

超先端材料超高速開発基盤プロジェクト(超超PJ)  
最終成果報告会

# 「高機能光学材料の研究開発」

2022年1月18日(火)

コニカミノルタ株式会社

久保 伸夫

## <本日の発表>

### モデル素材

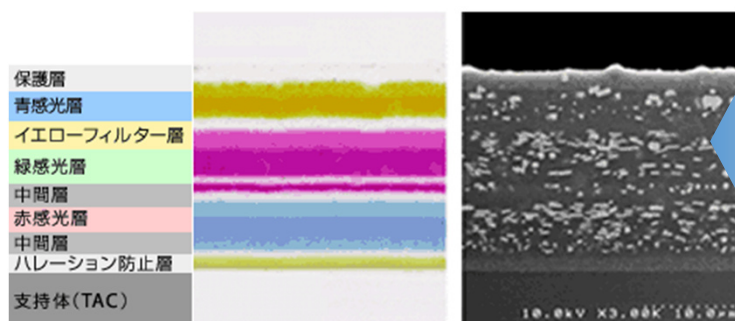
前半 : 銀ナノ粒子

後半 : 二酸化バナジウムナノ粒子

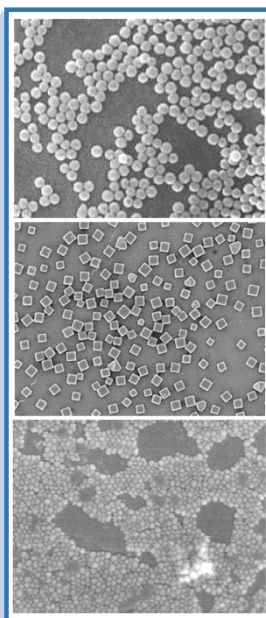
## コニカミノルタの高機能性光学材料

「写真感光材料で培った粒子、分散、薄層・重層塗布技術」

⇒ 新たな商材に展開



ナノ粒子の精密制御



組成

構造

粒径

形状

分散

### 光学分野

- ・フォトクロミック材料
- ・フォトサーマル材料
- ・発光、蛍光材料
- ・色材

### エレクトロニクス分野

- ・配線材料
- ・接合材料
- ・半導体材料
- ・磁気記録材料

### 化学分野

- ・触媒
- ・吸着、吸蔵

### 構造材料分野

- ・伝熱材料
- ・耐熱材料
- ・高弾性材料
- ・難燃性材料

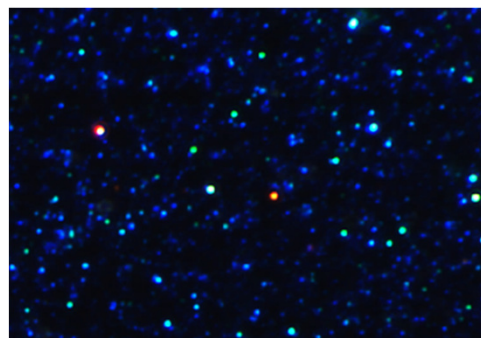
## モデル素材: 銀ナノ粒子

- 粒子形状や分散状態により、機能物性を制御
- 制御幅が広い光学特性、高い導電性
- 分散インクの塗膜は、反射膜や、導電回路に適用できる
- 貴金属としては比較的安価

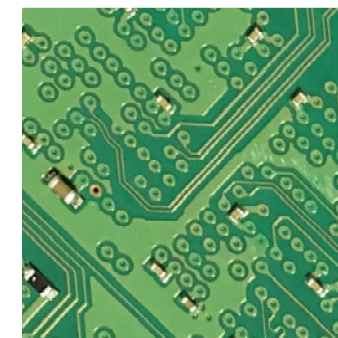
色材



イメージング



プリントドエレクトロニクス



## 開発項目

- 粒子合成パラメータの組合せを高速に評価できるプロセス
- 計算科学による単粒子および粒子分散材料の光学特性予測
- 粒子分散材料の試作高速化

## □ モデル材料 銀ナノ粒子の従来認識:

- 粒子合成: 膨大なパラメーターを、複雑に組合せる世界

「原材料・組成」「反応剤」「添加剤」「分散剤」「溶媒」  
「濃度」「温度」「反応時間」「混合タイミング」

- 粒子形状や分散状態により、物性が変化

## □ 課題:

- 「粒子自身の設計」「合成制御」 晶癖、欠陥、粒子内、粒子間
- 「粒子が設けられる場の設計」 液・塗膜中の分散、密度
- 「光学特性と、銀粒子の状態との関係」 分光スペクトル

### 光学特性予測

- 基本戦略:  
光学特性の計算と、機械学習による、粒径形状・分散状態等と光学応答の相関解析
- 期待効果:  
試作回数削減

### 試作高速化

- 基本戦略:  
反応の高速化  
ハイスループット化による高速試作
- 期待効果:  
試作期間短縮

## ⑥ 様々な界面制御技術による自在なヘテロ接合素材の開発

- ハイスループット合成・評価システムの構築
- 光学応答を制御するためのパラメータの特定



		分散剤											
		01	02	03	04	05	06	07	08	09	10	11	12
添加剤	A	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	○	×
	B	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×
	C	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×
	D	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×
	E	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×
	F	×	×	×	×	○	×	×	○	×	×	×	×
	G	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	○	×
	H	×	×	×	×	○	○	×	×	×	×	×	×

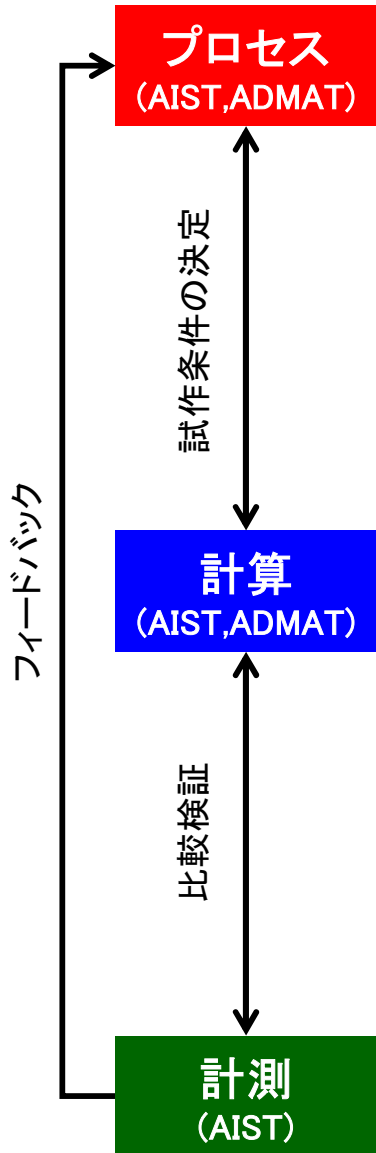
## ① キャリア輸送マルチスケール計算シミュレータの開発

## ② 外場応答材料と複雑組成材料の大規模計算シミュレータの開発

- マルチスケール光学応答計算の枠組み整備
- ナノ粒子の光学特性(サイズ効果、形状効果、多粒子効果)の計算
- 順方向シミュレーションによる大量の光学応答データ生成
- 機械学習による、粒径形状・分散状態等と光学応答の相関解析

