

JSAP第81回秋季講演会

Session: T16 多様な安定相のエンジニアリングの新展開

～環境・エネルギーデバイスと材料の未来～

はじめに

佐藤勝昭

(国研) 科学技術振興機構 (JST) 研究開発戦略センター (CRDS)

特任フェロー

東京農工大学名誉教授

はじめに

- ▶ 本シンポジウムはJST-CRDSの戦略プロポーザル「未来材料開拓イニシアチブ～多様な安定相のエンジニアリング」(2019年7月)を受けて、産総研反保衆志様のイニシアチブで、環境・エネルギーデバイス材料の開拓に焦点を当て、開催の運びとなりました。
- ▶ 本プロポーザルは、材料創製の探索範囲をこれまで人類が扱ってこなかった未開拓の領域まで大きく拡大することで、高性能・高機能化、複数機能の共存、相反する機能の両立などの材料に対する高度化した要求に応えうる未来材料を創製するための研究開発戦略です。
- ▶ 環境エネルギーデバイスでは、太陽電池・熱電等で、多元素からなる材料が検討されていますが、元素数が増えることで、多様な安定相が出現し、その中に高機能な新材料が見いだされる可能性を秘めています。

1. 提案を実施する意義

環境・エネルギー・IoT分野における様々なニーズに対応する
多様な新機能・高機能材料の要求

- ▶ 高効率の**太陽電池**（シリコン、CIGS、ペロブスカイト）
- ▶ 電力の安定供給に向けた**大容量蓄電池**
- ▶ 高効率な電圧変換を可能とする**パワー半導体**
- ▶ 高効率な**熱電変換デバイス**
- ▶ 小型高効率**モーター**（強力な磁石）
- ▶ 低燃費に向けた**超軽量素材**（軽量高強度鋼板）
- ▶ 排気ガスの清浄化（**触媒**）
- ▶ 高効率**ガスタービン**（高温用ブレード素材）
- ▶ 有害な**元素の代替**、希少金属代替
- ▶ 大量情報収集する**高感度センサー**
- ▶ 大容量**不揮発メモリ**



