

超先端材料超高速開発基盤技術プロジェクト(超超PJ)
最終成果報告会

有機・無機ハイブリッド
誘電体材料の研究開発

2022年1月18日(火)

株式会社村田製作所
木村 雅彦



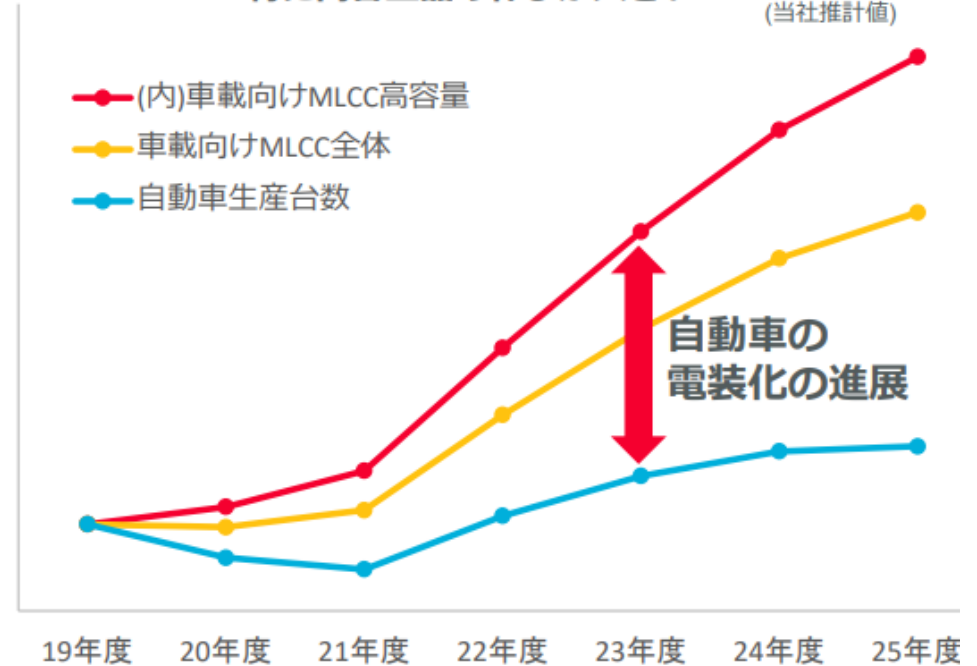
- 電気自動車
- 安全システム
- インフォテインメント

インフォメーション(情報)とエンターテインメント(娯楽)の合成語

車載向けMLCCの市場予測(数量ベース)

自動車の電装化進展のトレンドは不変
特に高容量品の伸びが大きい

(当社推計値)



車載向けMLCCの使用数量

(pcs)

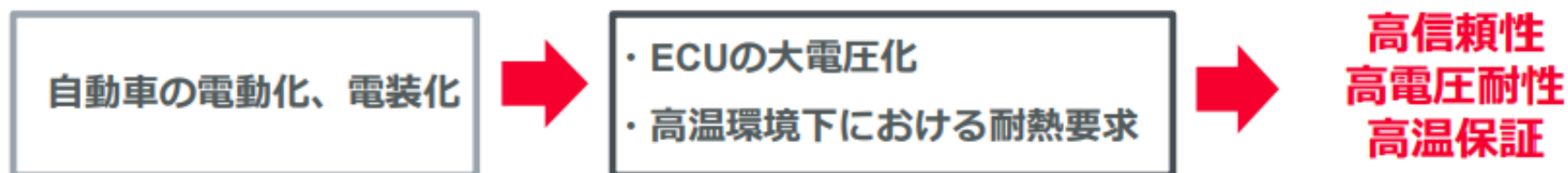
(当社調べ)	GAS	HV	PHEV	BEV
Powertrain	300~500	1,000~1,600	1,500~2,000	2,000~2,500
ADAS	3,000~5,000			
Safety	300~1,000			
Infotainment	500~2,500			
Other	500~2,500			

村田製作所「Information Meeting 2021」より抜粋

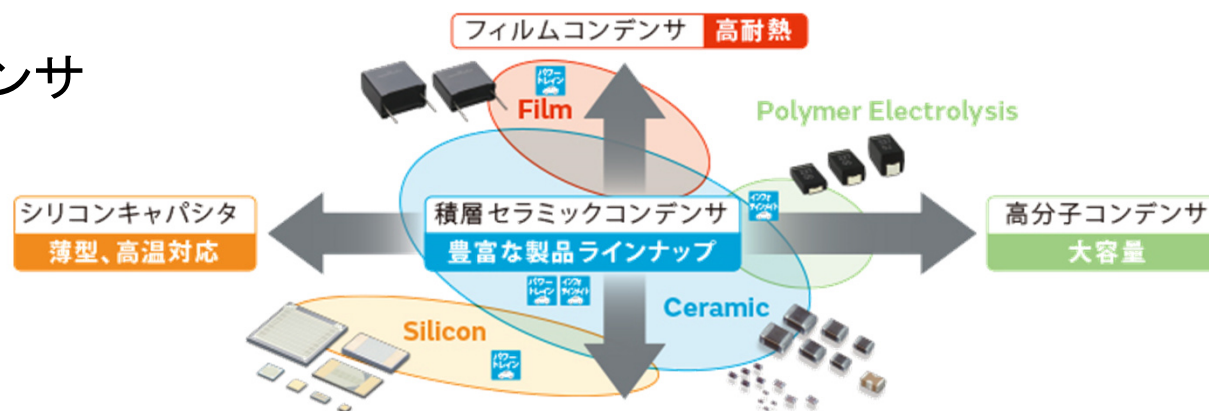
車載向けコンデンサ商品のニーズは将来的に高まっていくと予想

テーマの背景(技術面)