## ⑩ 表面・界面の構造計測とナノ領域の多物性同時評価

- マイクロ分光によるナノ粒子の光学特性測定



# 開発成果の概要

## 【他テーマ、他企業とのPJ内連携】

- 機械学習勉強会 (AIST、積水化成品、DIC、コニカミノルタ)
- Ag、VO<sub>2</sub>合同検討会 (CD-FMat ②テーマ)

## 【外部発表】 5件

- ○ 柏木恒雄、陶究、依田智、中村恒夫: “Flow synthesis of silver nanoparticles and its characterization of optical property” The 8th international symposium on “Molecular Thermodynamics and Molecular Simulation (MTMS ‘18)” 2018.9(千葉)
- ○ 柏木恒雄: “超超PJにおけるコニカミノルタの取組み” 第57回炭素材料夏季セミナー 2019.9(福岡)
- ○ 北弘志: “計算科学・マテリアルズインフォマティクスの材料開発への適用” 技術情報協会セミナー 2020.2(東京)
- ○ 柏木恒雄、竹林良浩、小野巧、陶究: “光機能性ナノ粒子の多検体合成と解析” 化学工学会第86年会 2020.3(オンライン)
- ○ 小野巧、竹林良浩、陶究、柏木恒雄: “ナノ粒子のフロー自動合成システムの開発と機械学習による解析” 化学工学会 第52回秋季大会 2021.9(岡山/オンライン)

## 【論文発表】 2件

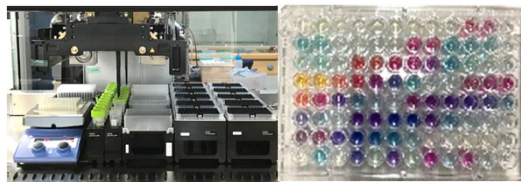
- Tsuneo Kashiwagi, Kiwamu Sue, Yoshihiro Takebayashi, Takumi Ono, Reaction Chemistry & Engineering に投稿準備中
- Takumi Ono, Yoshihiro Takebayashi, Tsuneo Kashiwagi, Kiwamu, Sue Reaction Chemistry & Engineeringに投稿準備中

## 【短納期化】

- プロセス: 1/5~1/7
- 計算・機械学習: 1/4
- 短納期化: 1/18~1/20 程度の開発期間短縮

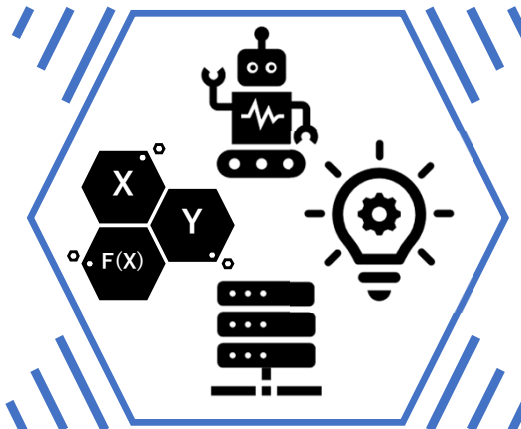
# 開発項目トピックス (プロセス-計測-計算の連携)

**① プロセス + 計測**  
 大量粒子合成と分散液  
 スペクトルデータ大量創出

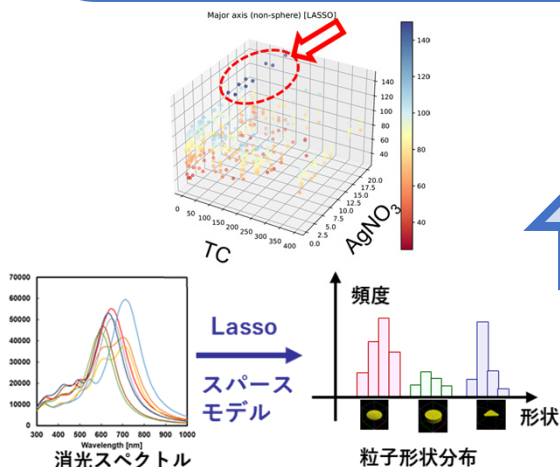
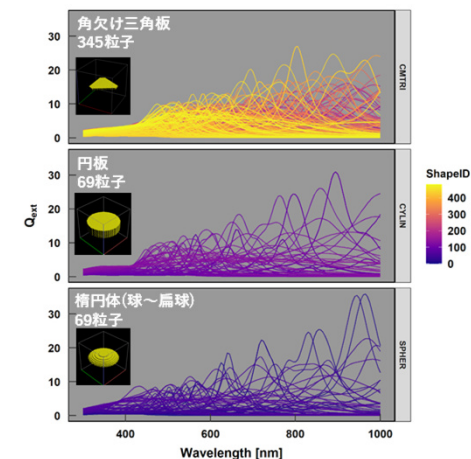