高機能材料開発に対する要求

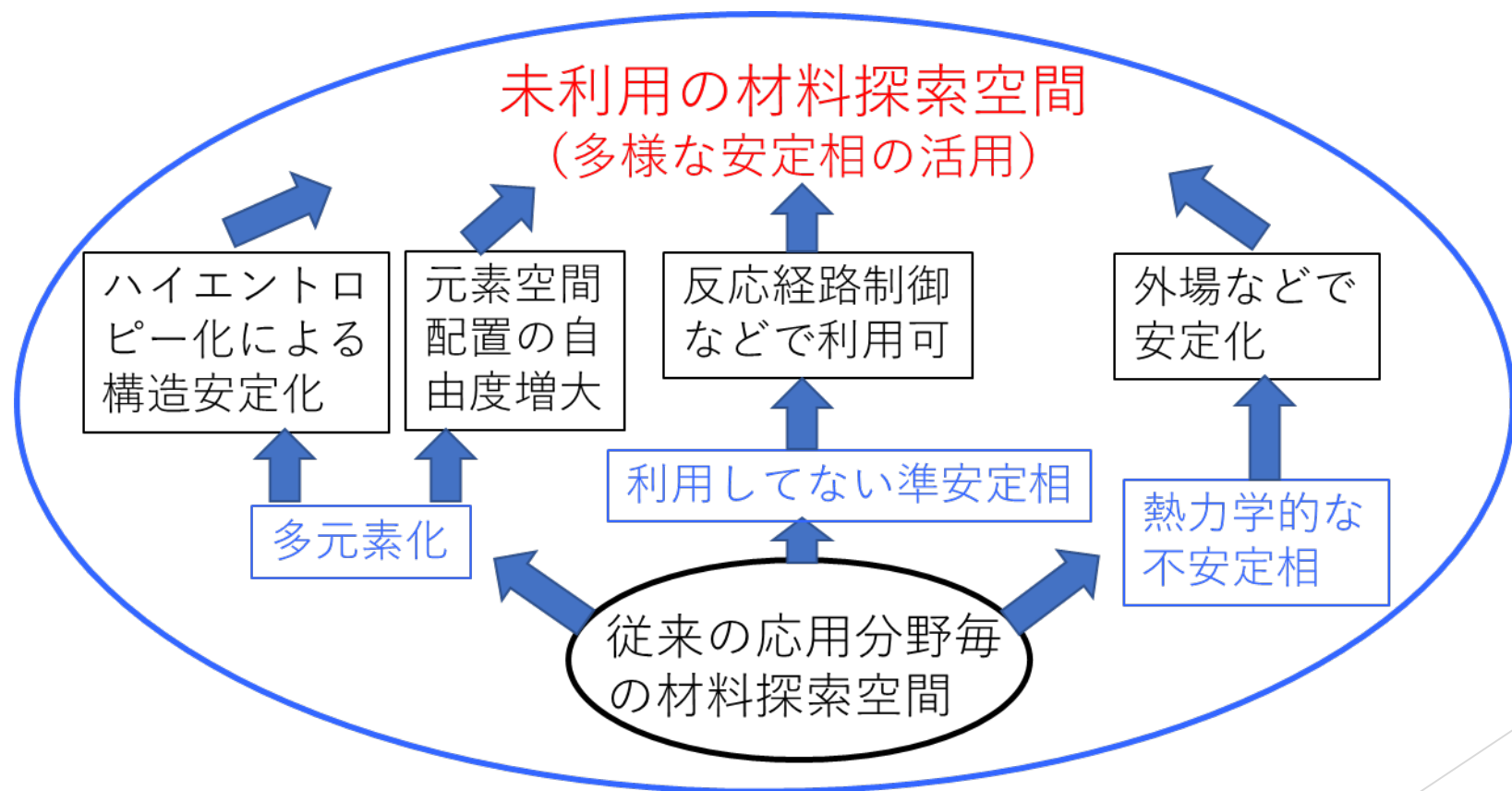
- ◆材料に対する**複数の機能、相反する特性の両立**などの高度な要求
- ◆機能材料開発に対する高度な要求に対し、これまでそれぞれの応用分野で様々な試行錯誤が行われた結果、多くの高機能材料が発見され(下表にいくつかを例示)、材料開発が継続されてきたが、**それぞれで限界に近づいている。**

機能材料	機能に対する要求	現在開発中の材料例
蓄電池固体電解質	高速Liイオン伝導と広い電位窓の共存	LiSnSiPS
蓄電池正極材料	高Li吸蔵・放出特性と安全性の両立	LiMnNiCoO
太陽電池	高い変換効率と長期信頼性の共存	CIGS、 $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (ペロブスカイト)
構造材料	軽量化と高強度、高強度・強靱性の両立	CoCrFeMnNi (ハイエントロピー合金)
熱電変換材料	高電気伝導度と低熱伝導の両立	PbNaGeTe、SrTiO ₂ /SrO積層構造
磁石材料	高保磁力と高飽和磁化の両立	NdLaCeFeB
ワイドギャップ半導体	高耐圧と高速動作(高周波動作)の両立	$\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ (準安定相)
蛍光体	多様な発光波長と高輝度の共存	(Ca,Y)- α -SiAlON:Eu
触媒	高い触媒機能と耐熱性、低コストの共存	PdRu
水・ガス分離膜	高い物質選別性と高処理能力の両立	ゼオライト、MOF

材料探索範囲の拡大

従来の応用分野毎の材料探索空間から、多様な安定相の活用による未利用の材料探索空間への拡大

- ・多元素化: 元素空間配置の自由度増大、ハイエントロピー化による構造安定化
- ・利用していない準安定相: 反応経路制御
- ・熱力学的な不安定相: 外場による安定化



