

一般セッション(口頭講演) | 23 合同セッションN「インフォマティクス応用」：23.1 合同セッションN「インフォマティクス応用」

2024年9月20日(金) 13:30 ~ 16:30 会場 A21 (朱鷺メッセ2F)

## [20p-A21-1~11] 23.1 合同セッションN「インフォマティクス応用」

岩崎 悠真(物材機構)、室賀 駿(産総研)

13:30 ~ 13:45

[20p-A21-1]

多軌道動的モード分解による高次元力学系の同定

○安崎 遼路<sup>1</sup>、山田 翔太<sup>1</sup>、筒井 拓郎<sup>1</sup>、松沢 貴仁<sup>1</sup> (1.東京エレクトロン)

13:45 ~ 14:00

[20p-A21-2]

SiC溶液成長法における潜在空間を利用した長時間プロセスの最適化

○坂本 隆直<sup>1</sup>、沓掛 健太郎<sup>1,2</sup>、原田 俊太<sup>1,2</sup>、宇治原 徹<sup>1,2</sup> (1.名大院工、2.名大未来研)

14:00 ~ 14:15

[20p-A21-3]

研削シミュレーションにおける自己回帰モデルの蓄積誤差低減の検討

○長田 圭一<sup>1</sup>、勝岡 輝行<sup>1</sup>、田中 陸久<sup>1</sup>、川手 章也<sup>1</sup>、関 翔太<sup>1</sup>、セパシィ サイド<sup>2</sup>、渡辺 宣文<sup>2</sup> (1.アイククリスタル、2.Mipox株式会社)

14:15 ~ 14:30

[20p-A21-4]

連続工程の全体最適化のための最適化手法の検討

○(M2)笠原 亮太郎<sup>1</sup>、沓掛 健太郎<sup>1,2</sup>、原田 俊太<sup>1,2</sup>、宇治原 徹<sup>1,2</sup> (1.名大院工、2.名大未来研)

### ◆ 注目講演

14:30 ~ 14:45

[20p-A21-5]

超伝導合金試料の自動アーク炉を用いた合成

○寺嶋 健成<sup>1</sup>、王 威勝<sup>1,2</sup>、高野 義彦<sup>1,2</sup> (1.NIMS、2.筑波大)

### ◆ 奨励賞エントリー

14:45 ~ 15:00

[20p-A21-6]

ロボットアームによる粒子径を制御した粉体粉砕

○(M1)高本 龍世<sup>1,3</sup>、中島 優作<sup>1,3</sup>、武市 泰男<sup>1,3</sup>、濱屋 政志<sup>2</sup>、牛久 祥孝<sup>2</sup>、小野 寛太<sup>1,3</sup> (1.阪大工、2.OSX、3.阪大OTRISピン)

### ◆ 奨励賞エントリー

15:15 ~ 15:30

[20p-A21-7]

自律材料合成実験に向けた自動粉体分注システムの開発

○宮島 拓也<sup>1,2</sup>、中島 優作<sup>1,2</sup>、武市 泰男<sup>1,2</sup>、小野 寛太<sup>1,2</sup> (1.大阪大工、2.阪大SRN-OTRI)

### ◆ 奨励賞エントリー

15:30 ~ 15:45

[20p-A21-8]

圧縮応力とせん断応力によるメカノケミカル合成制御

○中島 優作<sup>1,2</sup>、川崎 海<sup>1,2</sup>、武市 泰男<sup>1,2</sup>、濱屋 政志<sup>3</sup>、牛久 祥孝<sup>3</sup>、小野 寛太<sup>1,2</sup> (1.阪大院工、2.阪大OTIRスピ、3.オムロンサイニックエックス)

---

◆ 奨励賞エントリー

15:45 ~ 16:00

[20p-A21-9]

メカノケミカル合成制御AIを用いたハロゲン化鉛系ペロブスカイトのメカノケミカル反応メカニズムの解明

○(M1)川崎 海<sup>1,2</sup>、中島 優作<sup>1,2</sup>、武市 泰男<sup>1,2</sup>、濱屋 政志<sup>3</sup>、牛久 祥孝<sup>3</sup>、小野 寛太<sup>1,2</sup> (1.阪大、2.阪大SRN-OTRI、3.OSX)

---

16:00 ~ 16:15

[20p-A21-10]

自動実験において手薄になりがちなデータ管理の課題

○斉藤 耕太郎<sup>1</sup>、中島 優作<sup>2</sup>、四本 優斗<sup>2</sup>、川崎 海<sup>2</sup>、小野 寛太<sup>2</sup> (1.ランデフト、2.阪大工)

---

◆ 奨励賞エントリー

16:15 ~ 16:30

[20p-A21-11]

RHEED機械学習解析によるMBE成膜支援システムの構築

○大澤 俊郎<sup>1,2</sup>、吉成 朝子<sup>1,2</sup>、安藤 康伸<sup>3</sup>、松村 太郎次郎<sup>4</sup>、小飼 真人<sup>1</sup>、永村 直佳<sup>1,2</sup> (1.東理大先進工、2.物材研、3.東工大化生研、4.産総研)

---

# 多軌道動的モード分解による高次元力学系の同定

## Identification of High-dimensional Dynamical Systems

### via Multi-trajectory Dynamic Mode Decomposition

東京エレクトロン株式会社<sup>1</sup>, <sup>○</sup>安崎 遼路<sup>1</sup>, 山田 翔太<sup>1</sup>, 筒井 拓郎<sup>1</sup>, 松沢 貴仁<sup>1</sup>

Tokyo Electron Ltd.<sup>1</sup>, <sup>○</sup>Ryoji Anzaki<sup>1</sup>, Shota Yamada<sup>1</sup>, Takuro Tsutsui<sup>1</sup>, Takahito Matsuzawa<sup>1</sup>

E-mail: [ryoji.anzaki@tel.com](mailto:ryoji.anzaki@tel.com)

動的モード分解 (DMD) [1] はダイナミクスのモード分解を行えること、高い拡張性を有することなどから広く応用されている。本研究では、DMD を拡張することで複数の実験条件に対応する複数の時間軌道を一括してモデル化する多軌道 DMD (MTDMD) を開発し、(1) ノイジーな高次元時系列データからの線形システム同定に有用であること、(2) 係数に等式制約を付けた状態での 100 次元を超える高次元系の線形システム同定が可能であることを示した [2]。

