

# 研究終了報告書

## 「自律的ものづくりを導入した金属水素化物の革新的新機能創出」

研究期間：2017年10月～2021年3月

研究者：清水 亮太

### 1. 研究のねらい

本研究のねらいは、機械学習(ベイズ最適化)とロボットを組み合わせ、「材料合成と条件最適化を全自動・自律的に行う装置」を開発し、人力では到達できないスピードで新機能材料を創製することにある。とりわけ、無機固体材料において、この研究スタイルを確立することを目標とした。

有機化合物では、分子構造が一意に決まれば、合成ルートに関わらず同一の物性(沸点、屈折率など)を示す。そのため、新奇材料の探索には「どのような構造の分子を合成するか」が焦点となる。その一方で、無機化合物では、同一の組成式であっても、結晶多型の影響や、欠陥あるいは不純物の種類・密度に依存して、物性(電気伝導性や光学特性)ががらりと変わり得る。また、構成元素の数が増え、その組成が複雑になれば組合せは指数関数的に増大し、探索は困難を極める。

一例として、全固体Li電池に向けた固体電解質開発を考える。現在最高のLiイオン伝導度を有する固体電解質(Li<sub>9.54</sub>Si<sub>1.74</sub>P<sub>1.44</sub>S<sub>11.7</sub>Cl<sub>0.3</sub>)は5つの元素を含み、その組成も非常に精密に調整されている。このような複雑な組成を精密に制御しながら、真に有用な材料を効率よく見つけ出さなければならない。

そこで本研究では、無機固体物質開発を高速に行う新たな仕組みとして、薄膜状の無機固体薄膜を作製し、物性評価を行うプロセスをすべて自律的に行う closed-loop システムを開発した。本システムは、機械学習により最適な合成条件を予測する「機械学習部」と、全自動搬送・成膜・評価を行う「ロボット部」から構成される。「機械学習部」から指示された合成条件に従って「ロボット部」が合成・評価を行い、結果を「機械学習部」に報告する。更新されたデータセットから「機械学習部」が最適条件を再度指示する、という closed-loop サイクルを回す。このシステムにより、望みの物性を指定した後は研究者が介在せず、機械学習アルゴリズムが全ての判断を行って物質合成を完了できる。

将来的には、本装置を拡張し、構造・組成・物性評価が可能なシステムとすることで、「成膜条件・構造・組成・物性値」の一連のデータセットをデータベース化する。これらの実験データを用いた機械学習により、精度の高い材料予測につなげる。さらに、本装置のシェアリングができれば、理論家による物質合成・評価も可能となる。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

本研究では多次元の合成条件最適化プロセスの検討として、古典的な L18-実験計画法とベイズ最適化を取り上げた。まず、MgH<sub>2</sub> エピタキシャル薄膜合成条件の最適化に L18-実験計画法を適用した。効率的な水素化に直結するパラメータが重要であると見当をつけていたが、蒸着後アニール時間や加熱速度など速度論的な因子も強く影響することを見出し、不純物相

のない高品質な MgH<sub>2</sub> 薄膜の合成に成功した[Inorg. Chem. (2019)].

L18-実験計画法は解析手順が単純で万人が利用しやすい手法であるが、18 サンプルを 1 セットとして作製・解析する必要があること、1 パラメータあたり 3 水準しか割り当てられないことから、広い探索空間で正確に最適化を行うには、結局複数セットの試行を必要とし、必ずしも効率的とはいえない。

そこで試料合成のスピードアップを図るためにロボット技術を導入し、より効率的な最適化を行う機械学習アルゴリズム(ベイズ最適化)を組合せ、全自動・自律的な Closed-loop 合成システムの開発に着手した。「機械学習部」から指示された合成条件に従って「ロボット部」が合成・評価を行い、結果を「機械学習部」に報告する。更新されたデータセットから改めて「機械学習部」が最適条件を指示する、という Closed-loop サイクルを回す。このシステムにより、望みの物性を指定した後は研究者が介在せず、機械学習アルゴリズムが全ての判断を行って物質合成を完了する。

