

モジュール化された計測機器を統合したデジタルラボラトリーの開発

相場 諒***, 西尾 和記*, 一杉 太郎****

デジタル技術により、自動実験システムと機械学習アルゴリズムを組み合わせる「自律的」に物質を探索するシステム(デジタルラボラトリー)の開発が世界中で進められている。本研究では、スパッタ装置とX線回折(XRD)装置(Rigaku SmartLab)、およびその他の計測・分析機器をつなぐデジタルラボラトリーを開発した。本システムは、各実験装置をモジュール化して様々な実験にフレキシブルに対応が可能である。そして、測定データを共通フォーマット(MaiML形式)でクラウド上に蓄積し、機械学習を利用したデータ駆動型材料開発環境を実現した。本稿ではそのシステムの概要と、LiCoO₂薄膜の自律合成について紹介する。

1. 序論

近年、機械学習とロボット技術の進展により、自動的・自律的に実験を進めることが可能になった⁽¹⁾⁻⁽⁶⁾。物質合成、特性評価、データ解析等の繰り返し作業をシステム化することにより、実験回数を飛躍的に増やすことができるため、材料開発の加速が期待されている。その際、物性データとそれに付随するメタデータ(例：合成条件、測定条件や環境パラメータ)を大量に収集することが望まれる。このような研究の進め方の重要性について、内閣府「マテリアル革新力強化戦略」でも強調されている(ref <https://www8.cao.go.jp/cstp/material/material.html>)。

多様な物質合成システムと構造・物性評価装置を統合するために、試料形状やサイズの標準化、および装置のモジュール化が求められる。液体試料をベースとしたライフサイエンスの分野で先行しており、96-well plateのような標準化されたツールや分析装置が使用されている⁽⁷⁾。しかし、粉末や薄膜などの固体物質向け装置の標準化やモジュール化の取り組みはいまだ発展途上である^{(8),(9)}。特に、試料ホルダーの仕様と通信プロトコルの標準化は極めて重要である。さらに、測定データフォーマットの標準化も、相互運用性の向上と効率的なデータ解析を可能にするために必須である。

これらの課題に対応するため、我々は薄膜の固体試料に対応したデジタルラボ(dLab)を開発した。このシステムは、RFスパッタ、DCスパッタ装置、X線回折(XRD)、走査型電子顕微鏡(SEM)、ラマン分光、

紫外可視(UV-Vis)分光光度法、電気伝導度測定等を統合し、完全自動化された物質合成と特性評価が可能である。すべてのモジュール機器が標準化された接続方式で連携し、日本産業規格(JIS)として正式に登録された Measurement analysis instrument Markup Language (MaiML)形式⁽¹⁰⁾で測定データを出力する。データをクラウド上に集約し、自動解析後に機械学習アルゴリズムが次の合成パラメータを自律的に決定する。

本システムをリチウムイオン電池の代表的な正極材料^{(11),(12)}である LiCoO₂ (001) の高品質薄膜合成に適用した。XRDにおける003と006回折ピークの強度比を自律的に最大化した。モジュール化した機器を統合した自律型デジタルラボを、物質探索に適用した事例である。詳細は *Digital Discovery* 誌⁽¹³⁾に掲載されている。

2. 実験手法

2.1. 概要

dLabの基本は、モジュール化された薄膜合成と計測・分析機器である。それらをロボット搬送システムと制御ネットワークにより統合している(図1, 図2)。各モジュールは、10 mm × 10 mm, 厚さ0.5 mmの試料に適合する試料ホルダー、TCPベースの独自通信プロトコル、MaiML形式でのデータ出力といった標準仕様に準拠している。真空チャンパーと各モジュール間の接続は、CFフランジ(ICF152)で統一している。

dLabのモジュール機器はいずれもロボットによる試料の出し入れに対応している。たとえば、Rigaku SmartLabシステムをベースとしたXRDモジュールには試料固定用の真空チャックが搭載されている。統合されたロボットアーム(図1aに示すCOBOTTA Pro)と

