は、材料加工用の新しいレーザー光源を対象としており、全体で11のプロジェクトがあり、各プロジェクトの研究開発費は平均で300万ユーロである。

中国では、National Key R&D Program“Additive manufacturing and laser manufacturing”(総額18億中国元、2016～2021年)が行われている。本プロジェクトでは、マクロスケールのAM、およびマクロ、ミクロ、マイクロスケールのレーザー加工に関し、基礎研究、応用研究、装置開発を展開している。本プロジェクトのテーマには、超短パルスレーザー加工とそのメカニズム解明も含まれる。

## (5) 科学技術的課題

将来の“ものづくり”を見据えたうえで、デジタルツインは重要なテーマであり、デジタル・マニュファクチャリング技術であるAMとの連携は極めて重要であるが、それを実現するための基礎技術・データが不足している。なかでも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、さらにはAIを利用した欠陥予測システムの開発などが重要な課題である。一方、シミュレーションに関しては、粉体レベルにおけるミ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の開発を体系的に開発すること、およびシミュレーションに使用する材料物性値の取得が大きな課題である。

超短パルスレーザー加工では、現状ピコ秒レーザーが用いられることが多いが、今後はさらにパルス幅の短い

フェムト秒レーザに移行していくと思われる。フェムト秒レーザ加工の産業応用には、発振器の高信頼性、高安定性、高出力化と、フォトンコストの低減とともに、加工効率や品質の向上を実現する光学系や加工ステージを含めたシステムの開発が必要である。

### (6) その他の課題

AMのための設計技術者の育成とこの分野の研究・開発者が不足しており、人材育成が世界的に喫緊の課題となっている。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、わが国独自の人材育成プログラムを開発することが必須である。

一方、レーザ加工分野でも若い人材の育成は急務である。もっとも大きな問題は、日本人学生が博士課程に進学しないことであり、多くの大学では、外国籍の博士課程の学生の割合が増えている。米国も同様の状況である。このような状況が続けば、本分野におけるわが国の科学技術力の低下は避けられない。これを打破するためには、日本人博士課程学生への経済的支援だけでなく、学位取得後安定したポジションに着任できるシステムの構築が求められる。

### (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	○	↗	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、学理解明にもつづいた積層造形・レーザ加工条件に関する基礎研究が実施され、成果が出始めている。また、SIPによりAMのためのCPSやMIに関するプロジェクトも開始された。フェムト秒レーザ加工において、世界トップレベルの研究成果があがっている。SIPやQ-LEAPによりCPS型レーザ加工の実現が期待される。
	応用研究・開発	○	↗	TRAFAMプロジェクトにおいて、指向性エネルギー堆積による装置2機種と電子ビーム粉末床溶融結合の1機種が開発され上市にいたっている。また、新たに2社のメーカーが指向性エネルギー堆積による装置2機種の販売を開始した。純銅などのレーザ加工に優位性を有する青色半導体レーザによる装置開発が行われた。レーザ加工分野は順調な成長を示している。
米国	基礎研究	○	→	ローレンスリバモア、NISTなどの各国立研究所が、大学や企業との連携によって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。
	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、大きな成果が継続的に出ている。また、GE AdditiveやVelo 3Dが新たな装置開発を実施するなど、多くの応用研究・開発が積極的に進められている。結合剤噴射、材料押出によるAM装置開発もHPやDesktop Metal、Markforgedなどにより積極的に進められている。一方レーザ加工は、ドイツや中国に比べると大きな遅れをとっている。軍事や核エネルギー用途のレーザピーニングは数少ない成功例の1つ。

欧州	基礎研究	○	↗	AMについては、大学やフ라운ホーファー研究所などの研究機関が着実に研究開発を行っているが、以前と比べて目新しい研究開発が少ない。一方、レーザと物質の相互作用に関する理論および実験による研究は活発化が予想される。3次元加工、表面ナノ構造化、ナノ材料創成、ビーム整形加工、薄膜形成など、多種多様な研究が展開されている。特にパーストモードの研究は欧州が中心。
	応用研究・開発	◎	↗	レーザ熱源のAM装置については、大型化・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。また、ドイツで緑色レーザ利用の装置開発が行われるなど動きは活発である。BMW、シーメンスなどを中心としてIndustrie 4.0の実現に向け、着実に研究開発を実施。レーザ加工でも、Horizon 2020やPhotonikforschungなどのプログラムによる支援のもと、超短パルスレーザ加工、ビーム整形加工、AMの実用化が進められている。
中国	基礎研究	◎	↗	AM、レーザ加工分野ともに巨額の投資が行われている。大学並びに大学発ベンチャーを中心に装置が導入されるとともに、非常に多くの特許・論文発表が行われている。超短パルスレーザ加工に関しても、大学における基礎研究が活発化している。一方、この分野への政府からの財政支援が大きいのは、将来の発展において不安材料。
	応用研究・開発	◎	↗	粉末床溶融結合、指向性エネルギー堆積とも、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。BLTは世界最大級の粉末床溶融結合装置開発を進めている。航空宇宙分野に加えて、大学に金型に特化した研究拠点も設置されている。また、AM用の粉末メーカーが非常に多い。中国産の安価な発振器や光学素子をもとに、レーザ加工産業も成長著しい。
韓国	基礎研究	△	↗	一部フレキシブルエレクトロニクスへの応用に関して良い成果がみられるものの、その他に顕著な研究成果はみられない。
	応用研究・開発	○	↗	Samsung、LG、Hyundaiなどを中心に、エレクトロニクス・オプトエレクトロニクスや自動車製造分野において、レーザ加工は不可欠な技術となっている。特に超短パルスレーザ加工の実用化には力を入れている。

(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

- ・ バイオ材料（ナノテク・材料分野 2.2.1）
- ・ ナノ・オペランド計測技術（ナノテク・材料分野 2.6.3）
- ・ 物質・材料シミュレーション（ナノテク・材料分野 2.6.4）

## 参考・引用文献

- 1) 一般財団法人日本規格協会 & 技術研究組合次世代3D積層造形技術総合開発機構 (原案作成) : JIS B 9441 : 2020 付加製造 (AM) — 用語及び基本的概念, 日本規格協会, 2020.
- 2) 国立研究開発法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構 技術戦略研究センター : 金属積層造形プロセス分野の技術戦略策定に向けて, 技術戦略研究センターレポート TSC Foresight Vol.32, 2019.
- 3) R. Berger : Additive manufacturing : A game changer for the manufacturing industry?, 2013.
- 4) R. Berger : Focus Advancements in metal 3D printing : Beyond powder bed – Additive manufacturing on the brink of industrialization, 2018.
- 5) A.I. Aguilar-Morales, S. Alamri, A.F. Lasagni, “Micro-fabrication of high aspect ratio periodic structures on stainless steel by picosecond direct laser interference patterning”, *J. Mater. Process Technol.* 252, (2018) : 313-321. doi : 10.1016/j.jmatprotec.2017.09.039
- 6) D. Zhang, B. Ranjan, T. Tanaka, and K. Sugioka, “Carbonized Hybrid Micro/Nanostructured Metasurfaces Produced by Femtosecond Laser Ablation in Organic Solvents for Biomimetic Antireflective Surfaces”, *ACS Appl. Nano Mater.* 3, no. 2 (2020) : 1855-1871. doi : 10.1021/acsanm.9b02520
- 7) Z. Yao, L. Jiang, X. Li, A. Wang, Z. Wang, M. Li, and Y. Lu, “Non-diffraction-length, tunable, Bessel-like beams generation by spatially shaping a femtosecond laser beam for high-aspect-ratio micro-hole drilling”, *Opt. Express* 26, no. 17 (2018) : 21960-21968. doi : 10.1364/OE.26.021960
- 8) C. Kerse et al., “Ablation-cooled material removal with ultrafast bursts of pulses”, *Nature* 537, (2016) : 84-89. doi : 10.1038/nature18619
- 9) Y. Hu et al., “4D Printing : Botanical - Inspired 4D Printing of Hydrogel at the Microscale” *Adv. Funct. Mater.* 30, no. 4 (2020) : 2070026. doi : 10.1002/adfm.202070026
- 10) R. R. Gattass and E. Mazur, “Femtosecond laser micromachining in transparent materials” *Nat. Photonics* 2 (2008) : 219-225. doi : 10.1038/nphoton.2008.47
- 11) L.V. Keldysh, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave”, *Soviet Physics JETP* 20, no. 5 (1965) : 1307-1314.
- 12) I.S. Anisimov, L.B. Kapeliovich, and L.T. Perel'man, “Electron emission from metal surface exposed to ultrashort laser pulses”, *Soviet Physics JETP* 39, no. 2 (1973) : 375-377.
- 13) B. Rethfeld, “Unified Model for the Free-Electron Avalanche in Laser-Irradiated Dielectrics”, *Phys. Rev. Lett.* 92, no. 18 (2004) : 187401-1 – 187401-4. DOI : 10.1103/PhysRevLett.92.187401
- 14) S. Ono, “Thermalization in simple metals : Role of electron-phonon and phonon-phonon scattering”, *Phys. Rev. B* 97, no. 5 (2018) : 054310. doi : 10.1103/PhysRevB.97.054310
- 15) C. Wu and L.V. Zhigilei, “Microscopic mechanisms of laser spallation and ablation of metal targets from large-scale molecular dynamics simulations”, *Appl. Phys. A* 114, no.114 (2014) : 11-32. doi : 10.1007/s00339-013-8086-4
- 16) M. Noda, S.A. Sato, Y. Hirokawa et al., “SALMON : Scalable Ab-initio Light-Matter simulator for Optics and Nanoscience”, *Comput. Phys. Commun.* 235 (2019) : 356-365. doi : 10.1016/j.cpc.2018.09.018

