

研 究 報 告 書

「情報科学手法を利用した界面の構造機能相関の解明」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016年10月～2020年3月

研 究 者: 溝口照康

1. 研究のねらい

界面における原子構造は単結晶の構造とは異なるため、単結晶では得られない物性が得られる。たとえば、過電流から電気機器を保護するためのバリスタ素子には酸化亜鉛が使用されているが、バリスタ特性は多結晶酸化亜鉛のみで得られる。つまり、バリスタ特性は界面があつて初めて得られる機能である。界面は新機能を発現するだけではなく、悪影響を及ぼすこともある。例えば、チタン酸ランタンリチウムの単結晶は優れたリチウムイオン伝導特性を示し、固体電解質として期待されてきたが、界面において大幅に伝導特性が低下することが知られている。このような界面における特異な特性は、結晶内部と異なる界面固有の原子構造に起因している。そのため、界面構造を解析することが材料研究において最も重要なテーマとされてきた。

界面の機能は界面固有の構造に起因しているため、界面の構造解析がこれまで盛んに行われてきた。特に、高い空間分解能を有する透過型電子顕微鏡(TEM)や電子線エネルギー損失分光(EELS)のような実験的手法と、第一原理計算や分子動力学計算(MD)のようなシミュレーション法が界面の構造解析にひろく用いられてきた。

一方で、界面構造を決定することは容易ではない。これは界面の有する自由度が原因である。自由度を制限した単元素金属の対応格子理論(CSL)に基づく対称傾角粒界でも、1種類の粒界あたり数百～数万個の候補構造が存在しており、そのシミュレーションには膨大な計算時間を要する。さらに、界面から取得されるTEMやEELS計測データも膨大かつ複雑なため、その解析は容易ではない。

本研究のねらいは、機械学習をはじめとした情報科学手法を利用することで、界面構造解析を加速させることにある。

具体的には、(1)仮想スクリーニングやクリギング、転移学習といった機械学習法をシミュレーションに組み合わせることで界面シミュレーションを加速すること、(2)階層型クラスタリングおよびニューラルネットワークを利用することで界面計測データ解析を加速させる。(1)と(2)により界面構造データベースを作成し、さらに界面構造の物性データを計算する。得られた構造と物性の相関関係を機械学習により解析し、界面における構造と機能の相関性を明らかにすることが本研究のねらいである。

本研究により界面構造相関が明らかになれば、界面の構造から物性を予測することが可能となり、界面設計の実現につながると期待される。

2. 研究成果

(1)概要

本研究は、機械学習を併用して界面構造解析を効率化し、さらに界面における構造と機能との相関性(構造機能相関)を明らかにすることを目的としている。主な研究内容は、1)既存

手法のさらなる高速化, 2) 多元系化合物への利用, 3) 計測データ解析の効率化と, 4) 界面における構造機能相関の解明である。本申請研究により, これらの研究項目に対して成果を得た。たとえば, 転移学習をクリギング法に組み合わせることにより, 従来のクリギングと比較して3倍(クリギング無しの場合と比較して3600倍)の高速化に成功した。さらに, 酸化物界面の高速決定にも成功し, 多元系化合物においても機械学習法が有効であることを実証した。また, 階層型クラスタリングと決定木を利用することで, スペクトルデータを高速に解釈・予測する手法を開発した。さらに, ニューラルネットワークを利用することでスペクトルデータから結合距離や結合角度, 電子構造などの物質情報を直接決定するための手法も開発した。界面における構造機能相関に関して, 界面の空孔偏析挙動と界面構造との相関性を調べた。界面近傍の各原子サイトから取得される幾何学的な情報と空孔偏析挙動との相関性を明らかにした。同研究を通し, 汎用的な予測モデルを構築するための指針や, これまで議論されてこなかった界面構造の基礎的な知見を明らかにすることが出来た。