□ 技術動向



□ 各種コンデンサ



既存の有機および無機誘電体材料の特性の大幅な向上
大きく異なる優れた特性を持つ新材料の開発

□ 技術課題

- ・有機材料技術の強化
- ・効率的な新材料開発手法の確立
- ・有機誘電体材料と無機誘電体材料のハイブリッド化技術の獲得

□ 当社内の有機材料研究開発に有効活用できる技術の構築

新材料探索



開発期間短縮



実験回数削減



人件費削減



モデル素材の開発目標

- ①有機誘電体材料設計技術:理論計算・AI技術
- ②高誘電率: $\epsilon > 8$
- ③低誘電損失: $\tan \delta < 0.01$
- ④高耐電圧性: $> 400\text{kV/mm}$



超超PJにおける開発の方向性

当初、有機材料と無機材料のハイブリッド化による目標達成を目指していたが、有機材料そのものの特性を改善する方がトータルで目標達成の可能性が高いことが分かり、方向修正を行った(2019年度)

モデル素材の開発目標

シミュレータ開発

自動化

データベース作成

探索フローの確立

材料提案

材料合成

①有機誘電体材料設計技術:理論計算・AI技術

⇒第一原理計算と分子動力学計算による誘電物性シミュレーション技術の獲得

⇒誘電物性推算技術の確立

②高誘電率: $\epsilon > 8$

③低誘電損失: $\tan \delta < 0.01$

⇒シミュレータによるデータベース構築とその活用による材料探索

④高耐電圧性: $> 400\text{kV/mm}$

⇒シミュレータによる物性取得は困難

⇒一般に有機フィルムは高耐電圧性を有するため合成品の評価データを活用した設計を進めていく

○: 成功した開発項目 △: 超超PJ後に進める開発項目 ×: 中止した開発項目

計算

②外場応答材料と複雑組織材料の大規模計算シミュレータの開発

- 有機材料の電子寄与誘電物性取得のための第一原理シミュレータの開発
- 有機材料のGHz-THz帯誘電物性取得のためのMDシミュレーション技術の開発
- 一部の有機金属(有機・無機ハイブリッド)高分子材料の誘電率と誘電損失の算出技術
- 誘電物性データの高速高効率生成および収集システムの構築
- 機械学習・データ解析による物性推算技術の構築
- 新規有機誘電体材料の組成予測・提案システム

活用した技術: 誘電率等の外場応答物性シミュレータ

計測

プロセス

自社にて合成・計測

- 有機高分子材料のマイクロ波領域までの周波数における誘電率と誘電損失の計測
- △ 設計提案された有機高分子誘電体材料の合成
- × 有機・無機ハイブリッド誘電体材料の合成

□ 高分子誘電体材料の探索フローの構築と期間短縮達成

□ 目的物質の開発状況

目標値には届いていないが、モデル素材の中で高誘電率材料の候補は得られた

□ 他企業との連携

□ 日鉄ケミカル & マテリアル: シミュレータ技術・物性推算技術の共有
誘電率算出スクリプトの利用、PSACS(高分子構造自動構築システム)の利用

□ 昭和電工: 記述子作成技術の提供

□ 昭和電工マテリアルズ: PSACSの拡張

□ DPF登録予定データ

□ ポリマー: 誘電率 320件

□ 外部発表

□ 口頭発表: 8件

□ 誌上発表: 2件

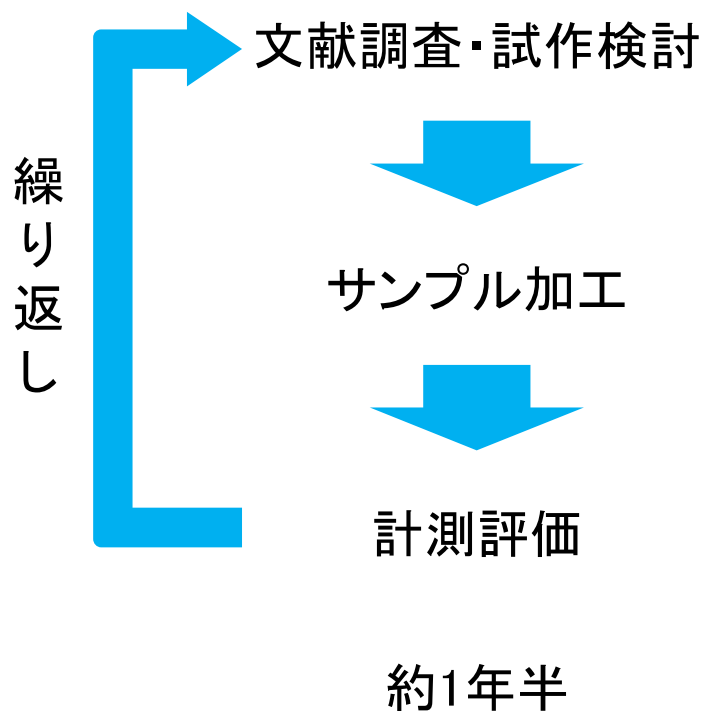
従来型開発 (Tt)



