

研究報告書

「物質・材料の微細構造計測におけるインフォマティクス技術の開拓」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016年10月～2020年3月

研究者: 志賀 元紀

1. 研究のねらい

物質・材料科学分野において、第一原理に基づく数値計算の信頼性・精度が向上するにともなう、様々な材料に関する計算・計測結果が大規模に蓄積されるようになってきた。一方、SPring-8などの大型計測施設や電子顕微鏡などの各研究機関の計測機器の高性能化・自動化が目覚ましく、以前よりも精密な微細構造の計測が可能となってきた。しかしながら、この発展の結果として1回の計測におけるデータサイズが肥大化し続けており、データ解析のコストが新規に合成された物質・材料の評価プロセスにおけるボトルネックとなる。本研究課題では、微細構造計測データの解析コストの大幅な削減を目指し、自動的かつ高精度に計測データを解析するための統計的機械学習法の開発を推進する。

数多くある物質・材料構造計測データの中でも、特に、走査透過型電子顕微鏡(STEM: Scanning Transmission Electron Microscopy)におけるエネルギー損失スペクトル計測(EELS: Electron Energy Loss Spectroscopy)のイメージング計測データ(STEM-EELS スペクトルイメージデータ)の解析法を開発する。この計測技術は、試料平面の各位置に電子線を照射して各位置でのスペクトルを計測するものであり、平面上の計測点が横方向500点×縦方向500点さらに分光スペクトルのチャンネル数2,000という標準的な計測データサイズでもデータ点数は約5億と非常に大きい。この計測スペクトルのピーク位置やピーク形状は物質の電子状態と対応しており、スペクトルイメージは計測物質構造の同定に用いられるものの、EELS スペクトルはピーク形状が単純な関数でモデル化できなかったり、複雑な形状のバックグラウンド成分を含んだりするため、単純なピーク関数によるフィッティングを用いる解析が困難である。そこで、ピーク形状を仮定しないモデルに基づく機械学習法を開発し、解析精度の向上を図る。本研究課題で対象とする物質・材料には、規則的な構造である結晶だけでなく、不規則な構造であり解析が困難な非晶質も含めており、新規構造や構造秩序の同定を目指す。また、さきがけ領域内外の関連研究者と物質・材料科学の実問題解決のための共同研究に取り組み、インフォマティクスを基盤とする新しいデータ解析技術を開拓する。

2. 研究成果

(1) 概要

本研究で得られた主な成果を、研究テーマ A: スペクトルイメージ解析のための統計的機械学習法の開発、研究テーマ B: 非晶質の構造解析、研究テーマ C: その他の物質・材料解析のための機械学習法の開発 に分けて述べる。テーマ A では、スペクトルイメージングを入力として、計測領域中に含まれる化学成分の空間分布と成分スペクトルを出力する統計的機械学習法を開発した。テーマ B では、非晶質構造の構造モデルを用いた仮想計測データを用いて中距離秩序の評価を行なった。テーマ C では、さきがけ領域内の共同研究成果であり、理

論計算の効率化のための機械学習法を構築した。以下に、テーマごとの研究成果を詳細に述べる。

(2) 詳細

研究テーマ A「スペクトルイメージ解析のための統計的機械学習法の開発」

網羅計測されたスペクトルイメージングを入力として、代表的な成分のスペクトル波形と成分の空間分布を自動的に同定する技術を構築した。STEM-EELS のスペクトルイメージング解析において同定される成分は電子状態のことであり、この解析結果によって元素の空間配置(2次元配置)や配位数に関する情報を自動解析できる。開発手法の特徴は、空間的な不自然な重なりを除去できること、また、スパース罰則項により成分数を学習できることであり、いくつかの実データ解析の結果とともに論文[1]において発表した。発表と同時に、アカデミックや企業の研究者が方法を容易に使えるように Github にて開発コードを公開した [https://github.com/MotokiShiga/stem-nmf]。ところで、上述の手法はガウス雑音モデルを仮定しており、低カウントのスペクトルの雑音モデルに適していない。この問題点に着目してポアソン分布を雑音モデルとする手法を開発し、論文[4]において発表を行った。この手法は、低カウントのスペクトルから高精度な解析が可能であるため、TEM/SEM-EDS 等の計測時間を大幅に短縮できることを示せた。開発法を Python のパッケージ malspy (Machine Learning for Spectral Imaging)にまとめて一般公開しており [https://github.com/MotokiShiga/malspy]。開発パッケージは、ToF-SIM や TEM-EDS などの異なる種類のスペクトルイメージングに対しても高精度で解析できることを確認しており、その汎用性が示された[1,3]。今後もこのパッケージを更新し、新しい手法の追加や機能の強化を行う予定である。以上の成果から、本研究テーマに関して、概ね当初の計画通りの目標を達成できたと考えている。