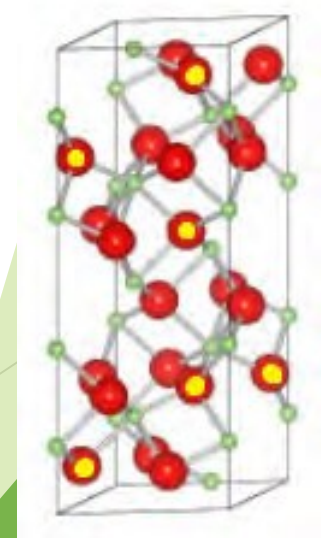
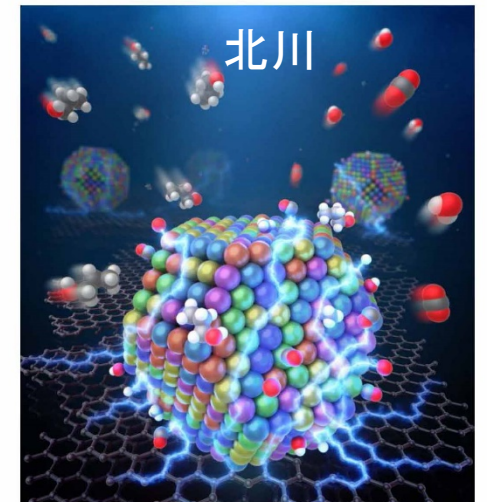
2. 具体的な研究開発課題

2-1. 材料の特性・機能や作製プロセス中における構成元素、結合状態、エントロピー、歪みなどの役割・効果の明確化と目的の機能を発揮する結晶相の設計手法の構築

- 材料の基本的な特性・機能を決める特定の結晶相における構成元素、結合状態などの役割の明確化（ハイスループット実験の活用、ビッグデータ解析などのデータ科学の利用）
- 作製プロセス中における、添加元素、エントロピー（ハイエントロピー効果）歪みなどの反応経路に関する役割の明確化
- 新たな結晶相の設計に関わる主要因子の抽出と設計手法の構築

- 元素（質量、イオン半径、電気陰性度、骨格形成、表面反応など）
- 結合状態（共有結合、イオン結合、原子価など）
- エントロピー（元素の種類の数、混合割合など）
- 歪み（ケミカルプレッシャー、外場など）

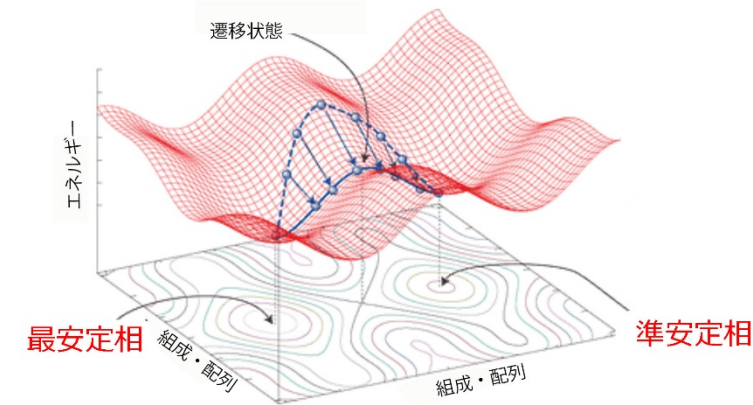
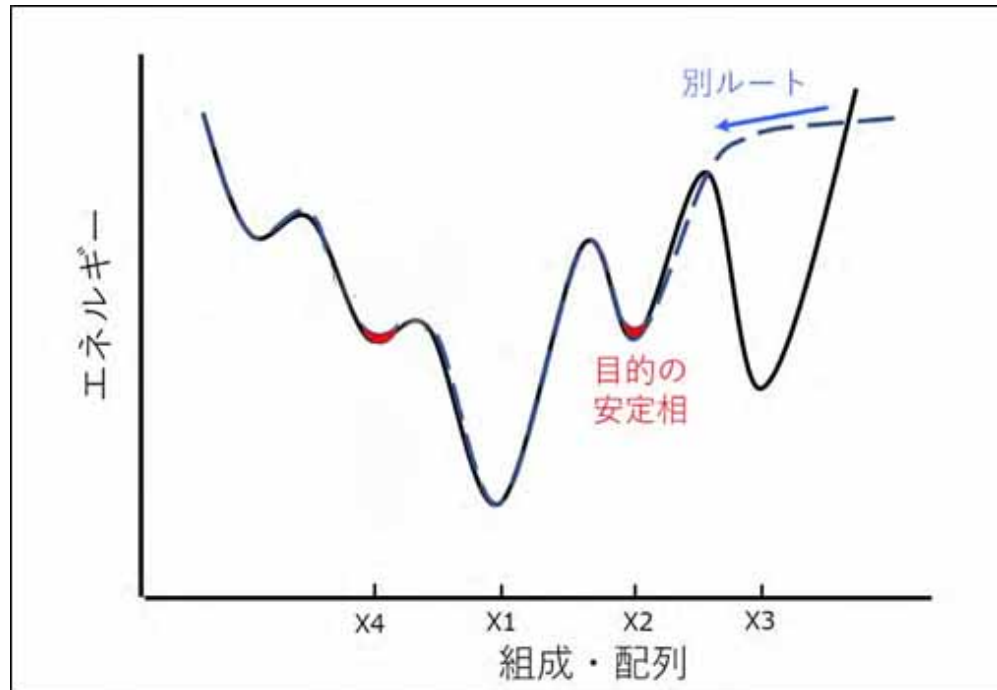
白金族ハイエントロピー合金ナノ触媒の合成に成功
-“One for all, all for one”の6 族土触媒が高難度反応を達成-