* 東京科学大学 物質理工学院

** 株式会社リガク

*** 東京大学 大学院理学系研究科 化学専攻

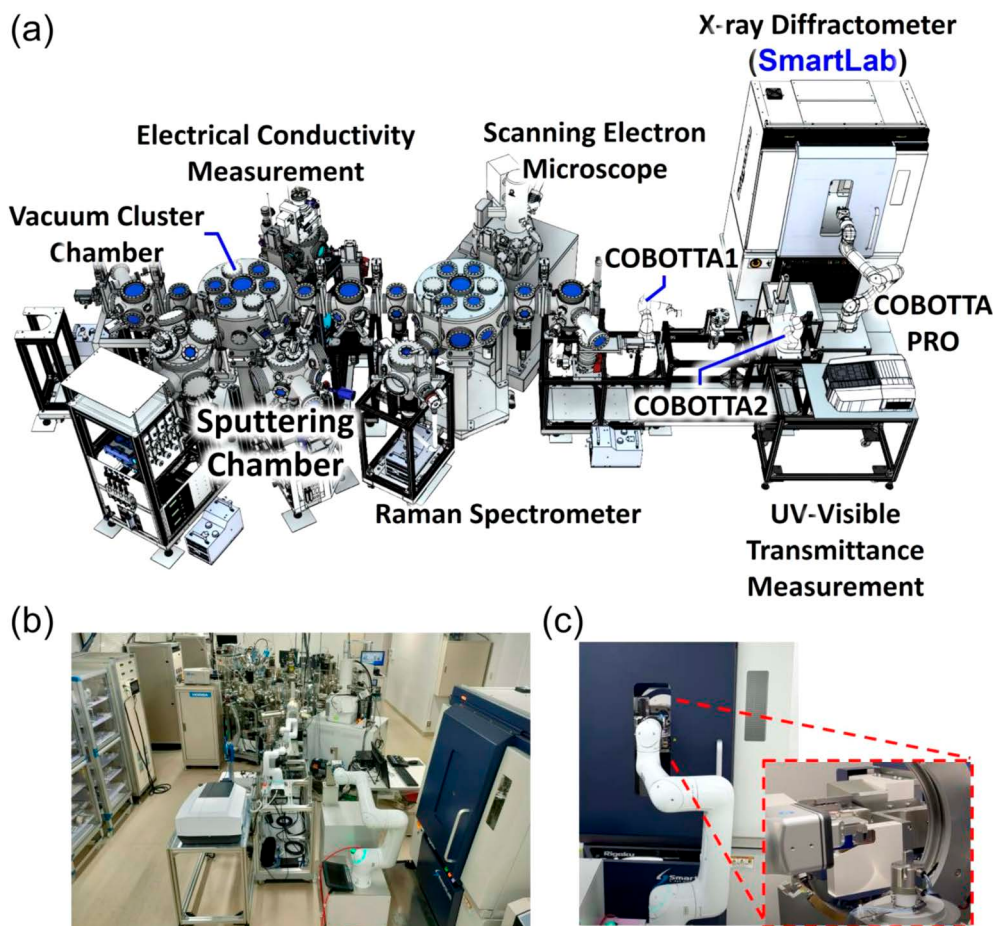


図1. 自動・自律実験を行うシステムの全体図.

モジュール化した合成装置(スパッタ成膜装置)と各種計測・分析装置(SEM, X線回折装置, ラマン分光装置, 可視紫外分光装置, 電気計測用プローブ装置)が接続されている. 真空チャンバー内は常にターボ分子ポンプ(TMP)により排気されており, 到達真空度は $\sim 10^{-6}$ Paである. Adapted from Ref.13 with permission from the Royal Society of Chemistry.

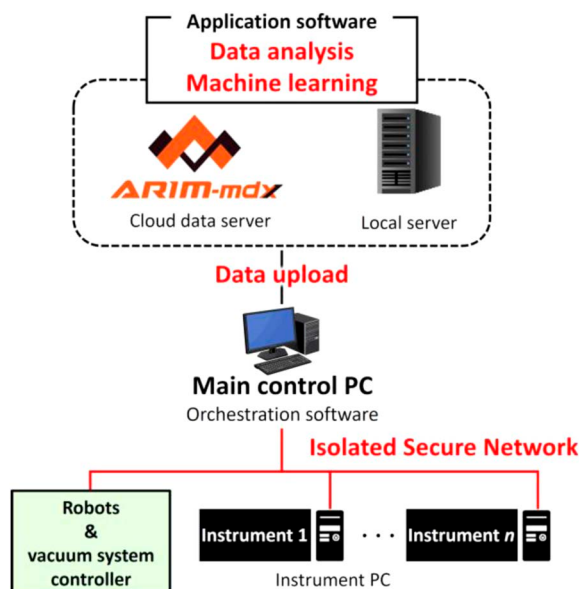


図2. システムのネットワーク構成図.

