

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「ナノスケール・サーマルマネージメント基
盤技術の創出」
研究課題「高分子の熱物性マテリアルズインフォマ
ティクス」

研究終了報告書

研究期間 2019年10月～2025年03月

研究代表者：森川 淳子
(東京科学大学 総合研究院 教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

データ駆動型高分子熱物性研究(高分子熱物性インフォマティクス)の学術基盤の整備を行う目的で、「データを作る技術(計測、材料創生)」と「データを分析する技術(機械学習)」を主軸として、プロジェクトから生み出される「データ(物性、プロセス)」から高分子熱物性インフォマティクスの要素技術(計測・合成・構造解析技術・機械学習・データベース)の創生・構築とコンセプト実証を行った。

構築したインフォマティクスプラットフォーム体系において、機械学習が発見した世界初の液晶高分子を合成した。開発したソフトウェア・計測・解析・プロセスに関する新規要素技術の結集の成果である。詳細の要約は以下のとおり。

「データを作る技術(計測)」

・空間スケール、高速性に秀でた新しい熱物性計測法の開発

高分子のナノ・マイクロスケール階層構造の熱物性測定に対応するセンサーデザインは、ナノプローブ、AFM 温度センサー、Si ウェハベース MEMS 型薄膜集積チップセンサ一群を、各種リソグラフィー、レーザー描画装置等多様なプロセスを用いて実現した。 μ -TWA 法はミクロスケール分子性単結晶の結晶軸異方性熱拡散率測定を高精度で実現した。プローブ型ナノスケール TWA 法は、熱接触コンダクタンス(TCC)変化の検知法を確立した。原子間力を用いて接触を制御した AFM 交流型ナノヒーティングによる熱拡散率測定法を実現した。

「データを作る技術(構造解析)」

・60 種の液晶性高分子を合成し、X 線散乱による液晶構造解析結果と熱拡散率データを蓄積した。そのうち 33 種は磁場およびせん断流動配向試料を調製した。液晶配向方向の熱拡散率は液晶配向秩序パラメータと強い正の相関にあり、液晶メソゲンの軸比の増加は熱拡散率の大きさよりもその異方性を大きくした。

「データを作る技術(プロセス)」

・直接レーザー描画法 DLW(Direct Laser Write) 技術(最大パルスエネルギー $80 \mu\text{J}$)を用いた、光学的・熱的異方性を示す幾何学的構造を有する、1D / 2D / 3D ポリマー マイクロ / ナノ構造の作製法を実現した。

「データを作る技術(高分子合成)」

・液晶性エポキシモノマーの主鎖骨格に僅かな位置異性を有するパラ、メタ、オルト置換体を用いて作製された樹脂硬化物が高次構造における分子配列性および熱拡散率に影響を与えることを明らかとした。

「データを分析する技術(機械学習)」

・全原子分子動力学・第一原理に基づく高分子材料系の計算機実験を完全に自動化するソフトウェア RadonPy を開発した。

・RadonPy を用いた世界最大の高分子物性データベースの創出(熱物性を含む 34 物性の自動計算アルゴリズムを実装。アモルファス、延伸配向、モポリマー、コポリマー、架橋ポリマー、混合物の物性等、計算可能な系は多岐に渡る。)

・熱物性高分子インフォマティクスの機械学習の理論・アルゴリズム・オープンソースソフトウェアを構築した。特に、高分子材料研究におけるデータ資源不足の問題を克服するために、計算機実験による大規模データと現実系の限られたデータを統合解析する Sim2Real マテリアルズインフォマティクスの研究を総合的に推進した。

チーム全体の成果

・機械学習が発見した世界初の液晶性ポリイミド 6 種類の合成に成功、開発した測定・解析方法により、従来の方法論では観測し得ない高熱伝導性(面内方向に $1.26\text{W}/(\text{mK})$)、高耐熱性(液晶相転移 350°C 以上)を高秩序性・異方性の検証とともに達成した。

・2 国研、9 大学・37 企業に属する約 240 名が参画する産学連携コンソーシアムを形成し、富岳等のスーパーコンピュータを利用して 10^5 オーダの高分子を包含する世界最大の高分子物性データベースを開発した。(富岳プロジェクトとの連携)

(2)顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. 热物性高分子インフォマティクスの機械学習理論の構築と液晶性高分子の発見

概要:熱物性高分子インフォマティクスの機械学習の理論・アルゴリズム・オープンソースソフトウェアを構築した。特に、高分子材料研究におけるデータ資源不足の問題を克服するために、計算機実験による大規模データと現実系の限られたデータを統合解析する Sim2Real マテリアルズインフォマティクスの研究を総合的に推進した。XenonPy の開発、高分子自動設計システム SPACIER の開発、液晶高分子設計アルゴリズム等を実施した。また、これらのツールを適用して高熱伝導高分子液晶を発見した。