2. 具体的な研究開発課題

2-2. 作製プロセス中の反応過程の可視化と 反応経路の動的制御

- 作製プロセス中の反応生成物、雰囲気、結晶相変化などの **その場観測によるプロセスの可視化**

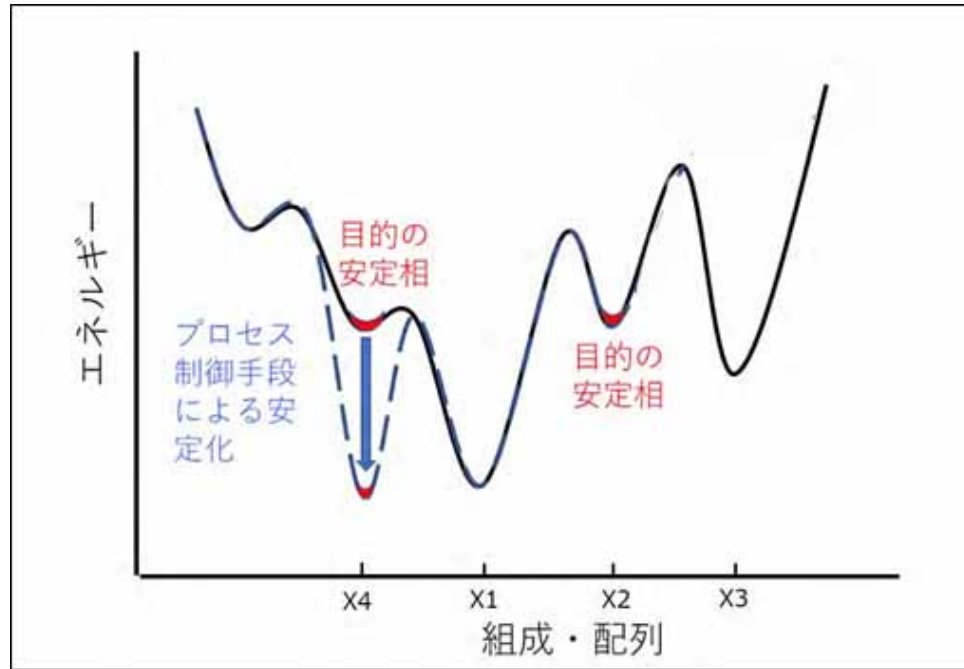


安定相の元素組成や配列と安定性との関係を示す概念図を図に示す。この図では、横軸の真ん中辺り (X1) に、エネルギーが最小となる最安定相が存在するとしており、その左右には複数の安定相 (準安定相) があると仮定している。今、目的の機能を持つ安定相が最安定相の右隣 (X2) にあるとし、実線の右上の点から反応を進めていくと仮定すると、すぐに深いポテンシャル障壁を持つ右端の安定相 (X3) に陥ることになり、その左側の目的の安定相に移ることは難しく、目的の安定相を得ることはできない。このため、点線のように反応の出発点を変えることで、一つの反応過程を経るのではなく、ダイナミックに複数の反応過程を経るなどして、別の反応ルートを経る必要がある。

2. 具体的な研究開発課題

2-3. 外場の利用による結晶相安定化手法の構築

- ▶ 動的な反応過程の理解に基づく反応経路の制御手法の開発
- ▶ 特定の結晶相の安定化を促進する結晶基板、添加元素、圧力変化などの外場効果の定量的評価と学理としての体系化
- ▶ 目的の機能を有する結晶相の安定化手法の開発