多軌道を用いたモデリングは SINDy [3,4] などの非線形システム同定手法ですでに用いられており、各軌道に関する損失の和をモデル係数で最適化することで、同一の系に関する複数の実験結果を統合し効率的に精度よくシステム同定を行うことができる。本研究では、DMD をフロベニウスノルムの二乗で定義された損失を最適化する手法と解釈し、その最適化を損失関数の対称性を使って低次元行列に関する演算のみで表現することで DMD の高速な多軌道化に成功した。

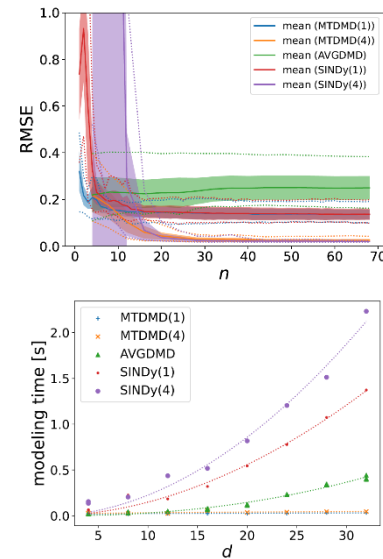
時系列データの各時刻  $i = 0, 1, 2, \dots$  に対応する列ベクトル  $x_i$  からなる行列  $X = [x_0, x_1, \dots, x_{m-1}]$  と  $Y = [x_1, x_2, \dots, x_m]$  が与えられているとする。積が定義される行列  $A$  に対し、フロベニウスノルムを用いて定義される損失関数  $\|Y - AX\|^2$  を  $A$  の成分に関する多変数2次関数とみなすと一般逆  $(-)^+$  を用いて以下の最適解を得る：

$$A_* = YX^T(XX^T)^+ \quad (1)$$

上式 (1) の前半  $YX^T$  と後半の括弧内はそれぞれ、損失関数の勾配の符号反転とヘッシアンを、損失関数の対称性を利用して行列で表現したものに对应する。線形性より、異なる実験条件  $\mu = 1, 2, \dots$  で得られた複数の軌道  $(X^{(\mu)}, Y^{(\mu)})$  に対して定義された損失関数に関しても上式 (1) と同様の計算が可能であり、以下の結果を得る。外力ありの場合も大枠で同様である [2]。

$$A_* = \left( \sum_{\mu} Y^{(\mu)} X^{(\mu)T} \right) \left( \sum_{\mu} X^{(\mu)} X^{(\mu)T} \right)^+ \quad (2)$$

外力を含む線形モデルで生成した人工データに対し、本手法を検証した。複数の初期状態に対応するノイジーな時系列データからモデル化することで、軌道数の増加に応じて再構成誤差が改善することを確認した (図 1)。既存手法 (SINDy および AVGDMD : exact DMD) において、各実験条件をモデル化した係数を平均したもので予測) に比べ、再構成誤差の改善がみられた。特に、SINDy では困難であった 100 次元を超える高次元データの制約つきシステム同定を行うことができることを示した [2]。



**Fig. 1.** Top panel: Root mean squared reconstruction error (RMSE) vs. the number of train data  $n$ . Bottom panel: modeling time vs. spatial dimension  $d$  of the system.

We generate the synthetic data by adding gaussian noise to numerical solutions of ordinary differential equations (ODEs). We define a multivariate linear ODE  $\dot{x} = A_{\mu}x + B_{\mu}u(t)$  by

setting coefficient matrices  $A_{\mu}, B_{\mu}$  and a time-dependent input vector  $u(t)$  for  $\mu = 1, 2, 3, 4$ . Each variation  $\mu$  accounts for 25% of train- and test dataset,  $\mathcal{D}_{\text{train}}^{(\mu)}, \mathcal{D}_{\text{test}}^{(\mu)}$ , respectively. For SINDy(1) and MTDMD(1), we fit a model  $\mathcal{M}_0$  using all train data  $\mathcal{D}_{\text{train}}$ ; for SINDy(4) and MTDMD(4), we fit 4 models  $\mathcal{M}_{\mu}$  each of which corresponds to train data  $\mathcal{D}_{\text{train}}^{(\mu)}$ . See [2] for the details.

- [1] P. J. Schmid, J. fluid mech. 656, 5 (2010).
- [2] RA, SY, TT, TM, <https://doi.org/10.51094/jxiv.602> (2024)
- [3] Steven Brunton *et al.*, PNAS 113, 3932-3937 (2016)
- [4] Alan A. Kaptanoglu *et al.*, arXiv:2111.08481

## SiC 溶液成長法における潜在空間を利用した長時間プロセスの最適化

## Optimization of long-time process using latent space in SiC solution growth

名大院工<sup>1</sup>, 名大未来研<sup>2</sup>○坂本 隆直<sup>1</sup>, 沓掛 健太朗<sup>1,2</sup>, 原田 俊太<sup>1,2</sup>, 宇治原 徹<sup>1,2</sup>Grad. Sch. Eng., Nagoya Univ.<sup>1</sup>, IMASS Nagoya Univ.<sup>2</sup>○Takanao Sakamoto<sup>1</sup>, Kentaro Kutsukake<sup>1,2</sup>, Shunta Harada<sup>1,2</sup>, Toru Ujihara<sup>1,2</sup>

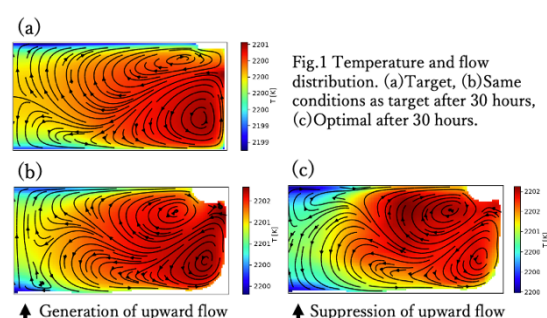
E-mail: sakamoto.t@unno.material.nagoya-u.ac.jp