## 2.6.3 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時間分解計測、すなわち機能発現中に刻々と変化し続ける現象の実時間または経時観測によって、測定対象のナノスケール構造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。ラテン語で"working"や"operating"を意味する「オペランド/*operando*」は、広義には材料分野における「その場/*in situ*」の代替語として用いられるが、狭義では「時間変化」「動作環境」「その場」の3要素がそろふ必要がある。しかし、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い。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、生きた細胞や組織などの生体試料から、半導体や蓄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、学术界と産業界の両方において不可欠な研究手法となりつつある。

### (2) キーワード

オペランド計測、「その場」(*in situ*) 測定、走査型トンネル顕微鏡 (STM)、原子間力顕微鏡 (AFM)、透過型電子顕微鏡 (TEM)、走査透過型電子顕微鏡 (STEM)、分割型検出器、ピクセル検出器、「その場」専用試料ホルダ、MEMSチップ、環境セル、液中セル、電子エネルギー損失分光法 (EELS)、放射光X線、X線吸収分光 (XAS)、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)、タイコグラフィ、メカノオペランド分析、反射率法、ストロボスコピック計測法、超短パルスレーザー光、超高速電子顕微鏡 (UEM)、コヒーレントラマン散乱、近接場光学顕微鏡

### (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、その発現にいた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」計測を行っ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、空間分解能の向上をめざ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。走査プローブ顕微鏡 (Scanning Probe Microscope : SPM) は、尖鋭な突端

を有する探針を走査することにより形状や物性を原子スケールで測定でき、かつ単原子操作などの多様なナノ創製加工も実現できる手法である。走査型トンネル顕微鏡 (Scanning Tunneling Microscope : STM)、原子間力顕微鏡 (Atomic Force Microscope : AFM) などが代表例である。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放射光X線や中性子線、並びに実験室レベルで使用可能なレーザー光が利用されている。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。一方、レーザーを用いたオペランド計測では、物質中の電子や原子核の動きに伴う光学的性質の時間変化を分光計測することで、非破壊・非接触の条件で、高い時間分解能を実現できるところに特徴がある。さらに、他の計測法 (放射光X線、中性子線、SPM、電子顕微鏡) よりもコンパクトな装置で計測可能な場合が多く、ユーザーに使い易さを提供できる可能性が高い。

### [研究開発の動向]

#### • 走査プローブ顕微鏡 (SPM)

材料研究にとって重要な環境場としては、量子マテリアル等の機能性評価のための複合極限場 (極低温場・高磁場・極高真空場)、耐熱材料などの評価に必要な高温場、触媒材料の評価に必要なガス雰囲気・温度制御場、格子歪制御による物性制御に必要な応力歪場、電池材料の評価に必要な不活性ガス雰囲気場などがある。例えば、高温場やガス雰囲気場で稼働する原子分解能SPM、外部制御された応力場における原子分解能SPMなどの材料イノベーションに関連した環境場制御SPM計測技術の開発が進展している。

量子コンピュータ用デバイスや量子マテリアルの研究開発に関しては、複合極限場 (極低温、高磁場、極高真空) における原子分解能オペランドSPMが研究開発のキーテクノロジーとなる。国内では、複合極限場における原子分解能STM/AFMの高度化と量子マテリアル研究への応用展開は、東京大学 (物理学科、物性研)、理化学研究所 (創発物性科学研究センター)、物質・材料研究機構 (NIMS) 等において継続的に進められている。海外では米国 (NISTなど)、欧州 (ドイツ、スイス) が伝統的に競争力を有している。韓国、中国も最先端ナノサイエンスとして重要視しており、特に中国 (清華大学、中国科学技術大学など) は最先端の複合極限場SPMの整備・拡充に世界でもっとも注力している。

高温場AFMでは1000 K程度での原子ステップ分解能、応力歪場SPMでは原子分解能が達成されている。触媒応用に関連したガス雰囲気高圧場や高温場を制御しつつ反応生成物の計測も融合させた反応場オペランドSPMはReactorSTMやReactorAFMとも呼ばれる。このタイプのオペランドSPMは、オランダ・ライデン大学で精力的に開発されており、モデル触媒における原子分解能での触媒反応解析に応用されている。

環境エネルギー問題への関心の高まりとともに、エネルギー変換 (太陽電池など) やエネルギー貯蔵 (Liイオン電池など) のデバイスや材料がさかんに研究されている。デバイス性能の向上を図るには、素子動作下で物性の変化を直接的に計測・評価し、その動作原理を明らかにすることが重要である。ナノ構造を積極的に利用する次世代デバイス開発をめざし、さまざまな環境下 (液中、光照射場、電圧印加場、不活性雰囲気

場、超高真空)でのナノ～原子スケールの局所物性の評価を可能にする非接触AFMの1つであるケルビンプローブフォース顕微鏡(Kelvin Probe Force Microscopy: KPFM)と、オペランド計測に必要な基盤技術(断面SPM、光照射場SPMなど)の開発が進展している。NIMSでは、全固体型Liイオン電池の内部界面を削り出し、不活性雰囲気中で充放電動作させながらKPFMでナノスケール計測することにより、電池反応ダイナミクスの可視化を実現している。

### • 透過型電子顕微鏡 (TEM)

透過型電子顕微鏡(Transmission Electron Microscope: TEM)を用いた観察・計測において、試料は真空かつ数mm以下の空間に置かれる。したがって、その場計測、あるいはオペランド計測を行うためには特殊なTEM用試料ホルダが必須となる。近年、MEMS(Micro Electro Mechanical Systems)技術を用いたホルダが市販化され、ガス中、液中、電圧印加、加熱、冷却、磁場印加など特殊な環境下における観察が可能になり、世界的に行われるようになった。

応用分野の大きなトレンドとしては二次電池(特に、Liイオン電池)があげられる。使用するホルダのタイプで大きく3種類に分けられる。1つ目は「オープンセル」構造と呼ばれるホルダを使用し、ナノワイヤや粒子形状の電極材料にイオン液体や $\text{LiO}_x$ などの被膜を介してイオンを直接挿入した状態で、電極形状や結晶構造の変化をリアルタイム計測する研究である。電圧を印加できるホルダがあれば比較的容易に実験ができるため、多くの研究者によって同種の研究が行われており、日本では北陸先端科学技術大学院大学が実施している。しかし、電極材料の形状や反応時の環境が実際の蓄電池とは大きく異なるため、電池の性能向上に有効な成果を得ることは難しい。

2つ目は「液体セル」構造と呼ばれる、MEMS技術による特殊な液中電圧印加ホルダを用いた計測である。電極材料と液体の電解液を窒化シリコン膜でパッキングした特殊な小型チップをこのホルダにセットすることで、充放電反応を観察できる。この液中オペランド観察では、Liデンドライト成長の観測や、 $\text{LiFePO}_4$ 正極材料へのLiイオン挿入反応のリアルタイム観察などが実現された。この手法は装置内で液体が漏れた時のリスク管理(保守、点検など)が必要であり、研究予算が潤沢ないくつかの大学や国立研究機関でのみ行われている。

3つ目は「固体電池セル」構造と呼ばれる、正極/固体電解質/負極を用いた全固体電池のフルセルを集束イオンビーム(Focused Ion Beam: FIB)で薄片化したものを、実際に充放電させながら観察を行う研究である。電池のフルセル(正極/固体電解質/負極)を電子顕微鏡内で動作させており「オペランド」と呼ぶにふさわしい計測技術といえる。日本のファインセラミックスセンター(Japan Fine Ceramics Center: JFCC)で初めて実現され、電池内部の電位分布の変化がとらえられた。これまでに、走査型透過電子顕微鏡(Scanning Transmission Electron Microscope: STEM)を用いた電子エネルギー損失分光(Electron Energy Loss Spectroscopy: EELS)計測でのLi分布観察などの成功例がある。

### • 放射光X線

放射光X線での計測の基本は「回折・散乱」、「分光」の2つであるが、最近は回折イメージングや分光イメージングのように、イメージング(可視化)と組み合わせることが志向されている。実用の現場では「非一様な材料」が圧倒的に多く、非一様な材料の理解(あるいは、その利用)において、機能の起源の可視化は圧倒的説得力を持った「特効薬」だからである。

ミクロからマクロへいたる複数のスケール階層の連関を解明することが非一様な材料の理解には必要であ

る。非一様な材料に対し、計測に求められる要件の1つは「マルチスケール」対応であり、計測手法としてもっとも汎用化が進んでいるのは全散乱である。全散乱プロファイルをフーリエ変換して導出される二体分布関数 (Pair Distribution Function : PDF) をもとに、溶液から結晶にいたる幅広い対象をカバーし、固体では原子レベルから数 10 nm までの構造を一気に議論できる。大面積の2次元検出器と高エネルギーX線を利用した迅速なX線全散乱測定法が2000年代に米国で開発されて普及し、現在では多くの放射光施設でその場計測、オペランド計測に供されている。水素吸蔵合金の水素吸蔵放出過程における構造変化、燃料電池の充放電過程における電解質の局所構造変化、水熱合成反応における材料合成過程の観測、セメント材料やバルクメタリックガラスの負荷応力印加過程、溶媒中の金属結晶核生成過程の観察などに適用されている。ガス雰囲気下測定に関しては、フランスにある欧州シンクロトロン放射光施設 (European Synchrotron Radiation Facility : ESRF) にて200気圧まで可能との報告がある。欧米ではPDFによる燃料電池の充放電過程における電解質の局所構造変化の観測の実施例が多い。米国のAdvanced Photon Source (APS) や英国のDiamond Light Sourceでは専用に開発されたオペランド測定用試料セルを複数個並べて、順に測定するシステムが導入されている。