**② 計算**  
 (DDA+GPR)  
 順方向  
 光学応答データ創出

**連携**

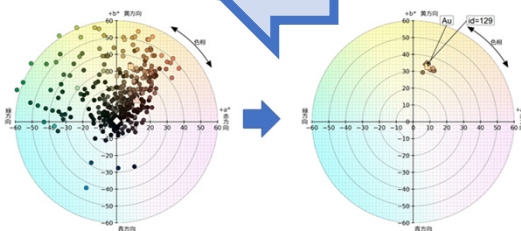


**データ駆動**



**④ 機械学習 (LASSO)**  
 計測スペクトルからナノ粒子  
 分布解析 + 所望のナノ粒子  
 の合成条件の逆予測

**③ 機械学習**  
 (ベイズ)  
 ナノ粒子粒径形状絞り込み





# 開発項目トピックス (プロセス)

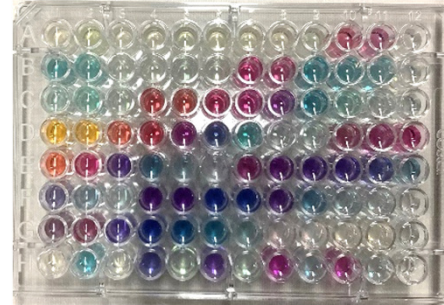
インプット  
ファイル



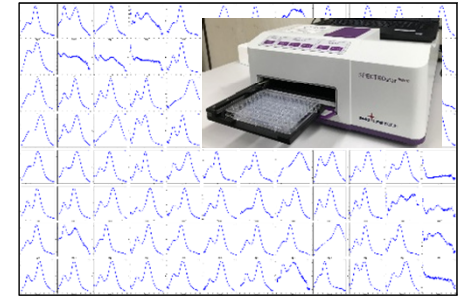
自動分注装置による  
ハイスループット合成



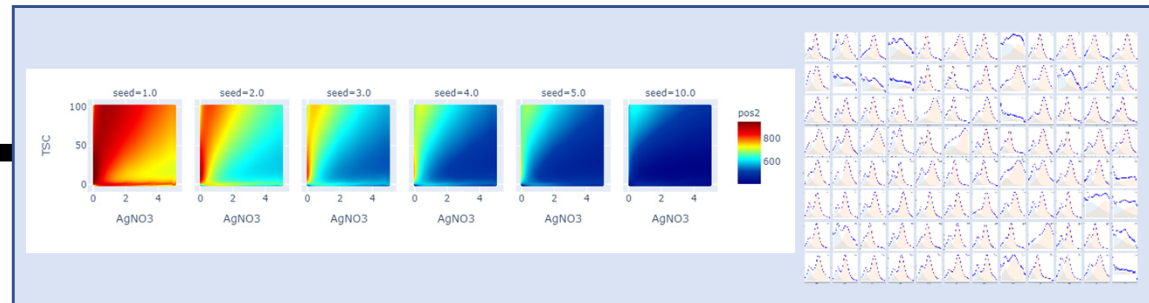
測定サンプル調整



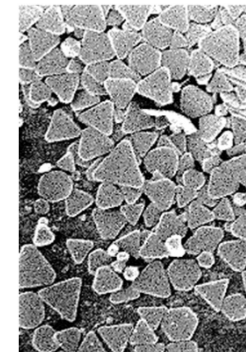
プレートリーダーによる  
UV-Visスペクトル評価



データ解析 (可視化、回帰、分類)

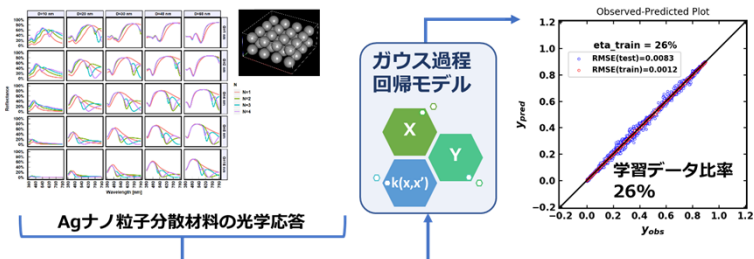


- 分散剤や添加剤の種類等を変え、96条件を1日で合成・評価
- 有望な分散液は顕微鏡観察により粒子サイズや形状を確認
- 必要に応じてスケールアップ

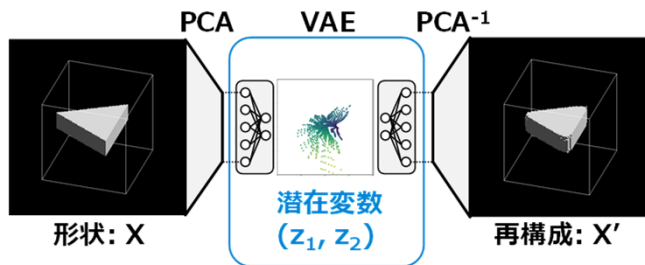


## GPRによる順方向光学応答 データ創出とベイズ最適化

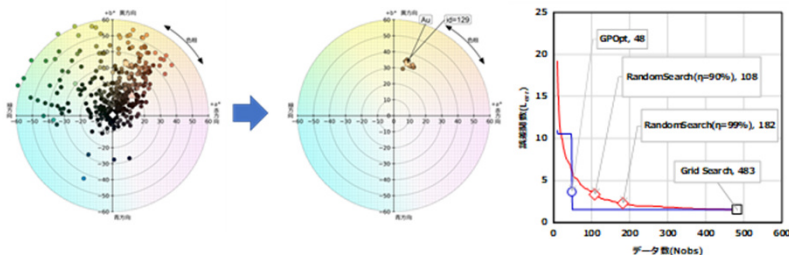
DDA+GPR 少ないdataで予測可能



形状記述子(PCA+VAE 二次元に圧縮)



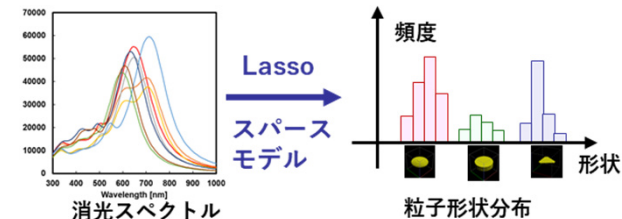
ベイズ最適化



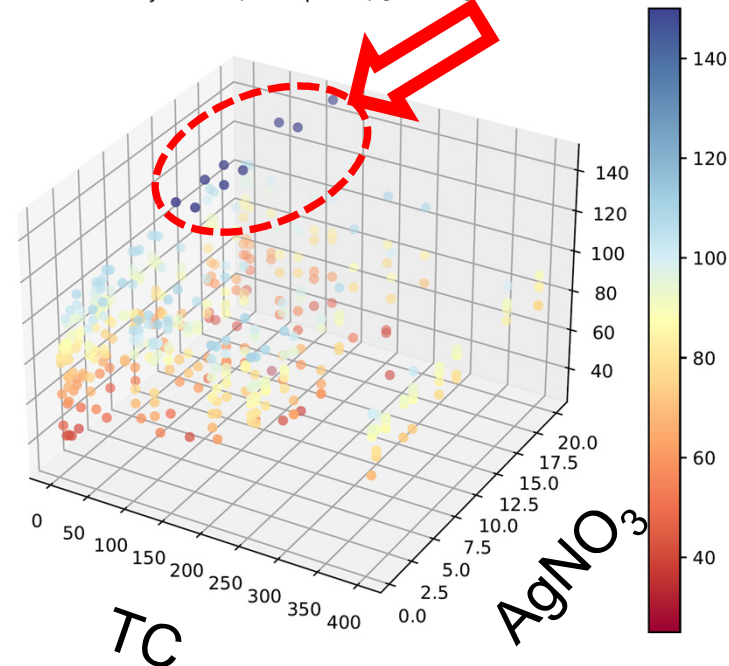
- DDA+GPRによる順方向 光学応答データ創出
- 形状記述子とベイズ最適化によるナノ粒子形状絞り込み