このシステムのネットワークは, 外部セグメントと保護されたセグメントが明確に分離された構造になっている. 各合成モジュールと計測・分析モジュールは分離され, 安全性が確保されたネットワークを通じて, メイン制御用PCに接続されている. メインPCはさらにクラウドベースのデータサーバーにも接続されており, 実験結果のデータアップロードとリモートアクセスが可能である.

自動ドアにより, 試料の自動交換が可能である(図1c).

また, 中継サーバーソフトによりXRDソフトウェアと制御ネットワーク間の通信を行っている. 計測・分析データは, クラウド, およびローカルサーバーにアップロードされ, 解析と機械学習に利用される. データの出力に用いるMaiML形式は日本分析機器工業会(JAIMA)が主導して策定し, XML形式を基にしている. 測定, 前処理, 後処理の手順を構造化して記録できるため, 再現性, 追跡可能性, 安全なデータ再利用がサポートされている. MaiML形式の詳細については応用物理学会誌⁽¹⁰⁾に, またガイドラインが<https://www.maiml.org/>に掲載されている.

2.2. 自律実験の流れ

メイン制御PC(図2)は実験全体を統括し, タスクファイルに基づいて各モジュールや試料搬送を管理する. その制御はLabVIEWによって構築されたソフトウェアにより実行されている. 合成条件と測定条件はテキストファイルとして保存され, 成膜条件最適化の過程では説明変数として選択されたパラメータが更新され, 新たな実験タスクが生成される.

dLabは薄膜を自律的に合成・測定・解析し, その

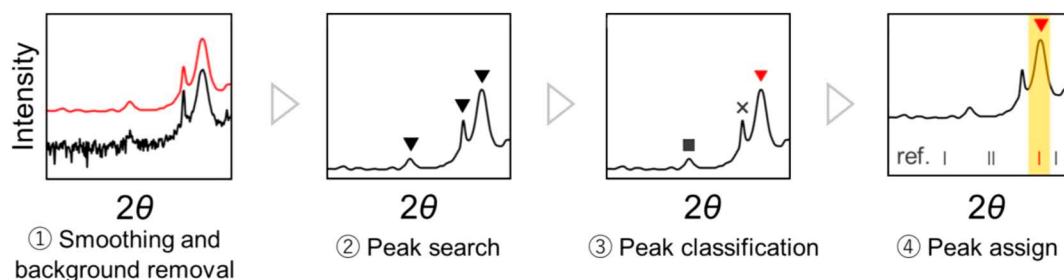


図3. 自動XRDピーク解析のワークフロー。

1. データの平滑化を行う。黒線は生データ、赤線は平滑化後の回折パターンを示す。2. ピークを検出する。検出されたピークは黒い▼で示す。3. ピークを薄膜由来のピーク(赤い▼)と、それ以外のピーク(■: 基板由来, ×: K_{β} 線由来)に分類する。4. ピークを同定する。薄膜由来のピークについては粉末XRDパターンと比較することで同定する。Reproduced from Ref. 13 with permission from the Royal Society of Chemistry.

データをMaiML形式でクラウドストレージにアップロードする。クラウドに蓄積されたデータを用いて、ベイズ最適化アルゴリズム^{(14)–(16)}が次の成膜パラメータを提案する。また、クラウドデータサーバーにはARIM-mdxデータシステム⁽¹⁷⁾を使用した(注: これは当初の研究⁽¹³⁾で使用されたサーバーとは異なる)。

このシステムは、合成・測定・解析・再計画の一連のプロセスを人の介入なしにClosed Loopで実行し、求める特性が最大化するよう成膜条件(ここでは基板温度を対象とした)を最適化する。

2.3. 薄膜物質の自動XRDピーク解析

今回、我々はPythonを用いて面直X線回折パターンに対する自動解析プログラムを作成した。配向性のある薄膜には一般的に結晶構造解析に用いられるリートベルト解析が適用できない。そのため、本プログラムではベースライン補正にBEADSアルゴリズム⁽¹⁸⁾、ピーク検出にはSciPyのfind_peaks()関数⁽¹⁹⁾を使用した。

このプログラムは図3に示すワークフローに従ってMaiML形式のXRDパターンデータを解析する。薄膜、基板、および K_{β} 線に由来する各ピークを区別するために、未使用の Al_2O_3 (0001) 基板のXRDデータを参照として使用した。各ピークにはJCPDSデータをもとにミラー指数が自動的に割り当てられる。 LiCoO_2 のピークは、 $003n$ ($1 \leq n \leq 5$) 反射として割り当てられ、手動での解析結果と一致した¹。