本システム運用のモデルケースとして、Nb:TiO<sub>2</sub> 薄膜の電気抵抗最小化を行った。パラメータは成膜時の酸素分圧とし、一次元の条件最適化に相当する。すると、~15 回で最小抵抗値に到達した。このロボット成膜装置の試料作製能力は~10 枚/日であり、1.5 日で最適化が完了できる。休日や睡眠、会議参加などを考えると人力では平均して~1 枚/日であるため、全自動・自律的薄膜合成装置の利用により、従来の 10 倍のスピードで目的物質を作製できることを、無機物質において初めて実証した[APL Mater.(APL Mater. (2020), プレスリリース]。なお、二次元最適化でも本装置の有用性は実証済みである。

本システムはさらなる多次元空間の探索においてより威力を発揮する。上記は酸素分圧のみを変化させたが、成膜条件は基板温度やスパッタ電力など、その他にも多数存在する。ベイズ最適化は任意の次元への拡張が容易であり、ロボットの高い生産能力を活かすことで、人間の想像が追いつかない多次元空間を、効率よく正確に探索することが可能となる。

## (2) 詳細

### 研究テーマ A-1 「多次元パラメータの最適化手法の検討」

発展著しい機械学習のアドバンテージを理解する意味合いも含め、ここでは古典的な L18-実験計画法を用いて MgH<sub>2</sub> エピタキシャル薄膜合成条件の最適化を行った(図 1)。Mg ターゲットを用いた H<sub>2</sub> ガス導入反応性スパッタ法により、ルチル型の結晶構造をとる薄膜が得られた。しかしながら、蒸着時の基板温度が高い場合 Mg へと分解しやすく、基板温度を室温とすると結晶性が悪い問題があった。そこで、室温成膜の後に 0.04 気圧の水素雰囲気下での蒸着後アニール(PDA)を行うことで、分解を防ぎながら良質な薄膜合成を行った。

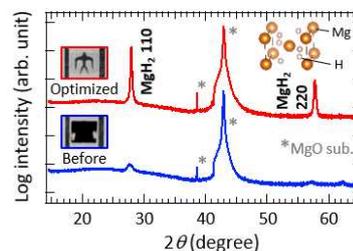


図 1: MgH<sub>2</sub> 薄膜の合成条件最適化。(青)が最適化後(赤)となり、透過性・結晶性が改善した。

8つのパラメータには、成膜時のものを4つ、PDA時のものを4つ、表1の通りに水準を割り当てた。評価指標は透過率とし、この値が最大化する組合せを見つけるのが課題である。要因効果図を基に、最適な水準を拾い上げて作製した結果が図1である。不純物相のない、高い透過性を有した高品質なエピタキシャル薄膜の合成に成功した[Inorg. Chem. (2019)]。

このように、L18-実験計画法は解析手順が単純で万人が利用しやすい手法であるが、18サンプルを1セットとして作製・解析する必要があること(図2)、1パラメータあたり3水準しか割り当てられないことから、広い探索空間で正しく最適化を行うには、結局複数セットの試行を必要とし、必ずしも効率的ではないと判断した。

### 研究テーマ A-2 「ロボットと機械学習を融合した全自動自律的薄膜合成装置の開発」

研究効率をさらに高めるため、試料合成のスピードアップを図るためにロボット技術を導入し、より効率的な最適化を行う機械学習アルゴリズム(ベイズ最適化)を適用して、これらを統合した全自動・自律的な Closed-loop 合成システムの開発に着手した。

本システムでの概略を図3に示す。ベイズ最適化によって指示された合成条件に従って材料合成と評価を行い、更新されたデータセットから改めてベイズ最適化により最適条件を指示する、という Closed-loop サイクルを回す。このシステムにより、望みの物性を指定した後は研究者が介在せず、機械学習アルゴリズムが全ての判断を行って物質合成を完了する。

本システム運用のモデルケースとして、Nb:TiO<sub>2</sub> 薄膜の電気抵抗最小化を行った。基板温度は室温、全圧を0.50 Paに固定し、成膜時の酸素分圧を2.0×10<sup>-4</sup> から5×10<sup>-3</sup> Paの範囲内で変化させて一次元の条件最適化を行った。なお、室温蒸着後に400°Cで15分加熱することでアナターゼ結晶化を行った。

