

2022年1月18日

国立大学法人 奈良先端科学技術大学院大学
国立大学法人 京都工芸繊維大学

油に溶かしたカーボンナノチューブを樹脂に混ぜて 高機能な複合材料を作製 ～カーボンナノチューブの最適なインク化条件をAI予測可能～

ポイント

- カーボンナノチューブの有機溶剤インクを開発、高品質な複合樹脂作製に応用
- 人工知能（AI、機械学習）技術による解析から、インク化に関わる化学パラメータを推定

発表者

- 野々口 斐之（奈良先端科学技術大学院大学 先端科学技術研究科 物質創成科学領域 客員准教授、京都工芸繊維大学 材料化学系 講師）
- 河合 壯（奈良先端科学技術大学院大学 先端科学技術研究科 物質創成科学領域 教授）
- 宮尾 知幸（奈良先端科学技術大学院大学 データ駆動型サイエンス創造センター マテリアルズ・インフォマティクス部門 准教授）
- 船津 公人（奈良先端科学技術大学院大学 データ駆動型サイエンス創造センター マテリアルズ・インフォマティクス部門 特任教授）

概要

奈良先端科学技術大学院大学（学長：塩崎一裕）先端科学技術研究科 物質創成科学領域の野々口斐之客員准教授、河合壯教授、データ駆動型サイエンス創造センター マテリアルズ・インフォマティクス部門の宮尾知幸准教授、船津公人特任教授らの研究グループは、優れた機能性素材であるカーボンナノチューブ（CNT）を有機溶媒に溶かしたインクを開発し、加熱により成形する樹脂（熱可塑性樹脂）内に効率よく均一に分散させて混合することで、高機能化した複合材料をつくることに成功しました。

CNTは炭素のみが筒状に結合した直径数ナノ（10億分の1）メートルの物質で炭（墨）の一種です。軽くて丈夫、電気や熱を良く通すなどの特性があることから、二酸化炭素（CO₂）の削減に貢献する軽量で高強度の複合材料などを作成するときのフィラー（充填剤）原料としての用途が期待されていま

す。ところが、水を溶媒にする CNT インクが主流のため、油の性質がある有機溶媒に溶けやすい熱可塑性樹脂にはなじまないことが良質な複合材料開発の妨げになっていました。

今回開発された有機溶剤インクは多くの熱可塑性樹脂と混合できるほか、樹脂の一部は自身が CNT の分散剤となることも明らかになりました。また、この樹脂をフィルム状に調製すると、従来の分散法よりも電気が約 3 倍も流れやすく、熱は約 1.3 倍伝わりやすいことが分かりました。

さらに人工知能（AI、機械学習）技術を使い、CNT のインク化に関わる化学パラメータ（変数）を推定し、溶媒内の分散特性を高精度に予測可能なモデルを構築することにも成功しました。このことは、経験と勘に頼らない CNT 溶剤インク的设计指針の確立に向けた第一歩といえ、マテリアルズ・インフォマティクス（統計分析などを活用した情報科学）利活用の観点からも極めて意義深いものと考えられます。

本技術の詳細は、ドイツ Wiley 社が出版する学術誌「アドバンスト・マテリアルズ・インターフェイスズ (Advanced Materials Interfaces)」で 1 月 17 日オンライン公開されました。

DOI: 10.1002/admi.202101723

研究の背景

CNT は炭素のみが筒状に結合した直径数ナノ（10 億分の 1）メートルの物質で炭（墨）の一種です。軽くて丈夫、電気や熱を良く通すなどの特性があることから、二酸化炭素（CO₂）の削減に貢献する軽量で高強度の複合材料などを作成するときのフィラー（充填剤）原料としての用途が期待されています。これまで様々な混練方法で複合材料が開発されてきましたが、CNT を 1 本ずつほぐした状態で混ぜ込むことは極めて難しいとされていました。そこで、湿式法では界面活性剤などを用いることであらかじめ CNT を孤立分散させることができることから、従来では水系で調製される CNT インクが盛んに開発されてきました。しかしながら、水系 CNT インクと有機溶剤に溶けやすい熱可塑性樹脂は均一に混ざりにくく、CNT が再凝集しやすいことが長年、良質な複合材料開発の妨げとなっていました。

研究の内容・成果

今回、研究グループは汎用的なセルロース関連樹脂やビニル高分子が様々な有機溶媒中で CNT の分散剤として機能することを見出しました。詳細な構造解析から、テトラヒドロフランなどの有機溶媒中で CNT がバラバラ（1 本レベル）で安定に分散していることを確認しています。条件を最適化することでインプットした CNT がすべて分散する分散収率 100%を達成しました（図 1）。

本研究では効率よく条件の最適化を行うために実験を工夫しました。CNT インク中に含まれる CNT の量を簡単に計測するために、分散液の光吸収（吸光度測定）を利用しました。この方法により短時間に分散濃度に関する定量的なデータセットが得られます。実際にはエチルセルロースを分散剤として、吸光度データセットから 81 種類の溶媒依存性を調べました。さらにその解析に情報技術を取り入れて単純なパラメータ（変数）の

みの相関関係を表す線形回帰を行い、また、モデルの複雑さを段階的に増やすことにより、できるだけ少ない変数でのモデルを構築しました。このために、機械学習の手法である遺伝的アルゴリズムとベイズ学習の観点で特徴量選択を行いました。これらの検証を通じ、CNT の分散特性を高精度に予測可能なモデルを構築することに成功しました（図 2A）。またインク化に必要な化学パラメータは溶媒ごとに異なりますが、AI で絞り込まれた化学パラメータ群で規定された溶媒を、可視化手法である t-SNE により二次元平面に写像することで、似た分散メカニズムをもつ溶媒群の可視化・グループ化（図 2B）にも成功しました。