## LASSOによる非球形ナノ粒子 合成条件の逆解析

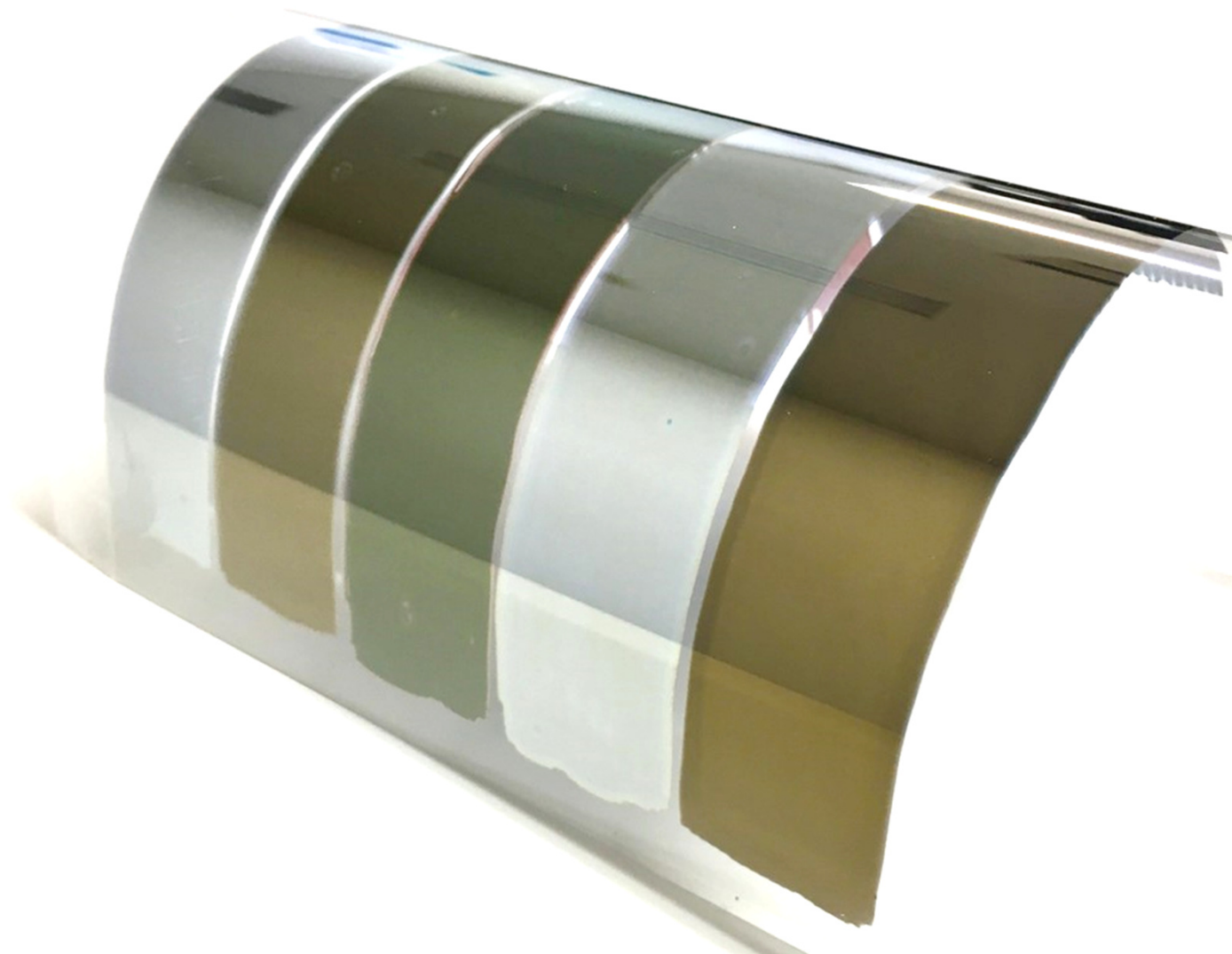
LASSO



Major axis (non-sphere) [LASSO]