コヒーレントX線回折イメージング (Coherent X-ray Diffraction Imaging : CDI) は、従来のX線用レンズの開口数の制限 (分解能は100 nm程度) を解消する手法として注目され、開発が進められている。SPring-8をはじめとしてタイコグラフィ (Ptychography) とよばれる走査型計測の開発が進み、大面積高分解能 (10 nm)、さらには分光要素を付加したタイコグラフィ-XAFSが達成されており、10 nmから数  $\mu\text{m}$  程度の非一様な構造を調べることが可能となった。材料が結晶であることに注目したBragg-CDI法は歪みや欠陥に感度を持ち、非一様なナノ~マイクロ結晶材料との相性が良いことから、APSを中心にその場/オペランド計測に対しての開発が進み、触媒反応やナノ粒子へのガス吸蔵プロセス、電場印加下の計測、バッテリーサイクル中カソードナノ粒子の転位ダイナミクス観測などで成果が出ている。

各種分光法の持つさまざまな「選択性」は、非一様な材料の計測において極めて重要となる特長である。X線吸収分光 (X-ray Absorption Spectroscopy : XAS) は、吸収端近傍のXANES (X-ray Absorption Near Edge Structure) とより高いエネルギーのEXAFS (Extended X-ray Absorption Fine Structure) を測定することで元素選択的に電子状態と原子配置の両方の情報を得ることができ、特に高い透過能を持つ硬X線は窓材を通しての測定が容易であるため、その場/オペランド計測との相性が良い。近年のX線吸収分光は、高空間分解能、高時間分解能を志向した技術開発がさかんであり、それを利用した計測が行われている。また、X線を吸収した元素から放出される蛍光X線を高エネルギー分解能で検出するX線吸収分光HERFD-XAS (High Energy Resolution Fluorescence Detected XAS) も世界各地の放射光施設で行われており、燃料電池電極触媒のオペランド計測などでの利用が進んでいる。

#### • 中性子線

中性子線の特徴は、物質との相互作用が弱く物質透過性が高いこと、LiやHなどの軽元素測定に有利なこと、同位体を見分けること、磁気構造を測定できること、物質構造を測定できること、物質の動き (運動) を見やすいことなどがあげられる。一方、放射光X線と比べた場合にはそのビーム強度は弱く、ハイスループトやオペランド測定には不利であるが、オペランド測定で重要となる試料ホルダの窓材の確保が容易であり、中性子の特徴を活かしたオペランド計測が行われている。

オペランド計測では、広角中性子回折法 (Wide-angle Neutron Diffraction : WAND)、小角中性子散乱法 (Small Angle Neutron Scattering : SANS)、中性子反射率 (Neutron Reflectivity : NR) 測定

法が主に用いられ、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である。日本、世界問わず活発な研究分野の1つは二次電池電極の実電池計測である。中性子の特徴を活かし、充放電状態にあるLiイオン実電池や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。最近では、電極界面のSEI (Solid Electrolyte Interphase) 被膜の生成過程のオペランド測定がNR法を用いて行われている。引張り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」と呼ばれるが、鉄鋼材料の実際の成型加工過程に近い条件での圧縮、延伸過程における構造変化・相変態のオペランド測定が行われ、材料開発に利用されている。その他、中性子の特性を活かした高分子の紡糸過程や湿度環境を模擬したオペランド測定も行われている。

中性子イメージング技術のオペランド計測への応用は最近急速な発展を遂げている。これまでは定常中性子源を利用した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などや、オペランド測定としてはデモンストレーションの域を出ないが、稼働エンジンの内部構造の可視化や燃料電池の水分布の変化の測定などが行われてきた。2015年にJ-PARC 物質・生命科学実験施設 (Materials and Life Science Experimental Facility : MLF) のエネルギー分析型中性子イメージング装置RADENが立ち上がり、パルス特性を利用したオペランド計測が本格的に始まった。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る。これにより、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。さらに特筆すべきはパルス中性子と外場環境 (外部刺激) とを同期させるストロボスコピック測定法の実現であり、この手法と中性子偏極解析を用いて稼働モータやトランスの漏れ磁場の可視化を実現した。その他にも印加電圧に対する圧電素子の構造変化、焦電材料の温度・電場変化、トポロジカルな磁気渦である磁気スキルミオン形成過程のオペランド測定がなされている。

中性子非弾性散乱や準弾性散乱は分子や原子のピコ秒からナノ秒の運動を測定する強力な手段であるが、ビーム強度の弱さのためオペランド測定にはなかなか手が届かなかった。しかし、J-PARC MLFの1 MW試験運転においてポテスターチ凝固に伴う分子運動の遅化のオペランド測定に成功しており、J-PARCの出力増大に期待が持たれている。

日本の加速器中性子源であるJ-PARC MLFは、世界最高クラスの大強度パルス中性子源である (計画出力1 MWの試験運転に2020年6月に成功)。一方、J-PARCのような大型施設だけでなく、使い勝手がよく、産業界からも注目を集める小型中性子源の開発が急速に進みつつあり、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) などのラボ中性子源が近年脚光を浴びている。

### • レーザ

超短パルス光を用いた計測は、超短パルス光の持続時間であるフェムト秒の時間分解能で、物質中の電子や原子核の動きに伴う光学的性質の時間変化を分光計測するものである。したがって、オペランド計測に必要な「フェムト秒時間分解能」を原理的に有する計測法である。

電子顕微鏡の有する優れた空間分解能に、ピコ秒からフェムト秒の時間分解能を組み合わせる手法として、超高速電子顕微鏡 (Ultrafast Electron Microscope : UEM) の開発が進んでいる。この超高速電子顕微鏡では、顕微鏡の電子放出源としてフェムト秒パルスをかソード電極に照射した際に放出される光電子を用いている。実空間イメージングやブラッグ回折によって単一の孤立したナノ構造のダイナミクスを観察すること

が可能となった。最近の進展としては、このUEMにEELSを組み合わせた手法があげられる。ナノメートルの空間分解能、フェムト秒の時間分解能、さらにはmeVのスペクトル分解能を同時に実現し、固体の電子的・磁気的な動的特性の評価が可能となった。具体的には、グラファイトを光照射で励起したときの炭素間結合のダイナミクスを観察した報告例がある。この他、生成方法が進歩してきたアト秒光パルスを用いることで、30 fs幅の電子パルスが生成された。オペランド計測という観点からは、このUEMを用いて触媒内の局所的な活性部位における原子配置の動的変化を測定する研究例がある。

オペランド計測に必須な条件である非破壊・非接触の計測法のうち、空間分解能は光回折限界（数 $\mu\text{m}$ ）で制限されるが、コヒーレントラマン散乱による振動分光も極めて有用な手法である。特に燃焼状態のオペランド計測は、実用上の価値が極めて高い。近年は、コヒーレントラマン顕微鏡を生体関連分子の画像化に利用する例が増えてきた。コヒーレントラマン顕微鏡は、その高い化学的選択性、感度、イメージング速度により、細胞イメージングのための強力なプラットフォームであり、細胞内構造の同定、代謝の観察などに広く利用されてきた。生命科学分野で標準的な蛍光顕微鏡に対して、蛍光タグをつけてしまうと生理活性が変わってしまうような低分子量の生体関連分子を生体内で観察するにあたっては、蛍光タグの付加を必要としないラベルフリーのイメージング技術が求められる。非破壊・非接触・無標識というコヒーレントラマン顕微鏡の特長は、この要請に応えるものの1つといえる。微生物学、神経生理学、腫瘍生物学、システム生物学など広範な分野での活用例が報告されている。

超短パルス光計測の時間分解能を最大限に生かしつつ、光の回折限界を下回る空間分解能を実現する別の方法として、近接場光学顕微鏡がある。金属カンチレバーに超短パルスを照射し、プローブの先端に生じる近接場によって試料の局所的な光学特性を測定できる。近年では、フェムト秒パルスレーザとSTMを組み合わせた光STM技術が進展した。STMの走査プローブ先端にテラヘルツ周波数領域のパルスを結合させたテラヘルツSTMではサブピコ秒（ $<500\text{ fs}$ ）の時間分解能とナノメートル（ $2\text{ nm}$ ）の原子分解能を同時に実現している。単一InAsナノドットへの超高速キャリア捕獲を直接画像化した報告例がある。

#### (4) 注目動向

##### [新展開・技術トピックス]

##### • TEMの高速化・低侵襲化技術の進展

透過電子顕微鏡の電子源は放射光などと比べて輝度が圧倒的に低いため、高速化すると画像に使用される電子の量が少なくなり、暗すぎて像が観察できなくなる。これを解決する手段の1つとして、機械学習による画像解析があげられる。ここ数年、その適用例が米国や日本の顕微鏡学会において増えている。特に圧縮センシングと呼ばれる手法は、少ない画像情報から真と思われる画像に復元する機械学習アルゴリズムの1つであり、2000年代後半から医用画像への応用などさまざまな分野に広がった。2014年に米国Pacific Northwest国立研究所が、STEMによる原子構造像に圧縮センシングを適用し、通常の10%程度の電子線照射でも画像を回復できる可能性を示した。その後、各国で機械学習を活用した高速化・低侵襲化技術の開発が進んでいる。

##### • 次世代放射光施設の建設

2023年の運用開始をめざし、次世代放射光施設の建設が東北大学キャンパス内で進んでいる。軟X線、テンダーX線領域でSpring-8の最大100倍となるといわれているコヒーレンスによる可視化技術の産学の活用を中心課題の1つとしている。コヒーレントイメージングに特化したビームラインや、オペランド計測を可能とするビームラインの建設を予定しており、スペクトロ・タイコグラフィを開発した研究者たちが中心となって

ビームライン整備が行われている。これらのビームラインに参画を予定している企業からの期待は大きく、これまで放射光を利用した経験のない企業、学術経験者が、SPring-8での試験研究に取り組み始めている。