【はじめに】4H-SiC の溶液成長法は高品質な結晶が作製できることが報告されている<sup>1)</sup>が、溶液の温度・流れ分布の制御の難しさから、大口径かつ長尺な結晶の作製に課題がある。そこで、シミュレーションと機械学習を用いた最適化が行われてきた<sup>2)</sup>。これまでに機械学習を用いて温度・流れ分布全体の特徴を学習し、小口径で得られた理想的な分布を大口径で再現する手法が提案されている<sup>3)</sup>。しかし、SiC 溶液成長法では坩堝形状が時間変化するため、初期のプロセス条件のままでは初期の理想的な温度・流れ分布を維持することができない。本研究では、時間経過により坩堝形状が変化した系において初期の温度・流れ分布を実現するプロセス条件の最適化を検討した。

【実験方法】初期および 30 時間後の坩堝形状で、合計 1000 条件の熱流体解析を行い、温度・流れ分布画像を取得した。また、坩堝形状に関係なく重要である種結晶下の流れの方向と、坩堝中心軸上での流れの方向をスコア①、②として算出した。これらの分画像とスコアを用いて、Variational Auto-Encoder (VAE) により 6 次元の潜在空間を構築した。VAE は画像を低次元の潜在変数で表現でき、類似した画像は潜在空間上で近くに位置するという性質がある。また、

スコアを用いることで、注目したい特徴を潜在空間に反映することができる。そこで、潜在空間上での目標分布との距離を最小化する目的関数を用いて最適化を行った。

【結果・考察】Fig.1(a)に初期の目標分布、(b)に目標分布と成長条件が同じ場合の 30 時間後の分布、(c)に最適化で得られた 30 時間後の分布を示す。(b)では画像の左端に(a)に無い上昇流が発生している。対照的に(c)では、大域的に(a)と類似した分布が得られている。30 時間後に(c)の条件に変更することで、理想的な分布を維持することができるといえる。以上のことから、潜在空間を用いた本手法によって、異なる坩堝形状においても理想の分布を実現する成長条件を得ることができることが示された。



## 【参考文献】

- 1)Murayama, K. et al. J. Cryst. Growth 68 (207) 874.
- 2)Tunnooka, Y. et al., CrystEngComm. 20 (2018) 6546.
- 3)Shimoda, D. et al., JCCG-52, 05p-A05, (2023).

# 研削シミュレーションにおける自己回帰モデルの蓄積誤差低減の検討

## Reduction of cumulative error in self-regression model for grinder sim.

アイクリスタル株式会社<sup>1</sup>, Mipox 株式会社<sup>2</sup> ○長田 圭一<sup>1</sup>, 勝岡 輝行<sup>1</sup>, 田中 陸久<sup>1</sup>, 川手 章也<sup>1</sup>, 関 翔太<sup>1</sup>, セパシィ サイド<sup>2</sup>, 渡辺宣文<sup>2</sup>

Aixtal<sup>1</sup>, Mipox Corporation<sup>2</sup>, °Keiichi Osada<sup>1</sup>, Teruyuki Katsuoka<sup>1</sup>, Riku Tanaka<sup>1</sup>, Fumiya Kawate<sup>1</sup>, Shota Seki<sup>1</sup>, Sepasy Saeed<sup>2</sup>, Yoshifumi Watanabe<sup>2</sup>

E-mail: k.osada@aixtal.com

【背景】製造プロセスは時間とコストを要し、得られる実験データ数が限られる。そのためシミュレーションが用いられるが計算に時間がかかるため、機械学習により高速化する研究が盛んに行われている。半導体基板加工では複数の加工プロセスを経て基板形状を精密にしていくため各プロセスのモデルを連結して予測する必要がある、複数のモデルの予測誤差の蓄積という大きな課題がある。そこで本研究では半導体基板の多段の研削加工プロセスに対して連続予測による蓄積誤差低減の手法を検討した。

【方法】研削加工シミュレータを用いて $n-1$ 回目の加工後の試料形状 $y_{n-1}$ と $n$ 回目の加工条件 $x_n$ における加工後の試料形状 $y_n$ を計算した。これを教師データとし、 $n$ 回目の加工量 $\Delta y_n = y_n - y_{n-1}$ を予測する機械学習モデル $f(x_n, y_{n-1})$ を構築した。加工回数は6回であり、最終的な試料形状は初期形状 $y_0$ から $\hat{y}_6 = y_0 + \sum_{n=1}^6 \Delta \hat{y}_n = y_0 + \sum_{n=1}^6 f(x_n, \hat{y}_{n-1})$ により予測できる。モデル構造として、試料形状を入力とする U-Net および Attention U-Net の skip connection に、加工条件 $x_n$ を入力とし試料形状と同じ次元数の出力を持つ全結合層を加えた(Fig. 1)。性能比較のためボトルネック層に条件を入れる通常の U-Net 及び Attention U-Net も構築した。

【結果と考察】 Fig. 2 に各手法での1段階および6段階予測後の RMSE 及びその差分を蓄積誤差として示す。U-Net、Attention U-Net いずれも、提案手法により蓄積誤差の大幅な低減が見られる。ボトルネック層ではなく skip connection に加工条件の特徴量を加えることで位置ごとの形状変化を捉えやすくなり、6段階加工の精度が改善し、蓄積誤差の抑制に繋がったと考えられる。

【謝辞】この成果は、NEDO（国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構）の助成事業（JPNP21029）の結果得られたものです。

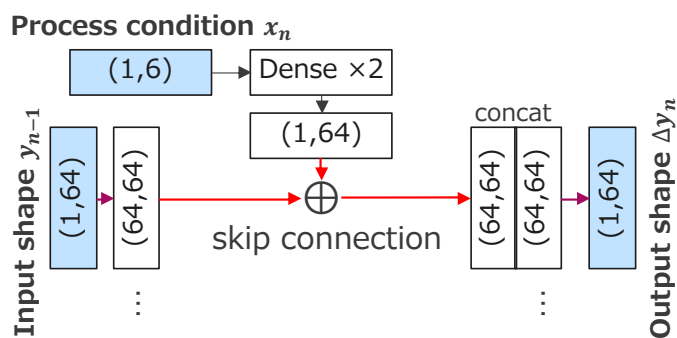


Fig. 1 Schematic diagram of proposed skip connection.