- 長径(40-110 nm 程度)のナノ粒子が生成
- アスペクト比の大きい非球形粒子を生成する合成条件の予測



- 銀ナノ粒子を作り分け
- 各種添加剤をハイスループット実験、機械学習を組み合わせ探索。塗布用インクを作製。
- 色調の異なる塗膜を得ることに成功

# 今後の展開（銀ナノ粒子）

本PJ成果の展開・活用

機能性微粒子の高速開発技術を取得

【企業での展開・活用】

ex) 銀ナノ粒子 インクジェットインクへの展開に期待

インク調液自動化



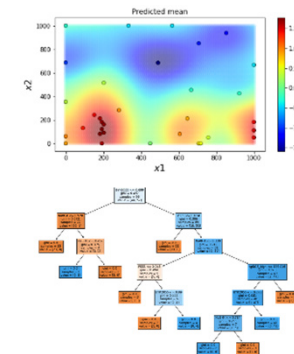
自動分注装置

測定自動化



光学物性/動的光散乱

解析



可視化/機械学習

【社会的な展開・活用】

- グラフィックス用 インク
- プリンテッドエレクトロニクス
- その他微粒子分散材料

## <本日の発表>

### モデル素材

前半 : 銀ナノ粒子

後半 : 二酸化バナジウムナノ粒子

## 社会的ニーズ：自動車の電動化対応

パワートレイン  
内燃機関



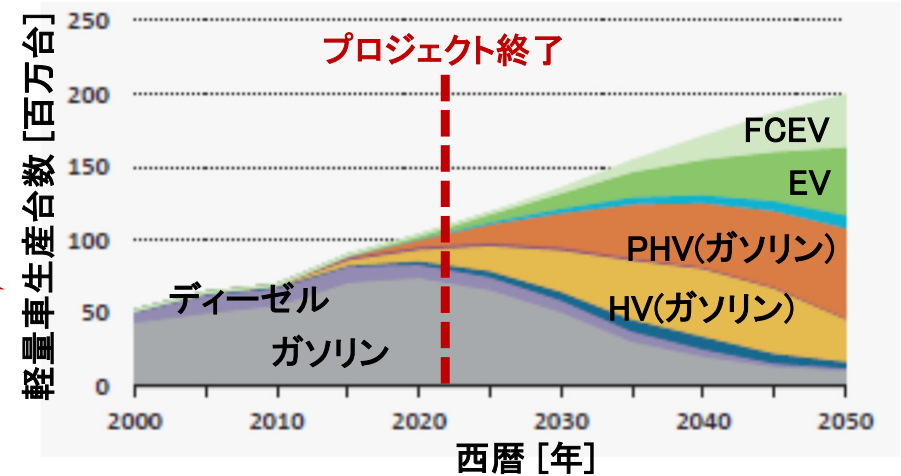
電気モーター

排熱を暖房  
の熱源に

暖房の  
熱源がない

冷房負荷低減が課題  
遮熱すればOK

暖房負荷低減にも注力  
遮熱だけでは不十分



出典:IEA「ETP (Energy Technology Perspectives) 2012」

次世代自動車では暖房負荷の削減が航続距離の増加に大きく貢献  
電池容量の削減が可能となれば低コスト化にも寄与



太陽光（日射光）を有効活用

日射光の透過量を自律的にコントロール(調光)できるスマートウィンドウ

遮熱フィルムにおいて

太陽熱のスマート制御（遮熱/採熱）を担い、用途拡大、SDGsに貢献

# テーマの目標

モデル素材：二酸化バナジウムナノ粒子

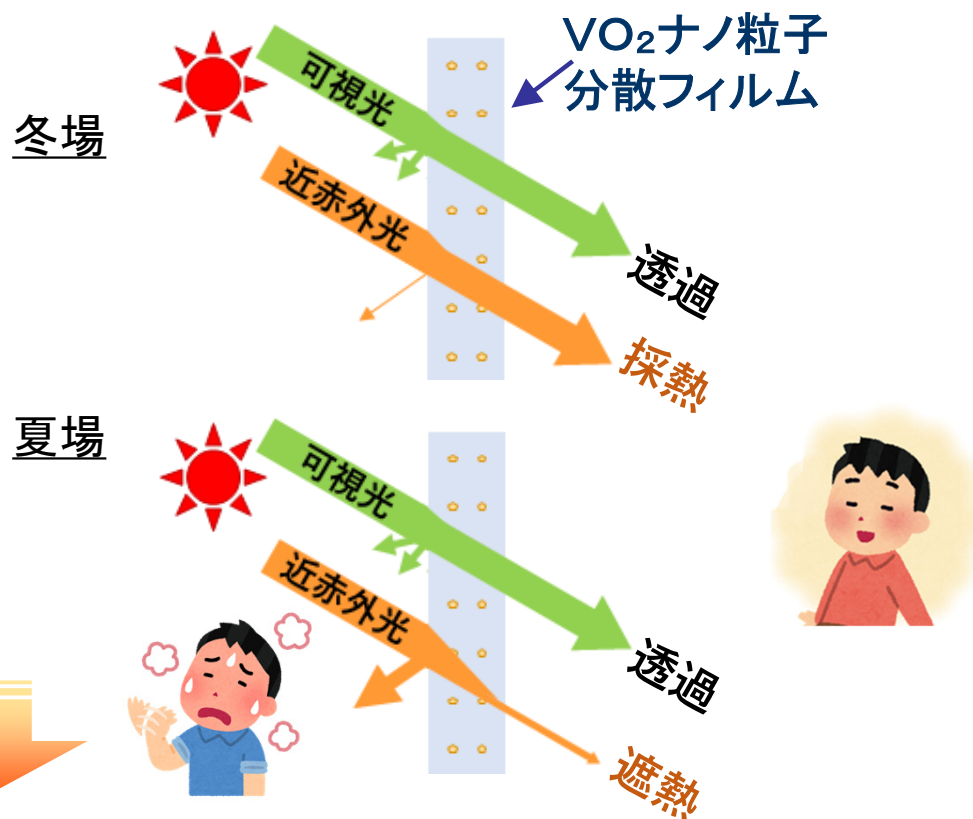
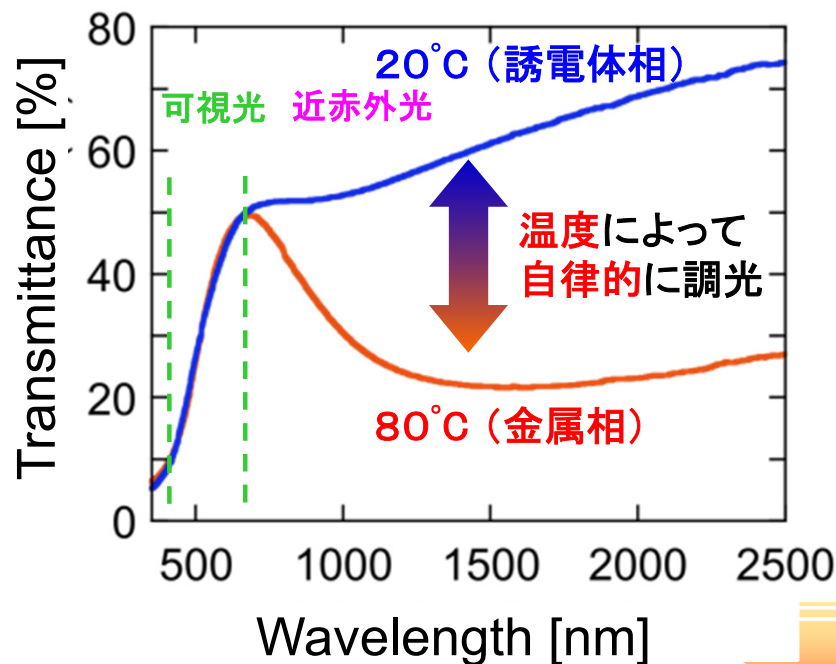
□ 二酸化バナジウム( $\text{VO}_2$ )は、環境温度によって赤外光の透過率が大きく変化

低温：冬場      暖かさを透過 = 採熱

高温：夏場      暑さを遮断 = 遮熱

□ 可視光透過率(見た目)は変わらないため、特に意識することなく機能を発現

$\text{VO}_2$ ナノ粒子分散フィルムの光透過率



目標:

十分な透明性を有する サーモクロミックフィルムの実現

- モデル材料 VO<sub>2</sub>の従来の認識：
  - ・化学ドーピングすると、吸収係数が変化する。
  - ・粒子径や形状、凝集状態により分散材料の透過スペクトルが変化する。
- 課題：  
元素の選定指針や微粒化に伴う性能予測が困難、各合成に長時間を要するため、膨大な検討時間が必要となる。