表1: MgH<sub>2</sub> 薄膜合成時の8パラメータの水準割り当ての一覧。右に400 nmの透過率を示す。

n	Parameters for deposition				Parameters for post-deposition annealing			Transmittance [% at 400 nm]	Response # = log <sub>10</sub> (1/T <sub>T</sub> ) (dB)	
	Degassing	f <sub>1</sub> :f <sub>2</sub>	Pre-heat time (min)	Sample bias	Mg/H <sub>2</sub> pres. (×10 <sup>-2</sup> Pa)	PDA temp. (°C)	Ramp rate (°C/min)			PDA time (min)
1	N/A	5:10	2	Float	0.2	320	300	3	19.3	25.71
2	N/A	5:10	5	GND	0.5	350	100	15	44.8	33.02
3	N/A	5:10	10	-50V	1	380	30	30	84.3	38.51
4	N/A	10:10	2	Float	0.5	350	30	30	47.5	33.54
5	N/A	10:10	5	GND	1	380	300	3	40.0	32.05
6	N/A	10:10	10	-50V	0.2	320	100	15	26.9	28.60
7	N/A	15:10	2	GND	0.2	380	100	30	78.4	37.89
8	N/A	15:10	5	-50V	0.5	320	30	3	35.9	31.11
9	N/A	15:10	10	Float	1	350	300	15	71.4	37.08
10	degassed	5:10	2	50V	1	350	100	3	38.0	31.59
11	degassed	5:10	5	Float	0.2	380	30	15	47.3	33.50
12	degassed	5:10	10	GND	0.5	320	300	30	38.1	31.62
13	degassed	10:10	2	GND	1	320	30	15	34.3	30.70
14	degassed	10:10	5	-50V	0.2	350	300	30	53.9	34.63
15	degassed	10:10	10	Float	0.5	380	100	3	34.8	30.82
16	degassed	15:10	2	-50V	0.5	380	300	15	71.1	37.04
17	degassed	15:10	5	Float	1	320	100	30	71.1	37.06
18	degassed	15:10	10	GND	0.2	350	30	3	72.6	37.21