(2) 詳細

研究成果

研究テーマ1「転移学習を利用したクリギングによる界面構造決定の加速」

界面構造を決定するうえで「仮想スクリーニング」と「クリギング」という機械学習の手法を利用し, 構造決定のプロセスを加速させてきた。二つの手法を比較すると, 仮想スクリーニングでは予測モデルを使用するために数百～数千個の候補構造を実際に計算する必要があるが, 一度予測モデルを構築することができれば, 従来の手法の数万倍程度高い効率で界面構造を決定することができる。一方で, クリギングは予測モデル構築の手間がないものの, その効率は数百倍程度であり仮想スクリーニングには劣る。

そのようなクリギングをより加速させることを目的として, クリギングと転移学習を組み合わせた手法を開発した。転移学習は, ある課題で学習した結果を, 他の類似した課題に再利用することで, より高精度(もしくは高効率)化する手法である。

本手法では, モデル CSL 粒界の Σ 粒界に対し, $\Sigma 3$ 粒界をクリギングした際に得られた予測モデルを, そのまま $\Sigma 5$ に利用して再学習する。そこで得られた新たな学習モデルを次の $\Sigma 7$ 粒界に利用する。そのようにして, 各粒界において学習モデルを Σ 値順に転移することにより, クリギングの試行回数を減らすことに成功した。通常のクリギングよりも3倍程度, 従来の手法よりも3600倍程高速化することに成功した。

同成果は, 転移学習を物質解析に利用した重要な成果であり, 図1に示すようなイメージ図を作成してプレスリリースを行い, 国内外で報道された。

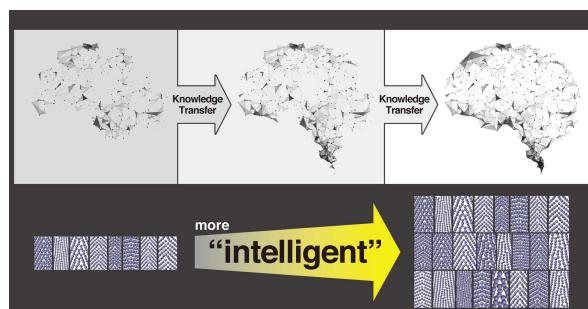


図1 転移学習により多くの界面構造を決定することに成功

研究テーマ2「機械学習を利用した多元系化合物粒界構造決定」

「仮想スクリーニング」及び「クリギング」の手法開発においては, 単金属のような単純な物

質系を対象としてきた。一方で、工業的に使用されている材料は多元系化合物が主である。多元系化合物の粒界構造決定のためにクリギングを使用した。クリギングは2つの結晶粒を準備するのみで界面構造決定することが可能なため、界面終端面の組み合わせ数が多くなる多元系にも有効である。本研究では、MgO、NiO のような岩塩型構造に加え、CeO₂ や TiO₂ のような複雑な結晶構造を有する化合物の界面構造決定を行った。それらの粒界では2万から4万程度の候補構造が存在している。

クリギングを実施した結果、すべての化合物において十数回から数十回の試行計算によって最安定構造をえることに成功した。単金属だけでなく、多元素系化合物においてもクリギングが有効な理由を明らかにするために、界面エネルギーの剛体変位に対する依存性を解析した。その結果、金属と多元系化合物の両方において、剛体変位に対して粒界エネルギーが連続的に変化し、不連続的な変化を生じないことが明らかとなった。本研究を通し、物質を構成する元素の種類によらず、その界面エネルギー分布が連続的であればクリギング法が有効であると結論付けることができた。

研究テーマ3「機械学習を利用した計測データ解析」

界面の解析においてシミュレーションに加えて高分解能電子顕微鏡を用いた像やスペクトル計測も行われている。特に、像だけではわからない結合距離のわずかな変化や、結合角度の変化、さらに電子構造の変化はスペクトルから取得される。一方で、そのようなスペクトルデータを解釈し、結合距離や、角度、電子構造の情報に変換するためには、シミュレーションを用いたデータ解析が不可欠である。さらに、スペクトルに現れるわずかな変化を正確に解釈するためには専門的な経験が必要となる。そのような研究者駆動型のスペクトル解析における諸問題を解決するために機械学習を活用した。