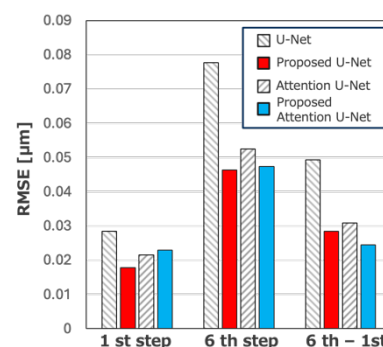


Fig. 2 Results of RMSE via repeated prediction.

連続工程の全体最適化のための最適化手法の検討

Examination of optimization methods for overall optimization of cascade process

名大院工<sup>1</sup>, 名大未来研<sup>2</sup>

○(M2) 笠原 亮太郎<sup>1</sup>, 沓掛 健太郎<sup>1,2</sup>, 原田 俊太<sup>1,2</sup>, 宇治原 徹<sup>1,2</sup>

Graduate School of Engineering, Nagoya Univ.<sup>1</sup>, IMass Nagoya Univ.<sup>2</sup>

°Ryotaro Kasahara<sup>1</sup>, Kentaro Kutsukake<sup>1,2</sup>, Shunta Harada<sup>1,2</sup>, Toru Ujihara<sup>1,2</sup>

E-mail: r.kasahara@unno.material.nagoya-u.ac.jp

【はじめに】ものづくりの現場では、複数の工程が連なり一つの製品を製造する。最終製品の性能向上や歩留まりの改善には、各工程の個別最適化では解決は難しく工程を跨いだ全体最適化が望まれる。これに対して個別最適化結果を順方向と逆方向の双方向へ伝搬を繰り返し工程間の最適解を調整する Analytical Target Cascading (ATC)<sup>[1]</sup>という手法が提案され、1 度に探索する変数を減らすことで効率的な最適化が可能となった。しかし伝搬する変数が多くなると双方向で異なる局所解に陥り全体最適化の精度が悪化する課題がある。本研究ではこの解決手法を提案し、連続工程のモデルに対して最適化を行うことでその性能を検証した。

【実験方法】最適化対象として半導体プロセスを模したシミュレーションを複数連ねたモデルを設計した。このモデルに対して 2 つの提案手法と 2 つの既存手法の最適化を行い、性能を比較した。提案手法 1 は ATC に対して各工程の最適解を取得するタイミングを工程数分ずらした手法、提案手法 2 は提案手法 1 に加え、順方向にプロセスパラメータを最適化する手法である。既存手法には工程全体を 1 つの工程とみなす一括最適化と通常の ATC を用いた。最適化精度の評価指標には目的値からの二乗平均平方根誤差 (RMSE) とした。

【結果及び考察】5 工程の最適化精度を Fig. 1 に示す。本研究では各手法で計算コスト（最適化対象のパラメータ数と遺伝的アルゴリズムの世代数の積）を揃えた最適化精度を比較した。棒グラフは 10 回の異なる初期条件での最適化結果の平均、エラーバーは標準偏差である。提案手法の最適化

性能は 2 つの既存手法よりも良い結果であった。Fig. 2 に ATC と提案手法 1 の各工程の最適解の RMSE を示す。左から上流工程間の入出力の最適解の RMSE を棒グラフで表した。提案手法によって工程間の最適解の値に差が無くなったことから ATC の課題を解決できたため最適化性能が向上したと考えられる。

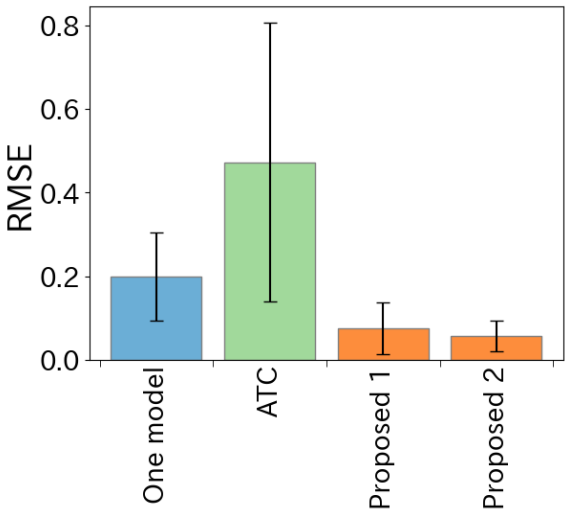


Fig. 1 Result of overall optimization in 5 process.

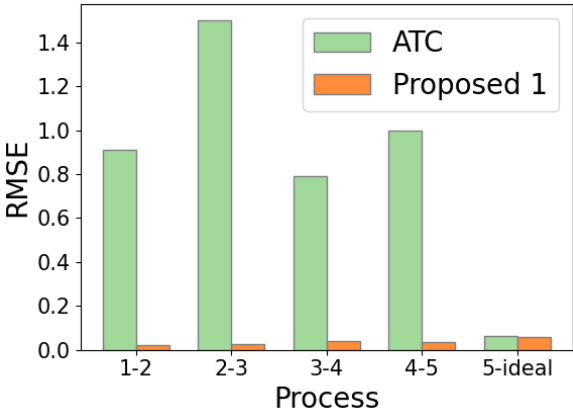


Fig. 2 RMSE of the optimal solution for each process.

【参考文献】 [1] H. Kim, et al, Transactions of the ASME, 125, 2001.