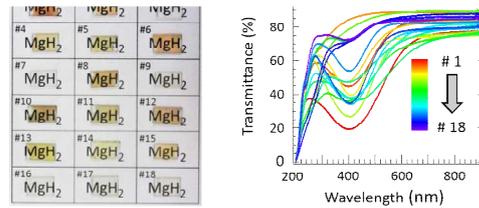


図2: L18-実験計画法で作製した(a)サンプルの写真と(b)可視光領域の透過スペクトル。

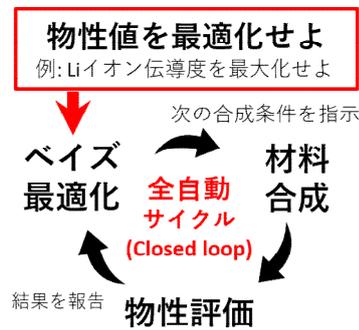


図3: 本研究で導入したロボット-機械学習システムの概略図。

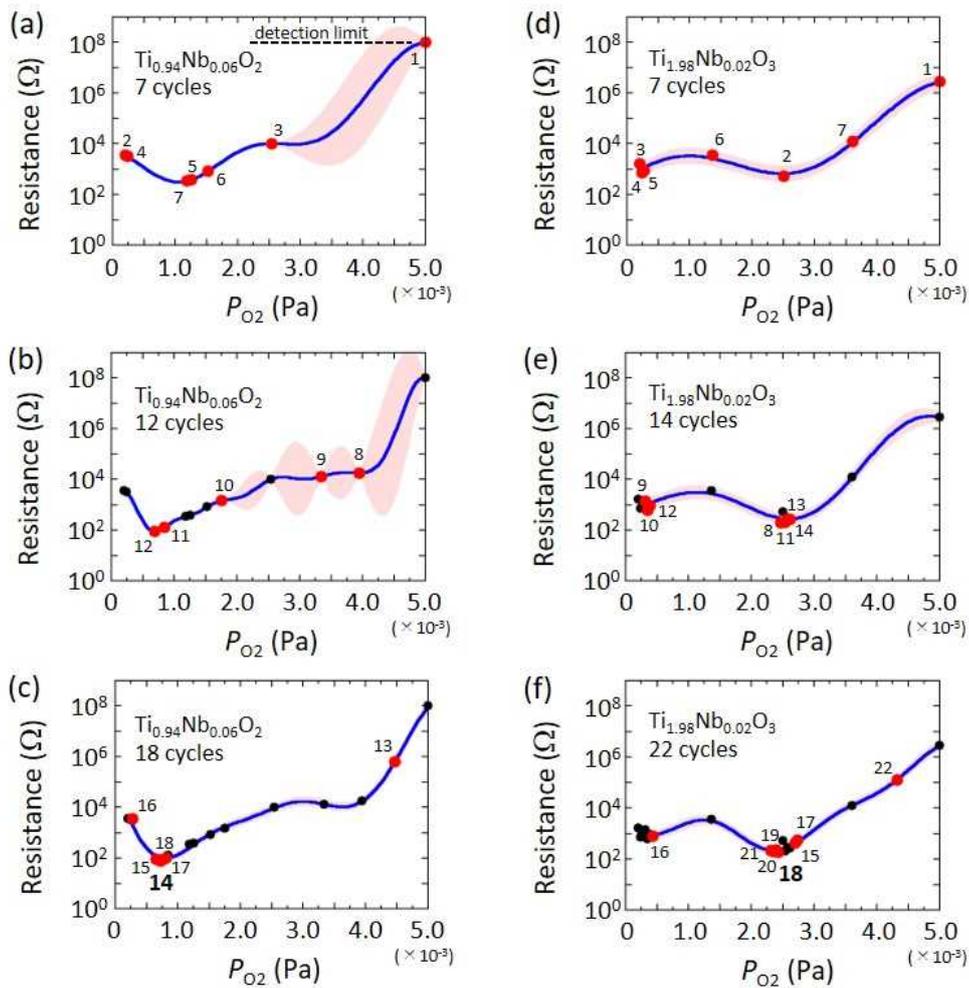


図 4:  $\text{Ti}_{0.94}\text{Nb}_{0.06}\text{O}_2$  ターゲット(a-c)と  $\text{Ti}_{1.98}\text{Nb}_{0.02}\text{O}_3$  ターゲット(d-f)を用いた電気抵抗のベイズ最適化の過程。青線は推定曲線、ピンクの領域は信用区間を表す。 $\text{Ti}_{0.94}\text{Nb}_{0.06}\text{O}_2$  ターゲットでは 14 回目で、 $\text{Ti}_{1.98}\text{Nb}_{0.02}\text{O}_3$  ターゲットでは 18 回目で最小の抵抗値( $R_{\min}$ )を得た。 $P_{\text{O}_2}$  は酸素分圧を表す。

図 4(a-c)に  $\text{Ti}_{0.94}\text{Nb}_{0.06}\text{O}_2$  (T1)ターゲットを用いた際の電気抵抗の酸素分圧依存性を示す。また、各成膜と評価結果を表 2 に示す。~15 回以降では、「機械学習部」が類似の酸素分圧を指示するようになっており、収束していると判断した。酸素分圧に依存して抵抗値が変化する様子は過去の実験報告とコンシステントである。このようにして、完全に全自動で、最適な酸素分圧を  $7.29 \times 10^{-4}$  Pa と決定することができた。

図 3(d-f)に  $\text{Ti}_{1.98}\text{Nb}_{0.02}\text{O}_3$  (T2)ターゲットを用いた際の電気抵抗の酸素分圧依存性、表 1 に成膜・評価結果を示す。こちらも~15 回で最小値である  $2.43 \times 10^{-3}$  Pa のところに収束した。推定曲線が  $\text{Ti}_{0.94}\text{Nb}_{0.06}\text{O}_2$  のものと比較して右にシフトしており、これはターゲット内の酸素含有量が少ないこととコンシステントである。

この全自動 closed-loop 過程において、特筆すべきことが 2 点ある。1 点目は、探索範囲内に極小領域が 2 つ存在する中で、正しく global minimum を探索できている点である。酸素分圧の低い側で極小領域が出現する原因は  $\text{Ti}_3\text{O}_5$  や  $\text{Ti}_2\text{O}_3$  などの還元相(マグネリ)の生成に由来する