### [注目すべき国内外のプロジェクト]

現在、日本でナノ・オペランド計測に特化した大型プロジェクトは見当たらないが、JST未来社会創造事業探索加速型「共通基盤」領域(2018年度～)、未来社会創造事業大規模プロジェクト型「界面マルチスケール4次元解析による革新的接着技術の構築」(2018年度～最大10年間)、ERATO「百生量子ビーム位相イメージングプロジェクト」(2015～2020年度、特別重点期間2020年度)、CREST「革新的力学機能材料の創出に向けたナノスケール動的挙動と力学特性機構の解明」(2019～2025年度)、科学研究費補助金新学術領域研究「ハイパーマテリアル：補空間が創る新物質科学」(2019～2023年度)、「ハイドロジェノミクス：高次水素機能による革新的材料・デバイス・反応プロセスの創成」(2018～2022年度)、「ミルフィーユ構造の材料科学-新強化原理に基づく次世代構造材料の創製」(2018～2022年度)、「蓄電固体界面科学」(2019～2023年度)、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」(2017～2021年度)の一部課題として、STEM、放射光、X線、中性子線などによるイメージング技術関連の研究を含んでいる。また、放射光X線のオペランド観測については、NEDO「革新型蓄電池実用化促進基盤技術開発」(2016～2020年度)、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>」(2012～2021年度)も深く関わっている。計測技術を対象としたプロジェクトとしては、ナノテクノロジープラットフォーム事業(2012～2021年度)、JST CREST/さきがけ「計測技術と高度情報処理の融合によるインテリジェント計測・解析手法の開発と応用」(2016～2022年度)などが進んでいる。

国内の各研究拠点でも、オペランド計測を志向した動きが続く。NIMS先端材料解析研究拠点では、第4期中長期計画プロジェクト(2016～2022年度)の主要テーマの1つとして「表面敏感オペランドナノ計測法の開発と先進材料応用」を取り上げた。金沢大学は、文部科学省世界トップレベル研究拠点(WPI)プログラムの支援を受け、2017年にナノ生命科学研究所(NanoLSI)を設立した。産総研と東京大学は共同で、産総研・東大先端オペランド計測技術オープンイノベーションラボラトリー(オペランド計測OIL)を2017年に設立した。

諸外国でも、オペランド計測に注力するプロジェクトへの大規模な政府投資はみられない。米国ではDOEによる研究費としては2015年から「オペランドSPM：可変圧力&温度」のタイトルがみられる。オペランドSPMのキーワードを含む論文出版数は米国がもっとも多く、エネルギー分野のオペランド分光的研究も活発である。次世代エネルギーデバイスに関する応用指向的なタイトルの下でオペランドSPMの研究開発が進展しているものと思われる。

欧州ではHorizon 2020のエネルギー関連プロジェクトのなかでオペランドSPMの研究開発もサポートされている。また、欧州プロジェクト「Nanoscience Foundries and Fine Analysis (NFFA)」は、ナノテクノロジー研究環境の統合とオープンアクセス化を志向したものである。英国EPSRCによる「Enabling next generation lithium batteries」プロジェクトも注目に値する。欧州と中東の加速器ベース施設へのアクセスと利用サポートのプログラムCALIPSOplusが用意されている。

### (5) 科学技術的課題

オペランドSPM計測を実現するためには、従来のSPM表面機能計測とは全く異なる以下の新規要素技術の開発が必要となる。これらの基盤要素技術開発には新たなイノベーションが必要である。さらにグローバ

るな普及を加速するために、キーオプション技術として商用化を見据えた応用展開が望ましい。具体的には、オペランドSPM計測のための①断面試料調製技術、②環境場創製技術、③ビッグデータ解析技術、などが対象となる。

透過型電子顕微鏡では、オペランド計測の更なる高速化、低侵襲化、高感度化が要求されるが、それを阻む課題は、電子源の輝度不足による量子ノイズの問題である。電界放出型電子銃が一般の透過電子顕微鏡に搭載されて約40年経つが、電子銃の輝度の大幅な性能向上は見られない。一方、カメラや分析機器の検出感度は、電子直接検出型の検出器が出現してから大幅に向上した。しかし現状は、量子ノイズの問題のため、露光時間1/1500秒の画像は像にならない。この問題を解決するには、高度な画像解析技術と電子顕微鏡計測技術の融合が必要となる。

放射光X線による計測では、コロナ禍の状況も見据え、自動化（計測と解析双方）が1つの課題と思われる。解析に関しては高次元データが取得できるようになってきた現在、説得力を持った可視化が課題である。海外の放射光施設もコヒーレンスの向上を図るため、加速器のアップグレード計画を進めている。放射光のナノ・オペランド計測が、今後数年のうちにナノ・イメージング・オペランド計測に大きく変貌を遂げるものと予見させる。DX化を単なるリモート計測化ではなく、リアルタイムでのナノ・イメージ・オペランド計測の実現をめざす必要がある。

現状の中性子線の強度は、オペランド測定にとっては十分ではない。大きな原子炉の建設や新たな巨大加速器の建設は社会情勢を考えるとあまり現実的ではなく、オペランド測定をより汎用化するためには、入射ビーム集光技術や散乱ビームの集光技術、さらに検出技術の開発が重要になる。今後汎用化が一層進む小型中性子源を利用したオペランド測定についても、これらの技術開発は必要不可欠である。

### (6) その他の課題

欧州、米国、中国、韓国などは、活発に国際的な共同研究を推進しており、実際に成果をあげている。欧米では国際共同研究の実施における法的な障壁が低いことも要因であると思われる。一方、日本では、輸出貿易管理規則による該非判定プロセスが大学、国研において厳格かつ非効率に運用されている場合が見受けられ、試料、データ、治具などの持ち込みや共有が不可欠な国際的な共同研究の実施において律速となっている。国際的な協働促進を阻害する要因とならないよう、本来の輸出貿易管理の主旨から逸脱する運用がないか、注視する必要がある。

### (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	◎	↗	オペランド・ナノSPM計測技術の研究開発では世界を先導してきた実績があり、NIMS、理化学研究所、東京大学、金沢大学、京都大学などで世界トップ水準の成果を創出。SPring-8、PFなど8つの放射光施設でオペランド計測の研究開発が進展。日本発の計測原理（Inami効果）、計測技術（3D-HXSP法、局所磁性探査）、解析技術（スパース位相回復法）などのオペランド計測への応用展開に期待。パルス中性子を用いたストロボスコピック計測法の開発とその応用技術開発で世界に先んじている。小型中性子源や測定技術開発も進展。蓄電池関連の国家プロジェクトには、電子顕微鏡や放射光、中性子など高度計測を担う研究チームが組織されており、その連携も活発。

	応用研究・開発	◎	→	日本国内の企業からもオペランド計測のニーズは高まっているが、対応できる大学や研究機関が少ない。環境エネルギー分野での新規材料・デバイス開発に資する応用研究、特に太陽電池や全固体電池の内部を可視化するオペランドSPM計測の応用展開が進展。放射光X線の計測は、伝統的に産業界の寄与が大きく、計測効率化等において企業の参画が見られる。中性子研究でも、蓄電池におけるLiの動き、電極界面での構造形成の測定などが順調に進む。
米国	基礎研究	◎	↗	DOEから多くの研究資金が国立研究機関や大学に配分され、オペランド計測のための装置や人材が揃う。米国はエネルギー材料デバイス応用を指向した様々な新規SPM計測、多次元SPM計測手法の開発で世界を先導。放射光X線の研究でも米国発の技術は多数あり、質の高い研究成果を継続的に創出。中性子線の研究でもNCNRやORNLにおけるオペランド測定（特に蓄電池、燃料電池関係）が進む。
	応用研究・開発	◎	↗	オペランド/その場計測用試料ホルダの開発を行うベンチャー企業や電子顕微鏡関連メーカーが連携しており、高度な研究開発が進む。国研、大学などにおいて、Liイオン電池、太陽電池などのエネルギーデバイス分野のオペランドSPMによる応用研究が活発に進展。各放射光施設で産業利用プログラムが準備されている。
欧州	基礎研究	○	→	【EU】 放射光施設ESRF、Diamond、SLSなどで精力的に研究が進められる。ILLは世界最高強度の中性子ビームラインと試料環境を持ち、X線との完全同時小角散乱測定を実現するなど、オペランド測定でも世界を主導。 【ドイツ】 電子顕微鏡ハードウェアに強く高性能な電子顕微鏡の開発が進む。ハンブルグ大学が、量子応用のためのオペランド複合極限場SPM (STM/AFM) の開発で先導。 【オランダ】 高温・高圧ガス雰囲気環境でのオペランドSPMの基礎研究と装置開発がライデン大学で進展。 【デンマーク】 高温・高圧ガス雰囲気環境でのオペランドSPMの基礎研究と装置開発がデンマーク工科大学 (DTU) で進展。
	応用研究・開発	◎	↗	【EU】 エネルギー関連材料への展開ではドイツが最もさかんで、英国、オランダ、フランス、ベルギー、スイス、スペインなどの欧州各国において、次世代太陽電池とLiイオン電池などの次世代二次電池のオペランドSPM (特にKPFM) を用いた応用研究が進む。ILLに加えて、PSI-SINQにおけるイメージング技術は順調に発展。 【ドイツ】 CEOS社が収差補正器を世界で初めて市販化するなど、ハードウェアの研究開発が活発。電池関連の企業と研究機関が連携して研究開発が進む。
中国	基礎研究	○	↗	オペランドSPM計測技術としては、界面超伝導やナノフォトニクスなどの量子効果応用を指向した複合極限場SPMの開発と基礎研究で、清華大学、中国科学技術大学などが先導。最先端の電子顕微鏡装置が多くの大学や研究機関に設置。また日欧米で技術を培った人材を早くから教授として招聘。放射光施設ではSSRFを中心に研究が進んでおり、エネルギー、高分子分野で成果がみられる。中性子施設CAS-CSNSが2018年に実運転を開始。
	応用研究・開発	△	↗	エネルギーナノデバイス分野でのオペランドSPMの応用研究が進展、論文等の出版数も米国に次いで多い。電気自動車の大幅な普及に向けて、電池の研究開発が活発化。