## 超伝導合金試料の自動アーク炉を用いた合成

### Synthesis of superconducting alloys using automatic arc furnace system

NIMS<sup>1</sup>, 筑波大<sup>2</sup>, °寺嶋 健成<sup>1</sup>, (D2)王 威勝<sup>1,2</sup>, 高野 義彦

NIMS<sup>1</sup>, Univ. of Tsukuba<sup>2</sup>, °Kensei Terashima<sup>1</sup>, Wei-Sheng Wang<sup>1,2</sup>, Yoshihiko Takano

E-mail: TERASHIMA.Kensei@NIMS.go.jp

近年機械学習により機能性材料探索において一度に大量の候補材料が提示されるようになり、物質開発のボトルネックは候補材料の着想や選定から合成へとシフトしている。これを解消するため固体材料開発でも合成の効率化が計られ、昨年米国では酸化物固体試料の自動/自律合成が報告され始めた[1,2]。我々もこの物質開発競争に伍すべく、アーク炉での合金試料合成プロセスをほぼ自動化したシステムを構築してきた(図 1)。具体的には秤量・搬送・真空引きおよび雰囲気制御・アーク放電・試料の取り出しまでをロボットが行い、洗浄作業と消耗品の補充は人間が行う。

目的物単相の合成を達成するには、合成過程の自動化だけでなく、できた合成物の同定を行い、不純物相を減らす適切な合成条件を見出す必要がある。このような能動学習的アプローチの1つに、ベイズ最適化が挙げられる。動作再現性の高いロボットを用いた自動化は各過程を明示化または数値化しベイズ最適化の運用に向くと期待される一方、動作再現性がそのまま合成物の再現性を担保するわけではない。

我々は装置運用の自律化を目指し、合成物の同定・評価や収率の検討を行った。ターゲットとして組成・格子定数・超伝導転移温度それぞれの関係がよく知られている A15 型合金の超伝導体を選定し、XRD 測定は手動で補い合成物の歩留まりを調べた。その過程で、ベイズ最適化にかかる合成条件としての変数や、ハイパーパラメータとして振る舞う装置の設計が観測点における観測値の不確実度合いに与える影響を評価した。講演では我々の現状を報告する。

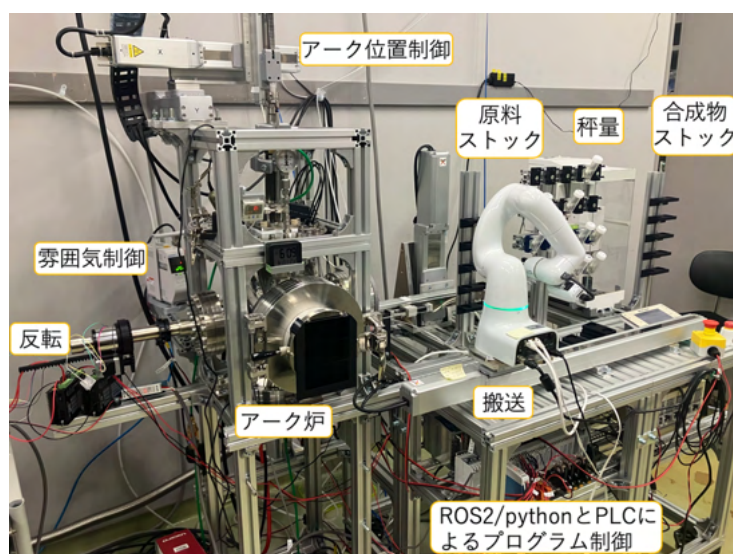


図 1 構築した自動アーク炉。XRD 測定は今のところ手動

[1] J. Chen *et al.*, arXiv:2304.00743 [2] N. J. Szymanski *et al.*, Nature 624, 85 (2023).

## ロボットアームによる粒子径を制御した粉体粉碎

### Size-controlled robotic powder grinding

阪大工<sup>1</sup>, OSX<sup>2</sup>, 阪大 OTRI スピン<sup>3</sup>, ○(M1)高本 龍世<sup>1,3</sup>, (D)中島 優作<sup>1,3</sup>, 武市 泰男<sup>1,3</sup>,  
濱屋 政志<sup>2</sup>, 牛久 祥孝<sup>2</sup>, 小野 寛太<sup>1,3</sup>

Osaka Univ.<sup>1</sup>, OSX<sup>2</sup>, SRN- OTRI Osaka Univ.<sup>3</sup>, ○Ryusei Takamoto<sup>1,3</sup>, Yusaku Nakajima<sup>1,3</sup>,  
Yasuo Takeichi<sup>1,3</sup>, Masashi Hamaya<sup>2</sup>, Yoshitaka Ushiku<sup>2</sup>, and Kanta Ono<sup>1,3</sup>

E-mail: ryusei\_takamoto@ap.eng.osaka-u.ac.jp

ロボティクスや AI を取り入れることで自律的に効率的かつ低コストで再現性の高い研究開発を行う、自律駆動型の研究が近年盛んに行われている。われわれはロボットによる自律駆動型の材料合成・評価システム構築を目指している。中でも、廃液が生じないクリーンな合成手法として注目されているメカノケミストリーに着目し、ロボットによる粉体合成の研究を進めている。これまでの研究でわれわれはやわらかいゲルを仕込んだソフト治具を使うことで、ロボットアームが人間と同様に乳棒と乳鉢を用いた粉体粉碎を行うシステムを実現した[1]。自動的に粉体粉碎を行うためには自動乳鉢やボールミルなどを用いる方法があるが、これらは再現性が低いことが問題となっていた。それに対してロボットアームは、様々なセンシング情報を活用し材料の状態を把握しながらモーションを制御することができるという利点がある[2]。

本研究では、粉体材料の反応性や物性に大きな影響を及ぼす粒子径に着目し、狙いの粒子径の粉体を得られるように粉碎を行うシステムを開発した。ロボットアームによって粉体材料の粉碎を行い、粉碎中に散逸するエネルギーの一部を、加速度センサーを用いて乳鉢に生じている振動として測定した。また粉碎プロセスにおける粒子径の変化をレーザー回折による粒度分布測定にて追跡した。それらを組み合わせることで粒子径と乳鉢の振動の対応関係を導き出した。その結果、ロボットアームが粉碎するときに、乳鉢の振動からリアルタイムで粒子径を推定し、所望の粒子径で粉碎を終了するシステムを実現した。

本システムは粉体合成において、粒子径という定量的な評価指標をもって制御することを可能にし、再現性の高い実験を実現することができる。それによってメカノケミストリーをはじめとした粉体材料の反応機構の解明や、材料探索の効率化に貢献することが期待される。