表 2:  $Ti_{0.94}Nb_{0.06}O_2$  (T1)ターゲットと  $Ti_{1.98}Nb_{0.02}O_3$  (T2)ターゲットを用いた成膜の記録と各試料の作製時の酸素分圧と抵抗値の関係。太字は最小抵抗値が得られたものを示す。

Target: $Ti_{0.94}Nb_{0.06}O_2$				Target: $Ti_{1.98}Nb_{0.02}O_3$			
No.	Date, Time	$P_{O_2}$ (Pa, $\times 10^{-3}$ )	Resistance (Ohm)	No.	Date, Time	$P_{O_2}$ (Pa, $\times 10^{-3}$ )	Resistance (Ohm)
1	2020/02/25 22:46	5.000	1.000E+08	1	2020/02/05 02:43	5.000	2.889E+06
2	2020/02/26 01:09	0.200	3.576E+03	2	2020/02/05 12:26	2.500	5.207E+02
3	2020/02/26 03:33	2.544	1.028E+04	3	2020/02/16 03:55	0.200	1.626E+03
4	2020/02/26 05:57	0.238	3.187E+03	4	2020/02/16 06:20	0.238	7.184E+02
5	2020/02/26 08:22	1.259	3.923E+02	5	2020/02/16 08:44	0.276	8.650E+02
6	2020/02/26 10:46	1.523	8.298E+02	6	2020/02/16 11:08	1.372	3.534E+03
7	2020/02/26 22:53	1.183	3.416E+02	7	2020/02/16 13:31	3.602	1.259E+04
8	2020/02/27 01:16	3.942	1.817E+04	8	2020/02/16 15:54	2.468	1.967E+02
9	2020/02/27 03:40	3.337	1.280E+04	9	2020/02/16 18:18	0.314	1.425E+03
10	2020/02/27 06:05	1.750	1.469E+03	10	2020/02/16 20:43	0.351	6.263E+02
11	2020/02/27 08:30	0.843	1.279E+02	11	2020/02/16 23:08	2.544	2.046E+02
12	2020/02/27 11:17	0.692	8.865E+01	12	2020/02/17 01:38	0.389	9.407E+02
13	2020/02/27 15:45	4.471	6.373E+05	13	2020/02/17 04:01	2.581	2.880E+02
<b>14</b>	<b>2020/02/27 20:05</b>	<b>0.729</b>	<b>7.960E+01</b>	14	2020/02/17 06:25	2.619	2.724E+02
15	2020/02/27 22:36	0.654	9.247E+01	15	2020/02/17 08:50	2.695	4.243E+02
16	2020/02/28 01:00	0.276	3.521E+03	16	2020/02/17 11:14	0.427	8.198E+02
17	2020/02/28 03:24	0.805	9.805E+01	17	2020/02/17 17:24	2.733	5.568E+02
18	2020/02/28 05:47	0.767	9.200E+01	<b>18</b>	<b>2020/02/17 19:48</b>	<b>2.430</b>	<b>1.918E+02</b>
				19	2020/02/17 22:11	2.392	2.321E+02
				20	2020/02/18 00:34	2.355	1.938E+02
				21	2020/02/18 02:59	2.317	2.175E+02
				22	2020/02/18 05:23	4.320	1.296E+05

が、この local minimum に留まることなく正しく最小値探索ができています。

2点目は、これらの実験で10倍程度のスループット向上を達成できた点である。表2のタイムスタンプに示すように、10回/日の成膜能力があり、一日から二日で最適化が完了できる。人間が実験すると一日に平均して2試料作ることができ、6日間を要する。土日や睡眠、ミーティング等を考慮すると10日間程度の時間が必要と考えて良いだろう。すなわち、全自動・自律的薄膜合成装置の利用により、従来の10倍のスピードで目的物質を作製できることを、無機物質において初めて実証した[APL Mater.(2020), プレスリリース]。

#### 研究テーマ B「水素化物成膜の技術確立と新機能探索」

研究テーマ A-1 において、反応性スパッタを利用した  $MgH_2$  の薄膜合成に成功した。 $MgH_2$  の

他に、水素吸蔵合金  $\text{TiH}_2$ [Phys.Rev.Res.(2020)]、 $\text{NbH}$ [AIP Adv.(2019)]、強磁性体  $\text{EuH}_2$ (Cryst.GrowthDes.(2020))、フォトクロミック特性材料  $\text{YO}_x\text{H}_y$ 、アンモニア合成触媒材料  $\text{Ca}_2\text{NH}$  の薄膜作製に成功している。特にこの中でも  $\text{YO}_x\text{H}_y$  薄膜の光応答に着目した。