2. ナノ・ミクросケール熱物性統合測定法の開発

概要:熱移動現象の精密測定に注力したナノ・ミクروسケール熱物性統合測定法の開発を異方性熱物性の起源解明に向けた要素技術として確立、特にナノプローブによる熱的界面の特定、加振型 AFM ナノ加熱法による温度波位相検出、ミクロ単結晶の異方性熱拡散率測定、非弾性測定法によるフォノンスペクトルの測定を実現。フェムト秒直接レーザー描画法(Direct Laser Write, DLW)を用いた複屈折性微小立体構造作製に成功。高分子熱物性インフォマティクスとの連携は、プロセスを考慮した新規材料の開発につながった。

3. 新規液晶性高分子の熱伝導性発現因子の解明

概要:伸びきり鎖ラメラを形成する主鎖型高分子液晶性ポリエステルを開発、また、アゾベンゼンをメソゲンとする側鎖型液晶ポリメタクリレートのスマクチック(Sm)層構造が熱拡散率に影響を及ぼすことを見出した。一方、エポキシ樹脂におけるメソゲン部分の対称性と剛性が高次構造および熱伝導率に与える影響を体系的に解明、オルト位、メタ位、パラ位のエポキシモノマーと 1,4-フェニレンジアミンを共重合することで、ネマチック構造を持つ樹脂を得た。最も対称性の高いパラ位置換モノマーを含む樹脂が優れた分子配向性を示し、熱拡散率は、最も対称性の低いモノマー樹脂の 1.7 倍以上の熱拡散率を示した。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1. RadonPy の開発と高分子物性データベース作成

概要:全原子分子動力学・第一原理計算に基づく高分子材料系の計算機実験を完全に自動化するソフトウェア RadonPy を開発した。最新版の RadonPy には、熱物性を含む 34 物性の自動計算アルゴリズムが実装されている。アモルファス、延伸配向、架橋ポリマーの物性等、計算可能な系は多岐に渡る。産学連携コンソーシアムを形成し、富岳等のスーパーコンピュータを利用して 10^5 オーダの高分子を包含する世界最大の高分子物性データベースを開発した。

2. 大規模計測に資するデバイス作成

概要:新規高分子材料のマイクロ・ナノスケールの熱特性を測定する温度・熱拡散センシングデバイス(M/NTS デバイス)開発を達成。Si ウェハーベースのデバイス設計と製造プロセスに加えて SiNx 薄膜上のデバイス作製を確立。さらに、新しいダイシングプロセス導入により歩留まり 95%以上のメンブレンチップの作製を実現し、チップ封止には、フリップチップ法を導入、配線工程の効率化を達成した。 100 nm 高分子薄膜の $50\text{ }\mu\text{m}$ ピッチの面内熱拡散率測定を実現した。

3. Sim2Real 高分子熱物性インフォマティクスプラットフォームを用いた新規高分子の設計と開発

概要:実証研究では、液晶状態を形成するポリマーを設計する機械学習アルゴリズムを用いて、芳香族ポリイミドの大規模仮想ライブラリから 6 種類の候補に絞り込み、ポリマーの新規合成を行なった。合成されたポリイミド樹脂はいずれもスマクチック相を形成し、その中の一部は熱伝

導率が 1.0 W/(m·K) を超えることを確認した。これらは機械学習により予測・発見された初めての高分子液晶である。また、文献から抽出したデータを用いて、スマートチック液晶とネマチック液晶を作り分けるための分子設計アルゴリズムを開発した。

<代表的な論文>

1. Hayashi, Y.; Shiomi, J.; Morikawa, J.; Yoshida, R., RadonPy: Automated physical property calculation using all-atom classical molecular dynamics simulations for polymer informatics. *npj Computational Materials* **2022**, 8, 222.

概要: 全原子古典分子動力学及び第一原理計算による高分子材料系計算機実験を全自動化する世界初のオープンソースソフトウェア RadonPy をリリースした。最新版の RadonPy には、熱物性を含む 34 物性の自動計算アルゴリズムが実装されている。計算可能な系は、アモルファス、延伸配向、モポリマー、コポリマー、架橋ポリマー、混合物の物性等を含む。引用数は 2025 年 5 月時点で 76 (top 10% 論文)。Altmetric attention score では、同時期に発表された全論文中の top 5% にランクインしている。国内外多数のメディア(新聞やウェブニュース)で取り上げられた。

2. Maeda, H; Wu, S; Marui, R; Yoshida, E; Hatakeyama-Sato, K; Nabae, Y; Nakagawa, S; Ryu, M; Ishige, R; Noguchi, Y; Hayashi, Y; Ishii, M; Kuwajima, I; Jiang, F; Vu, X. T; Ingebrandt, S; Tokita, M; Morikawa, J; Yoshida, R; Hayakawa, T, "Discovery of liquid crystalline polymers with high thermal conductivity using machine learning", *npj Computational Materials* **2025**, in press.