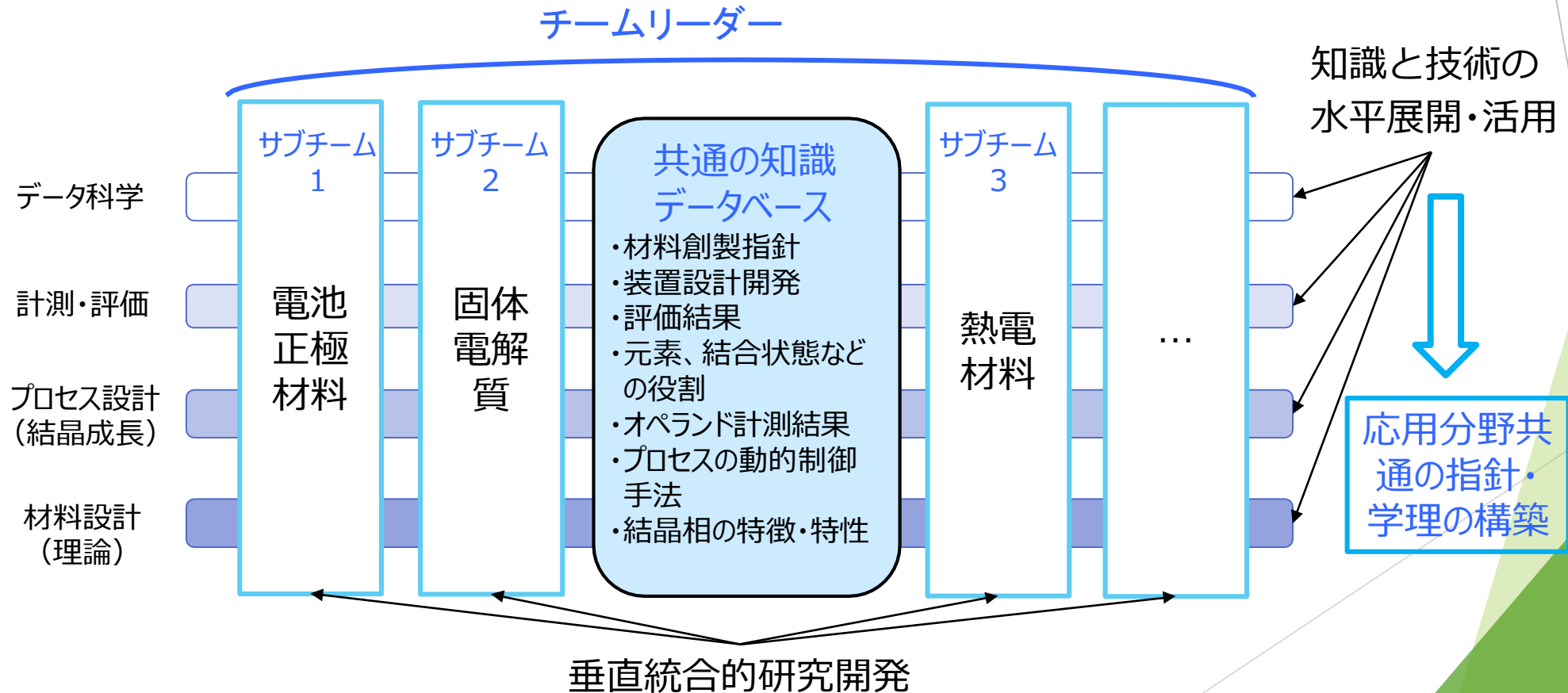
結晶相の動的制御のイメージ図

安定相の中には、特性・機能が魅力的であっても、熱平衡状態では他の安定相とのエネルギーバリアが低く、使用環境では不安定になるものも存在する。例えば、図の最安定相の左側にある安定相 (X4) のような場合には、最安定相との間のエネルギーバリアが低くなっている。このような安定相に対しては、反応経路の動的制御だけでは、たとえ材料ができたとしても実際に使うことができない。このため、目的の安定相をさらに安定化させる (エネルギーバリアを高くする) 手法の構築も必要である。

3. 研究開発の推進方法

3-1. 材料設計、プロセス設計、計測、データ科学に跨がる統合的研究推進

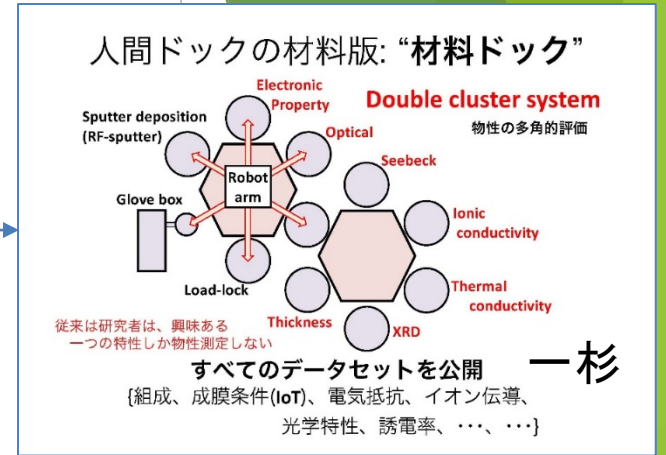
- ・類似の材料系（組成、結晶構造、結晶相など）を基に、**技術レイヤーに跨がる研究チーム**を構成
- ・応用領域毎に目的の機能を明確にしたサブチームでの研究を推進
- ・得られた実験データ、解析結果、様々な知見をチーム全体で共有



3. 研究開発の推進方法

3-2. 装置・成長手法共有による効率的な材料開発、人材育成可能な研究拠点の構築

- その場観測装置、オペランド計測装置の開発
- 独自のその場観測装置を組み込んだ結晶成長装置の構築
- **各種結晶成長装置の共用利用とデータ蓄積**
- データ分析結果を利用した材料・プロセス設計手法の構築と共有化
- 産学官の連携促進、広い視野を持つ人材の育成



3-3. 時間軸

- 理論計算、シミュレーション、材料設計、プロセス、計測、データ科学に跨り、材料設計と作製プロセスを一体的に考える新たなコミュニティの形成 (1~5年)
- プロジェクト化による支援
 - 新規安定相の探索、反応過程の可視化・制御、安定化手法検討、機能性の起源の明確化と知見の共有化、コンセプトの実証 (POC) (3~5年、文科省・JST)
 - 新規の材料設計手法構築、計測・結晶装置開発、プロセス開発 (5年、内閣府・経産省・NEDO)
 - 共有化された知見に基づく学理の構築、共通の材料設計・プロセス設計指針の構築 (5~10年、文科省・JST)

このシンポジウムの構成(1)