本研究の一部は、JST-Mirai Program(Grant Number JPMJMI21G2)と JST Moonshot R&D(Grant Number JPMJMS2236)の支援を受けて行われた。

[1] Y.Nakajima et al. *IROS*, pp. 2320-2326, (2022)

[2] Y.Nakajima et al. *IROS*, pp. 8283-8290, (2023)

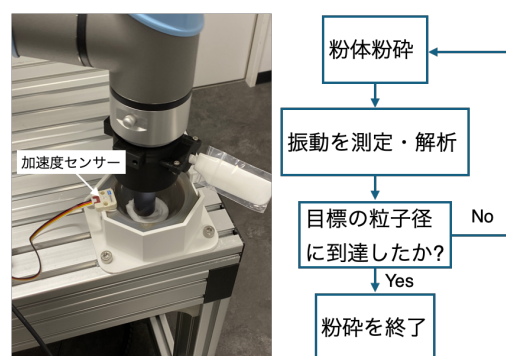


Figure1. Size-controlled grinding process with a robotic arm.

# 自律材料合成実験に向けた自動粉体分注システムの開発

## Development of Automated Powder Dispensing System for Autonomous Materials Synthesis Experiments

阪大工<sup>1</sup>, 阪大 OTRI スピン<sup>2</sup>, ○(B) 宮島 拓也<sup>1,2</sup>, 中島 優作<sup>1,2</sup>, 武市 泰男<sup>1,2</sup>, 小野 寛太<sup>1,2</sup>

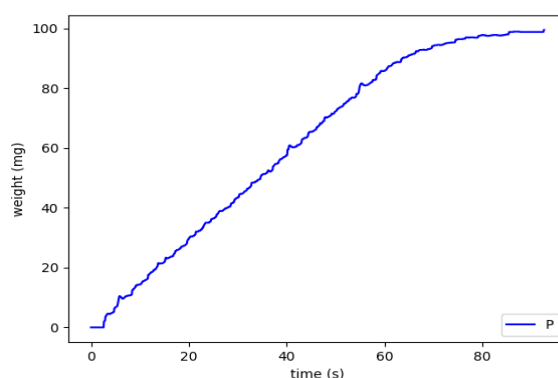
Osaka Univ.<sup>1</sup>, SRN-OTRI Osaka Univ.<sup>2</sup>,

○Takuya Miyajima<sup>1,2</sup>, Yusaku Nakajima<sup>1,2</sup>, Yasuo Takeichi<sup>1,2</sup>, Kanta Ono<sup>1,2</sup>

E-mail: takuya\_miyajima@ap.eng.osaka-u.ac.jp



**Figure1.** Automated powder dispensing machine and electronic balance



**Figure2.** Mass change of CeO<sub>2</sub> powder over time using proportional control

データ駆動型の材料開発においては、試料作製から測定、データ解析までを連続して行うことが求められている[1]。また、粉体試料を正確に繰り返し秤量することは研究者の負担が大きく、粉体を扱ったプロセスを自動化するためには、粉体の自動分注が必須である。自動粉体分注機の市販品は存在するが、非常に高価なことから導入が難しい。

本研究では、電子天秤とサーボモータ、3D プリンタで作成した治具を用いて、安価に作製可能で、様々な粉体を秤量可能な自動粉体分注機を開発した。本分注機は PID 制御されており、数百 mg の様々な種類の粉体を、誤差 1mg 以内で秤量が可能である。また、天秤と粉体の応答特性に応じて自動 PID ゲイン調整可能な手法を構築した。

本システムを用いることで、未知の粉体についても自動で正確な秤量が可能になり、実験の効率化や再現性の向上につながることを期待される。また、本システムは安価に導入でき、自動・自律実験を含め、粉体の秤量が必要な実験において広く利用されることが期待される。

本研究の一部は、JST-Mirai Program(Grant Number JPMJMI21G2)の支援を受けて行われた。

[1] N. J. Szymanski, *et al. Nature*, **624**, pp. 1–6. (2023)

# 圧縮応力とせん断応力によるメカノケミカル合成制御

## Robotic Mechanochemical Reaction Control by Compressive and Shear Stresses

阪大工<sup>1</sup>, 阪大 OTRI スピン<sup>2</sup>, オムロンサイニックス株式会社<sup>3</sup>

○(D2)中島 優作<sup>1,2</sup>, 川崎 海<sup>1,2</sup>, 武市 泰男<sup>1,2</sup>, 濱屋 政志<sup>3</sup>, 牛久 祥孝<sup>3</sup>, 小野 寛太<sup>1,2</sup>

Osaka Univ.<sup>1</sup>, SRN-OTRI Osaka Univ.<sup>2</sup>, OMRON SINIC X Corporation<sup>3</sup>

○Yusaku Nakajima<sup>1,2</sup>, Kai Kawasaki<sup>1,2</sup>, Yasuo Takeichi<sup>1,2</sup>, Masashi Hamaya<sup>3</sup>, Yoshitaka Ushiku<sup>3</sup>,

Kanta Ono<sup>1,2</sup>

E-mail: yusaku\_nakajima@ap.eng.osaka-u.ac.jp

機械的なエネルギーによって化学反応を進行させるメカノケミカル合成が注目されているが、特に力学的な観点からの考察はほとんどされていない。本研究では粉碎時の圧縮応力とせん断応力がメカノケミカル反応にどのように影響するかについて調べた。実験セットアップは、乳棒と乳鉢による粉体粉碎ロボットシステムをもとに開発した、メカノケミカル合成制御 AI [1]を用いた。

実験の結果を Fig1. に示す。粉碎速度が速い場合(Fig1. 上)は、生成物である CsPbBr<sub>3</sub> と Cs<sub>4</sub>PbBr<sub>6</sub> の割合がほぼ同じであるのに対し、粉碎速度が下がる (Fig1. 下) と Cs<sub>4</sub>PbBr<sub>6</sub> が CsPbBr<sub>3</sub> よりも多く生成しており、反応経路の変化が見られた。以上の結果と粉碎速度によって圧縮とせん断応力の割合が変化することを考慮すると、せん断応力は反応経路に影響を与えることが示唆された。今後はフォーストルクセンサを用いて圧縮応力とせん断応力を数値化し、反応速度、経路との対応の詳細を調査したい。

本研究の一部は、JST-Mirai Program(Grant Number JPMJMI21G2)と JST Moonshot R&D(Grant Number JPMJMS2236)の支援を受けて行われた。

参考文献：[1] Y.Nakajima *et al.*, *ICRA workshop on Accelerating Discovery in Natural Science Laboratories with AI and Robotics* (2024).

