

23 Joint Session N "Informatics" | Poster presentation : 23 Joint Session N "Informatics" (Poster)

[17p-P04-1~10] 23 Joint Session N "Informatics" (Poster)

[17p-P04-1]

Stability predictions of stable anode materials for battery systems by graph neural network potentials

○Kohei Tada^{1,2}, Hiroyuki Ozaki², Tetsu Kiyobayashi² (1.Osaka Univ., 2.AIST)

[17p-P04-2]

Neural Network Potentials for Accurate Activation Energy Calculation of Proton Hopping

○Thang Duy Dang¹, Naoki Matsumura¹, Yuta Yoshimoto¹, Yasufumi Sakai¹, Atsushi Ishikawa², Junichiro Otomo² (1.Fujitsu Limited, 2.Tokyo Institute of Technology)

[17p-P04-3]

Text-based Material Structure Data Creation Application

○Nana Takeda¹, Yusuke Majima¹, Yosuke Oyama¹ (1.Fujitsu)

[17p-P04-4]

Automatic Extraction of Magnet Fabrication Conditions from Main Text

○Hiroyuki Oka¹, Masashi Ishii¹ (1.NIMS)

[17p-P04-5]

Adsorption energy prediction combining self-supervised learning and fine tuning

○Kotaro Shiizaki¹, Atsushi Ishikawa², Arni Hoskuldsson³, Egill Skulason³, Yasufumi Sakai¹ (1.Fujitsu Ltd., 2.Tokyo Tech., 3.Atmonia ehf.)

[17p-P04-6]

Prediction of optical properties and generation of optical spectra in AI-assisted molecular design system

○Ren Sasaki¹, Tomoharu Okada¹, Hiroyuki Matsui¹ (1.ROEL, Yamagata Univ.)

[17p-P04-7]

Exploring catalysts for ammonia synthesis using databases and machine learning models

○(M1)Takuya Horita¹, Ryoji Asahi¹ (1.Nagoya Univ.)

[17p-P04-8]

Application of Persistent Diagram for Search of Ion Conductor Crystal Structure

○Michiko Yoshitake¹, Takahiro Nagata¹ (1.NIMS)

[17p-P04-9]

High-contrast TEM images by combining Wavelet and PCA

○Fumihiko Uesugi¹, Koji Harano¹, Koji Kimoto¹, Masashi Ishii¹ (1.NIMS)

[17p-P04-10]

Extraction and analysis of data change points using segment regression

○Shinjiro Yagyu¹, Takahiro Nagata¹ (1.NIMS)

グラフニューラルネットワークポテンシャルを用いた蓄電池用安定負極材料の安定性予測

Stability predictions of stable anode materials for battery systems by graph neural network potentials

大阪大¹, 産総研² °多田 幸平^{1,2}, 尾崎 弘幸², 清林 哲²

Osaka Univ.¹, AIST², °Kohei Tada^{1,2}, Hiroyuki Ozaki², Tetsu Kiyobayashi²

E-mail: tada.kohei.es@osaka-u.ac.jp

蓄電池材料の開発において、原子レベルでの構造がエネルギーに与える影響を検討することは重要である。それは電極電位や材料安定性に直結する。そのようなエネルギー評価には密度汎関数理論 (DFT) 計算が利用されてきたが、より高速に構造とエネルギーの相関を見積もる手法が必要とされる。近年、高速計算手法として、グラフニューラルネットワーク (GNN) の利用が注目されている。DFT 計算結果をより再現よく推定する GNN ポテンシャルの開発が重要であり、そのためには、「既存の GNN ポテンシャルがどのような系に推定精度を低下させるか」、「精度向上のためにどのような工夫が必要か」といった実用面での検証が必要とされている。

本研究では、汎用 GNN ポテンシャルである M3GNET 及び CHGNET に関して、DFT 計算結果との比較を行った。対象とする系として、Li イオン電池の安定負極材料であるチタン酸リチウム (LTO, 既存物質) と、Na イオン電池の安定負極候補であるチタン酸ナトリウム (NTO, 新物質[1]) を採用した。これらの化合物はスピネル型構造を有しており、16d サイトで $\text{Ti}^{4+}/\text{Li}^{+}$ がランダムに混合する。 $\text{Ti}^{4+}/\text{Li}^{+}$ 配置とエネルギーの相関関係について、先行研究[2]で実行された DFT 計算を参照値とし検討を行った。その結果、CHGNET が高い予測精度を持つことが示され、遷移金属酸化物の安定性予測において磁性を学習させる意義が明確に示された (Fig. 1(a,b))。NTO においては、一般的でない Ti-O 結合距離により予測精度が低下した。このような一般的でない結合距離が与える影響は、分散力補正を加えることで、緩和できることが明らかとなった (Fig. 1(c))。