$\text{YO}_x\text{H}_y$  薄膜は、太陽光照射により黒色化し、電気抵抗が減少する。この光照射を切断し、暗所放置することで、元の透明・絶縁体に戻ることから、フォトクロミック材料として注目されている。しかしながら、この  $\text{YO}_x\text{H}_y$  の抵抗変化はただか 1 桁である。そこで、光応答性の向上を目指して、 $\text{YO}_x\text{H}_y$  をエピタキシャル薄膜化し、UV レーザー照射による高密度な光キャリアの生成を試みた。すると、UV レーザー照射後に 7 桁以上の電気抵抗低減を見出し、薄膜の電気伝導の温度依存性は右肩上がりとなり、金属化することに成功した(図 5)。

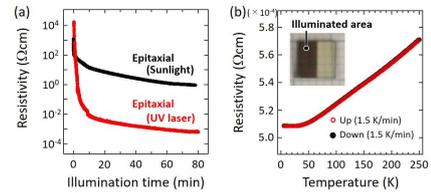


図 5:  $\text{YO}_x\text{H}_y$  における光誘起伝導。エピタキシャル薄膜化と UV レーザー照射により、光照射による繰り返し可能な絶縁体-金属転移を実現した。

$\text{YO}_x\text{H}_y$  の光応答はバンドギャップ( $h\cdot = 2.6 \text{ eV}$ ,  $\lambda \approx 460 \text{ nm}$ )以上のエネルギーを持つ光励起で起こる。そのため、太陽光などの紫外成分の少ない光では、十分に光機能を引き出せていない。そこで、バンドギャップエンジニアリングの一貫として、N のドーピングを行い、 $\text{YO}_x\text{H}_y\text{N}_z$  薄膜の作製を目指す。酸化物  $\text{Y}_2\text{O}_3$  は絶縁体、水素化物  $\text{YH}_2$  は金属、窒化物  $\text{YN}$  は半導体であり、これらの性質のバランスをとることが狙いである(図 6)。

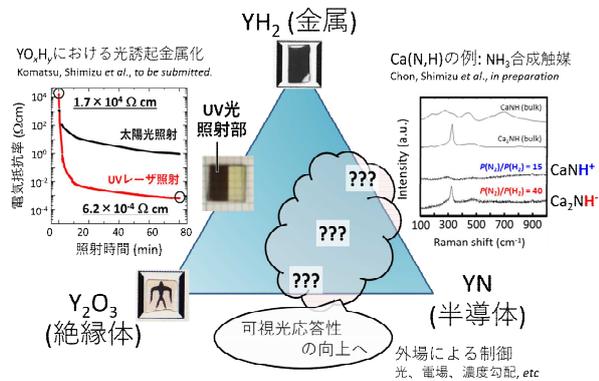


図 6:  $\text{YO}_x\text{H}_y\text{N}_z$  薄膜創製と期待される物性。この光応答最適化を全自動合成システムを用いて行う。

この最適条件を、研究テーマ A-2 で確立した全自動合成システムを用いて探索する。設定課題は、緑色 LED( $\lambda = 535 \text{ nm}$ )を 5 分照射した前後での抵抗減少量である。現在このセットアップを進めている。

### 3. 今後の展開

#### 構造・組成・物性全般にわたるデータ取得と、実データに基づくデータベース構築

本研究では、目的の物性を示す無機固体物質について、従来は手動で行っていたスピードに比べて、「約 10 倍」のスピードで速やかに合成可能な装置開発に成功した。本研究内では、目的とする単一の物性(特に電気伝導性やイオン伝導性)に特化して最適化を行ったが、物質のキャラクタライゼーションには様々なものが存在し、これらのデータを網羅的に取得することで、「実験データに基づいたデータベース」を構築することが今後重要である。