具体的には、教師無し階層型クラスタリングと、教師あり決定木を用いた。今回開発した手法を模式的に図2に示す。(a)スペクトルデータを、(b)階層型クラスタリングにより分類し、(c)さらにその分類結果を教師として物質情報(結合距離、角度、電子構造)の決定木を作る。デンドログラム(b)と決定木(c)という2つの「木」を利用することで、

スペクトルの解釈に加え、物質情報からスペクトルを予測することも可能であることを示した。

さらに、スペクトルを解釈するだけでなく、スペクトルから直接物質情報や物性情報を取得するための手法も開発した。同手法はスペクトルを input、構造情報や物性情報を output とし、ニューラルネットワークを形成するというものである。実際に SiO₂ 多型から取得された 1000 本以上の O-K 端というスペクトルから、結合距離、結合角度、電子構造(イオン性、共有結合

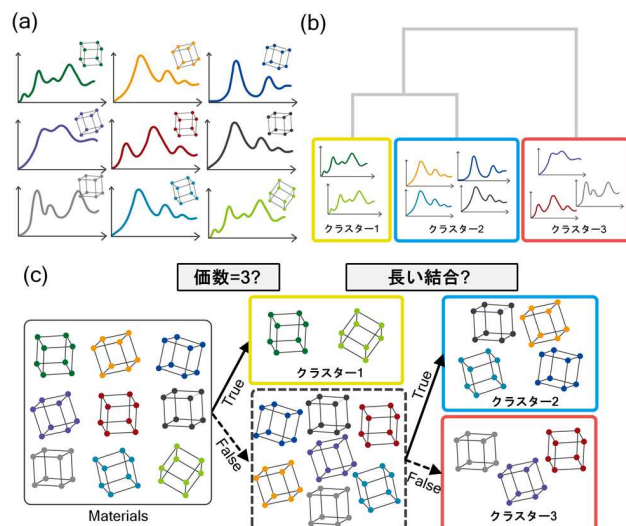


図 2(a) スペクトルデータベース, (b)階層型クラスタリングによるスペクトルの分類, (c)スペクトルの分類結果を教師とした構造情報の決定木

性), さらにスペクトルの遷移エネルギーを予測するためのモデルを構築した。その結果, すべての物質情報を高い精度で予測することに成功した。今回開発した手法により, 界面の構造ではなく, 物性を定量的に可視化することが可能になると期待できる。

これらデータ駆動型スペクトル解析法は JST からプレスリリースされ, 国内外で広く報道された。

研究テーマ4「界面における構造機能相関の理解」

機械学習法を利用することで界面構造のデータベースを効率的に作成することができる。さらに, その界面構造に対して網羅的に界面物性を計算することで界面物性のデータベースを作成することもできる。構築した界面構造と界面物性のデータを解析することで界面における構造機能相関を理解することが可能になる。

本研究では, 単元素金属の対称傾角粒界, 非対称傾角粒界に関して網羅的に空孔の偏析エネルギーを計算し, 界面における空孔偏析と構造との相関性を調べた。記述子として, 界面近傍における結合距離や結合本数, 原子数密度などを用い, 目的変数として各サイトにおける空孔偏析エネルギーを回帰した。各回転軸において個別の予測モデルを構築したが, 各回転軸の予測モデルを他の回転軸の物性予測に利用した際, 予測精度が悪いことが明らかとなった。つまり, 各回転軸で構築した予測モデルは汎用的でなく, 他の回転軸には利用できないことが分かった。