概要: 本研究は、ポリマー材料の液晶状態形成を化学構造に基づいて 96% 以上の精度で予測する機械学習モデルを、世界で初めて開発した。このモデルを用いて、液晶性ポリイミドの化学構造を包括的に特定し、6 種類のポリマーを新規合成した。これらのポリマーは液晶構造を形成し、熱伝導率は $0.722 \sim 1.26 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ に達することを実験的に確認した。この成果は、電力電子機器や自動車部品などへの応用に向け、ポリマー材料の熱伝導性向上における革新的な知見を提供するものである。

3. "Lock-in photothermal method for in-plane thermal diffusivity measurements using arrayed temperature sensors on suspended SiNx membranes", F. Jiang, M. Ryu, V. Pachauri, S. Ingebrandt, X. T. Vu, and J. Morikawa, *Rev. Sci. Instrum.* **94**, 094903 (2023)

概要: シリコンナイトライド (SiN_x) ナノ薄膜上に、白金抵抗体によるマイクロスケール温度センサー アレイを配置したセンサーデバイスを、シリコンウェハーベースで作成し、空気中および真空中のナノ薄膜の面内熱拡散率を測定するためのロックインフォトサーマル法を開発した。フィン近似の枠組み内で 2 次元システムを 1 次元モデルに簡素化する四極子法を用いて結果を解析した。ナノ薄膜表面に沿った空気の平行熱拡散が膜内の熱拡散に影響を与え、その熱拡散率は距離の増加に伴い増加することが示された。真空中では SiN_x 膜の熱拡散率はバルク値よりもはるかに小さく、ナノスケールシステムの熱伝導における重要な知見となった。

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 「計測」グループ

研究代表者: 森川 淳子 (東京工業大学 物質理工学院 材料系教授)

研究項目

・高分子ナノ・マイクロスケール熱伝導特性測定法の開発とインフォマティクス実装

実施項目 1: 空間スケール、高速性に秀でた新しい熱物性計測法を提案

実施項目 2: 異方性熱伝導精密測定のデータベース構築のための要素技術開発

実施項目 3: 偏光を用いた分光ポラリスコピーの一般化とソフトマテリアル構造解析への応用

実施項目 4:SiNx 膜上のマイクロ温度センサーレイのデバイス設計と作製

② 「機械学習・計算科学」グループ

研究代表者:吉田 亮 (情報・システム研究機構 統計数理研究所 データ科学研究系・教授／ものづくりデータ科学研究センター センター長／総合研究大学院大学複合科学研究所 統計科学専攻・教授)

研究項目

- ・機械学習と計算科学に基づく熱物性マテリアルズインフォマティクス

実施項目 1:第一原理計算・分子動力学計算による高分子熱物性データベースの開発

実施項目 2:機械学習とシミュレーションの融合による高分子設計

③ 「構造解析」グループ

研究代表者:戸木田 雅利(東京工業大学 物質理工学院 教授)

研究項目

- ・液晶高分子の構造と熱伝導性との相関解明

実施項目 1:伸びきり鎖ラメラを形成する主鎖型高分子液晶の開発

実施項目 2:繰り返しユニット構造および液晶構造の最適化による液晶性高分子の高熱伝導化

実施項目 3:液晶ダイレクター方位方向に大きい液晶高分子の熱伝導率を有効活用した高熱伝導性液晶ポリマーコンポジットの提案

④ 「指向性制御」グループ

研究代表者:ミゼイキス ビガンタス(静岡大学・学術院工学領域 電子物質科学系列 電子物質科学専攻 教授)

研究項目

- ・高分子ナノ・マイクロ3次元構造形成による熱的特性の制御

⑤ 「材料創製」グループ

研究代表者:早川 晃鏡(東京工業大学 物質理工学院 教授)

研究項目

- ・高分子熱伝導性の理解に向けた体系的材料合成

⑥ 「計測2」グループ

研究代表者:劉 芽久哉(国立研究開発法人産業技術総合研究所 物質計測標準研究部門熱物性標準研究グループ 主任研究員)

研究項目

- ・高分子ナノ・マイクロスケール熱伝導特性精密測定

(2)国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

・2国研、9大学・37企業に属する約240名が参画する产学連携コンソーシアムを形成し、RadonPyならびに高分子物性データベースを共同開発している。多数の参画者がこれらの学術資源を各自の研究開発に活用している、また、2024年3月に統計数理研究所「マテリアルズインフォマティクス研究推進センター」(センター長:吉田亮(主たる共同研究者))を設立した。本CRESTで開発した成果を含むマテリアルズインフォマティクスの解析技術や、RadonPy高分子物性データベースを技術的駆動力とし、産学・国内外の多数の研究機関(企業の寄付講座2件を含む)と連携して様々な材料系を対象に共同研究を展開している。

・ドイツ(3大学、1国研)、フランス(2大学、3国研)、英(1大学、1国研)、ギリシャ(1大学)、中国(1大学)、豪州(1大学)、リトアニア(1大学)、ポーランド(1大学)、スウェーデン(1企業)、スイス(1企業)との具体的な共同研究・共同事業ネットワークを構築し、推進している。