## 光学特性予測

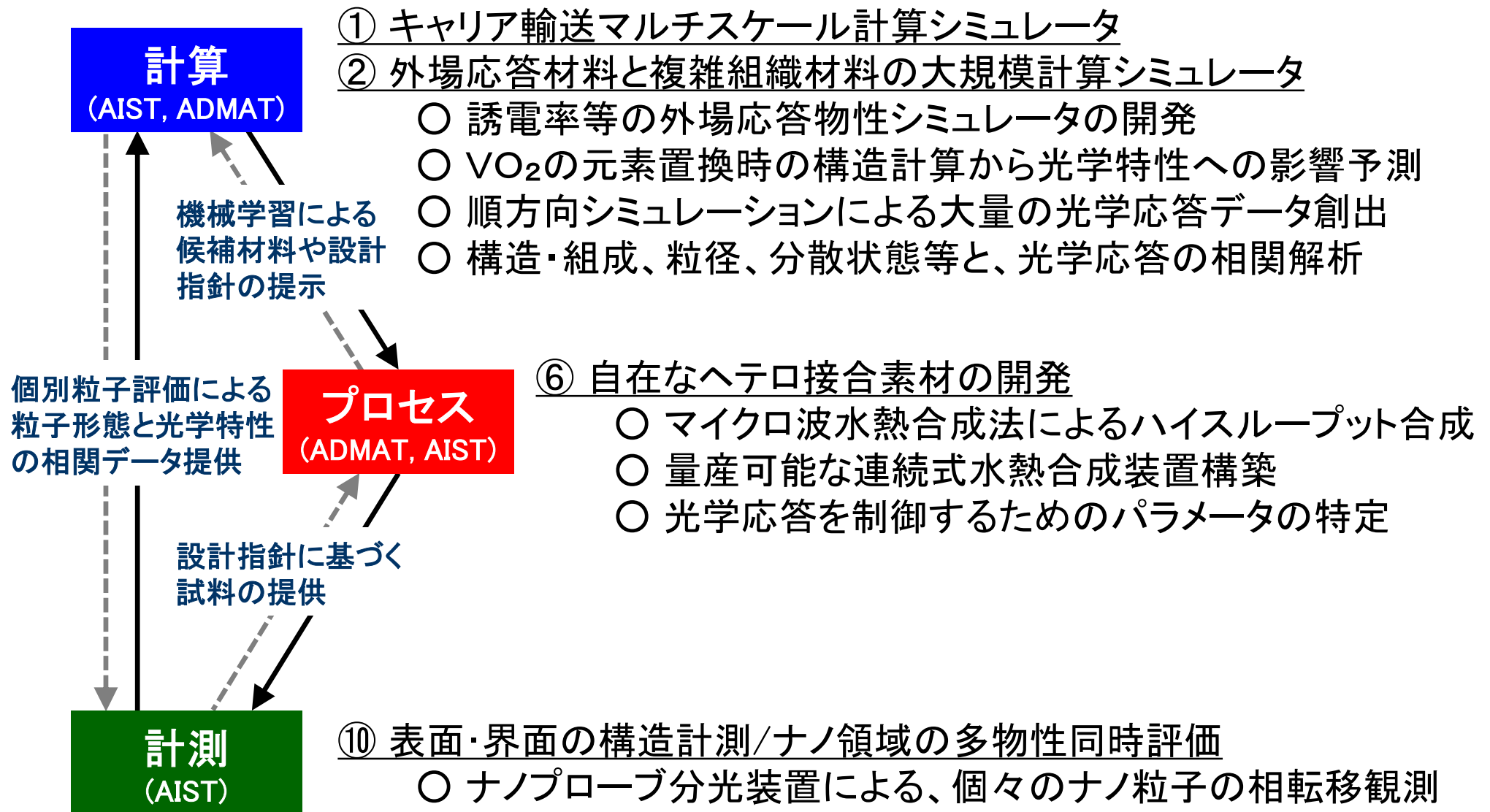
- 基本戦略：  
シミュレーションによる機能予測  
(モデルスクリーニング)
- 期待効果：  
試作回数削減

## 試作高速化

- 基本戦略：  
昇温厳密制御 (マイクロ波加熱)  
急速昇温 (フロー) による高速合成
- 期待効果：  
試作期間短縮



# 超超PJにおける開発の取り組み



# 開発成果の概要

## 【モデル素材の開発目標、物性値】

- ヘイズ値 1%、近赤外線域の熱応答 制御幅 60% (目標達成)

## 【開発期間短縮試算】

- 従来型開発に比べ、計算科学・高速プロセス・ナノ領域物性計測により、1/23に短縮。

## 【他テーマ、他企業とのPJ内連携】

- Ag、VO<sub>2</sub>合同検討会 (CD-FMat ①②テーマ、分析計測 AIST ⑩テーマ)

## 【プレスリリース】

- AIST, ADMAT (2019) 『マイクロ波加熱による機能性酸化物ナノ粒子の高速合成法を開発』

## 【特許】 1件

- 山本昌一 (2018) 『二酸化バナジウム含有粒子の製造方法』

## 【学会発表】 4件

- 山本昌一, 武山彰宏, 山田保誠, クロモジェニック研究会 (2018), 口頭
- 北弘志, 第12回 有機光エレクトロニクス産業化研究会 (2018), 口頭
- Shoichi Yamamoto, Masayoshi Fuji, ATP2021 (2021), Oral
- Masahisa Okada, Shoichi Yamamoto, Yasusei Yamada, ATP2021 (2021), Poster

## 【短納期化】 構造・組成 + 粒子化 による光学応答等制御の開発期間

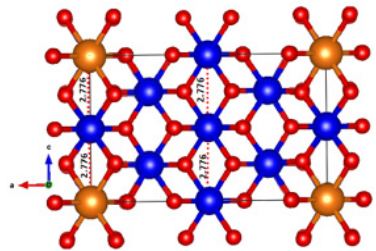
- $T_p / T_t = 1 / 23$  プロジェクト型開発 ( $T_p$ ) / 従来型開発 ( $T_t$ )

# 開発項目トピックス (計算科学)

## ◇ 化学ドーピングによる光学応答を計算

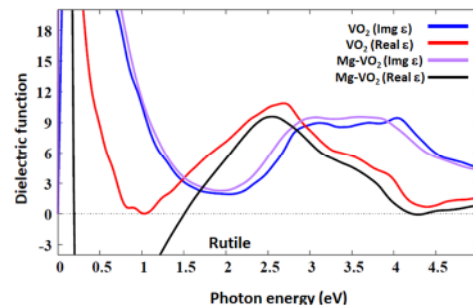
- ドーパントを変えたバルク系誘電関数の系統的な第一原理計算の実行
- 計算した誘電関数は光学応答解析と予測に利用

バルク結晶系構造モデル

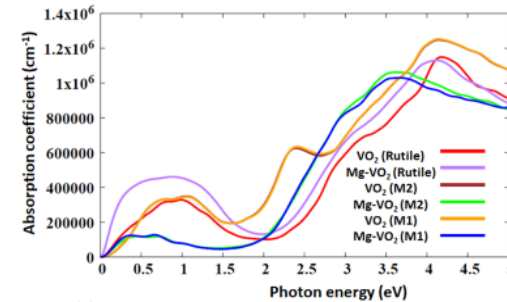


↑ ドーパント (27元素)