プロジェクト型開発 (Tp)



$$T_p / T_t = 1 / 20$$



1/10

シミュレータによる仮想実験

1/2

自動化

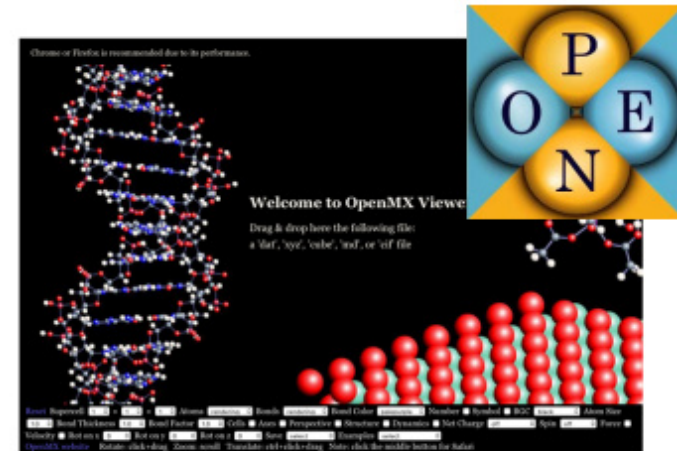
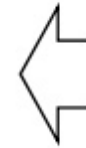
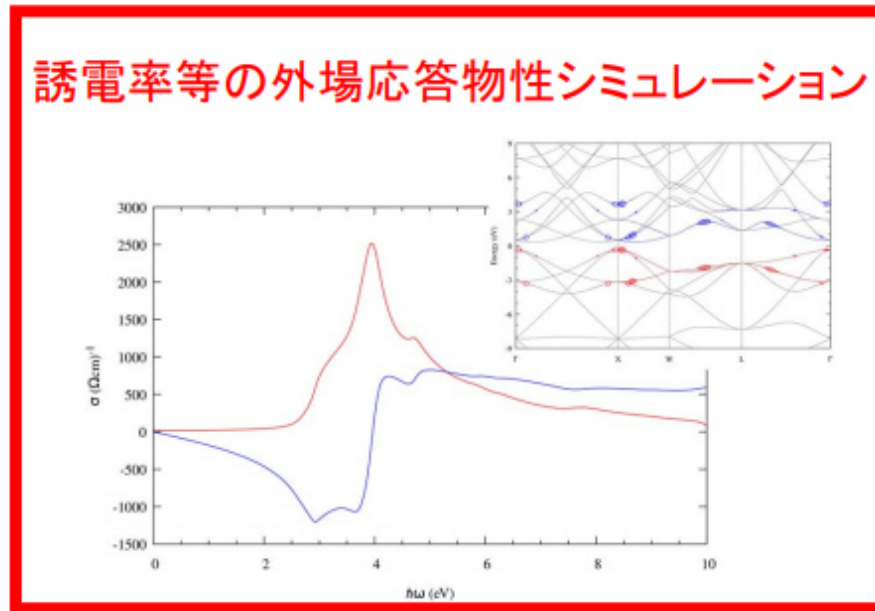
データ生成
データ収集
データ解析