研究テーマ B「非晶質の構造解析」

研究計画当初は、非晶質構造の解析のために、長時間電子線照射した際に現れる EELS スペクトルの高エネルギー帯域の振動成分 EXELFS (Extended Electron Energy Loss Fine Structure) の解析に取り組む予定であった。しかしながら、長時間計測によって試料ダメージが発生し、解析できる良質な計測データを得ることが困難であった。こうしたことから、実計測を今回あきらめて、理論計算(シミュレーション)を用いて生成した構造モデルの解析に取り組んだ。

大規模な構造モデルの作成のために、まず、古典分子動力学法によって、液体状態の温度からガラスになる温度まで急冷するシミュレーションを行い、その後、さきがけ同領域の共同研究者の小原真司博士(物質・材料研究機構)から提供された X 線回折および中性子線回折データを用いる逆モンテカルロ法によって構造モデルを精錬し、実験データを再現するモデルを構築した。構築した構造モデルに対して、電子回折イメージングの仮想計測実験を行った。この計測を選んだ理由は、実計測に必要な電子線照射時間が EXELFS よりも短くなり、また、逆空間の構造を高解像度な回折像で得られるため、原子配置の詳細な情報を得られるからである。ところで、非晶質の重要な解析の1つは、一見ランダムに見える原子配置や化学結合から、秩序を同定することである。仮想計測データから特定の回折パターンを取り出す解析を

行い、化学結合リングの強い相関構造(中距離秩序)を同定する手順を考案した。様々な合成条件の非晶質構造を解析・比較した研究成果を学会発表[5]および論文[5]において発表した。仮想計測データの解析によって新しい知見を得られたので、実計測から中距離秩序を評価することが今後の課題である。課題達成を目指して、今後も実験研究者との共同研究を継続してゆきたい。

研究テーマ C「その他の物質・材料解析のための機械学習法の開発」

スペクトル解析において、テーマ A と異なる手法も構築した。例えば、スペクトルからガウス関数あるいはローレンツ関数で近似されるピークを高速に列挙する手法を開発し論文[Sudou, Shiga, et al., *Journal of the Korean Astronomical Society*, 50 (6), 157-165, 2017]にて発表を行った。この手法をさらに発展させ、3D ラマンスペクトルにおいて混成された計測値を解きほぐし、正しいピーク位置を推定する機械学習法を開発し、論文[2]にて発表した。

物質・材料分野の理論計算を効率化するための機械学習法の開発にも取り組んだ。例えば、さきがけ同領域の烏山昌幸准教授(名古屋工業大学)や塚田祐貴准教授(名古屋大学)とともに、実験データと合致する構造パラメータを効率的に探索する機械学習法を開発して論文[6]にて発表した。また、さきがけ同領域の世古淳人准教授(京都大学)や烏山昌幸准教授らとプロトン伝導経路の効率探索に関する共同研究に取り組んだ [Kanamori, et al., *Physical Review B*, 97, 125124, 2018]。

3. 今後の展開

今後に取り組むべき課題は、開発した機械学習法の流用、あるいは、異なる微細構造計測データ解析のために新たな機械学習法を開発し、非晶質の原子配置や構造パラメータを同定することである。実計測のみでの検証が困難な可能性が高いので、本研究期間中に構築した構造モデルを用いた仮想実験によって開発法の性能を十分に検証することが必要である。実験研究者や理論研究者との連携により、解析例を増やして、構造特徴と物性・材料特性の関係に関する知見を蓄積することで、材料設計につなげるアプローチを模索してゆきたい。

4. 自己評価

研究目的の達成状況:

近年、機械学習法によって微細構造計測データを解析する試みは行われていたものの、それほど広く浸透している状況ではなかった。しかしながら、昨今では、検出器や計測技術の進展が目覚ましく、大規模なデータを網羅的に記録してソフトウェアで処理する流れに移行しつつあり、機械学習の重要性が広く認知されるようになってきた。こうした状況において、本研究課題の目的である、物質材料計測において広く用いられるスペクトルイメージングの統計的機械学習法の開発・整備を達成できたことは非常に重要なものと考えている。当初の計画では、開発法の対象データを STEM-EELS と設定していたものの、開発法は他のスペクトル解析にも有効でありその汎用的を示すことができた。また、実計測時間を短縮するため、低カウントのスペクトルを対象とした手法の有効性も示すことができた。したがって、当初の第一目標を達成できたと考えている。

一方で、本研究で取り組む予定であったスペクトルの周波数解析の課題、既存の解析法で困難な物質構造を同定する課題に関しては、今のところ十分な研究成果を得られていない。達成できなかった原因の一つには、物質・材料科学分野の計算・実験の知識・技術が不足していた点が考えられ、個人研究の限界を痛感した。この不足点を補強するために、さきがけ研究者とのネットワークを構築し、具体的な共同研究を開始している。さきがけ研究を通じて構築したネットワーク、領域会議・自主勉強会で得た知見をさらに深めて、目標達成のための取り組みを継続したい。

研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況):

研究を進めるにあたって物質・材料科学との連携が必要不可欠であったので、さきがけ領域内で密に議論できる共同研究者のネットワークを新たに構築し、必要な知識や技術を交換した。また、機械学習法の開発や大規模な分子動力学計算を行う必要があったので、CPU コア数・メモリが多い計算サーバーや GPU 搭載計算サーバーを本研究費によって購入して計算環境を構築した。