複素誘電関数\*



吸収係数\*



\* A. Varadwajら, 分子科学 (2019), 要旨集

ミクロ

マクロ

## ◇ ナノ粒子分散材料の光学応答を計算

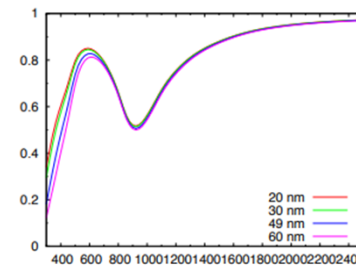
- サイズ / 形状 / 多粒子効果

ナノ粒子



離散双極子近似 (DDA) による  
任意形態での光学応答計算

分散材料\*\*

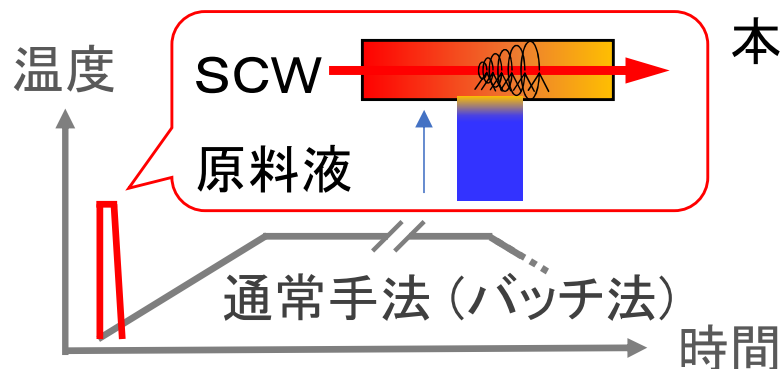


Kubelka-Munk理論による  
拡散透過スペクトル

\*\* 松井, CSJ化学フェスタ (2019), 講演

# 開発項目トピックス (プロセス)

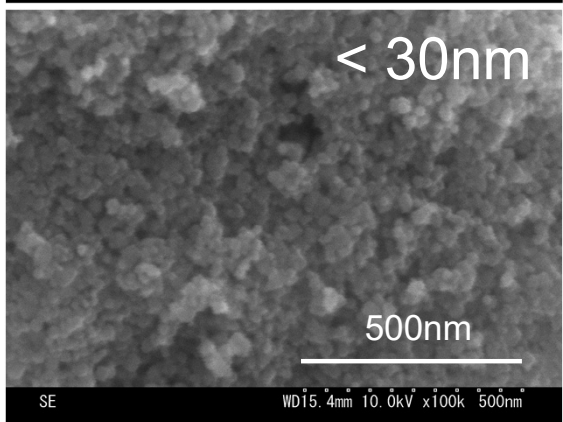
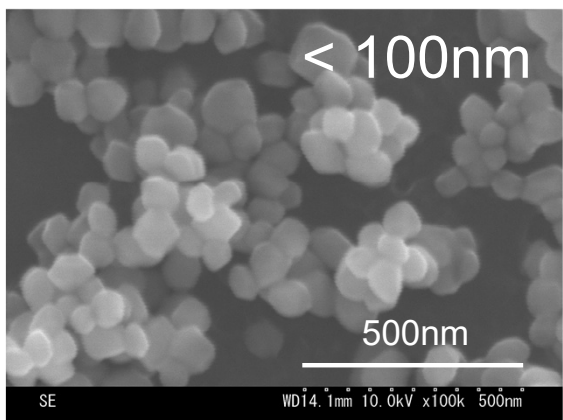
## ◇ 超臨界水 (SCW) を用いた連続式水熱合成装置の適応 (連続法)



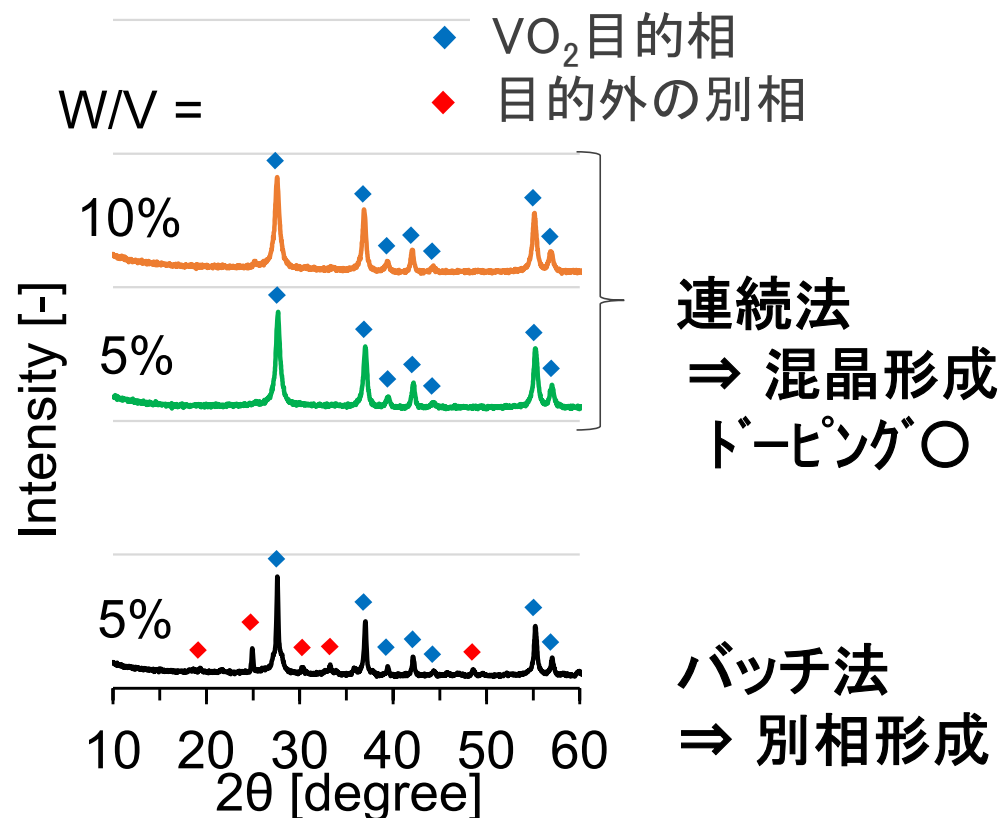
本手法

- ◆ 高速化: ○ (結晶化時間を 1 / 5000 に短縮)  
バッチ法 6hr → 連続法 4秒
- ◆ 量産性: ○ (連続合成が可能)
- ◆ 粒径 : ○ (< 30nm、< 100nmのナノ粒子)
- ◆ 組成 : ○ (~10%の異種元素を添加)