候補材料提案

1/20

1カ月弱

□ 電子寄与の誘電率計算機能を有するシミュレータの開発



OpenMX website (www.openmx-square.org)にてフリーソフトとして公開

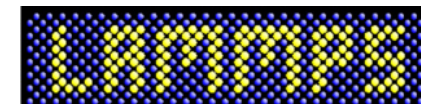
□ ユーザビリティの向上

- 分散力補正を考慮した電子状態計算コードの改良による高速化
- 高速な最適化オプションに関するセル形状固定での計算対応

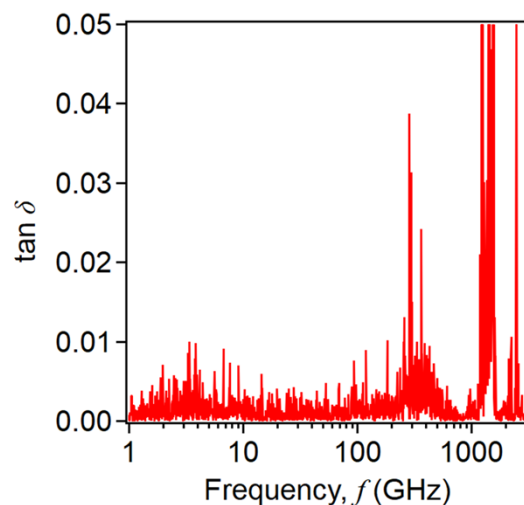
400原子1ノード32コア計算： 3か月 → 3日

データ生成の大幅な効率化および高速化の実現

□ 原子・配向分極寄与の誘電物性計算手法の確立



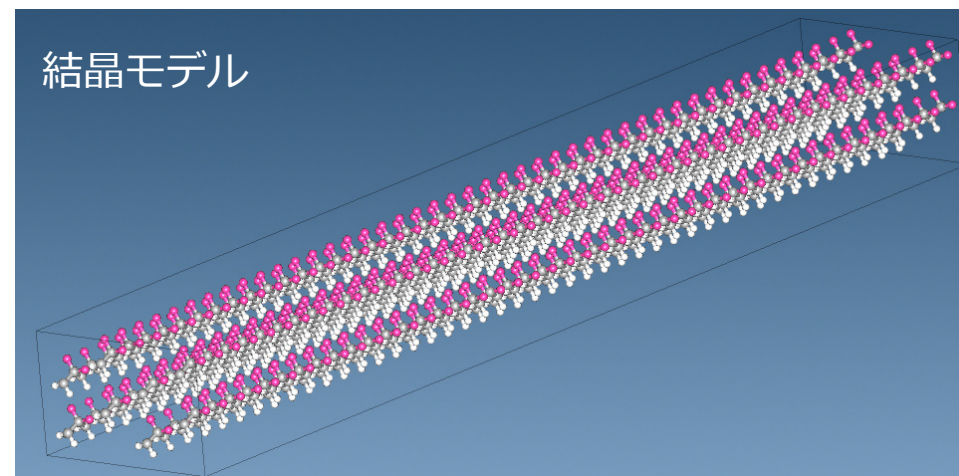
ポリフッ化ビニリデン



@1GHz	誘電率 ϵ	感受率(寄与別)	
		電子 χ_{elec}	原子、双極子 $\chi_{atom/dip}$
計算	2.3	1.16	0.1-0.2
実験 ¹⁾	3.4	==	==

1) M. Nagai, *et al.*, J. Polym. Sci. B **37** (1999) 2549.

- 双極子モーメントの時間変化から誘電率を算出するスクリプトの開発



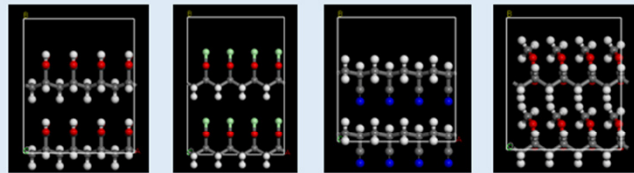
□ 誘電率算出スクリプトの高速化

- 200万行のデータ処理時間を約18時間から20分に短縮
- $O(N^2)$ の処理を $O(M \log N)$ に高速化

低周波領域の誘電物性取得技術の開発と高速化の実現

PMIDAS: 高分子材料知的発見支援システム Polymer Materials Intelligent Discovery Assist System

PSACS: 高分子構造自動構築システム Polymer Structure Automatic Construction System



1構造あたり数秒でモデル構築可能

Smiles

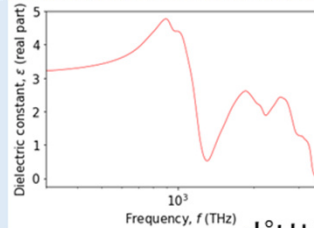
c([H])([*])([H])C(O([H])=O)([H])([*])

[*]C([H])C([*])([H])C(CI)=O)([H])

c([H])([H])([*])C(O#N)([*])([H])

...

DCACS: 誘電率自動計算システム Dielectric Constant Automatic Calculation System



ポリビスフェノールSの誘電率

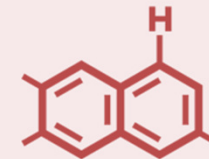
FPACS: 記述子自動計算システム Fingerprint Automatic Calculation System

Index	Smiles	A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K	L	M	N	O	P	Q	R	S	T
1	FCOCCO	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2	FCOCCO	2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
3	FCOCCO	2	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
4	FCOCCO	4	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
5	FCOCCO	5	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
6	FCOCCO	6	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
7	FCOCCO	7	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
8	FCOCCO	8	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
9	FCOCCO	9	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
10	FCOCCO	10	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
11	FCOCCO	11	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
12	FCOCCO	12	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
13	FCOCCO	13	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
14	FCOCCO	14	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
15	FCOCCO	15	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
16	FCOCCO	16	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
17	FCOCCO	17	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
18	FCOCCO	18	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
19	FCOCCO	19	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
20	FCOCCO	20	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
21	FCOCCO	21	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
22	FCOCCO	22	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
23	FCOCCO	23	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
24	FCOCCO	24	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
25	FCOCCO	25	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
26	FCOCCO	26	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0