研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果:

微細構造計測データの定量的かつ高精度な自動解析法は材料探索・開発のスピードを加速させるために必要不可欠である。本研究課題では、スペクトルイメージング計測データを中心として、この技術の発展に貢献した。また、本研究成果をアカデミックや企業の方が自由に使えるように一部の開発コードを公開し、手法の普及に努めた。その結果として、他の研究者による研究論文や企業での材料評価等において、公開コードの利用を確認でき、こうした試みの重要性を実感できた。ところで、微細構造計測データにはスペクトル以外にも数多くの種類のものが存在する。その中には、複雑かつ膨大なデータサイズのため解析法が十分に整備されていないものがある。機械学習を中心とするインフォマティクス技術を用いて、こうした計測データの解析法を新たに構築し、幅広く使えるようにソフトウェアを整備することが重要な課題である。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. [Motoki Shiga](#), Kazuyoshi Tatsumi, Shunsuke Muto, Koji Tsuda, Yuta Yamamoto, Toshiyuki Mori, Takayoshi Tanji, “Sparse Modeling of EELS and EDX Spectral Imaging Data by Nonnegative Matrix Factorization”, *Ultramicroscopy*, 170, 43–59, 2016.
2. Hongxin Wang, Han Zhang, Bo Da, [Motoki Shiga](#), Hideaki Kitazawa, Daisuke Fujita, “Informatics-Aided Raman Microscopy for Nanometric 3D Stress Characterization”, *Journal of Physical Chemistry C*, 122 (13), 7187–7193, 2018.
3. 石倉航, 高橋一真, 山嵜崇之, 青木弾, 福島和彦, 志賀元紀, 青柳里果, “多変量解析を利用した TOF-SIMS イメージデータフュージョンとスパースモデリングおよび機械学習による TOF-SIMS スペクトル解析”, *Journal of Surface Analysis*, 25 (2), 103–114, 2018.
4. [Motoki Shiga](#), Shunsuke Muto, “Non-negative matrix factorization and its extensions for

spectral image data analysis”, *e-Journal of Surface Science and Nanotechnology*, 17, 148–154, 2019.

5. Yohei Onodera, Shinji Kohara, Shuta Tahara, Atsunobu Masuno, Hiroyuki Inoue, Motoki Shiga, Akihiko Hirata, Koichi Tsuchiya, Yasuaki Hiraoka, Ippei Obayashi, Koji Ohara, Akitoshi Mizuno, Osami Sakata, “Understanding diffraction patterns of glassy, liquid and amorphous materials via persistent homology analyses”, *Journal of the Ceramic Society of Japan*, Vol. 127, No.12, 853–863, 2019.

6. Yuhki Tsukada, Shion Takeno, Masayuki Karasuyama, Hitoshi Fukuoka, Motoki Shiga, Toshiyuki Koyama, “Estimation of material parameters based on precipitate shape: efficient identification of low-error region with Gaussian process modeling”, *Scientific Reports*, 9, 15794, 2019.

(2)特許出願

研究期間累積件数:0件

(2)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)

著作物

1. Motoki Shiga, Shunsuke Muto, “High Spatial Resolution Hyperspectral Imaging with Machine-Learning Techniques”, *Nanoinformatics* (Editor Prof. Isao Tanaka), Ch. 9 (p.179–203), Springer, 2018.

主な学会発表

1. 志賀元紀, “スペクトラムイメージ解析における機械学習”, 情報統合型物質・材料開発イニシアティブ チュートリアルセミナー 第6回「計測インフォマティクス」, 科学技術振興機構 東京本部別館, 東京都千代田区, 2017年11月1日.(チュートリアル講演)

2. 志賀元紀, “スペクトラムイメージ解析のための統計的機械学習法”, 第31回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム, 企画講演『情報科学を活用した放射光科学の展開』, つくば国際会議場, 茨城県つくば市, 2018年1月8日.(招待講演)

3. Motoki Shiga, “Statistical Machine Learning for Spectrum Image Data Analysis”, The 19th KIM-JIM Symposium –Recent Advances in Artificial Intelligence and Simulations in Materials Science and Engineering–, Daejeon Convention Center, Daejeon, Korea, October 25, 2018. (Invited Talk)

4. Motoki Shiga, Motoki Fukaya, Shunsuke Muto, “Statistical Hypothesis Testing of the Number of Chemical Components in Spectrum Image Data”, The 19th International Microscopy Congress (IMC19), International Convention Center, Sydney, Australia, September 9–14, 2018. (Mini-oral and digital poster)

5. 志賀元紀, 平田秋彦, 小原真司, 小野寺陽平, “オングストロームビーム電子回折イメージングを用いた非晶質構造の網羅的解析”, NIMS 先端計測シンポジウム 2019, 物質・材料研究機構, 東京, 2019年3月7日.(特別講演)