3. 結果

RFスパッタ法で Al_2O_3 (0001) 基板上に成膜した LiCoO_2 (001) 薄膜の結晶性を自律的に最大化した。 LiCoO_2 は CoO_6 八面体がエッジ共有で2次元的に連なる CoO_2 層を形成し、その間にLi層を有している。この層状カチオン配列の秩序度^{(20),(21)}は、XRDにおける003と006ピークの強度比(I_{003}/I_{006})によって評価できる^{(12),(22),(23)}。MaiML形式のXRDデータから自動的に強度比が計算され、最適化の指標として用いられた。

¹ 本文中の図には示していない。

最適化の過程では、 200°C から 750°C の基板温度(T_s)範囲を 10°C 刻みで変化させた。初期測定は 200°C と 750°C で行い、その後の成膜条件はベイズ最適化により自動的に推定しながら自動・自律実験を行った(Closed Loop)。

最適化を全25回(データ点の総数は27点)実施し(図4参照)、14回目の試行において $T_s = 660^{\circ}\text{C}$ で最大の I_{003}/I_{006} 比35.1が得られた。最適化された予測曲線から、 $600 \sim 700^{\circ}\text{C}$ の範囲で層状配列の秩序度が大きく向上することが明らかになった。今回は成膜温度に着目したが、ガス圧力、RF出力など複数のパラメータをdLabは同時に制御可能である。この機能により種々の探索条件を組み合わせた高次元の実験空間の探索を機械学習技術で実現できることが示した。

以上の実験では、dLabがXRDデータを自動的に解析し、成膜パラメータを自律的に調整した。dLabは、高品質な薄膜材料開発を人の介入なしに実行できるシステムであり、いわば「材料開発ロボット」と位置付けられる存在である。

4. 今後の展開

dLabの開発は今後以下に示すように展開すると考えている。

【システムの拡張】

dLabは薄膜試料だけではなく、ペレット試料も取り扱うことができるため、バルク合成にも適応できる。薄膜合成モジュールをバルク合成モジュールに置き換えれば、dLabは無機材料にとどまらず、セラミックス、高分子、有機化合物などを含む固体材料全般の開発に対応する汎用プラットフォームとなる可能性を持つ。

本システムは自動的なX線反射率(XRR)測定にも対応している。今後は、モノクロメータや K_{β} フィルターといった光学部品の交換もロボットで行うなど、ハードウェアの調整作業を自動化する方向に向かっている。ロボットの作業範囲を拡大することにより、アクセス可能な実験空間がさらに広がる。

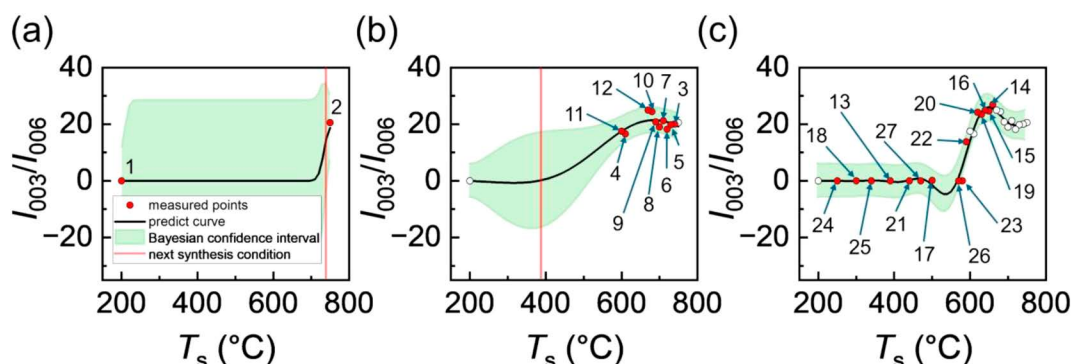


図4. (a-k) ベイズ最適化による自律探索のプロセス。

(a) 最初に探索範囲内の最小(200°C)と最大(750°C)の基板温度(T_s)で成膜を行い、二点の初期データセットとして探索を開始した。赤い円は測定された試料におけるLiCoO₂の003と006のX線回折強度比 I_{003}/I_{006} を示している。黒線は予測曲線、緑の陰影部分は信頼区間を表す。次に合成を行う条件は、獲得関数が最大となる点(図中の赤線)が自律的に選択される。(b) 11サイクル後。(c) 27サイクル後。白い円は、(a)と(b)に示された過去の実験結果を表している。Reproduced from Ref. 13 with permission from the Royal Society of Chemistry.