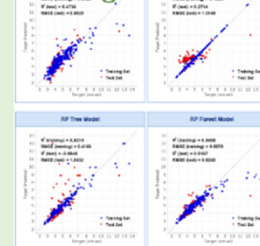
数密度ECFPの自動計算

全自動で提案

新機能有機高分子候補材料



LMACS: 学習モデル自動構築システム Learning Model Automatic Construction System



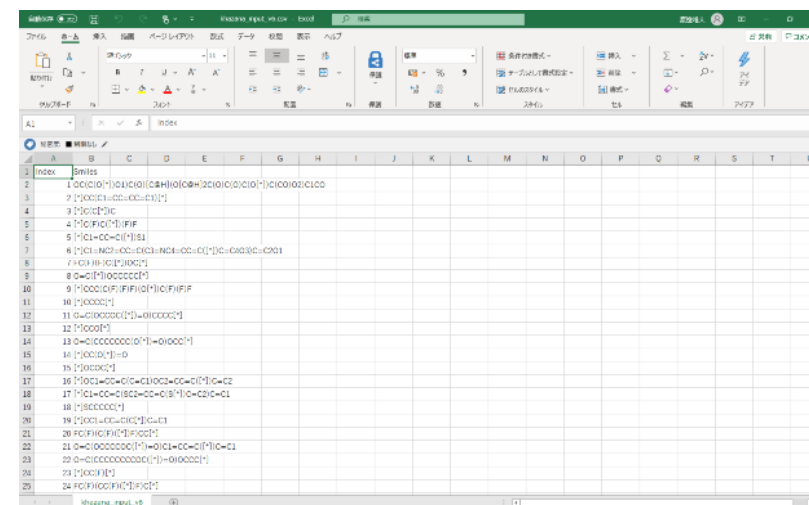
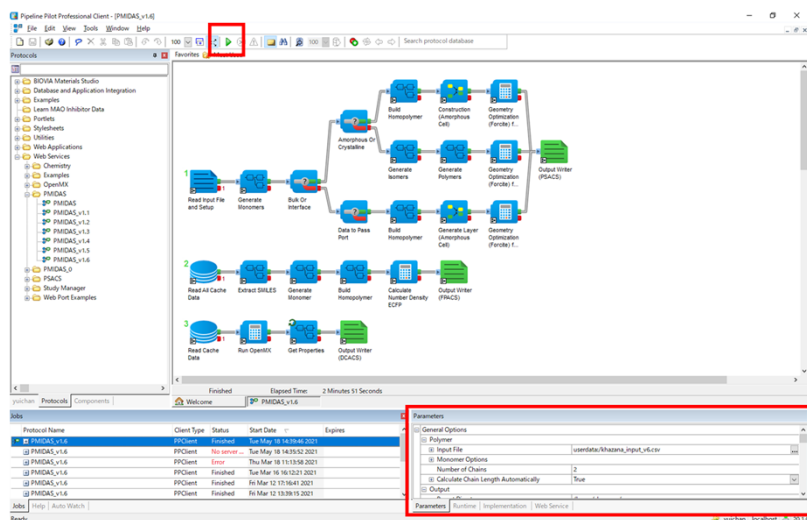
機械学習