## VO<sub>2</sub>ナノ粒子の電子顕微鏡像

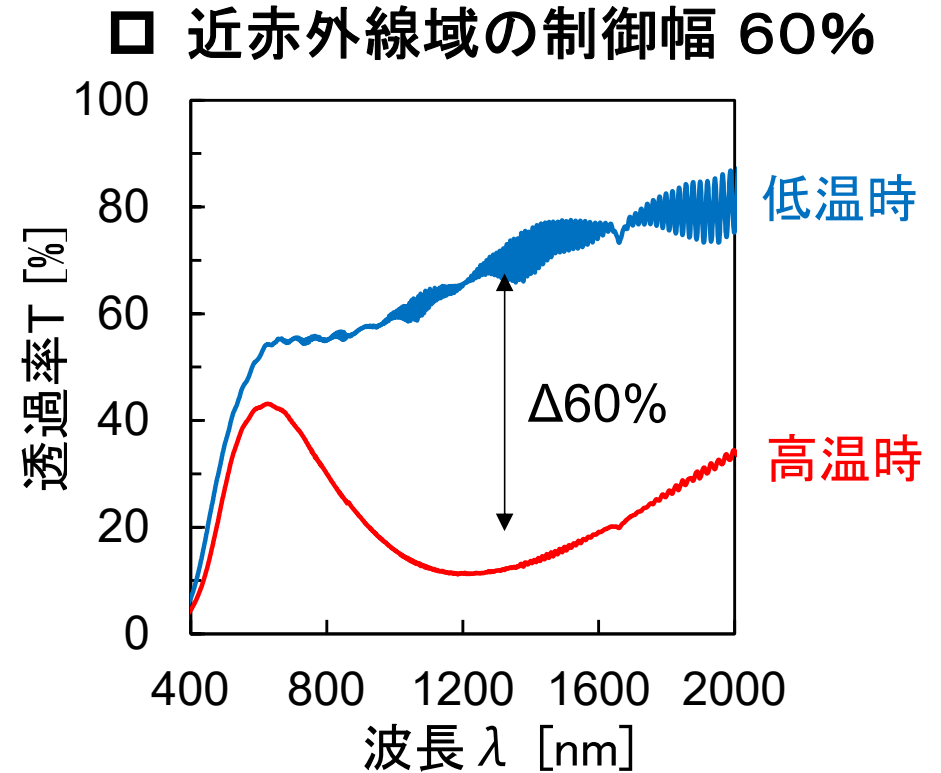
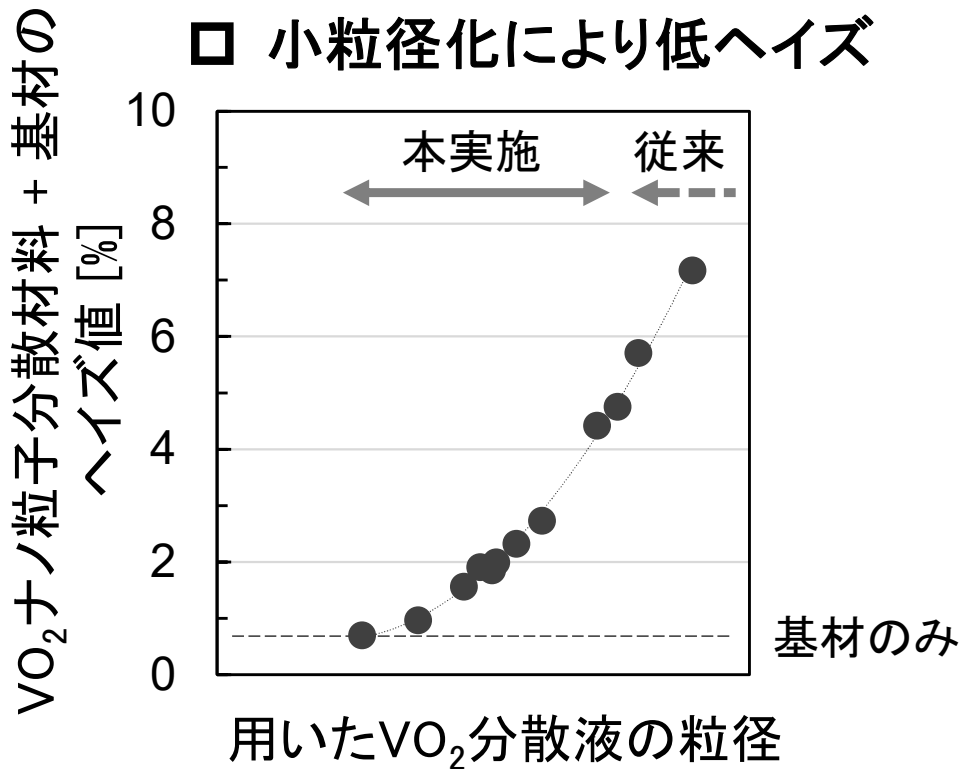


## W添加 VO<sub>2</sub>ナノ粒子のX線回折パターン



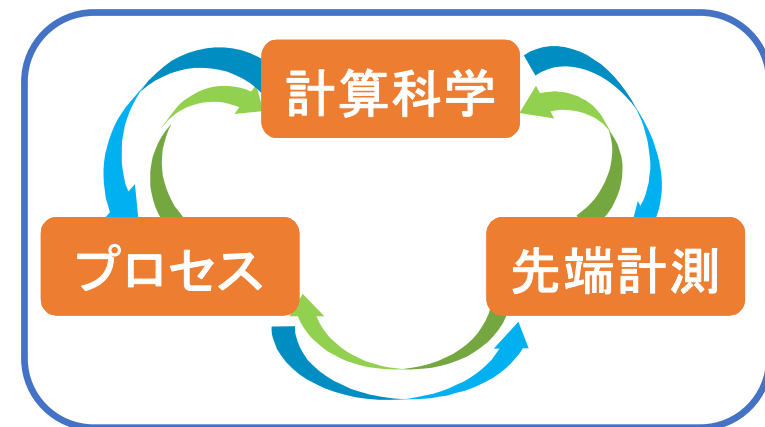
# 今後の展開（二酸化バナジウム:VO<sub>2</sub>ナノ粒子）

◇ VO<sub>2</sub>ナノ粒子分散材料の物性値の向上への適応 ⇒ 現状で、モデル素材のPJ目標を達成



## 本PJ成果の展開・活用

- ・機能性微粒子の高速開発技術を取得
- ・計算、計測、プロセスを融合した三位一体手法の深化
- ・使用環境下を想定した機能検証およびサーモクロミック性の応用用途探索



## コニカミノルタ株式会社

### 出向研究員

山本 昌一	プロセス	2016年10月～
柏木 恒雄	プロセス	2017年 7月～
大澤 耕	計算	2018年10月～
小島 茂	プロセス	2021年 4月～

WG 委員	加川 哲哉
運営委員	安藤 浩明
技術委員	久保 伸夫

### 謝辞

超超プロジェクトの成果を導くにあたり 産業技術総合研究所の先生方に **データ駆動型材料開発の潮流に先駆けたご指導**をいただきましたことに厚く御礼申し上げます

さらなる飛躍に向けて MDPF を活用する **データ駆動コンソーシアム** の活動におきましても ご指導をいただきたくよろしく願いいたします

以上