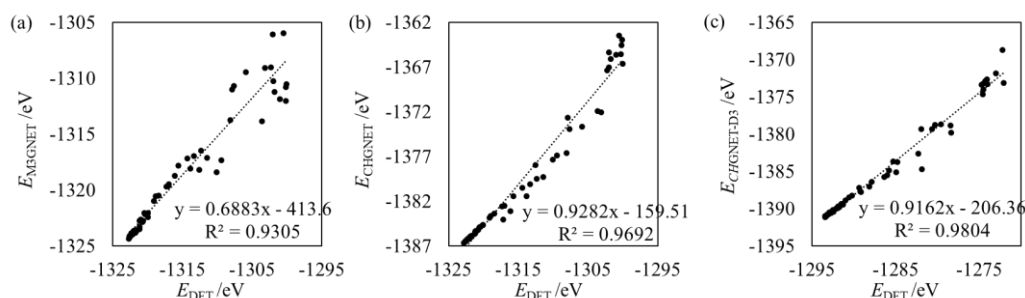


Fig. 1. DFT 計算から求めた LTO の全エネルギーと(a) M3GNET, (b) CHGNET の推定エネルギーの比較。(c) DFT 計算から求めた NTO の全エネルギーと CHGNET-D3 の推定エネルギーの比較。

[1] M. Kitta, T. Kojima, R. Kataoka, K. Yazawa, K. Tada, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 12 (2020) 9322.

[2] K. Tada, H. Ozaki, T. Kiyobayashi, M. Kitta, S. Tanaka, *RSC Adv.*, 10 (2020) 33509.

Neural Network Potentials for Accurate Activation Energy Calculation of Proton Hopping

Thang Dang¹, Naoki Matsumura¹, Yuta Yoshimoto¹, Yasufumi Sakai¹, Atsushi Ishikawa², and Junichiro Otomo²

1. Fujitsu Limited 2. Tokyo Institute of Technology

E-mail: thang.dang@fujitsu.com

Abstract: Perovskites have recently attracted considerable attention as solid proton conductors for a variety of electrochemical applications. One of the key factor that is the calculation of Activation Energy (E_a) of proton hopping for understanding proton displacement. However, there are the vast compositional and configuration spaces by using the first principles calculations (DFT) for capturing the activation energy. Neural Networks Potentials (NNP) in Molecular Dynamics (MD) is emerging as an

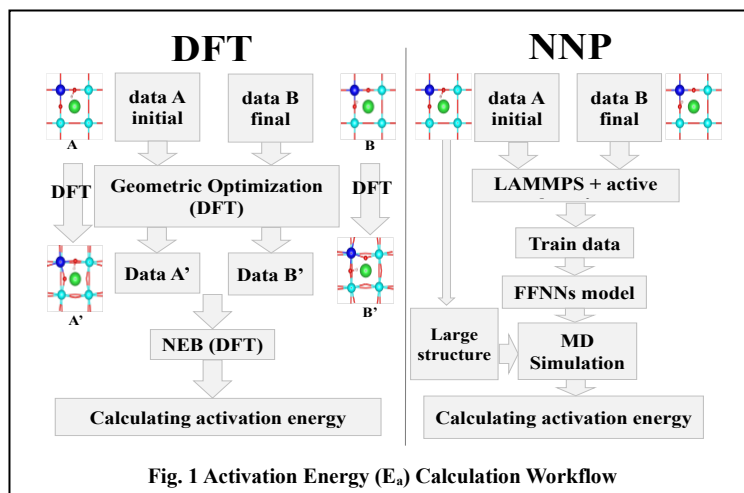


Fig. 1 Activation Energy (E_a) Calculation Workflow

important role for substituting DFT, especially in measuring the activation energy of proton hopping in reliable results. In this work, we demonstrate the way to leverage NNP for calculating efficiently E_a of proton hopping that reach to the same accuracy as DFT calculation.

Implementation: Fig.1 shows the workflow for calculating E_a of proton hopping[1]. Both methods requires two input data A (initial position of proton) and B (final position of proton). In DFT, ①From data A, B →②Optimizing geometry by DFT →③Using the Nudged Elastic Band (NEB)[2] for calculating E_a . In NNP, ①From data A, B →②Using LAMMPS + active learning to generate train data for NNP[3]→③Running MD simulation on large structure generated from data A/B→④From MD results calculate E_a .