開発期間の短縮、実験回数や人件費の削減も期待できる

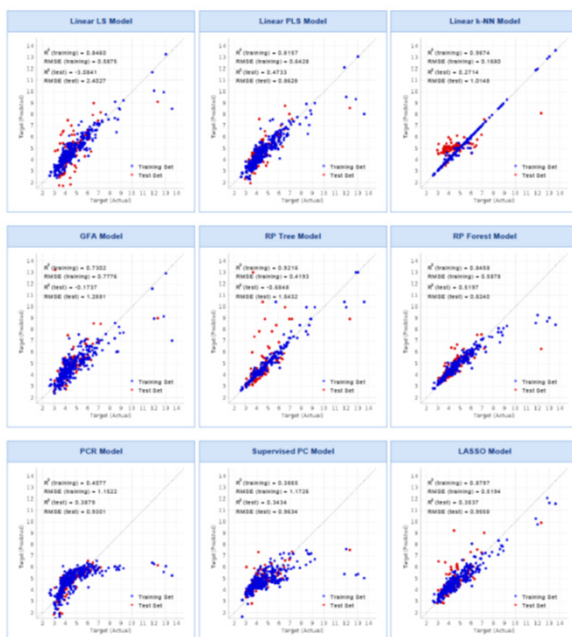
PMIDAS(高分子材料知的発見支援システム)の動作イメージ

赤枠にパラメータ設定して実行するだけ

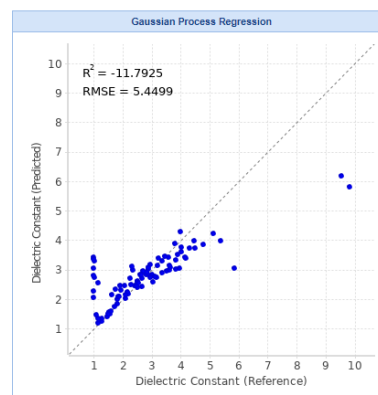
準備するのはSMILES表記のモノマーのリスト



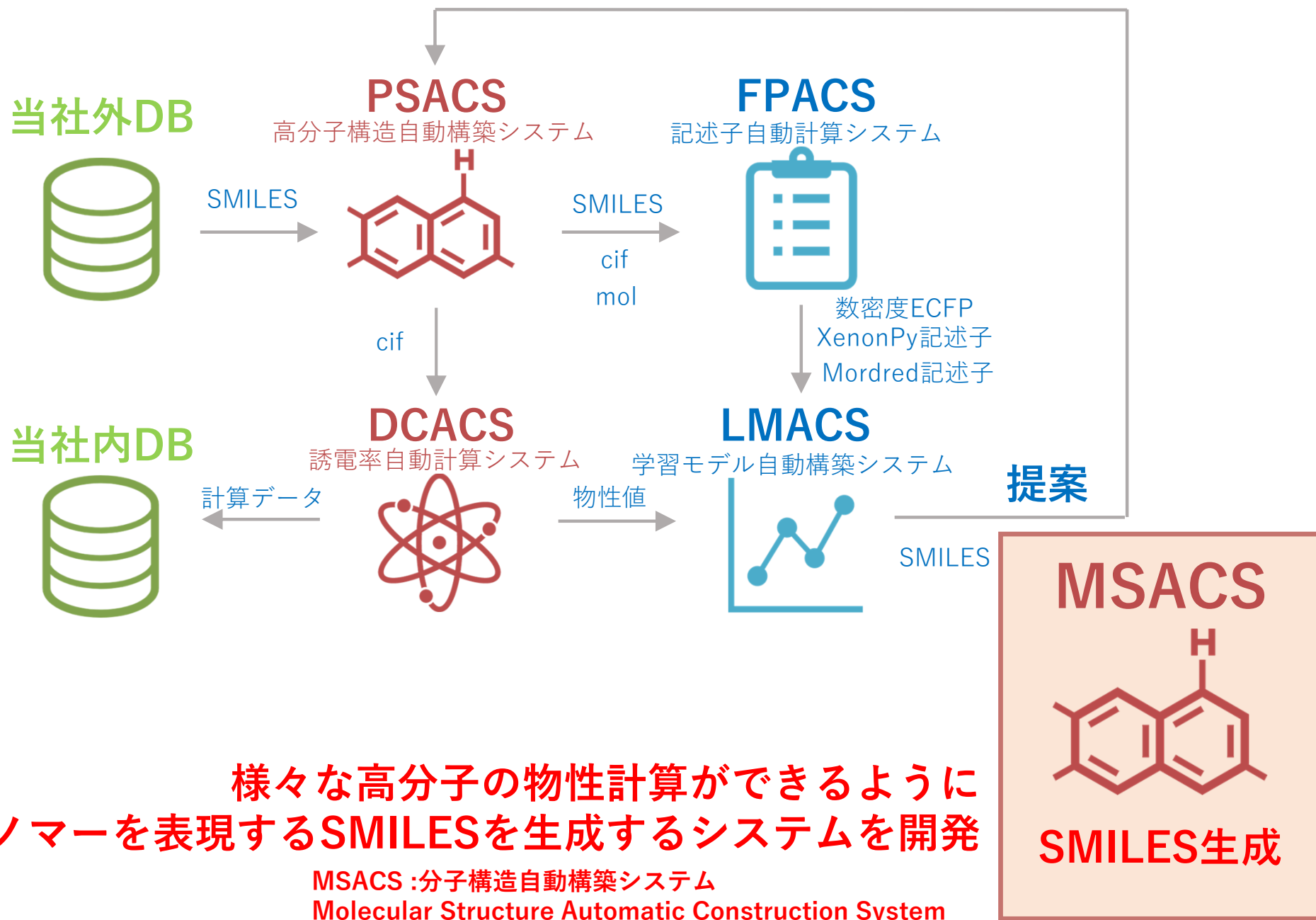
自動で物性シミュレーションして、ベイズ最適化によって新材料の候補を探索する



Index	Smiles	DateCount	ECFP_1	ECFP_2	ECFP_3	ECFP_4	ECFP_5	ECFP_6
36	<chem>S=C([*])C1=CC=C(S1)C2=CC=C(S2)C3=CC=C([*])S3</chem>	36	0	0	0	0	0	0
37	<chem>[*]C1=CC=C(C2=CC=C(C3=CC=C(C)O[*])S3)S2</chem>	37	0	0	0	0	0	
60	<chem>S=C1=C(C=C(C1[*])S1)C2=CC=C([*])C=C2</chem>	60	0	0	0	0	0	
69	<chem>[*]C1=CC=C(S1)C2=CC=C(C2)C3=CC=C(S3)C1</chem>	69	0	0.10606	0	0	0	
163	<chem>S=C1=C(C=C(C1[*])S1)C1</chem>	163	0	0	0	0	0	
168	<chem>S=C(C1[*])S1C1</chem>	168	0	0	0	0	0	
172	<chem>S=C(NC1[*])S1C1</chem>	172	0	0	0	0	0	
210	<chem>O=C([*])C1=CC=C(C2=CC=C(C3=CC=C([*])S3)S2)S1</chem>	210	0	0	0	0	0	
288	<chem>O=C1=C(C=C(C1[*])S1)M1</chem>	288	0	0	0	0	0	
315	<chem>S=C(O[C1[*])S1M1</chem>	311	0	0	0	0	0	



