

研究終了報告書

「機械学習を活用したナノカーボンアトミックエンジニアリング」

研究期間：2017年10月～2021年3月

研究者：加藤 俊顕

1. 研究のねらい

本研究では様々な分野への応用が期待されているナノカーボン物質である“カーボンナノチューブ”を研究対象とし、発見から25年以上の間未解決である“カイラリティ制御合成”を、インフォマティクスの手法を取り入れることで実現することを目指す。

カーボンナノチューブは、グラフェンシートが円筒状に丸まった構造を持つ直径1nm程度の一次元物質である。カーボンナノチューブの物性は、グラフェンシートを丸める際の螺旋度に相当するカイラリティによって決定する。同様のナノチューブでもカイラリティに依存し金属的物性を示すものと半導体的物性を示すものが存在し、さらに同じ半導体物性をもつナノチューブの中でも、バンドギャップが0.1～1 eVの範囲で大きく異なる。このため応用に向けて、カイラリティを完全に制御したナノチューブの合成が非常に重要な課題となっている。1991年の飯島氏による発見以来25年以上経過する現在においてもナノチューブのカイラリティを完全に制御する手法は開発されていない。ナノチューブの合成は、触媒金属に炭化水素原料ガスを供給する化学気相堆積(CVD)法により行われるのが一般で、合成パラメータの最適化により層数制御や直径制御等ある程度の構造制御は既の実現されている。しかしながら、真に重要なカイラリティ制御に直結するサブナノオーダーの原子構造制御の実現には至っていない。そこで本研究では、機械学習を用いたアプローチにより、カイラリティ完全制御合成手法の開発を目指す。

さらに上記で得られたカーボンナノチューブに対する機械学習活用法の知見を類似の原子層材料に対しても適用し、機械学習の有用性を検証することも目的とする。

2. 研究成果

(1) 概要

カーボンナノチューブのカイラリティ制御に向け、最適触媒を高効率で探索するシステムを構築し、ハイスループット実験と機械学習によるスクリーニングを活用し、特定のカイラリティ純度を向上させる触媒探索を実現した。最適条件下における合成結果から、(6,5)カイラリティが90%を超える世界最高純度での合成に成功した。また、類似の原子層物質である遷移金属ダイカルコゲナイドやグラフェンナノリボンに関しても、機械学習による合成条件最適化が有効であることを実証した。

(2) 詳細

研究テーマ A「カーボンナノチューブのカイラリティ制御合成」

機械学習を活用したハイスループット触媒スクリーニング法を開発した。本手法を活用することにより、(6,5)カイラリティ純度90%以上の超高純度(6,5)カイラリティ合成に成功した。これは、(6,5)カイラリティの世界最高純度である。また、本手法を他のカイラリティに対しても適用

した結果、(7,5)カイラリティにおいても 78%の高純度で合成することに成功した。こちらも(7,5)カイラリティの世界最高純度である。今後より詳細な条件最適化を通じ、更なる高純度化が期待できる。

研究テーマ B「機械学習を活用した遷移金属ダイカルコゲナイドの大面积合成」

原子層物質である、遷移金属ダイカルコゲナイドの合成を機械学習を用いて高精度化することを試みた。機械学習による予測精度を高めるためには、より正確な合成場の情報を取得することが望ましい。そこで、まずは CVD 合成における様子を直接可視化可能な、その場観測 CVD 装置の開発を行った。その結果、単層 TMD の成長過程を可視化することに世界で初めて成功した[成果 1: Sci. Rep. (2019)]。次に、その場観測で得られた画像と合成条件の時間変化から結晶サイズを予測することを試みた。その結果、その場観測画像から 40s後の単層 TMD の基板上被覆率を比較的高い精度で予測することに成功した。本手法を発展させることで、機械学習を用いた単層 TMD の高品質合成が期待できる。

研究テーマ C「機械学習を活用したグラフェンナリボン構造制御合成」

グラフェンが1次元短冊形状となったグラフェンナリボンにおいては、様々な応用に特化した最適構造が存在する。そこで、各種応用に適した構造制御合成を機械学習による合成条件の高効率最適化により試みた。本研究では光応答性能、熱電性能、量子デバイス等の応用に向けた構造最適化を目指した。まず、機械学習を行うにあたり、学習データの目的変数にあたる応用特性と構造情報のデータセット取得が重要である。そこで、特性の詳細な測定を行ったところ、ナリボンの構造に依存して、従来ナノカーボン材料に比べ極めて高い熱電性能を持つことが判明した [成果 2: ACS Nano (2019)]。また、特異なナリボン構造において、パーシステント光伝導という極めて特異な光応答特性が発現することが明かとなった[成果 3: Sci. Rep. (2018)]。そこで、次にこれらの応用に特化して、各特性の高性能化を目的とした合成条件の最適化を行った。具体的には、プラズマ CVD に含まれる合成温度、ガス圧力、ガス混合比、プラズマ生成電力をパラメータとして、これらをベイズ最適化により高効率で最適化した結果、少ない試行回数で各性能が向上できることが明かとなった。