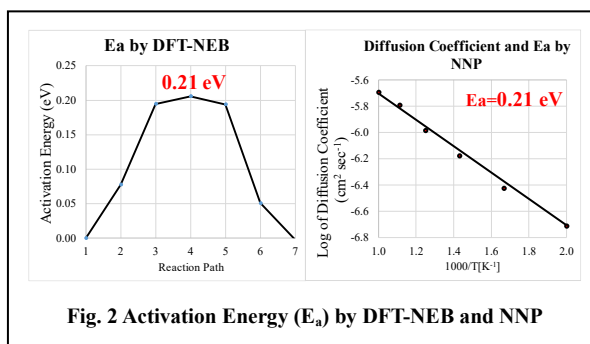


Fig. 2 Activation Energy (E_a) by DFT-NEB and NNP

Result and Conclusion: We evaluated the accuracy of NNP in E_a calculation on YBaZrO₃. The arrhenius plot for NNP in Fig.2. $E_{a(NNP)}$ is calculated as: We obtain the diffusion activation energy E_a from the temperature dependence of the diffusion coefficients (Fig.2) following the Arrhenius equation as $D = A * \exp(-E_a / k_B * T)$, where k_B is the Boltzmann constant. $E_{a(DFT)}$ is calculated as: $E_{YBaZrO_3+H^{(i)}} - E_{YBaZrO_3+H^{(0)}}$, where i is i^{th} structure in reaction path. Fig.2 shows $E_{a(NNP)}$ is the same as a base $E_{a(DFT)}$ value at 0.21 eV. This result indicates NNP is very potential to substitute DFT to cut off the computational cost and still get the high accuracy.

References:

- [1] Draber, Fabian M., et al. "Nanoscale percolation in doped BaZrO₃ for high proton mobility." *Nature materials* 19.3 (2020): 338-346.
- [2] Jónsson., et al. "Nudged elastic band method for finding minimum energy paths of transitions." *Classical and quantum dynamics in condensed phase simulations*. 1998. 385-404.
- [3] Denghui Lu, et al. "86 PFLOPS Deep Potential Molecular Dynamics simulation of 100 million atoms with ab initio accuracy". *Comput. Phys. Comm.*, 259:107624, 2021.