図 1. 有機溶媒テトラヒドロフランに収率 100%で分散した単層カーボンナノチューブの分散液（右）。遠心分離（13,000×g）を行った後、遠心チューブの底に不溶物が見られない（左）。

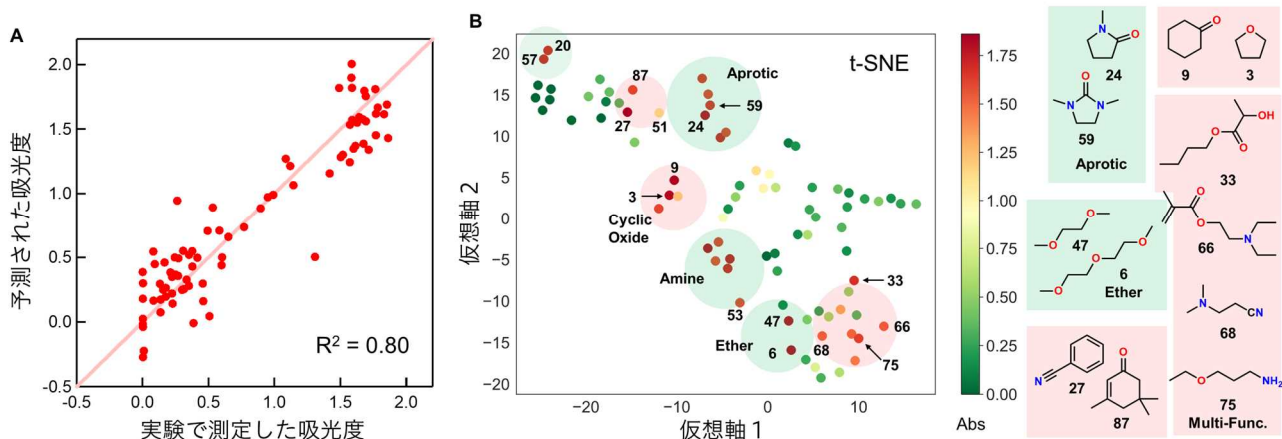


図 2A. 吸光度データセットの Leave-one-out 交差検定。過学習（アーティファクト）を防ぐために y-randomization による精度評価も導入している。B. t-SNE（次元圧縮）法による特徴量の可視化。投稿論文の図表を改変。

研究の意義と今後の展望

今回開発された有機溶剤系 CNT インクは多くの熱可塑性樹脂と均一混合が可能で、さらに CNT が 1 本レベルでバラバラに分散している複合樹脂フィルムを作ることが出来ます。この樹脂フィルムは従来の CNT 分散樹脂よりも約 3 倍電気が流れやすく、約 1.3 倍熱が通りやすいことが分かりました。

本研究では新素材開発の成功に加えて、材料開発における AI 技術の有効性を示すことにも成功しています。本研究では特徴量抽出とよばれる AI（機械学習）技術による解析から、インク化に関わると推定される化学パラメータの絞り込みや、関連の解明に至りました。このことは CNT インクの設計指針確立に向けた第一歩といえます。また昨今注目されるマテリアルズ・インフォマティクス利活用の観点からも、1) ハイスループットな実験による信頼性の高いデータセットの提供、2) 精度の高い予測モデルの構築、3) 機械学習に基づく実験結果の解釈とモデルの可視化によって有機溶媒の分類と仮説提案など極めて意義深い実施例であると考えられます。

今後はより高付加価値の CNT インクの開発と供給など社会実装に向けた取り組みを進めます。また解析・予測技術の高度化に向けて、吸光度測定的全自動化によるビッグデータ構築や、抽出された特徴量からの新しい分散剤—分散液の予測法などを開発していきます。

発表論文

論文題目：Governing Factors for Carbon Nanotube Dispersion in Organic Solvents Estimated by Machine Learning

著者：Yoshiyuki Nonoguchi（責任著者）、Tomoyuki Miyao（責任著者）、Chigusa Goto, Tsuyoshi Kawai, Kimito Funatsu

掲載誌・詳細：Advanced Materials Interfaces (2022). DOI: 10.1002/admi.202101723

用語解説

●カーボンナノチューブ (CNT)

炭素原子で構成される一次元のナノ炭素材料。グラファイト（黒鉛、鉛筆の芯の素材）を円筒状に丸めた構造をもつ。層が単一の単層 CNT と、円筒が入れ子構造となった多層 CNT がある。

●マテリアルズ・インフォマティクス

材料に関する実験やシミュレーション結果などのデータを情報科学や統計学の手法を用いて解析することで、効率的な材料探索や科学的な知見の発見につなげることを目的とする分野。

●機械学習

人工知能 (AI) 技術の一部で、入力されたデータに基づき、コンピュータが学習を行うことでデータの背後にあるルールやパターンを発見する手法。

●遺伝的アルゴリズム

生物の進化を模倣した形で最適解を探索する手法。本研究での最適解とは機械学習モデルの予測精度が高くなる変数の組み合わせを指す。

●Leave-one-out 交差検定、y-randomization

機械学習（統計）モデルの予測精度を評価する方法。Leave-one-out 交差検定では、データセットにふくまれる一つのサンプルを取り除き、残りのサンプルによりモデルを構築し除外したサンプルを予測することを全サンプルに対して行う。Y-randomization では、目的変数の値をサンプル間でランダムに入れ替えた状態でモデルを構築し、予測精度が低くなることを確認し、本来の説明変数による目的変数の回帰が偶然の相関ではないという主張をサポートする。