以上の様にテーマ A のカーボンナノチューブのカイラリティ制御合成に関しては、(6,5)、(7,5)二種類の選択合成を世界最高純度で実現した。またテーマ B,C に関しても、類似の原子層物質の合成分野において機械学習の有用性を実証できた。従って本課題における当初目標を十分達成できたと判断する。

3. 今後の展開

本研究により、カーボンナノチューブのカイラリティ選択性を向上させる触媒探索に機械学習が有効であることを実証した。今後は、本手法を更に発展させることで、更なるカイラリティ選択性の向上が期待できる。また本手法で開発した超高純度ナノチューブを使った応用展開も進める予定である。さらに、他の類似原子層材料に関しても合成条件最適化に加え、様々な実験条件の高効率探索が期待でき、機械学習と実験研究の融合を進める予定である。

4. 自己評価

本研究では、機械学習を活用したカーボンナノチューブのカイラリティ制御に取り組んだ。研究開始当初は手探りの部分もあったが、当領域会議における発表と議論を通じ、本課題にお

ける機械学習の活用方法を明確化することができた。データの高効率取得に設備投資をすることで、機械学習に必須の学習データを高効率で取得することが可能となった。さらに、本研究により、機械学習を活用した最適触媒探索を行い、極めて高いカイラリティ選択性を発現する複数の触媒探索に成功した。世界最高純度を達成し、当初目標の 90%以上の超高純度単一カイラリティ合成を実現したことから、本課題の目標を十分に達成できたと言える。本成果は、カーボンナノチューブ研究領域において長きに渡り未解決であった、カイラリティ制御問題を解決できる新たな可能性を示したものであり、当領域内外において大きな波及効果が期待できる。また、類似の原子層材料の展開に関しても、高効率での合成条件の探索を現場レベルに落とし込み既に必須の手法として活用していることから、目標を達成できたと言える。今後は、機械学習の精度をさらに向上することで、カイラリティの更なる高純度化や原子層材料の高精度合成が期待できる。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 4件

1. C. Li, T. Kameyama, T. Takahashi, T. Kaneko, T. Kato *, “Nucleation dynamics of single crystal WS₂ from droplet precursors uncovered by in-situ monitoring”, Scientific Reports, 2019, Vol. 9, pp. 12958-1-7

原子層物質である遷移金属ダイカルコゲナイドの成長過程を直接観測する手法を世界で初めて開発した。さらに、本手法により液滴前駆体が成長に重要な関与をもたらすことを明らかとした。

2. Q.-Y. Li *, T. Feng, W. Okita, Y. Komori, H. Suzuki, T. Kato *, T. Kaneko, T. Ikuta, X. Ruan *, K. Takahashi, “Enhanced Thermoelectric Performance of As-Grown Suspended Graphene Nanoribbons”, ACS Nano, 2019, Vol. 13, pp. 9182-9189

原子層物質であるグラフェンナノリボンに関して、我々の手法で合成した高集積グラフェンナノリボンにおいて極めて高い熱電特性が発現することを明らかとした。さらに、本熱電特性が本手法で合成した高品質 GNR における、高いキャリア輸送能力に由来する可能性を見出した。

3. H. Suzuki, N. Ogura, T. Kaneko, T. Kato *, “Highly stable persistent photoconductivity with suspended graphene nanoribbons”, Scientific Reports, 2018, Vol. 8, pp. 11819-1-9

原子層物質であるグラフェンナノリボンに関して、我々の手法で合成した高集積グラフェンナノリボンにおいて極めて、特異な光応答特性が発現することを明らかとした。さらに本特性を活用して不揮発性メモリの動作実証も行った。

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0件

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

主な招待講演

- Toshiaki Kato and Toshiro Kaneko, “Integrated Synthesis of Millions of Suspended Graphene Nanoribbons and its Non-Volatile Memory Applications”, 2020 Virtual MRS Spring/Fall Meeting & Exhibit, USA, 2020.11.27-12.4.
- Toshiaki Kato and Toshiro Kaneko, “Plasma Synthesis of Integrated Graphene Nanoribbons and its Optoelectrical Applications”, 73rd Annual Gaseous Electronics Conference, USA, Virtual, 2020.10.6.
- Toshiaki Kato and Toshiro Kaneko, “Bottom up Synthesis and Optoelectrical Application of Suspended Graphene Nanoribbon Arrays in Wafer Scale”, 2018 MRS Fall Meeting & Exhibit, Boston, Massachusetts, USA, 2018.11.27.
- Toshiaki Kato and Toshiro Kaneko, “Wafer-scale Fabrication of Suspended Graphene Nanoribbon Arrays –from Growth Dynamics to Optoelectrical Applications–”, The AVS 65th International Symposium & Exhibition, Long Beach, CA, USA, 2018.10.23.

プレスリリース

- 『半導体原子シートの新たな合成機構を解明 ～次世代フレキシブル光電子デバイス実現に期待～』, 2019.9.9
- 『グラフェンナノリボンを使った新型メモリを開発 ～フレキシブル不揮発性メモリの実現に期待～』, 2018.8.6