テキスト入力による材料構造データ作成アプリケーション

Text-based Material Structure Data Creation Application

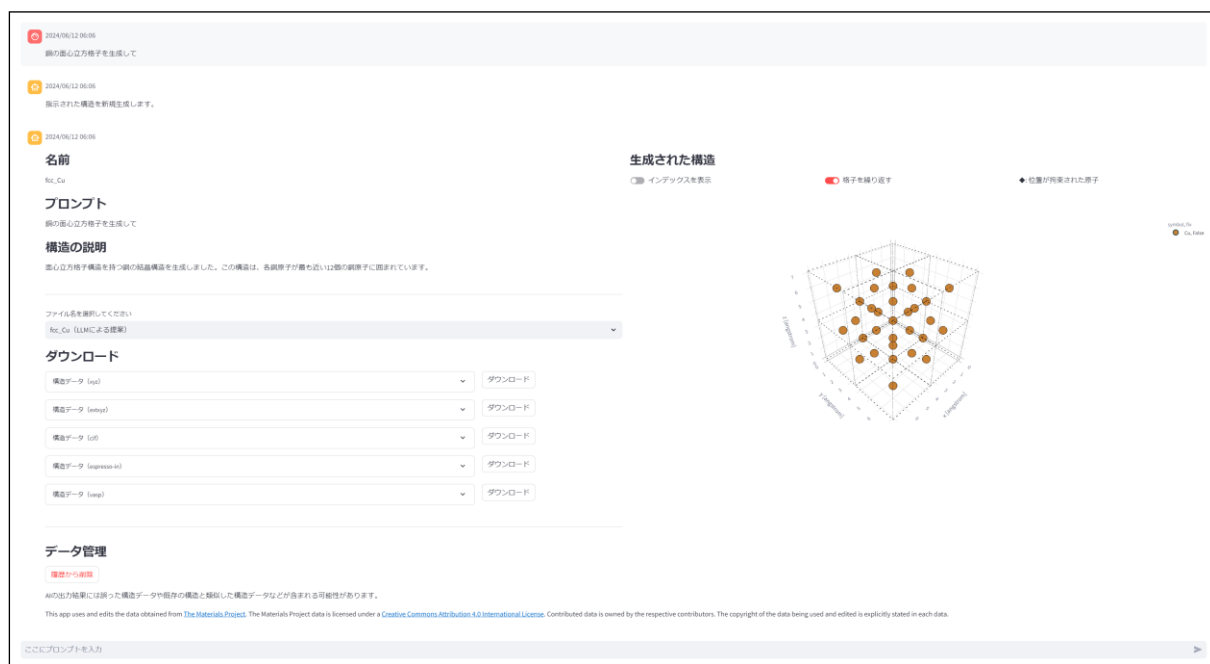
富士通 ○竹田 なな, 真島 祐介, 大山 洋介

Fujitsu, ○Nana Takeda, Yusuke Majima, Yosuke Oyama

E-mail: takeda.nana@jp.fujitsu.com

材料工学や材料科学の分野において、特定の個数・位置・原子種の原子の集合（以下「構造」）の状態をコンピュータ上で計算し、その性質を予測する方法として密度汎関数理論計算や分子動力学計算が知られている。このような計算を行うソフトウェアを使用する際には構造データを作成または入手する必要があるが、構造データに対する手作業や Python プログラム等による編集、或いは専用の API ライブラリを用いた公開データベースへのアクセスが必要となり、時間・作業量的なコストが大きく、またソフトウェアを扱うための専門的な技術が必要となる。

そこで我々は、材料構造についての条件文をテキスト入力することで、目的に適した構造を AI 生成およびデータベースより検索し、その説明、模式図、構造データファイルを提示するアプリケーションを開発した。本アプリケーションでは、ユーザが入力したプロンプトを大規模言語モデルによって解釈し、対話形式で構造データを生成することができる。現在のバージョンではプロンプトを用いた外部構造データベース（Materials Project）との連携や既存構造の編集機能に対応している。本アプリケーションの使用により、計算化学ソフトウェアに入力するための様々なフォーマットの構造データを、テキスト入力による簡易的な操作で短時間に取得できる。ポスター発表では、本アプリケーションの詳細な仕様について紹介する。



図：アプリケーションイメージ。

本文からの磁石製造条件の自動抽出

Automatic Extraction of Magnet Fabrication Conditions from Main Text

NIMS 岡 博之, 石井 真史

NIMS OHiroyuki Oka, Masashi Ishii

E-mail: OKA.Hiroyuki@nims.go.jp

1. 序

磁石は現代社会において必要不可欠な材料であり、特に NdFeB 磁石は高い磁気特性から部品の小型化・省エネに貢献しており、様々な分野での利用が広がっている。一方で、高温での磁気特性維持などの高度な要求が増えており、競合や複雑化する特性の向上にマテリアルズ・インフォマティクス(MI)を適用することが進んでいる。MIでは大量のデータを必要とするため、我々は科学文書から材料データを自動抽出することを目指している。表中の磁気特性データについては、独自のツールを開発し、保持力などを高効率で抽出してきた。一方で説明変数となる試料の化学組成や製造条件は、表ばかりではなく本文から抽出する必要があるが、機械抽出のアルゴリズム作成が難しいために、効率や精度が低くなる。ここで議論する関係抽出の深層学習は、本文からの自動抽出に有効であるが、一般的に学習データ作成のコストが高い。しかし今回、文分類用のキーワードと、以前に作成した単位認識ツール^[1]を使うことで、少しの手作業で製造条件の自動認識ができ、低コストのデータ抽出を可能とした。

2. 自動抽出手順

ここでは磁石製造のうち、微粉砕、焼結、熱処理に着目し、微粉砕では粉末サイズ、焼結および熱処理では温度と時間の製造条件を抽出対象とした。また説明変数として、化学組成を抽出対象とした。文書には米国特許の PDF を用い、抽出ツールは Python 3 で作成した。

以下で特に記載のない作業は全て BERT による深層学習で行った。

米国特許からのテキスト抽出には Python ライブラリの PyMuPDF を使用した。その後、文分割を行い、対象の製造工程の文を図 1 (index-term 列) に示すキーワードによるマッチン

グ (AND、OR を含む) で分類した。分類した文にある数値は単位と共にすべて認識し (図 2 value 列)、その中で抽出対象の単位を含むものを抽出した (図 2 prop=value 列)。単位の判別は以前に作成した単位認識ツール^[1]で行った。このツールでは設定ファイル (CCU file) の事前作成が必要で、例えば粉末サイズの判別なら、そのファイル中に構成単位が長さの単位であることを指定すれば、mm や μm などが認識できる。化学組成の抽出は、原子記号と数値のペアを認識するようにしている。図 2 の出力は、ルールベースの手法で形式変換し、データベースに登録される。