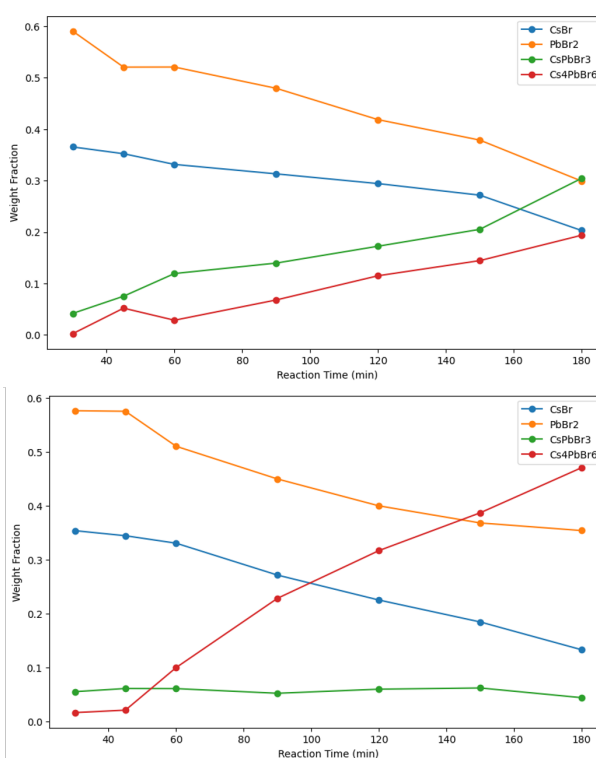


Fig1. The reaction process under different milling speeds. The vertical axis represents the weight fraction, and the horizontal axis represents the reaction time. The upper figure corresponds to a milling speed of 0.5 seconds per rotation, while the lower figure corresponds to a milling speed of 1 second per rotation.

メカノケミカル合成制御 AI を用いたハロゲン化鉛系ペロブスカイト  
のメカノケミカル反応メカニズムの解明

Chemical reaction control using robotic mechanochemical synthesis

阪大工<sup>1</sup>, 阪大 OTRI スピン<sup>2</sup>, オムロンサイニックス株式会社<sup>3</sup>

○(M1)川崎 海<sup>1,2</sup>, 中島 優作<sup>1,2</sup>, 武市 泰男<sup>1,2</sup>, 濱屋政志<sup>3</sup>, 牛久祥孝<sup>3</sup>, 小野 寛太<sup>1,2</sup>

Osaka Univ.<sup>1</sup>, SRN-OTRI Osaka Univ.<sup>2</sup>, OMRON SINIC X Corporation<sup>3</sup>

○Kai Kawasaki<sup>1,2</sup>, Yusaku Nakajima<sup>1,2</sup>, Yasuo Takeichi<sup>1,2</sup>, Masashi Hamaya<sup>3</sup>, Yoshitaka Ushiku<sup>3</sup>,  
Kanta Ono<sup>12</sup>

E-mail:kai\_kawasaki@ap.eng.osaka-u.ac.jp

われわれは、メカノケミカル合成を用いて自律駆動で化学合成を行うロボット AI の実証を目指して研究を行っている。メカノケミカル合成は物質に機械的エネルギーを与えることにより、他の物質へと化学合成を行う手法である。従来は乳鉢やボールミルにより行われてきたが、その再現性の低さから化学反応メカニズムはブラックボックスとされてきた [1]。

ハロゲン化鉛系ペロブスカイトは性能、効率に優れ、製造コストも安く、シリコン太陽電池の代替品として期待されているペロブスカイト太陽電池の材料であり、盛んに研究されている[2]。

本研究では、研究室で開発した粉体粉碎ロボット[3]を用いて、ハロゲン化鉛系ペロブスカイトのメカノケミカル合成を行うメカノケミカル合成制御 AI を開発し、反応メカニズムの解明を試みた。メカノケミカル合成において、出発物質の結晶粒径の違いによる反応メカニズムの変化を明らかにすることを目的として研究を行った。

PbBr<sub>2</sub> の粒径約 30  $\mu\text{m}$  程度に対し、CsBr の粒径(小)100  $\mu\text{m}$  未満と(大)約300  $\mu\text{m}$  の2種類の場合について、メカノケミカル合成制御 AI を用いて、精密な力制御のもとでメカノケミカル合成実験を行った。また、粉末 X 線回折を用いて出発物と生成物を評価し、反応速度解析を行った。

実験の結果、合成過程の生成物に違いが見られた。このことは、原料の粒径により反応経路が変化することを示唆している。本発表ではこの反応メカニズムについて議論する。

本研究の一部は、JST-Mirai Program(Grant Number JPMJMI21G2)と JST Moonshot R&D(Grant Number JPMJMS2236)の支援を受けて行われた。

[1] E.Gil-Gonzalez *et al.*, *J. Alloy. Compd.* **866**, 158925(2021).

[2] K.Y. Beak and W.Lee *et al.*, *Nat. Commun.* **13**, 4263(2022).

[3] Y.Nakajima *et al.*, *IROS*, pp. 2320-2326(2022).