この結果を踏まえ, 汎用的な予測モデルを構築するために, 異なる回転軸の粒界物性を用いて予測モデルを再度構築した。同予測モデルは回転軸が異なる粒界の物性を高精度で予測することができた。また, そのような予測モデルの構築法が, 粒界物性だけでなく粒界構造自体の予測にも有効であることも分かった。以上の研究を通し, 界面物性及び界面構造の汎用的予測モデルの構築方法を明らかにした。

また, 得られた構造と機能の相関性を調べ, 機能の予測モデルを構築し, 構造記述子の重要度を調べた。その結果, 界面への空孔偏析に関しては, 界面近傍に生じる構造ひずみ(短結合および長結合)が重要な役割をはたしていることが明らかとなった。

これらの研究から, 界面における物性(主に空孔偏析)と構造との相関性を明らかにすることができた。

3. 今後の展開

本研究により, シミュレーションおよび計測を用いた界面構造解析を加速するための基盤技術を確立できたと考えている。今後の展開として考えられるのは次の2点である。1) 実用的な物質系への利用, 2) 手法確立を通して得られた知見のさらなる調査。

1)に関して, 本研究では単一物質間に形成される界面の構造決定を対象としてきた。一方で, 電子デバイスや電池においては, 異種物質が接するヘテロ界面が存在し, デバイス性能に重要な役割をはたしている。本研究で確立した手法を, そのような実用性の高いヘテロ界面への利用が期待できる。

2)に関して, 界面構造・物性の回転軸依存性や, 転移学習の学習順序依存性など, 本申請研究において, 材料学的に興味深い知見が得られている。それらについてさらに調査をすること, これまでの研究では得ることができなかった界面構造に関する重要な知見を得ることができ

ると期待できる。

4. 自己評価

本研究は、機械学習を利用した界面構造解析の加速と構造機能相関の解明を目的としており、上述のような研究成果はその目的を達成していると結論付けることが出来る。研究においては本研究費により導入した装置や計算機が有効に機能したと考えている。学術論文の投稿に加えて、学会誌への解説記事の執筆や、様々な学会・会合での講演・講師などを数多く行ってきた。また、得られた研究成果についてなるべくプレスリリースを行い、ひろくアウトリーチすることが出来たと考えている。

一方で、研究成果に興味を持っていただく機会があったものの、社会実装されているとはいえない。本研究で確立された手法の公開や、データの公開などを今後積極的に行いたいと考えている。

今回のさきがけ研究では「界面」にフォーカスした研究を実施した。一方で、多結晶材料中には転位や表面といった別の格子欠陥が多数存在している。機械学習がそのような格子欠陥の解析にも有効であると考えられるので、界面同様に機械学習を利用することで「格子欠陥インフォマティクス」の確立に尽力したいと考えている。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

- | |
|--|
| 1. H. Oda, S. Kiyohara, K. Tsuda, and T. Mizoguchi, "Transfer Learning to Accelerate Interface Structure Searches", J. Phys. Soc. Jpn (Letter), 86 (2017) 123601-1-4. |
| 2. S. Kikuchi, H. Oda, S. Kiyohara, and T. Mizoguchi, "Bayesian optimization for efficient determination of metal oxide grain boundary structures", Physica B, 532 (2018) 24-28. |
| 3. S. Kiyohara and T. Mizoguchi, "Searching the stable segregation configuration at the grain boundary by a Monte Carlo tree search ", J. Chem. Phys., 148 (2018) 241741-1-6 |
| 4. S. Kiyohara, T. Miyata, K. Tsuda, and T. Mizoguchi, "Data-driven approach for the prediction and interpretation of core-electron loss spectroscopy", Scientific Reports, 8 (2018) 13548-1-12 |
| 5. S. Kiyohara, M. Tsubaki, Kunyen Liao, and T. Mizoguchi, "Quantitative estimation of properties from core-loss spectrum via neural network", J. Phys.: Materials, 2 (2019) 024003-1-9 |
| 6. H. Oda, S. Kiyohara and T. Mizoguchi, "Machine learning for structure determination and investigating the structure-property relationships of interfaces", J. Phys.: Materials, 2 (2019) 034005-1-8 |
| 7. T. Mizoguchi and S. Kiyohara, "Machine learning approaches for ELNES/XANES", Microscopy, in press. [Invited review] |