3. まとめ

本文からの製造条件の低コスト自動抽出法を検討した。本手法は、ターゲットとなる情報を抽出するには有効である反面、本文すべてを処理すると、誤抽出が多くなることが分かっており、事前の文分類の導入など改善を進めている。本発表では、手法・結果・抽出精度など詳細を報告する。

謝辞

本研究は、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 (Grant Number : JPMXP1122715503) の助成によって成し得ましたので、ここに感謝の意を表します。

[1] 岡博之他, 機械可読化のためのポリマーデータの単位統一と数値変換, 応物 80 秋, 北大(札幌市), 2019.9.18-21.

property	index-term (AND:[1. OR:/])	CCU file
chem-comp	[Nd, Fe, B]	-
pulverize	pulveri // [particle, size] // [particle, diameter]	grain-size_CCU.txt
sinter	sinter // fire	sinter-temp_CCU.txt // sinter-time_CCU.txt
aging	aging // aged // anneal // [heat, treat]	aging-temp_CCU.txt // aging-time_CCU.txt

図 1 文分類用キーワード (index-term) と単位認識用設定ファイル名 (CCU file).

sentence	sent-label	value	prop=value
The starting coarse powder thus prepared had a composition, by weight, of 23.9% of Nd, 2.9% of Pr, 2.0% of Dy, 1.1% of B, 1.2% of Nb, 1.0% of Al, 3.3% of Co, 0.1% of Ga, 0.14% of O, 0.02% of C, 0.007% of N and balance of Fe.	chem-comp	23.9% of Nd;; 2.9% of Pr;; 2.0% of Dy;; 1.1% of B;; 1.2% of Nb;; 1.0% of Al;; 3.3% of Co;; 0.1% of Ga;; 0.14% of O;; 0.02% of C;; 0.007% of N	chem-comp=23.9% of Nd;; 2.9% of Pr;; 2.0% of Dy;; 1.1% of B;; 1.2% of Nb;; 1.0% of Al;; 3.3% of Co;; 0.1% of Ga;; 0.14% of O;; 0.02% of C;; 0.007% of N
The average particle size of the fine powder was 4.7 μm .	pulverize	4.7 μm	grain-size=4.7 μm
The temperature was maintained at 1070° C. for 3 hours to complete the sintering of the green body,	sinter	1070° C // 3 hours	sinter-temp=1070° C // sinter-time=3 hours

図 2 自動抽出までの出力例 (//は複数の認識があったことを示す).

自己教師あり学習と fine tuning を組み合わせた吸着エネルギー予測

Adsorption energy prediction combining self-supervised learning and fine tuning

富士通¹, 東工大院², アトモニア³ ○椎崎 耕太郎¹, 石川 敦之², Árni Björn Höskuldsson³,Egill Skúlason³, 坂井 靖文¹,Fujitsu Ltd.¹, Tokyo Tech.², Atmonia ehf.³ ○Kotaro Shiizaki¹, Atsushi Ishikawa², Árni Björn Höskuldsson³,Egill Skúlason³, Yasufumi Sakai¹

E-mail: shiizaki.kotaro@fujitsu.com

【緒言】近年、密度汎関数理論(density functional theory, DFT)の吸着エネルギー計算結果を元に、触媒を探索する手法が提案されている。一方 DFT 計算に計算コストが掛かるため、ニューラルネットワーク(neural network, NN)予測で代用する手法も考えられている。NN モデルの訓練に教師あり学習(supervised learning, SL)を用いる場合、予測精度向上には大量の訓練データ(ラベル付きデータ)が必要となるが、その分 DFT 計算を要しコストが増大する。本報告では窒素還元反応を利用した NH_3 合成用触媒を対象に、ラベル付きデータの不要な自己教師あり学習(self-supervised learning, SSL)を用いて NN モデルを大規模データで訓練する。続いて小規模データを用いて SL 訓練する fine tuning(FT)により、少ないデータで高精度の予測結果が得られることを示す。