**自動実験において手薄になりがちなデータ管理の課題****The Challenges of Often Overlooked Data Management in Automated Experiments**ランデフト<sup>1</sup>, 阪大工<sup>2</sup> ◯齊藤 耕太郎<sup>1</sup>, 中島 優作<sup>2</sup>, 四本 優斗<sup>2</sup>, 川崎 海<sup>2</sup>, 小野 寛太<sup>2</sup>Randeft<sup>1</sup>, Osaka Univ.<sup>2</sup> ◯Kotaro Saito<sup>1</sup>, Yusaku Nakajima<sup>2</sup>, Yuto Yotsumoto<sup>2</sup>, Kai Kawasaki<sup>2</sup>,Kanta Ono<sup>2</sup>

E-mail: kotaro.saito@randeft.jp

低価格な協働ロボットの登場をきっかけにして、材料科学において人間が手間と時間をかけることが当たり前とされていた合成・加工・測定などの各プロセスを自動化しスループットや実験自体の再現性を改善する試みが盛んに行われるようになった。臨機応変に精緻なタスク実行が可能な人間の手を協働ロボットで代替するためには、アームの制御やエンドエフェクタの工夫は当然ながら、必要だと考えもしなかった治具の材料選定や設計などハードウェアに関わる問題に次から次へと対処しなければならない。また、ロボットに関するハードウェアの成果は動画や実機によるデモが可能で目立ちやすく、結果として成果の認知が広まり産学ともに予算獲得にもつながりやすい。これらの理由により、自動実験の研究は構造的にハードウェアの開発が優先的に行われがちである。一方、プロセスが自動化されると生成されるデータ量が飛躍的に増加することは容易に想像でき、それらの受け皿にはソフトウェアが必要となる。これまでのやり方にならい、材料科学の現場における標準的なデータ管理手法である「フォルダに分けて整理する」という方法を自動実験に適用すると、人間が全てを手でおこなってきたロースループットな研究ではある程度やり過ごしてきた課題が顕在化する。本発表では後回しにされがちなデータの受け皿の不在により自動実験に生じる課題と対処について述べる。

## RHEED 機械学習解析による MBE 成膜支援システムの構築

### Development of MBE film-growth support system by machine-learning RHEED analysis

東理大先進工<sup>1</sup>, 物材研<sup>2</sup>, 東工大化生研<sup>3</sup>, 産総研<sup>4</sup> ○(M1)大澤 俊郎<sup>1,2</sup>, (D)吉成 朝子<sup>1,2</sup>,

安藤 康伸<sup>3</sup>, 松村 太郎次郎<sup>4</sup>, 小嗣 真人<sup>1</sup>, 永村 直佳<sup>1,2</sup>

Tokyo Univ. of Sci.<sup>1</sup>, NIMS<sup>2</sup>, Tokyo Tech<sup>3</sup>, AIST<sup>4</sup>, °Toshiro Osawa<sup>1,2</sup>, Asako Yoshinari<sup>1,2</sup>, Yasunobu Ando<sup>3</sup>,

Tarojiro Matsumura<sup>4</sup>, Masato Kotsugi<sup>1</sup>, Naoka Nagamura<sup>1,2</sup>

E-mail: [8224513@ed.tus.ac.jp](mailto:8224513@ed.tus.ac.jp)

近年、半導体デバイスの高性能化・小型化の要求に伴い、二次元機能性薄膜が益々注目を集めている。制御性のよい二次元薄膜成膜手法である分子線エピタキシー法(MBE)では反射高速電子回折(RHEED)を用いて構造や膜厚の評価を行うことが多いが、RHEED 回折像の定量的な解釈は難しく高度な専門知識を必要とする。我々は機械学習を用いて RHEED 回折像から表面超構造の変化を検知し、構造情報を抽出する手法を提案してきた<sup>[1,2]</sup>。本研究ではこの手法を発展させて、ハードとソフトを融合したリアルタイム構造評価システムの開発を目的とする。

まず RHEED 回折像を CCD カメラで撮影する。その画像をその場で輝度ヒストグラムに変換し、EMPeaks<sup>[3,4]</sup>という機械学習パッケージを適用して輝度ヒストグラムの形状をピークフィッティング解析するシステムを Python 言語によって構築した。成膜時には、①RHEED 回折像撮影、②輝度ヒストグラム作成、③EMPeaks によるピークフィッティング、④各ピーク成分における標準偏差などの最尤推定結果をプロット、の4つのステップを1秒毎に繰り返した。

Si(111)7×7 清浄表面上に In を MBE 成膜した時の RHEED 回折像の変化と解析した結果を示す(Fig. 1)。この系は膜厚に応じて表面超構造が相変化するすることが知られているが、実際に構造変化が極値に対応していることがわかった。人の目では判別しにくい表面超構造の相変化をリアルタイムで明確に捉えることができた。

本研究では、RHEED 回折像をリアルタイムで機械学習解析しながら成膜できるシステムを構築した。表面超構造の相変化や最適蒸着時間の推定を高速かつ高精度で行い、より精密な成膜が可能となると期待する。

[1] A. Yoshinari *et al.*, Sci. Technol. Adv. Mater.: Methods, **2**, 162 (2022).

[2] 第 70 回応用物理学会春季学術講演会 [18a-A401-1]

[3] T. Matsumura *et al.*, Sci. Technol. Adv. Mater. **20**, 734 (2019).

[4] EMPeaks(PyPI) : <https://pypi.org/project/EMPeaks/>

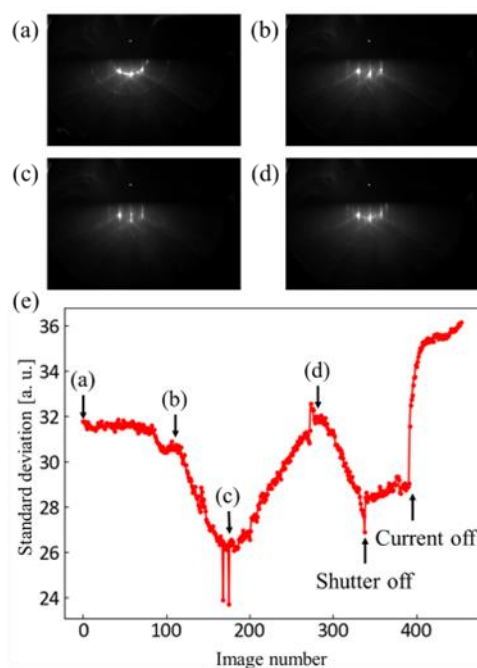


Fig. 1 RHEED pattern after (a) 0 sec, (b) 150 sec, (c) 220 sec, (d) 350 sec deposition, and (e) Image number vs. standard deviation of a peak component of the luminance histogram