

未踏探索空間における革新的物質の開発
2021年度採択研究代表者

2022年度
年次報告書

塩見 淳一郎

東京大学 大学院工学系研究科
教授

巨大連続空間探索による不秩序熱機能材料の革新

主たる共同研究者:

後藤 真宏 (物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクニクス研究拠点 主席
研究員)

津田 宏治 (東京大学 大学院新領域創成科学研究科 教授)

研究成果の概要

実験から取得する巨大なデータ群にもとづいた不秩序熱機能材料の巨大空間探索を実現するべく、「固体成膜プロセス」と「ウェット塗布プロセス」の2軸で研究を進めた。

固体成膜プロセスにおいては、ナノ構造化アモルファスの組成、構造、プロセスパラメータの制御を通じた究極的な熱伝導率の低減を目的として、巨大データ取得に向けた要素技術の開発を進めた。全自動で成膜条件を変化させながら様々な組成や構造の材料作製が可能であるコンビナトリアルスパッタ成膜装置「COSCOS」によって、プロセスパラメータを系統的に変化させてアモルファス膜を作製した。前年度までは、薄膜を別々の基板へ成膜していたが、本年度は、1基板上へ多点成膜を施し、組成、密度、熱伝導率をマッピングによって評価することで、1バッチあたり多くのデータが取得できるようになった。前年度から着手している窒化シリコン系の膜に加えてシリカ系の膜を作製して評価したところ、アモルファスの熱輸送を担う Propagon (伝播モード) と Diffuson (拡散モード) の違いを反映した興味深い結果が得られた。また、アモルファスナノ構造の非弾性 X 線散乱実験を行い、界面がアモルファスの熱輸送に与える影響を明らかにした。

一方、ウェットプロセスについては、主に熱放射複合材塗膜の革新を目的とした巨大空間探索に向けた要素技術の開発を進めた。まず、複合材のフィラーについて、量子アニーラを利用した連続値ブラックボックス最適化アルゴリズムである CONBQA と電磁場計算を組み合わせ、巨大探索空間から最適構造を同定した。また、最適化だけではなく、物理的な知見も取得するべく、物性空間での一様サンプリングを狙って材料選択を行う手法 BLOX (BoundLess Objective-free eXploration) を適用した。次に、フィラーと母材を混合して塗膜を作製するプロセスについて、自律実験技術の開発を進めた。塗膜の自動作製と評価によって放射率データを大量に取得できる装置のバージョンゼロが完成した。

加えて、もう1つのウェットプロセスの形として、原理的に自律化が比較的容易なフローデバイスを用いた実験も行った。フローフォーカシング法を用いて作製したセルロースナノファイバー (CNF) から成る糸の熱伝導率を測定し、14.5 W/mK という非常に高い値を得た。加えて、内部の CNF の配向度が一定のレベルに達している条件において、CNF 間を繋ぐ水素結合が多く、残留応力によって生じる CNF 糸内の構造不秩序性が低い方が、高い熱伝導率が得られることを明らかにした。

最後に、本課題で推進している自動実験を広く普及させることを目指し、自動実験ミドルウェア NIMS-OS を開発した。NIMS-OS を用いれば、自動実験システムの開発において、Labview などの言語で動作する実験機器を、python で動作する機械学習アルゴリズムと組み合わせることが可能である。NIMS-OS が、アルゴリズムと実験ロボットの間に入ることで、一旦 NIMS-OS を用いたシステムを構築してしまえば、新たなアルゴリズムを用いることが格段に簡単になる。また、NIMS-OS に様々な実験システムを接続し、そこで開発されたスクリプトを共有することで、自動実験システムに新たに参入する研究者の負担を軽減することができる。

【代表的な原著論文情報】

- 1) G. Wang, M. Kudo, K. Daicho, S. Harish, B. Xu, C. Shao, Y. Lee, Y. Liao, N. Matsushima, T. Kodama, F. Lundell, L. D. Söderberg, T. Saito, J. Shiomi, “Enhanced High Thermal Conductivity Cellulose Filaments via Hydrodynamic Focusing”, *Nano Letters* **22**, 8406-8412 (2022).

- 2) C. Lortaraprasert, J. Shiomi, “Robust combined modeling of crystalline and amorphous silicon grain boundary conductance by machine learning”, *npj Computational Materials* **8**, 219 (2022).
- 3) R. Tamura, K. Tsuda, S. Matsuda, “NIMS-OS: An automation software to implement a closed loop between artificial intelligence and robotic experiments in materials science”, Arxiv 2304.13927 (2023).