物質合成と計測・分析用のモジュールは公開した標準仕様に基づいてプラグアンドプレイで統合可能である。これらの標準仕様は以下のURLに公開されている：<https://github.com/Hitosugi24/dLab>

【データ活用的高度化】

dLabは、MaiMLフォーマットを本格的に実装した初のシステムである。個別の機器専用フォーマットで出力されたデータを標準化した記述法に則るように変換している。MaiMLは試料準備からデータ解析に至るまでの実験ワークフロー全体を記録可能であり、自動化された実験システムにおける指示書としても機能する。現在は専用の解析ソフトウェアを使用しているが、今後はサードパーティ製ソフトウェアの活用を進め、異なる装置やシステム間での自動化と標準化を促進する予定である。

【合成プロセスの記録と学習】

dLabでは、温度、ガス流量、圧力などのプロセスデータも自動的に記録される。これらの情報と物性測定結果と関連付けることにより、dLabは機械学習に適した豊富なデータセットを生成する。次の段階として、機械学習などを活用したプロセスと物性の間に潜む関係性を明らかにするような高度な補間または数値モデル化による表現も可能になると考えられる。

【多様な最適化手法の導入】

本研究ではガウス過程回帰モデルを用いたベイズ最適化を採用した。また、dLabは他の最適化手法にも対応可能である。実際に我々は課題に応じてアルゴリズムを切り替えて研究を進めている。個々の課題に応じて柔軟にアルゴリズムを選択できるよう、ソフトウェアの整備を進めている(ref <https://www.mki.co.jp/solution/product/mi/>)。

【ワークフローのスケジューリング】

dLabは現在、物質合成モジュールと各分析モジュールを逐次的に動作させているが、各モジュールは疎結合であるため、複数のワークフロー(作業)を並列に実

行できる構造となっている。このような並列処理によりデータ収集のスループットをさらに向上させることが可能である。実験の実施順序を適切に計画・管理するためには、先端的な数理学や実験計画法、シミュレーションを活用することが重要である。

【共同利用とオープンサイエンス】

dLabをインターネット経由で外部ユーザーと共有し、遠隔からの自律実験を可能にすることを計画している。また、データの共用を推進することで広い範囲での集合知を集め、オープンサイエンスを推進する。今回の自律実験で得られたデータ(XRDとSEM測定データ)は、以下のURLで公開されている：<https://github.com/Hitosugi24/dLab>

【データ可視化】

dLabは膨大なデータを収集可能である。このデータを有効活用するためには、研究者がその本質を把握できることが重要であり、そのためにはデータ可視化技術の発展が必須である。例えば、材料の特性を多次元的に示すトヨタ自動車が開発したWAVEMAPのような材料地図は、複雑な関係性の理解や有望な材料の発見に役立つ。また、同社の提供するWAVEBASE(ref <https://www.toyota.co.jp/wavebase/>)のような解析プラットフォーム・サービスでは、データを視覚的に表示し、直感的な理解を支援している。

【デジタルツイン：シミュレーションと現実の統合】

材料合成から計測・分析測定に至る物理空間をサイバースペース上で再現することは大きな挑戦である。量子化学計算、第一原理計算、および巨視的理論を組み合わせ、所望の特性を持つ材料の組成や構造、そして合成プロセスを事前に予測することが理想である。dLabが収集する合成プロセスデータと物性データをシミュレーション結果と統合することにより、より高度なデジタルツインが実現可能となる。

5. まとめ

我々は薄膜材料を自律的に探索するモジュール型プラットフォームを開発した。MaiMLフォーマットを採用し、装置メーカーや機種に依存せず、シームレスなデータ収集を実現した。本システムを活用し、新材料の開発を加速することを目指している。

謝辞

大阪大学小野寛太教授にはdLabの開発に当たり支援を受けた。ここに厚く御礼を申し上げます。

資金情報

本研究は、科学技術振興機構(JST)未来社会創造事業(MIRAI)[JPMJMI21G2]、戦略的創造研究推進事業(CREST)[JPMJCR22O4]、科研費(JSPS)[24K01599]、東京科学大学コアファシリティセンター、文部科学省データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト事業東京大学「再生可能エネルギー最大導入に向けた電気化学材料研究拠点」(DX-GEM)[JPMXP1122712807]の支援を受けて行われた。