韓国	基礎研究	△	→	ナノサイエンス量子応用を志向した極限場SPMの基礎研究ではソウル大学やナノ量子サイエンスセンターで進展。エネルギー分野のオペランドSPMの研究は活発ではない。PLSにオペランドのプラットフォームとなるビームラインの整備が進む。
	応用研究・開発	△	→	電池の研究で、韓国企業が欧米の大学に資金を提供して共同研究を行っている例がある程度で、目立った成果はない。
オーストラリア	基礎研究	○	↗	中性子線の研究では、ANSTOのACNS原子炉中性子源(OPAR)は年間約300日という余裕ある稼働日数をベースに適切な施設運営により、産業界を含め外部ユーザーに使いやすい施設になっている。
	応用研究・開発	○	↗	中性子線の研究では、産業利用に非常に力をいれ、オペランド測定も始まりつつある。

(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

- ・バイオイメージング (ナノテク・材料分野 2.2.4)
- ・構造解析 (ライフ・臨床医学分野 2.5.1)
- ・光学イメージング (ライフ・臨床医学分野 2.5.2)
- ・トランススケールイメージング (ライフ・臨床医学分野 2.5.3)

### 参考・引用文献

- 1) C.T. Herbschleb et al., “The ReactorSTM : Atomically resolved scanning tunneling microscopy under highpressure, high-temperature catalytic reaction conditions”, *Rev. Sci. Instrum.* 85 (2014) : 083703. doi : 10.1063/1.4891811
- 2) S.B. Roobol et al., “The ReactorAFM : Non-contact atomic force microscope operating under high-pressure and high-temperature catalytic conditions”, *Rev. Sci. Instrum.* 86 (2015) : 033706. doi : 10.1063/1.4916194
- 3) J. Frenken and I. Groot (ed) , “Operando Research in Heterogeneous Catalysis”, Springer Series in Chemical Physics Book 114, Springer (2017) . doi : 10.1007/978-3-319-44439-0
- 4) J. Schwenk et al., “Achieving μeV tunneling resolution in an in-operando scanning tunneling microscopy, atomic force microscopy, and magnetotransport system for quantum materials research”, *Rev. Sci. Instrum.* 91 (2020) : 071101. doi : 10.1063/5.0005320
- 5) A. Palacio-Morales et al., “Atomic-scale interface engineering of Majorana edge modes in a 2D magnet-superconductor hybrid system”, *Sci. Adv.* 5 (2019) : eaav6600. doi : 10.1126/

sciadv.aav6600

- 6) J.-F. Ge et al., "Superconductivity above 100 K in Single-Layer FeSe Films on Doped SrTiO<sub>3</sub>", *Nat. Mater.* 14, (2015) : 285. doi : 10.1038/nmat4153
- 7) Y. Zhang et al., "Sub-nanometre control of the coherent interaction between a single molecule and a plasmonic nanocavity", *Nat. Commun.* 8 (2017) : 15225. doi : 10.1038/ncomms15225
- 8) W. Yu, H. J. Fu, T. Mueller, B.S. Brunschwig, and N.S. Lewis, "Atomic force microscopy : Emerging illuminated and operando techniques for solar fuel research", *J. Chem. Phys.* 153 (2020) : 020902. doi : 10.1063/5.0009858
- 9) J. Y. Huang et al. "In situ observation of the electrochemical lithiation of a single SnO<sub>2</sub> nanowire electrode", *Science* 330 (2010) : 1515-1520. doi : 10.1126/science.1195628
- 10) M. Gu et al., "Demonstration of an electrochemical liquid cell for operando transmission electron microscopy observation of the lithiation/delithiation behavior of Si nanowire battery an-odes", *Nano Lett.* 13, no. 12 (2013) : 6106-6112. doi : 10.1021/nl403402q
- 11) K. Yamamoto et al., "Dynamic visualization of the electric potential in an all-solid-state rechargeable lithium battery", *Angew. Chem. Int. Ed.* 49 (2010) : 4414-4417. doi : 10.1002/anie.200907319
- 12) Z. Wang et al., "In situ STEM-EELS observation of nanoscale interfacial phenomena in all-solid-state batteries", *Nano Lett.* 16 (2016) : 3760-3767. doi : 10.1021/acs.nanolett.6b01119
- 13) K. Sakaki, H. Kim, A. Machida, T. Watanuki, Y. Katayama, and Y. Nakamura, "Development of an in-situ synchrotron X-ray total scattering setup under pressurized hydrogen gas", *J. Appl. Cryst.* 51 (2018) : 796–801. doi : <https://doi.org/10.1107/S1600576718005101>
- 14) K. W. Chapman, "Emerging operando and x-ray pair distribution function methods for energy materials development". *MRS Bull.* 41 (2016) : 231. doi : <https://doi.org/10.1557/mrs.2016.26>
- 15) S. Tominaka, H. Yamada, S. Hiroi, S. I. Kawaguchi, and K. Ohara, "Lepidocrocite-Type Titanate Formation from Isostructural Prestructures under Hydrothermal Reactions : Observation by Synchrotron X-ray Total Scattering Analyses", *ACS Omega*, 3 (2018) : 8874 – 8881. doi : 10.1021/acsomega.8b01693
- 16) G.B.M. Vaughan et al., "ID15A at the ESRF – a beamline for high speed *operando* X-ray diffraction, diffraction tomography and total scattering", *J. Synchrotron Radiat.* 27(2020) : 515–528 . doi : <https://doi.org/10.1107/S1600577519016813>
- 17) S.A. Aseyev, E.A. Ryabov, B.N. Mironov, and A.A. Ischenko, "The Development of Ultrafast Electron Microscopy", *Crystals* 10, no. 6 (2020) : 452. doi : 10.3390/cryst10060452
- 18) E. Pomarico et al., "meV Resolution in Laser-Assisted Energy-Filtered Transmission Electron Microscopy" *ACS Photonics* 5, no. 3 (2018) : 759–764. doi : 10.1021/acsp Photonics.7b01393
- 19) D. Polli, V. Kumar, C.M. Valensise, M. Marangoni, and G. Cerullo, "Broadband Coherent Raman Scattering Microscopy" *Laser Photonics Rev.* 12, (2018) : 1800020. doi : 10.1002/

lpor.201800020

- 20) A.A. Fung and L. Shi, "Mammalian cell and tissue imaging using Raman and coherent Raman microscopy", *Wiley Interdiscip Rev. Syst. Biol. Med.* (2020) : e1501. doi : 10.1002/wsbm.1501
- 21) A. Stevens et al., "The potential for Bayesian compressive sensing to significantly reduce electron dose in high-resolution STEM images", *Microscopy* 63 (2013) : 41-51. doi : 10.1093/jmicro/dft042

## 2.6

俯瞰区分と研究開発領域  
共通基盤科学技術

## 2.6.4 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めざ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与える影響、メソスコピックレベルの非線形現象とマクロな特性・機能との関係性など、マルチスケールの階層構造を明らかにすることで諸現象の制御方法を見出し、新材料の設計指針を提供する。また、実験的手段による解析が困難な極限環境下の現象予測などにおいても、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。近年、マテリアルズ・インフォマティクスによる材料探索の高効率化や、量子コンピュータを利用する量子化学計算アルゴリズムの開発が新たな潮流を形成しつつある。

### (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、粒子法、マルチスケールシミュレーション、マテリアルズ・インフォマティクス、ケム・インフォマティクス、データ同化、量子コンピュータ

### (3) 研究開発領域の概要

#### [本領域の意義]

物質の性質の大部分はその電子状態で決まるため、原子配列の自由度に加えて電子状態における電荷自由度、スピン自由度、軌道自由度の4つの自由度を自在に操る方法を明らかにすることが、新規機能性物質の開発で重要となる。また“材料組織”の制御も重要である。これは顕微鏡で観察されるメソスケール(数十nm~数百 $\mu\text{m}$ )の不均一パターンであり、その形態やサイズがマクロスケールの材料の機械的・熱的・電氣的・磁氣的特性、そして各種機能の発現に影響を及ぼす。したがって、メソスコピック現象をいかに正しく理解し制御するかが、多くの材料開発・設計において重要となる。

物質・材料シミュレーション分野は、近年の計算機の大幅な性能向上と、計算プログラムの高度化により、10年前と比較して格段の進歩を遂げた。今や実験結果の解釈ばかりでなく、実験の計画段階におけるスクリーニングや物性予測にも用いられる。実験研究者が自身で計算機を用いてモデリングを行う事例も増えており、計算物質科学の専門家と実験研究者の距離が縮まっている。したがって、これからの物質・材料シミュレーションには、実験で扱う系により近い大規模なシミュレーション技術の開発、実験的に解明が困難なナノメゾ、マクロの異なるスケールが複雑に絡み合った現象の解明、化学反応や物理現象、材料組織が絡み合ったマルチフィジックス現象の解明や予測などが求められる。また、近年著しい発展を遂げている機械学習をはじめ、データ科学の手法と物質・材料シミュレーションの連携による、材料探索や反応経路探索の高効率化、帰納的・経験的推論の効率化が新潮流となってきている。

グローバルな研究開発競争が激化するなか、ナノテクノロジー・材料分野で日本がこれまで同様に先導的な役割を果たせるか、予断を許さない状況にある。このような背景から、計算物質科学やデータ科学を駆使したハイスループットな材料開発に大きな期待が寄せられている。2019年末に発生した新型コロナウイルス感染症(COVID-19)の拡大は研究開発のデジタルトランスフォーメーション(DX)に拍車をかけており、本研究領域の役割はますます大きくなっていくものと考えられる。

## [研究開発の動向]

計算物質科学ではさまざまなプログラムが開発され、それらを用いた応用計算が数多く行われている。東京大学物性研究所は、物質科学シミュレーションのポータルサイト MateriApps を運営しており、目的にあったソフトウェアを簡単に検索できる環境が整備されている。MateriApps には2020年8月現在、273件のアプリケーションソフトウェアが登録されている。以下では個々の分野において広く使われるプログラム、および特に顕著な進展を示す。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