新材料探索のためのPMIDASの高度化とMSACSの開発



様々な高分子の物性計算ができるように
モノマーを表現するSMILESを生成するシステムを開発

MSACS :分子構造自動構築システム
Molecular Structure Automatic Construction System

MSACS (分子構造自動構築システム)の仕組み

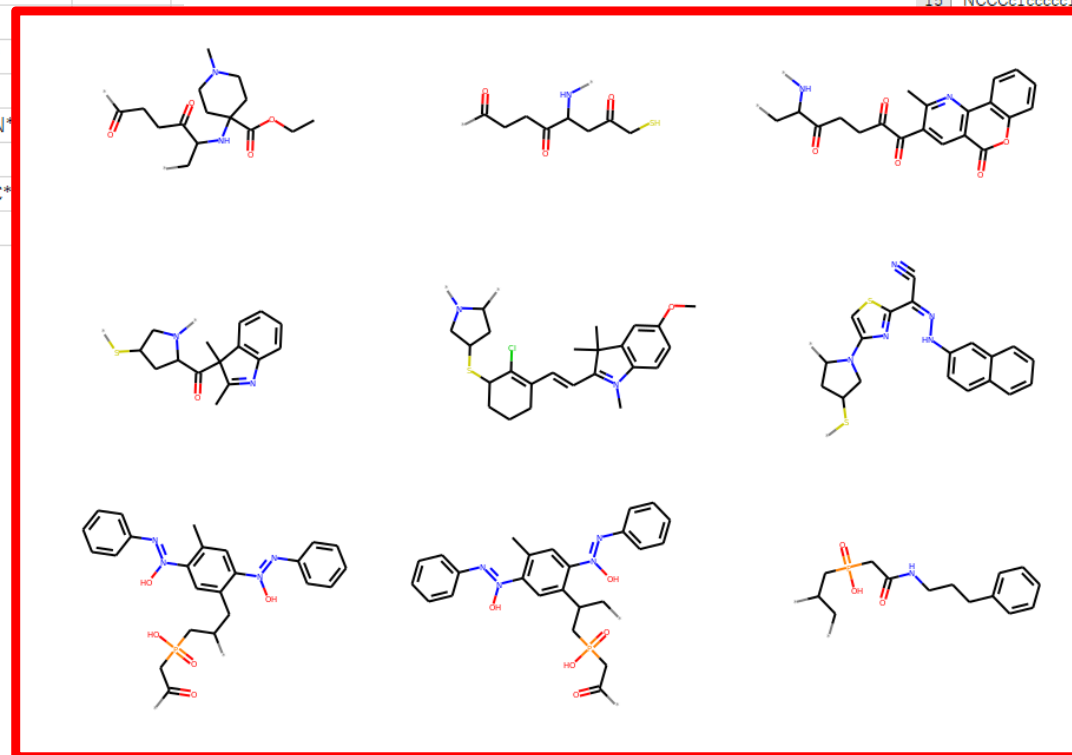
	A	B	C	D
1	*C(=O)CP(=O)([O-])CC(*)C*			
2	*N1C(*)CSC1*			
3	*C(=O)C(C)CC(=O)C(*)C*			
4	*C(C*)C(*)C(=O)[O-]			
5	*C(=O)CP(=O)([O-])CC(C*)N*			
6	*N(*)c1ccc(*)c(*)c1			
7	*NC(C*)C([NH2+])*C(=O)[O-]			
8	*N1CC(S*)CC1*			
9	*N1CC(*)C(*)CC1*			
10	*C(=O)C(C)[NH2+]C(C(=O)[O-])C(C*)N*			
11	*C(C(=O)[O-])C(C*)N*			
12	*N1CC(*)CC1*			
13	*C(=O)C(*)C*			
14	*C(=O)CCC(=O)C(*)C*			
15	*N1CC(C*)CC1*			
16	*C(=O)CCC(=O)C(C*)N*			
17	*c1ccc(*)c(*)c1			
18	*C(=O)C(C)CC(=O)C(C*)C*			
19	*C(=O)NC(C*)C(*)=O			
20	*C(=O)C(C*)N*			