【実験】NN モデル訓練の概要を図 1 に示す。まず大規模データにて、NN(PaiNN)を SSL 訓練する。その後小規模データにて、各モデルを FT する。大規模データは、公開データの Open Catalyst 2020[1](OC20, 訓練データ数 460328)、2022[2](OC22, 訓練データ数 45860)、および OC20 と OC22 を合わせたもの(OC20+OC22)を用いた。小規模データは、[3]のデータすなわち遷移金属酸化物に H_2 , N_2 , NNH , NH_2 が吸着した構造データのうち、100 から 4000 個のサンプルを抽出、使用した。そして訓練データ数を変え、検証データによる NN の吸着エネルギー(O_2)の予測結果の誤差として MAE(mean absolute error)を評価した。なお検証データは[3]のデータのうち、訓練データに不利用の 1000 サンプルを用いた。

【結果・考察】図 2 に結果を示す。図中の FT は、未学習モデル(scratch)を SSL 訓練せず、小規模データで FT したものである。SSL と FT を組み合わせた場合、SSL 訓練なしに比べ、少ない訓練データで同等の MAE 特性が得られている。例えば OC20 を用いた場合、訓練データを 33%削減できる。また SSL に用いる訓練データ数が多い程、FT 後の MAE が減少した。

【参考文献】

- [1] L. Chanussot, et al., “Open catalyst 2020 (OC20) dataset and community challenges,” ACS Catal., 11, 6059–6072 (2021)
- [2] R. Tran, J. Lan, M. Shuaibi, S. Goyal, B. M. Wood, A. Das, et al., “The open catalyst 2022 (OC22) dataset and challenges for oxide electrocatalysis,” arXiv preprint arXiv:2206.08917, 2022.
- [3] A. B. Hoskuldsson, et al., “High-throughput computational screening of doped transition metal oxides as catalysts for nitrogen reduction,” Cell Reports Physical Science. 4, 101595(2023)

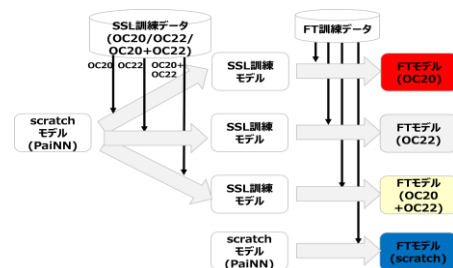


図 1. SSL と FT を組み合わせた NN モデル訓練

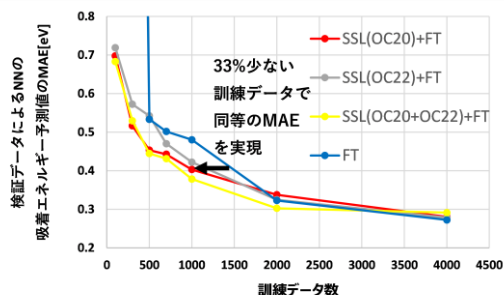


図 2. 予測結果の誤差

AI 支援型分子設計システムにおける 光学特性予測と光学スペクトル生成 Prediction of optical properties and generation of optical spectra in AI-assisted molecular design system

山形大 ROEL¹, [○]佐々木 蓮¹, 岡田 智悠¹, 松井 弘之¹

ROEL, Yamagata Univ.¹, [○]Ren Sasaki¹, Tomoharu Okada¹, Hiroyuki Matsui¹

E-mail: t231385m@st.yamagata-u.ac.jp, h-matsui@yz.yamagata-u.ac.jp

【緒言】 近年、機械学習を含む情報処理技術を活用し材料開発をするマテリアルズ・インフォマティクスにより、材料開発の時間短縮やコスト削減が期待されている。そこで、材料開発において重要な分子設計の効率化に着目した。分子設計は、科学者の膨大な物理化学の知識と長年の経験から設計され、初学者には難しく時間も要する。そこで我々は、機械学習モデルが導入された分子設計アプリケーション”YU canvas”(Fig.1)を開発し、分子構造を描画すると瞬時に物性値を予測できるようにすることで、プロセスの効率化に取り組んでいる。これまでに HOMO・LUMO エネルギー、合成容易性の予測に成功しており、本研究では新たに吸光スペクトルの予測を試みた。

【方法】 まず、ケンブリッジ結晶構造データベースから抽出した分子に対し、構造最適化(PM6)後、時間依存 DFT 計算(B3LYP/6-31+G(d))を行い、5 つの励起状態に対するエネルギーと振動子強度を計算することで 43191 分子のデータを収集した。次に、得たデータから吸光スペクトルを予測する機械学習モデルを 2 つのアプローチから構築した。1 つ目は、励起状態ごとに励起エネルギーと振動子強度を予測し、ガウス関数型のスペクトルを描画する方法である。Mordred を用いて算出した 1427 個の記述子を特徴量として、励起エネルギーと振動子強度を Ridge 回帰で予測した。2 つ目は、吸光スペクトルのデータ列（波長ごとの吸光度）をそのまま学習する方法である。理論計算により集めた吸光スペクトルのデータ列を用いて条件付き敵対的ネットワーク(cGAN)により学習を行った。