海外製の有償ソフトウェア Gaussian がもっとも広く使われている。他の有償ソフトウェアとして Spartan、Jaguar、Q-Chem、molpro、molcas、AcesIII、TURBOMOLE、ADF などがある。無償のソフトウェアには Gamess、NWChem、Orca、Columbus、Firefly、BAGLE、NTChem (中嶋：理化学研究所)、SMASH (石村：クロスアビリティ)、GELLAN (天能：神戸大学)、ABINIT-MP (望月：立教大学)、PAICS (石川：鹿児島大学) などがある。新しい手法の開発も進んでおり、SAC-CI 法 (中辻：量子化学研究協会)、Devide&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：名古屋大学、倉重：京都大学) など、当該分野の発展に日本が大きく貢献している。

### • 固体系量子状態計算分野

海外製の有償ソフトウェア VASP がもっとも普及している。他の有償ソフトウェアとして Wein2K、Sienta、Castep、Crystal14 など幅広く用いられる。無償のプログラムとして、Quantum Espresso、CPMD、CP2K、exciting、xTAPP (山内：慶應義塾大学、吉本：東京大学)、RSDFT (岩田：Advance Soft)、RSPACE (小野：神戸大学)、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)、PHASE/0 (物質・材料研究機構)、SALMON (矢花：筑波大学) などがあり、OpenMX (尾崎：東京大学) は非平衡グリーン関数電気伝導計算にも対応する。最近では、スピン系の有効モデルに対する統合ソフトウェア HΦ の開発 (山地ら、東京大学)、テンソルネットワーク法やテンソル繰り込み群等の新規手法の開発が進められている。

### • 分子シミュレーション分野

無機材料ソフトマター系のシミュレーションでは LAMMPS が、生体分子系のシミュレーションでは GROMACS がもっとも広く使用されている。この他、有償ソフトウェアとして Amber、CHARMM、無償ソフトウェアとして 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) などがある。分子動力学計算 (MD) では、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んでいる。また近年、機械学習を使って分子動力学の長時間シミュレーションの結果を予測する MD-GAN、第一原理計算の結果から分子力場を機械学習する方法の開発が進められている。

### • 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。実装やカスタマイズがしやすい定番ソフトウェアといえるものはないが、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さまざまなライブラリを提供する取り組みがある。モンテカルロ法は、アモルファス構造の生成や第一原理

計算への応用、Boltzmann輸送方程式にもとづく輸送シミュレーションなど、計算科学のさまざまな場面で用いられる有用な方法である。

#### • 統計力学理論にもとづくシミュレーション分野

積分方程式理論にもとづいて溶液中の溶媒和効果を扱うRISM-SCFや3D-RISM(吉田:九州大学)などのプログラム開発が行われている。エネルギー表示法にもとづいて溶媒和自由エネルギーを簡便に計算できるERmod(松林:大阪大学)は、小分子から高分子まで幅広く適用できる。さらに、固体の電子状態計算と融合させた、第一原理電気化学界面シミュレーションの開発も進んでいる(大谷:産業技術研究所、西原:Advance Soft)。

#### • 連続体シミュレーション分野

Micress、MMSP、OpenPhase、OCTA(土井:北京航空航天大学)などのソフトウェアがあり、主に混晶構造の解析や、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ソスケールまで幅広い系を扱うことができる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のプログラムである。流体力学解析ツールボックスのOpenFormは、化学反応、燃焼、超伝導、乱流などのシミュレーションに広く用いられている。また、高分子の第一原理計算(前述、FMO)を連続体モデルと接続する望月・土井らの試みなど、マルチスケールシミュレーションの高度化が進められている。

#### • 量子コンピュータによる量子化学計算

トロント大(カナダ)のAlan Aspuru-Guzikらが量子コンピュータによる量子化学計算手法を提示して以来、基礎的な研究が進められている。量子ゲートマシン向けの量子化学計算ライブラリOpenFermionをはじめ、波動関数を最適化する変分量子固有値法(Variational Quantum Eigensolver: VQE)を含む開発環境がGoogle、IBM、MicroSoftなどから提供されるなど、ソフトウェア開発の環境整備が進んでいる。世界中でベンチャー企業が立ち上がっており、国内でもQunaSys、blueqat(旧MDR)などが注目を集めている。ただし誤り耐性を有する量子コンピュータの実用化は数十年以上先ともいわれ、NISQ(Noisy Intermediate-Scale Quantum)デバイスなど、早期実現が期待されるハードウェアを想定したソフトウェア開発が進められている。

#### • その他

第一原理計算や分子動力学計算の応用手法として、反応経路ネットワークを探索するGRRM/AFIR法(前田:北海道大学)、TSMD(津田:東京大学)、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)、分子振動やフォノン分散を解析するSindo(八木:理化学研究所)、Phonopy(東後:京都大学)、ALAMODE(只野:東京大学)があげられる。機械学習を用いたケム・インフォマティクスのツールも無償で公開されており、iqsqrおよびXenonPy(吉田:統計数理研究所)、化学構造式のための深層学習ツールChainer Chemistry(Preferred Networks)などがある。

また、励起状態間の遷移を取り扱うsurface hopping(SH)法など非断熱ダイナミクスに関しても、MCTDH、Newton X、PIMD、CPMDなど汎用ソフトウェアが無償で提供されており、さまざまな電子状態計算ソフトウェアと組み合わせることで光化学反応の解析などが可能である。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により、計算時間を要し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]

データ科学の手法と物質・材料シミュレーションの連携による効率的な材料探索を進める取り組みが、近年ますます活発化している。国内初のマテリアルズ・インフォマティクス関連プロジェクト「情報統合型物質・材料開発イニシアティブ (MI<sup>2</sup>I)」は2020年3月に終了したが、JST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」、JST-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」が進行中であり、さらに2018年から産業技術総合研究所によって、世界最大規模の人工知能処理向け計算インフラストラクチャであるAI橋渡しクラウド(ABCI)が運用されている。理論化学および計算化学にインフォマティクスを適用するケム・インフォマティクス領域では、半経験的量子化学計算におけるパラメータの構築、密度汎関数理論における運動エネルギー汎関数および交換相関汎関数の構築、波動関数理論における電子相関エネルギーの予測などに応用されている。

国内では運動エネルギー汎関数の開発(中井:早稲田大学)、電子相関モデル(同左)、交換相関汎関数の開発(常行:東京大学)など、優れた成果があがっている。分子動力学および粗視化分子動力学法においては、系のエネルギーの見積もりや力場の構築、自由エネルギー曲面や運動エネルギーの計算、平衡構造のほか観測したい構造のサンプリングなどに活用されている。ケム・インフォマティクスを活用したソフトウェアの開発・公開も進んでおり、英国のブリストル大学およびスイスのバーゼル大学を中心として開発されたQML、ドイツのベルリン工科大学を中心として開発されたSchNetPackなどが有力である。また、シミュレーションと実測データを融合し相乗効果を生み出す「データ同化」の技術を物質・材料シミュレーションへ導入する研究も活発化している。従来はゲリラ豪雨の予測などの気象分野で活用されてきた技術であるが、近年はX線回折実験とシミュレーションのデータ同化による結晶構造解析、フェーズフィールド法のシミュレーション結果に合致するように分子動力学シミュレーションの原子間パラメータを最適化する技術などの新たな試みが行われている。シミュレーションで得られる物理量を記述子として実験データを機械学習させる未知化合物の物性や反応を予測する技術の開発や、自動有機合成機械と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自動的に未知反応を予測する技術の開発も進められている。

もう1つ、注目すべき新潮流として、量子コンピュータの利用があげられる。2019年、Googleが53量子ビットの量子コンピュータを作製し、量子優位性を達成したことは大きな話題を呼んだ。誤り耐性を持たない数十から数百量子ビットの量子コンピュータ(NISQデバイス)の時代が到来しつつある。NISQデバイスを活用するため、量子コンピュータと従来型の古典コンピュータを組み合わせた量子古典混合アルゴリズムが現在さかんに研究されている。なかでも計算物質科学は特に有望な応用先と目されており、量子古典混合アルゴリズムの中で波動関数を最適化するVQEに加え、量子回路学習など機械学習に向けたアルゴリズムも提案されており、マテリアルズ・インフォマティクスへの応用も期待されている。物質シミュレーションに向けた量子古典混合アルゴリズムの研究開発は、公的研究機関や大企業だけでなく、国内外のベンチャー企業も積極的に取り組んでおり、1つのムーブメントを形成している。

##### [注目すべき国内外のプロジェクト]

2014年度から開始された文部科学省ポスト「京」重点課題、2016年度から開始されたポスト「京」萌芽的課題が2020年3月に終了したことに伴い、2020年4月から新たに文部科学省補助事業・「富岳」成果創出加速プログラムがスタートした。このプログラムでは、①精密・広域・長時間のシミュレーションによるブレイクスルー、②膨大な組み合わせや多様・複雑な条件下でのシミュレーションによる新たな知見の獲得、

③大量データ処理・ビッグデータ解析による新たな研究・開発の展開など、フラッグシップスーパーコンピュータ「富岳」で初めて可能となる超大規模計算・データ解析が求められている。

計算物質科学領域からは、「富岳」成果創出加速プログラムに下記の6課題が採択されている。

#### [領域① 人類の普遍的課題への挑戦と未来開拓]

- 1) 量子物質の創発と機能のための基礎科学—「富岳」と最先端実験の密連携による革新的強相関電子科学 (今田 正俊: 早稲田大学理工学術院総合研究所)
- 2) 全原子・粗視化分子動力学による細胞内分子動態の解明 (杉田 有治: 理化学研究所生命機能科学研究センター)

#### [領域③ 産業競争力の強化]

- 3) 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 (押山 淳: 名古屋大学未来材料・システム研究所)
- 4) 次世代二次電池・燃料電池開発によるET革命に向けた計算・データ材料科学研究 (館山 佳尚: 物質・材料研究機構 エネルギー・環境材料研究拠点)
- 5) 環境適合型機能性化学品 (松林 伸幸: 大阪大学大学院基礎工学研究科)
- 6) 大規模計算とデータ駆動手法による高性能永久磁石の開発 (三宅 隆: 産業技術総合研究所 材料・化学領域 機能材料コンピューショナルデザイン研究センター)