番号	タイトル	発表者	所属
8a-Z28-1	はじめに	佐藤勝昭	農工大, JST
8a-Z28-2	ワイドギャップ半導体Ga ₂ O ₃ の準安定相の制御と応用	大島 祐一	NIMS
8a-Z28-3	SiC単結晶成長におけるポリタイプ制御	加藤 智久	産総研
8a-Z28-4	多結晶材料情報学による粒界構造の解明と制御に向けて	宇佐美 徳隆	名大
8a-Z28-5	擬自由エネルギーを用いた多様な安定相の探索:微細組織構造の情報解析	小嗣 真人	東理大

HVPE を中心に、
準安定 Ga₂O₃
の相制御

ドーピング法を
昇華法に導入

人工ニューラルネットワーク
原子間ポテンシャルを構築
でSi多結晶粒界制御

擬自由エネルギーランド
スケープをモデリング

このシンポジウムの構成(2)

番号	タイトル	発表者	所属
8p-Z28-1	デジタルラボラトリを活用した新多元系マテリアル研究	一杉 太郎	東工大
8p-Z28-2	非平衡合成法による多元素ナノ合金の作製と応用展開	北川 宏	京大
8p-Z28-3	計算熱力学および計算組織学に基づく安定相・安定組織の材料デザイン	小山 敏幸	名大
8p-Z28-4	正・逆光電子分光法を用いたCZTGSe表面・界面の電子状態評価	永井 武彦	産総研

実験装置をConnected、Autonomous、Shared、High-throughput に

ナノ合金における多元素高エントロピー効果

相の安定性、および複雑な組織形態形成を扱う理論計算体系

5元系CZTGSeの表面に現れる伝導帯下端裾欠陥がVocロスに關与

このシンポジウムの構成(3)

番号	タイトル	発表者	所属
8p-Z28-5	熱電材料の設計指針と高性能材料開発の現状	竹内 恒博	豊田工大
8p-Z28-6	三元系疑似III族窒化物の合成と特性	山田 直臣	中部大
8p-Z28-7	新規多元系窒化物半導体II-Sn-N ₂ の高圧合成と構造	川村 史朗	NIMS
8p-Z28-8	ソーラー水素製造と材料開発	入江 寛	山梨大
8p-Z28-9	Pb free Sn ペロブスカイト太陽電池の研究開発動向	早瀬 修二	電通大

ナノ結晶化により階層的散乱構造、Si-Ge-XYでZT=3.7実現

物性チューニング可能なII-Sn-N₂系の合成

,高圧下複分解反応でMgSnN₂,CaSnN₂合成

全固体型二段階励起光触媒で高効率水素製造

Sn欠陥の制御

むすび

高度な機能をもつ未開拓な材料を、多様な安定相のエンジニアリングの観点から探索することの重要性を述べました。

結晶工学の探索空間を飛躍的に拡大する飛躍的に拡大するものと確信しています。

材料探索に関わる研究者各位のご理解とご支援により、戦略目標などの政策として実現することを期待しています。

このシンポジウムでの活発なご議論に期待します。

ACKNOWLEDGEMENT

JST/CRDS戦略プロポーザル「未来材料開拓イニシアチブ～多様な安定相のエンジニアリング」は、多くの有識者によるインタビュー・セミナー・ワークショップの資料に基づき、下記のメンバーによってまとめられたものです。

総括責任者：曾根 純一 上席フェロー（ナノテクノロジー・材料ユニット）
リーダ：小名木伸晃フェロー（ナノテクノロジー・材料ユニット） [2019年3月まで]
馬場 寿夫フェロー（ナノテクノロジー・材料ユニット） [2019年4月より]

メンバー

小林 恵主査 (プログラム戦略推進室)
佐藤 勝昭 特任フェロー（ナノテクノロジー・材料ユニット）
杉浦 晃一 調査員（未来創造研究開発推進部） [2019年3月まで]
永野 智己 フェロー（ナノテクノロジー・材料ユニット）
丹羽 洋 技術移転プランナー（産学連携展開部）
宮下 哲 フェロー（ナノテクノロジー・材料ユニット）
八木岡 しおり フェロー（海外動向ユニット）