【結果】 1 つ目のアプローチでは、5 つの準位を励起エネルギーの昇順に並べて学習を行うと振動子強度の決定係数(R^2)が 0.133 と低かった。これは、振動子強度がどの準位で最大になるかを予測するのが困難であるからだと考えた。そこで、5 つの準位を振動子強度の降順に並べて学習を行ったところ、 R^2 が振動子強度で 0.54、励起エネルギーで 0.74 まで向上させることに成功した。この予測値を用いて描画した 4 種の有機分子のスペクトルを Fig.2 に示す。2 つ目の cGAN を用いたアプローチでは、スペクトルに近い形は生成できるが、正解データとの一致度が低い結果となった(Fig.3)。これは、特徴量が十分な説明力を持っていない、モデルが単純などの課題が考えられるため、特徴量の選定やモデル構築法を見直す必要がある。

【謝辞】 本研究は、JST CREST JPMJCR18J2 の支援を受けて行われた。

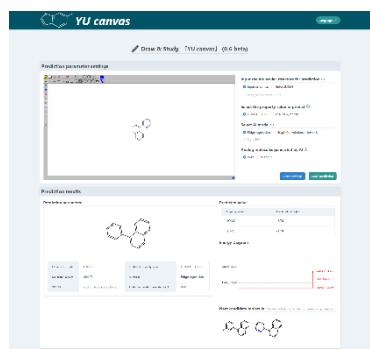


Fig.1 AI-assisted molecular design system

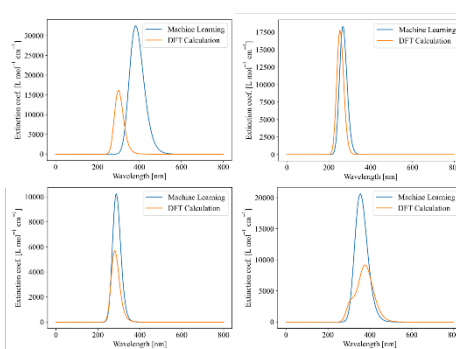


Fig.2 Spectra by Ridge regressions (blue) and DFT calculations (orange)

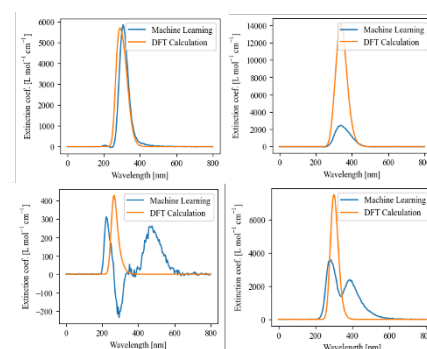


Fig.3 Spectra by cGAN predictions (blue) and DFT calculations (orange)

[1] YU canvas, <https://matsui-lab.yz.yamagata-u.ac.jp/software.html>

データベースと機械学習モデルを活用したアンモニア合成触媒の探索 Exploring catalysts for ammonia synthesis using databases and machine learning models

名大工¹, ○(M1)堀田 拓弥¹, 旭 良司¹

Nagoya Univ.¹, °Takuya Horita¹, Ryoji Asahi¹

E-mail: horita.takuya.il@s.mail.nagoya-u.ac.jp

アンモニアは化学肥料として人類が最も多く生産する化学物質である。しかし従来のアンモニア合成反応は高温高压条件下で行われており、それによる CO₂ 排出は総排出量の数%となっている。従って昨今、マイルドな条件でのアンモニア合成の実現を目指して、触媒材料の開発が盛んに行われている。本研究では、新規のアンモニア合成触媒の発見を目的とし、オープンデータベース、機械学習モデル、第一原理計算を活用した高速スクリーニングによる材料探索を試みた。

機械学習モデルとして Open Catalyst Project (OCP) [1]のオープンデータベースで訓練されたニューラルネットワークモデル (NN) [2]を用いた。OCP が提供する Python モジュールを用いて、低ミラー指数表面 739 個の表面を作成し、吸着物である窒素原子を吸着可能なサイトに設置した。次に、NN モデルを用いて構造最適化を行い、安定な吸着構造と吸着エネルギーを求めた。吸着エネルギーに関しては、第一原理計算結果と比較し、妥当性を確認した。そして、窒素吸着エネルギー $E(N^*)$ とアンモニア合成収率の火山型関係から、高収率領域に位置するものを候補材料として選択した。