主鎖のリスト



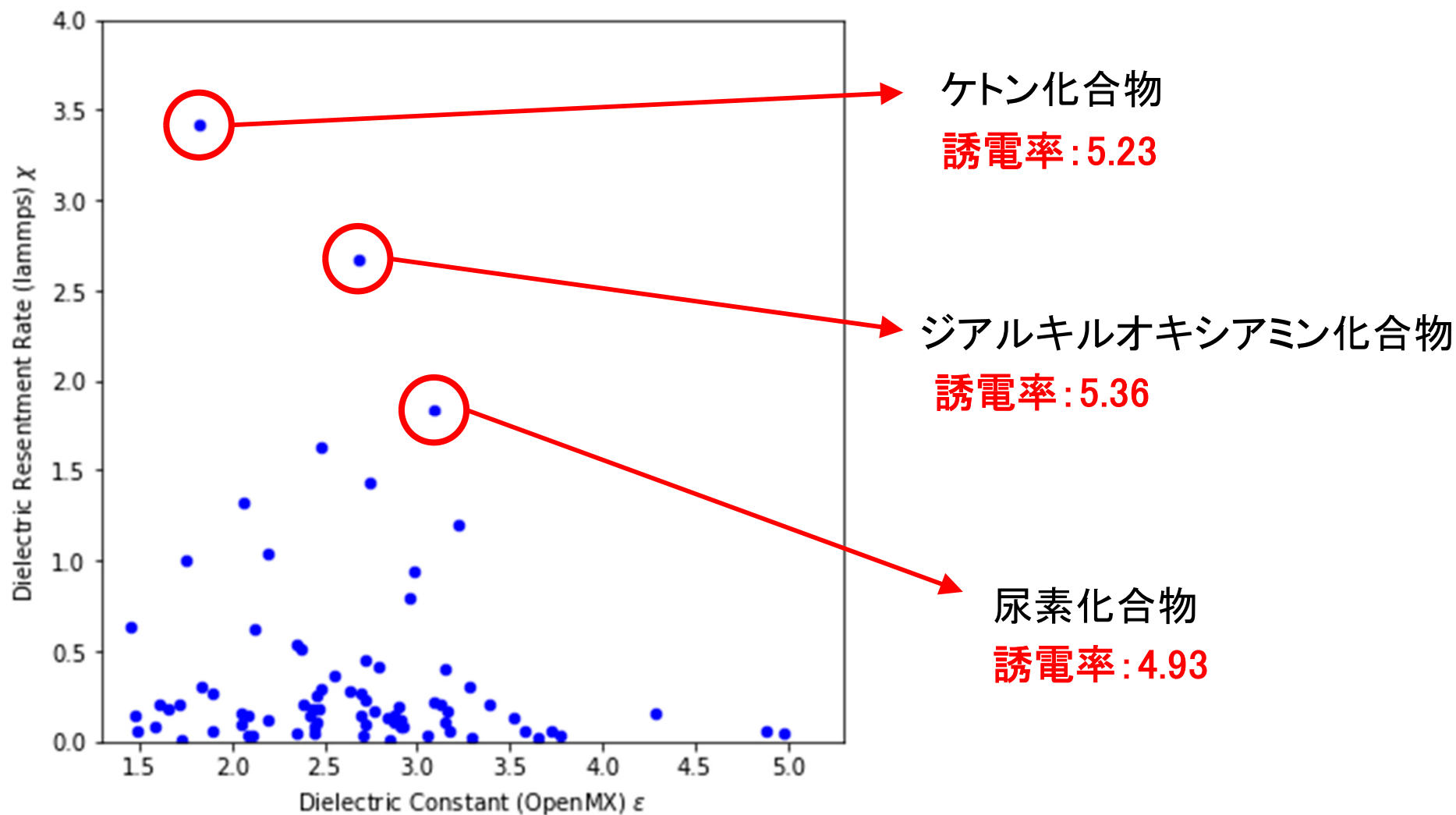
側鎖のリスト

掛け合わせ



	A	B	C	D	E	F
1	*Oc1ccc(C=CC(=O)c2ccccc2)cc1					
2	*n1c(=O)[nH]c2ccccc21					
3	*C(=O)[S-]([O-])([O-])c1ccc(C)cc1					
4	*C(=O)NN					
5	*C(O)C(C)C					
6	*C(=O)C1(C)C(C)=Nc2ccccc21					
7	*OC1CCC2(C)C(CCC3C4=C(C(CCC32)C(C)(C#Cc2ccccc2)CC4)C1					
8	*C(C)(CC)CC					
9	*Cc1cccc2c(Br)ccc([N+](=O)[O-])c12					
10	*c1csc(C(C#N)=N)Nc2ccccc2c1					
11	*C(C(=O)C(C)(C)C)n1cncn1					
12	*NC(=O)CC(C)O					
13	*c1cc([N+](O-)=Nc2ccccc2)c(O)cc1[N+](O-)=Nc1ccccc1					
14	*C(Br)C1(Br)C(=O)N(c2ccccc2)N=C1C(=O)OCC					
15	*NCCC1c2ccccc1					
						CN(C)CC1
						1
)oc3ccccc3c2nc1C
						c1C
						=CC(=O)CCC4(C)C3C3CC12C(O)O3
						=[N+](C)c3ccc(OC)cc3C2(C)C=C1Cl
						C(C)(C)C(=O)O)cc1
						4CC(c5ccc(OC)cc5)=CCC4(C)C3CCCC12C
						[O-])cc1

新材料探索への応用が期待できる



計算によって得られた高誘電率高分子材料
来年度に自社で合成予定

- 高分子材料に関する電子寄与およびGHz帯の誘電率のシミュレーション技術を獲得した
- シミュレータのユーザビリティ向上と解析スクリプトの高速化によってデータ生成時間を短縮した
- 高分子誘電体材料の探索フローを確立し自動化することによってデータ取得の大幅な効率化を達成した
- モノマー分子を生成するシステムの開発により新材料の探索が可能になった
- モデル素材において高誘電率高分子材料の候補を得た

□ 社内展開検討予定

- PMIDAS(高分子材料知的発見支援システム)の社内展開
- フィルムコンデンサへの応用



＜産総研＞

三宅 隆

深澤 太郎

＜株式会社村田製作所・ADMAT研究員＞

渡邊 唯人

近田 旬佑

以上