2015年度よりJSTによる支援の下、NIMSにおいて情報統合型物質・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 (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」(2015~2020年度) 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」(2017~2024年度)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の自動探索に向けた取り組みを牽引している。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、NEDO「超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト」(2016~2021年度)が進められ、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。

2019年10月から、JST-ERATOプログラムで初の計算物質科学分野のプロジェクトとして「ERATO前田化学反応創成知能プロジェクト」(2019~2024年度)がスタートした。北大の前田らが開発した反応経路自動探索技術 (AFIR法) と組み合わせ最適化技術を基盤として、量子化学計算、情報科学、さらにはマテリアルズ・インフォマティクスの技術を組み合わせることで、化学反応における原子の動きを予測し、未知の化学反応を提案する技術を開発している。また2018年から世界トップレベル研究拠点プログラム (WPI) の拠点として化学反応創成研究拠点 (ICReDD)が北大に設置され、AFIR法で算出した化学反応経路ネットワークを用いて計算科学、情報科学、実験科学の3分野融合の研究を推進している。

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、磁性材料 (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、さまざまな実験・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。

計算物質科学分野の人材育成およびコミュニティ形成活動として、東北大学、東京大学、分子科学研究所、大阪大学の4機関によって2015年に設立された計算物質科学人材育成コンソーシアム (Professional development Consortium for Computational Materials Scientists: PCoMS)、ならびに2020年5月

に組織された「計算物質科学協議会 (Computational Materials Science Forum : CMSF)」がある。

産学官連携の取り組みとして、2018年から運営が始まった「電気化学界面シミュレーションコンソーシアム」が注目されている。電気化学界面シミュレーション技術を普及し、高性能デバイス開発 (電池、キャパシタ、電気メッキ、腐食、防食、電気化学センサ) を促進することをめざした産学官連携組織で、現在18社の企業が法人会員として参画している。

量子コンピュータによる量子化学計算への支援も始まっている。2018年に発足した文部科学省の「光・量子飛躍フラッグシッププログラム (Q-LEAP)」では、「量子情報処理」技術領域において量子コンピュータのアプリケーション研究が進められており、その中で材料シミュレーションに向けたアルゴリズム開発も行われている。2019年にはJSTさきがけ「革新的な量子情報処理技術基盤の創出」(2019～2024年度)の研究領域が立ち上がり、量子コンピュータを物性物理や量子化学計算に応用する研究も支援している。内閣府の戦略的イノベーション創造プログラム (SIP) 第2期「光・量子を活用したSociety 5.0実現化技術」においても量子アルゴリズムの実行時間も含めた評価・検討が進められている。情報処理推進機構 (IPA) が進める未踏ターゲット事業においても、2018年度から3年続けて「量子コンピューティング技術を活用したソフトウェア開発」がテーマとして設定されており、材料シミュレーションと関連したテーマが採択されている。民間では、blueqat (旧MDR)、QunaSys、Quemixなどのスタートアップ企業が量子コンピュータの物質科学への応用に向けた取り組みを行っている。2020年には量子コンピュータの材料開発への応用をめざすコミュニティ「QPARC」が開設され、材料系メーカーを中心に数十社が参画している。産学の協力も進んでおり、IBMの量子コンピュータにアクセスできるハブ拠点が2018年に慶應義塾大学に開設され、量子コンピュータの実機を用いた量子化学計算の検証も試みられている。2020年には東京大学を中心として「量子イノベーションイニシアティブ協議会 (QII協議会)」が立ち上がり、化学メーカーを含む複数の企業が参加している。

### [米国]

2011年に発表された「Materials Genome Initiative (MGI)」を契機に、物質・材料分野へ5年間で5億ドルの巨費が投入され、マテリアルズ・インフォマティクス分野を牽引した。現在は、MITのMaterials Project、Duke大学のAFLOW、Harvard大学のClean Energy Projectなどで、第一原理計算結果のデータベース開発や材料探索が行われている。Aspuru-Guzikを計画責任者とするベンチャー企業Kebotixが2018年に発足し、人工知能による分子や材料の効率探索や設計、次々に資金調達に成功している。同社は、MIT Technology reviewの“10 Breakthrough Technologies list”や、World Economic Forumの“Technology Pioneer”に選出されるなど注目を集めている。米IBM社もケム・インフォマティクス研究に乗り出しており、産業界からのアプローチも今後増えると予想される。

量子コンピュータを用いた計算化学技術の開発も活発化している。2018年に署名されたNational Quantum Initiative Actでは、量子コンピュータ分野に5年間で1400億円相当の拠出が約束されている。NFSによるQuantum Leap in Chemistry (QLC)をはじめ、DOEも量子情報に関連する材料・化学研究予算をサポートしている。2019年にはNIST (National Institute of Standards and Technology、米国立標準技術研究所) 主導のコンソーシアムQuantum Economic Development Consortium (QED-C)が発足し、100社を超える企業と30以上の大学等の研究機関が参加している。

### [欧州]

EUのHorizon 2020 (2014～2020年) にもとづいて、インフラ (PEACE)、テクノロジー (ETP4HPC)、

アプリケーション (CoE) を3つの軸にして、スーパーコンピュータのシステム開発、ソフトウェア開発、そして利用拡大が推進されている。PRACE (Partnership for Advanced Computing in Europe) は2012年に組織され、現在も計算科学の諸分野への支援を行っている。参加国は26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)、CSCSおよびETH (スイス) の各国研究機関が担当する。また、ICMEg (Integrated Computational Materials Engineering expert group) 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。マテリアルズ・インフォマティクス関連ではNOMAD CoE (Novel Materials Discovery Center of Excellence) が推進されている。Glasgow大学のL. Croninのグループは、実験化学とインフォマティクスの融合により、実験の計画から実験操作まで自動で行うロボットおよびシステムを開発し、高インパクトジャーナルに次々と成果を発表している。量子コンピュータ関連では、2018年にQuantum Flagshipプログラムが設立され、10年間で10億ユーロ (約1400億円) が投じられる。

### [アジア諸国]

中国では、計算物質科学研究に関する論文が格段に増加し、質の高さでも日本を凌駕している。これは、論文発表に対して給与外の金銭的なインセンティブがあることにも起因していると考えられる。超並列計算機環境も世界で上位を占めており、応用計算に多くの資源が供給されている。プログラム開発に関してはまだ途上にあるが、千人計画で欧米から戻った研究者が増加しており、さらには欧米でリタイアした研究者を研究室ごと引き抜くなど、大胆な政策を行なっている。今後、計算物質科学分野においても、中国の存在感はますます高まることが予想される。マテリアルズ・インフォマティクス関連の動向として、例えば2012年に上海大学に設置されたMaterials Genome Instituteがある。量子コンピュータに対しても科学技術イノベーション5カ年計画にもとづき、10年で1200億円以上の投資が行われる計画であり、この枠組みのなかで量子コンピュータを利用した物質シミュレーションの研究開発も進行すると考えられる。

シンガポールでは、国外の研究者にインセンティブを与えて積極的に誘致している。アジアでいち早く大学のグローバル化を進めてきたことが奏功し、近年、研究のレベルが格段に向上している。

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。

西アジアにおいては、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力を入れており、質の高い論文が発表され始めている。

### (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、マクロのそれぞれのスケールにおける物質・材料の組織や特性の理解は着実に進んでいる。今後は第一原理にもと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ていくことが重要である。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、さらには情報科学分野との融合を進める必要がある。

マテリアルズ・インフォマティクスに関しては、日本の強みである基礎理論と計算プログラム開発を、実際の材料開発・合成技術と融合する取り組みが一部に進んでおり、今後のさらなる研究開発投資により材料開

発のハイスループット化が進むことが期待される。ただし、異分野融合の盛り上がりは依然として欧米の後塵を拝している。特に国内のケム・インフォマティクスは歴史的な経緯から化学工学や創薬研究が主流で、分子科学系研究者のコミュニティが醸成していない。化学系を含む理論・実験・計算科学の連携は限定的である。

量子コンピュータ技術に関して、NISQデバイス向けの量子古典混合アルゴリズムについて、ノイズの混入や量子回路自体の最適化の難しさなど、この数年で課題が認知されるようになってきた。現在のところ量子コンピュータの応用に向けた研究は古典アルゴリズムの延長線上にあるものが多い。今後は柔軟な発想のもと、既存の物質・材料シミュレーションの枠組みを超えた方向性を見つけることが肝要である。量子コンピュータ技術はまだ萌芽段階にあり期待先行の面が強い。そのため、期待と現実との乖離が大きいくほど反動が生じやすく、これが長期的な研究開発の継続をはばむ恐れがある。ムーアの法則の限界が近づきつつある状況と既存の物質シミュレーションの成熟度に鑑みると、量子コンピュータ技術の開発は持続的に取り組むべき基礎的研究課題である。

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、研究のフォロワーやユーザーが少なく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1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。また、計算物質科学分野内のコミュニティにとどまらず、実験研究分野のコミュニティとの連携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。特定の研究者に集中投資するファンディング体制だけでなく、少額で短期間のファンディングの機会を増やすことも重要であり、これによって多くのトライアルがなされ、欧米や中国に負けない速いサイクルで材料開発が進むことが期待される。

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。これらは多国籍で開発されており、そこに日本が入り込むことは十分に可能である。欧米で頻繁に開催されているコード開発の研究会に積極的に参加し、パッケージの一部でもわが国が主導権を握れば、欧米諸国から日本で研究を行うことを希望する研究者も増えると期待され、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。