参考文献

- (1) 一杉太郎: マテリアル・機械学習・ロボット (現代化学増刊48).
- (2) 一杉太郎: 日本物理学会誌, **77** (2022), 592–601.
- (3) 一杉太郎: 現代化学, (2022), 30–32.
- (4) N. Ishizuki, R. Shimizu, and T. Hitosugi: *Sci. Technol. Adv. Mater. Methods*, **3** (2023), 2197519.
- (5) M. Abolhasani and E. Kumacheva: *Nat. Synthesis*, **2** (2023), 483–492.
- (6) E. National Academies of Sciences and Medicine, Automated Research Workflows for Accelerated Discovery: Closing the Knowledge Discovery Loop.
- (7) B. Burger, P.M. Maffettone, V.V. Gusev, C.M. Aitchison, Y. Bai, X. Wang, X. Li, B.M. Alston, B. Li, R. Clowes, N. Rankin, B. Harris, R.S. Sprick, and A.I. Cooper: *Nat.*, **583** (2020), 237–241.
- (8) J. Chen, S.R. Cross, L.J. Miara, J.-J. Cho, Y. Wang, and W. Sun: *Nat. Synthesis*, **3** (2024), 606–614.
- (9) N. J. Szymanski, B. Rendy, Y. Fei, R. E. Kumar, T. He, D. Milsted, M. J. McDermott, M. Gallant, E. D. Cubuk, A. Merchant, H. Kim, A. Jain, C. J. Bartel, K. Persson, Y. Zeng, and G. Ceder: *Nature*, **624** (2023), 86–91.
- (10) 一村信吾, 重藤知夫, 安永卓生, 井上信介, 応用物理, **92** (2023), 142–146.
- (11) K. Mizushima, P. C. Jones, P. J. Wiseman, and J. B. Goodenough: *Solid State Ionics*, 3–4 (1981), 171–174.
- (12) H. J. Orman and P. J. Wiseman: *Acta Crystallogr. Sec. C*, **40** (1984), 12–14.
- (13) K. Nishio, A. Aiba, K. Takihara, Y. Suzuki, R. Nakayama, S. Kobayashi, A. Abe, H. Baba, S. Katagiri, K. Omoto, K. Ito, R. Shimizu, and T. Hitosugi: *Digit. Discov.*, **4** (2025), 1734–1742.
- (14) R. Shimizu, S. Kobayashi, Y. Watanabe, Y. Ando, and T. Hitosugi: *APL Mater.*, **8** (2020), 111110.
- (15) R. Nakayama, R. Shimizu, T. Haga, T. Kimura, Y. Ando, S. Kobayashi, N. Yasuo, M. Sekijima, and T. Hitosugi: *Sci. Technol. Adv. Mater. Methods*, **2** (2022), 119–128.
- (16) H. Xu, R. Nakayama, T. Kimura, R. Shimizu, Y. Ando, S. Kobayashi, N. Yasuo, M. Sekijima, and T. Hitosugi: *Sci. Technol. Adv. Mater. Methods*, **3** (2023), 2210251.
- (17) M. Hanai, R. Ishikawa, M. Kawamura, M. Ohnishi, N. Takenaka, K. Nakamura, D. Matsumura, S. Fujikawa, H. Sakamoto, Y. Ochiai, T. Okane, S. Kuroki, A. Yamada, T. Suzumura, J. Shiomi, K. Taura, Y. Mita, N. Shibata, and Y. Ikuhara: ARIM-mdx Data System: Towards a Nationwide Data Platform for Materials Science, 2024 *IEEE International Conference on Big Data (BigData)*, 2024.
- (18) X. Ning, I. W. Selesnick, and L. Duval: *Chemomet. Intel. Lab. Syst.*, **139** (2014), 156–167.
- (19) P. Virtanen, R. Gommers, T. E. Oliphant, M. Haberland, T. Reddy, D. Cournapeau, E. Burovski, P. Peterson, W. Weckesser, and J. Bright: *Nat. Methods*, **17** (2020), 261–272.
- (20) M. Antaya, K. Cearn, J. S. Preston, J. N. Reimers, and J. R. Dahn: *J. Appl. Phys.*, **76** (1994), 2799–2806.
- (21) R. Huang, T. Hitosugi, C. A. J. Fisher, Y. H. Ikuhara, H. Moriwake, H. Oki, and Y. Ikuhara: *Mater. Chem. Phys.*, **133** (2012), 1101–1107.
- (22) K. Mizushima, P. Jones, P. Wiseman, and J. B. Goodenough: *Mater. Res. Bull.*, **15** (1980), 783–789.
- (23) T. Hewston and B. Chamberland: *J. Phys. Chem. Solids*, **48** (1987), 97–108.