実験データに基づくデータベースと、マテリアルズインフォマティクスの手法を組み合わせることで、より高い予測精度に基づく物質探索につなげることができる。これまでのマテリアルズインフォマティクスの取り組みは、理論計算を基にした機械学習が多く、現実との乖離があり、また「どう乖離しているのか」が不明であった。また、実データのデータベースにしても、ばらばらの実験から収集されたデータのため、データ量の大小や範囲の偏り、さらにはデータそのもの

のの良し悪し(信頼性)の一貫性に疑問が残っていた。その疑問を払拭できるように、統一された実験環境で「大量、かつ、より均質に」データ取得することで、その後の機械学習の高精度化につながり、より良い物質材料の具現化に貢献できる。

実際に取得すべきデータは多種多様である。例えば、結晶や原子の結合に関する「構造評価」は、物性を決める直接的な因子であり重要である。このためには、X線回折や赤外・ラマン分光法などを行い、「構造データ」として取り入れるとよいだろう。物質の「組成」も重要であり、蛍光 X線分析などによる「組成データ」も重要である。また、物性面では、輸送特性・光学特性・誘電性・磁性などのあらゆる物性のデータを取得したい。これらの構造・組成・物性のデータと、合成条件を組み合わせることで、候補物質の選定から、実際に合成するところまでをシームレスにつなげることができる。

この取り組みにおける今後の課題は、これらの測定を「全自動」で行う必要があり、そのためには測定環境の「標準化」が何より重要である。各種測定装置を接続し、サンプルのサイズや固定方法、搬送方法などを全て揃えて行う必要がある。この点は、装置の設計段階から考慮すべき問題であろう。

### **バーチャルツインを導入した全自動物質材料探索**

「自律的な最適化を全自動で行う装置」は、高度計測や物質材料探索の場でますます増えてきている。本研究は、「無機固体物質の合成」に対して全自動実証をしたものであるが、このような自動化の流れはますます加速するであろう。今後、重要度が増すものが、コンピュータシミュレーションによる場の再現(バーチャルツイン)を用いた現実の合成系へのフィードバックである。

このバーチャルツインを物質・材料合成の場に適応することを考えると、以下の2点が重要であると考えている。

#### **➤ 様々なセンシング技術を導入した合成条件・合成環境のデジタル化**

これまでは合成時の原子論的描像は想像の範疇であったが、コンピュータの高性能化に伴い、様々なシミュレーションが可能となってきた。そのシミュレーションに向け、合成時の環境(圧力・ガス流量・基板の昇温速度・プラズマ発光など)をリアルタイムでモニターを行う。合成環境をデジタル化することで、実験の再現性などを決める因子をより具体的に拾い上げることができる。

#### **➤ 理論計算や機械学習を組合せ、バーチャル環境で予測された材料の具現化**

各種センシングによりデジタル化された環境を中間データとして、合成条件(説明変数)と物性値(目的変数)をより高精度に予測することも可能である。また、デジタル環境に基づいて動的なシミュレーションを行うことで、物質輸送やその物質の結合・分解などを通じた原子論的な合成スキームの解釈につながる。これまでにはない発想での物質・材料研究により、新しい材料開発のスピードが飛躍的に増大すると見込まれる。

## 4. 自己評価

### 研究目的の達成状況

ロボットと機械学習を組み合わせた圧倒的なスピードでの無機材料合成のシステム構築については、原理検証が完了した。この点は大きな進歩である。最終目標の水素化合物へは、ラマン分光などの計測技術の導入が有効であり、今後の導入を目指す。

また、今後は材料合成のみならず、機能性材料を複合化したデバイス特性の最適化への道筋も見えている。パターンニング技術と自動多層膜形成技術を組み合わせることで、いち早く発見した有望な材料を、いち早くデバイス実装化することが期待される。

#### 研究の進め方（研究実施体制・研究費執行状況）

研究期間中に COVID-19 の影響により一時中断を余儀なくされたものの、遠隔作業も取り入れた開発の継続により、全自動合成システムの安定動作にまで到達した。水素化合物への展開につなげるところが最終課題である。研究費の執行については、初年度にスパッタ成膜装置、次年度以降にロボットアーム等の根幹部品を入手し、順調に執行され問題はない。