データ科学と物質・材料シミュレーションの連携で研究データが爆発的に増加していくことが見込まれ、今後は計算物質科学領域においても「研究データリポジトリ整備・運用ガイドライン」に沿ったデータマネジメントを行うことが求められている。計算物質科学コミュニティ全体を巻き込んだデータリポジトリの仕組みと継続的な利活用の体制を構築していく必要がある。東京大学物性研究所では、「富岳」成果創出加速プログラムの参画者を対象としたデータリポジトリ事業をいち早く進めている。研究データの可用性と完全性の確保だけでなく、サービスレベルに合わせて機密性を確保する仕組みを整備することが、国内の産学連携を促

進めるために重要な課題となる。

(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	◎	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>従来から電子状態計算法の開発がさかんで高い独自性を発揮している。</li> <li>ポスト「京」重点課題・萌芽的課題で開発された超並列計算ソフトウェアが「富岳」成果創出加速プログラムに引き継がれ世界を牽引。</li> <li>反応経路自動探索プログラム GRRM が注目を集めている。</li> <li>マテリアルズ・インフォマティクスの研究が活発化している。</li> <li>量子コンピュータによる物質計算の研究者が増加しており、論文の質も欧米と比較して遜色ないレベルにある。</li> </ul>
	応用研究・開発	◎	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>国の大型プロジェクトが物質・材料シミュレーションの応用研究を牽引。計算、実験、計測、さらにはデータ科学の合同プロジェクトが増え、出口を見据えた応用研究の取り組みが強化されている。</li> <li>材料系・製薬系のメーカーから物質・材料シミュレーションが重要視され、コンソーシアムやプロジェクトが拡大している。</li> <li>スタートアップ企業を中心に量子コンピューティングのアルゴリズム開発が進められている。</li> </ul>
米国	基礎研究	◎	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>Gaussian、LAMMPSをはじめ、商用・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さかんに進められている。</li> <li>マテリアルズ・インフォマティクス分野について、さまざまな研究がなされており、世界を大きくリードしている。</li> <li>GoogleとIBMなどのIT大手企業が量子コンピュータ研究を推進しており、CaltechのChanのグループやVirginia TechのMayhallのグループが量子コンピュータによる物質計算で優れた成果をあげている。</li> </ul>
	応用研究・開発	◎	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>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。</li> <li>物質・材料シミュレーションのソフトウェア開発自身が1つの産業として定着している。タミフルの薬剤設計の例にみるように、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。</li> <li>材料組織のデータベースの分野で、材料組織の3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。</li> <li>Materials Project、AFLOWに代表されるように、第一原理計算結果のデータベースの開発に加えて、データベースとマテリアルズ・インフォマティクス技術を活用した材料探索など活発に応用研究・材料設計を推進している。</li> </ul>
欧州	基礎研究	◎	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>EU全体としてプロジェクトを推進し、活発な研究開発を行っている。</li> <li>固体系電子状態計算ソフトウェアVASPに代表されるように、計算の高速化や高精度化をめざした電子状態計算ソフトウェアが充実している。</li> <li>反応解析ソフトウェア開発も進んでいる。</li> <li>マテリアルズ・インフォマティクス分野の人事公募案件が増えている。</li> <li>NISQに向けた化学計算の先駆的論文が英国およびスイスを中心に数多く発表されている。オランダでは実機上での分子構造の最適化が初めて行われた。</li> </ul>
	応用研究・開発	◎	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>Horizon 2020で、スーパーコンピュータのシステム・ソフトウェア開発の成果を活用した応用研究が精力的に推進された。ソフトウェア開発そのものが産業の一部となっている。</li> <li>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。</li> <li>フェーズフィールド法のソフト開発では、ドイツが先行。</li> </ul>

2.6  
俯瞰区分と研究開発領域  
共通基盤科学技術

中国	基礎研究	○	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>・マクロスケールのシミュレーションが中心。</li> <li>・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さかんになってきている。</li> <li>・VQEなど量子古典混合アルゴリズムの研究報告例が増えている。</li> </ul>
	応用研究・開発	○	↗	<ul style="list-style-type: none"> <li>・マクロスケールのシミュレーションの応用研究が中心。今後、ナノ・メゾスケールのシミュレーションも、日欧米から中国に帰国した研究者により活発化する可能性が高い。</li> </ul>
韓国	基礎研究	△	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・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ですが、一部の著名な研究者に限定されている。</li> <li>・Samsungが量子コンピュータ・ベンチャー企業に出資するなど量子コンピュータに関与しているが、物質シミュレーションに向けた具体的な成果は報告されていない。</li> </ul>
	応用研究・開発	△	→	<ul style="list-style-type: none"> <li>・エレクトロニクス関係の論文は多いが、今後さらに応用研究が活発化する兆候はみられない。</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

- ・量子情報・通信 (ナノテク・材料分野 2.3.6)
- ・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)

### 参考・引用文献

- 1) 物質科学シミュレーションのポータルサイト「News/Event」『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/> (2021年1月27日アクセス).
- 2) 中嶋隆人「量子系分子科学研究チーム」『理化学研究所 計算科学研究センター』, <https://www.r-ccs.riken.jp/jp/overview/lab/cmsrt.html> (2021年1月27日アクセス).
- 3) Scalable Molecular Analysis Solver for High-performance computing systems (SMASH), “Welcome to SMASH Page”, SMASH, <http://smash-qc.sourceforge.net> (2021年1月27日アクセス).
- 4) 中辻博「研究所の主な研究活動とご寄付のお願い」『認定 NPO 法人量子化学研究協会研究所』, <http://www.qcri.or.jp> (2021年1月27日アクセス).
- 5) アドバンスソフト株式会社「To the Next Stage」『アドバンスソフト株式会社』, <http://www.advancesoft.jp> (2021年1月27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」(SCLS)「ソフトウェア一覧」

- 『SCLS』, <http://www.scls.riken.jp/scruise/software.html> (2021年1月27日アクセス).
- 7) ALPS WIKI, “Welcome to the ALPS project”, ALPS WIKI, [http://alps.comp-physics.org/mediawiki/index.php/Main\\_Page](http://alps.comp-physics.org/mediawiki/index.php/Main_Page) (2021年1月27日アクセス).
  - 8) フリーでオープンなマルチスケールシミュレーションプラットフォーム(OCTA)「What's New」『OCTA』, <http://octa.jp/jp/> (2021年1月27日アクセス).
  - 9) 大野公一「量子科学で世界を変える」『NPO法人量子化学探索研究所』, <https://iqce.jp/> (2021年1月27日アクセス).
  - 10) High performance computer infrastructure (HPCI)「ホームページ」『一般財団法人高度情報科学技術研究機構』, <http://www.hpci-office.jp> (2021年1月27日アクセス).
  - 11) 伊藤聡「情報統合型物質・材料開発イニシアティブ(Mi<sup>2</sup>i)」『Mi<sup>2</sup>i』, <https://www.nims.go.jp/MII-I/> (2021年1月27日アクセス).
  - 12) 科学技術振興機構さきがけ研究領域「[革新材料開発]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」『さきがけ』, [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) (2021年1月27日アクセス).
  - 13) 科学技術振興機構CREST研究領域「[革新材料開発]実験と理論・計算・データ科学を融合した材料開発の革新」『戦略的創造研究事業推進機構(CREST)』, [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) (2021年1月27日アクセス).
  - 14) 国立研究開発法人産業技術総合研究所「機械学習処理ベンチマークMLPerf HPCにて最高レベルの速度を達成」『AI 橋渡しクラウド』, <https://abci.ai/ja/> (2021年1月27日アクセス).
  - 15) A. Aspuru-Guzik, R. Lindh and M. Reiher, “The Matter Simulation (R)evolution”, *ACS Cent. Sci.* 4, no. 2 (2018) : 144-152. doi : 10.1021/acscentsci.7b00550
  - 16) T. Lookman, F. J. Alexander and K. Rajan 『マテリアルズインフォマティクス～探索と設計～』(東京 : S&T出版, 2018), [http://www.stbook.co.jp/products/detail.php?product\\_id=392](http://www.stbook.co.jp/products/detail.php?product_id=392).
  - 17) Emily Grumbling and Mark Horowitz (eds.)『米国科学・工学・医学アカデミーによる量子コンピュータの進歩と展望』西森秀稔 訳(東京 : 共立出版, 2020), <https://www.kyoritsu-pub.co.jp/bookdetail/9784320124554>.
  - 18) A. Peruzzo et al., “A variational eigenvalue solver on a photonic quantum processor”, *Nature Communications* 5 (2014) : 4213. doi : 10.1038/ncomms5213
  - 19) スーパーコンピュータ「富岳」開発：フラッグシップ2020プロジェクト「スーパーコンピュータ「富岳」成果創出加速プログラムについて」『理化学研究所 計算科学研究センター』, <https://www.r-ccs.riken.jp/jp/fugaku/promoting-researches> (2021年1月27日アクセス).
  - 20) 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」『新エネルギー・産業技術総合開発機構』, [https://www.nedo.go.jp/activities/ZZJP\\_100119.html](https://www.nedo.go.jp/activities/ZZJP_100119.html) (2021年1月27日アクセス).
  - 21) 前田理, 岩田覚「前田化学反応創成知能プロジェクト」『戦略的創造研究推進事業』, [https://www.jst.go.jp/erato/research\\_area/ongoing/jpmjer1903.html](https://www.jst.go.jp/erato/research_area/ongoing/jpmjer1903.html) (2021年1月27日アクセス).
  - 22) 計算物質科学協議会「NEWS」『計算物質科学協議会』, <https://cms-forum.jp/> (2021年1月27日アクセス).
  - 23) Materials Genome Institute of Shanghai University (MGI), “About MGI”, MGI, <http://en.mgi>.

shu.edu.cn/About\_Us/About\_MGI.htm (2021年1月27日アクセス).

- 24) 内閣府政策統括官(科学技術・イノベーション担当)・国際動向を踏まえたオープンサイエンスの推進に関する検討会「研究データリポジトリ整備・運用ガイドライン」『内閣府』,  
<https://www8.cao.go.jp/cstp/tyousakai/kokusaiopen/guideline.pdf> (2021年1月27日アクセス).

## 2.6