査読付き学術論文: 14 件

日本語解説: 8 件

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件

(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

“基調講演”“機械学習を活用した機能コア解析”

日本金属学会 2019 年度秋季大会, 岡山大学, 岡山, 9/12, 2019

“データ科学で理解するスペクトロスコピー”

日本化学会 2019 春季大会, 甲南大学, 神戸, March 17, 2019

“Data-driven approach for interface and spectrum”

PRESTO Inter. Symposium on Materials Informatics, Koshiba-hall, Tokyo, Feb. 9, 2019

“機械学習と原子分解能計測による結晶界面の構造解析”

地球惑星科学連合 2018 年年会, 幕張メッセ, 千葉, May 23, 2018

“原子分解能 STEM-EELS および第一原理計算による液体・気体の解析”

鉄鋼協会春季大会, 千葉工業大学, 新習志野, March 20, 2018

“機械学習を利用した粒界構造の効率的探索”

日本物理学会 秋季大会, 岩手大学, 岩手, 9/22, 2017

招待講演・基調講演:66 件

受賞

溝口照康

功績賞, 日本金属学会, 2017 年 3 月

溝口照康

風戸賞, 風戸研究奨励会, 2017 年 3 月

著作物

“Nanoinformatics”, Springer (2018), e-book ISBN 978-981-10-7617-6

Chapter 8, “Atomic-Scale Nanostructures by Advanced Electron Microscopy and Informatics” 執筆担当

“Machine Learning in Chemistry: The Impact of Artificial Intelligence”,

Royal Society of Chemistry, (2020) 印刷中, (Hugh Cartwright edited)

Chapter “Machine learning for core-loss spectroscopy”執筆担当

プレスリリース

1. 2019 年 3 月 26 日 「理論計算や専門知識いらず！人工知能がスペクトルから物質の構造や機能を直接定量 ～物質開発の加速に期待～」
記事掲載：日刊工業新聞，日経産業新聞
オンライン掲載：オプトロニクス，日経オンライン，日刊工業オンライン，PhysOrg, EurekAlert, Medical Development, Engineering.com
2. 2018 年 9 月 7 日 「人工知能が専門家の約 2 万倍の速さでスペクトルを解釈」
記事掲載：日刊工業新聞，鉄鋼新聞
オンライン掲載：オプトロニクス，日経オンライン，大学ジャーナル，Technology network, Science Daily, Lab manager, Phys Org, Scientific Computing, Asian Scientist, Spectroscopy Europe and Asia
3. 2017 年 12 月 15 日 「世界初、液体中の原子 1 つ 1 つの運動を観察！ ～ 高性能電池や溶媒の開発、液体中の現象解明に革新 ～」
記事掲載：日刊工業新聞，化学工業日報，鉄鋼新聞
オンライン掲載：オプトロニクス，日経オンライン，マイナビ，Motor Cars, エキサイトニュース，Fabcross, Science Magazine, Nano werk, Mining, 日刊工業オンライン
4. 2017 年 12 月 12 日 「電子顕微鏡で気体分子の挙動や特性に迫る」
オンライン掲載：オプトロニクス，日経オンライン，PhysOrg, Science Daily, Science News Line, Azo Materials, Nano werk, Technology Breaking News
5. 2017 年 11 月 15 日 「人工知能が「繰り返し成長すること」で計算コストを 1 / 3 6 0 0 に削減 ～ 界面構造を高速に決定し、高性能な物質開発を加速 ～」
記事掲載：日刊工業新聞，化学工業日報
オンライン掲載：マイナビ，fabcross, JPubb, Jnet21, nifty, 日経オンライン