#### 研究成果の科学技術および社会・経済への波及効果

研究期間中の COVID-19 の影響で研究がやや遅滞したものの、本装置は「作業の遠隔化」という社会全体で抱える課題に真っ向から立ち向かう解決策の 1 つとして、ますます重要な地位を得ていると感じている。学生や職員の出校制限中でも、単純作業はロボット・機械学習に任せることで、実験活動をリモートワーク化し、実験室での滞在時間を短縮できることも実証している。

#### その他

本システムの企業からの関心は高いと感じている。残業問題や導入コストの低さ(ロボット等は驚くほど安価になっている)から、大学の研究者よりもより身近なものとしてとらえている印象である。少子高齢化に伴う労働人口の減少も迫っており、自律型の全自動物質材料合成システムがスタンダードになっていく可能性が高い。

### 5. 主な研究成果リスト

#### (1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 12件

1. R. Shimizu, S. Kobayashi, Y. Watanabe, Y. Ando, and T. Hitosugi, "Autonomous materials synthesis by machine learning and robotics", APL Mater. APL Mater. 8, 111110 (2020). 合成条件を最適化するための「機械学習部」と、その機械学習部が指示した合成条件に従って全自動で無機薄膜合成を行う「ロボット」を融合し、全自動・自律的な無機薄膜合成システムを構築した。Nb を一部添加した TiO <sub>2</sub> の薄膜において、電気抵抗の最小化を従来の手動効率の 10 倍のスピードで達成した。無機物質への「全自動・自律的合成」の取り組みは世界でも初となる成果である。
2. R. Shimizu, H. Oguchi, and T. Hitosugi, "Metal Hydrides: Epitaxial Growth and Electronic Properties", Journal of the Physical Society of Japan 89, 051012 (2020) 金属水素化物薄膜の合成と電子機能創製に関するレビュー論文。前半分では、金属水素化物薄膜の一般的な物理・化学特性を念頭において作製手法を複数紹介し、それらの長所を概説している。後半部ではそれらの成膜手法を活かして創出される金属水素化物の薄膜・界面の精密な構造制御と、電子輸送特性やフォトクロミック特性、イオン伝導特性などを紹介し

ている。

3. R. Shimizu, T. Kakinokizono, I. Gu, and T. Hitosugi, “Epitaxial growth of single-phase magnesium dihydride thin films”, *Inorganic Chemistry* **58**, 15354 (2019)

水素化マグネシウムのエピタキシャル薄膜合成を初めて報告した。実験計画法を活用し、8つの成膜パラメータからなる総計 2203 条件の中から、たった 18 回の実験において成膜条件の最適化に成功した。人力での合成条件の最適化のベンチマークであり、条件の選び方や探索空間の範囲指定などの問題意識が、機械学習—ロボットによる全自動・自律的合成【論文 1(APL Mater.(2020))】とへとつながった成果である。

## (2) 特許出願

研究期間累積件数： 1 件（公開前のため詳細略）

## (3) その他の成果（主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等）

### 主要な学会発表

- Ryota Shimizu, Shigeru Kobayashi, Yasunobu Ando, Taro Hitosugi. “Autonomous Thin-Film Growth System for Materials Discovery”, 2020 Virtual MRS Spring/Fall Meeting, Nov. 2020.
- 清水亮太(招待)、「AI とロボットを導入した自律的無機材料合成」、第 30 回 MRS-J 年次大会(オンライン開催) (2020)
- 清水亮太(招待)、「高分解能測定・新物質探索に向けた真空・薄膜・表面技術」、2020 年日本表面真空学会学術講演会併催 実用新技術セミナー 特別講演 (2020)

### プレスリリース

- 「自律的に物質探索を進めるロボットシステムを開発 —物質・材料研究開発の進め方について革新を起こす—」

### 著作物

- 書籍: <Q&A で理解する>マテリアルズインフォマティクス(仮題)  
分担執筆、清水亮太、一杉太郎「機械学習とロボットの導入による自律的な物質材料開発の取り組みとは?」(情報機構、2020)
- 書籍: 人と共生する AI 革命 ~活用事例からみる生活・産業・社会の未来展望~  
分担執筆、清水亮太、一杉太郎「AI とロボットを融合した全自動システムによる機能性薄膜創製」(NTS 出版、2019)

### 受賞

- 令和 2 年度文部科学大臣表彰 若手科学者賞 受賞
- 東工大 末松賞「デジタル技術の基礎と展開」支援 受賞