OCP に登録されているいくつかの材料について、NN モデルによる $E(N^*)$ と第一原理計算結果 (DFT) を比較した。結果の一部を図 1 に示す。これらの予備検討より、NN モデルと DFT の $E(N^*)$ が比較的良く一致することを確認した。

本研究で生成した $E(N^*)$ のヒストグラムを図 2 に示す。表面のデータは $-3 \leq E(N^*) \leq -2$ に集中している。一方、アンモニア合成の火山型触媒活性 [3]は $-2 \leq E(N^*) \leq -1$ で高くなっている。高活性領域に含まれる材料を候補材料として選択し、詳細を DFT によって調べた。以上より、データベースと機械学習モデルを活用することによる材料探索の有用性を示すことができた。

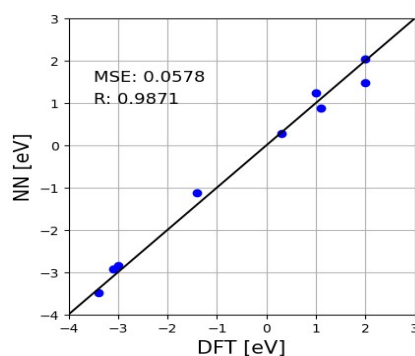


Fig.1 $E(N^*)$ evaluated by NN and DFT

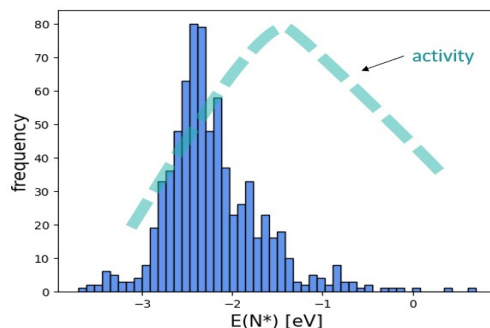


Fig.2 $E(N^*)$ data distribution

[1] <https://opencatalystproject.org/>

[2] Liao and Smidt, Int. Conf. Learning Representations (2023).

[3] Jing Zhou et al., ACS Catalysis, Vol. 13, No. 4, pp. 2190–2201, 2023.

イオン伝導体結晶構造探索へのパーシステントホモロジー適用の検討

Application of Persistent Diagram for Search of Ion Conductor Crystal Structure

物材機構 ○吉武 道子, 長田 貴弘

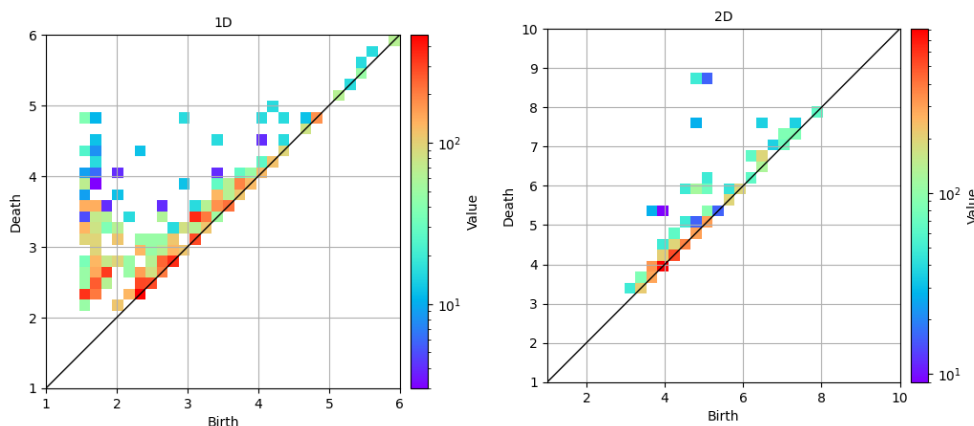
NIMS °Michiko Yoshitake, Takahiro Nagata

E-mail: yoshitake.michiko@nims.go.jp

全固体電池用の電解質として、高いリチウムイオン伝導率を示す材料の探索が行われてきた。多くの研究により、リチウムイオンの拡散の活性化エネルギーが低くなるような拡散経路を形成することが重要であることが知られている。このような拡散経路を持つかどうかを、第一原理計算や MD シミュレーションなどを使わずに簡便に知る方法として、パーシステントホモロジーの適用を検討した。既に高いイオン伝導率を示すことが知られている基本的な結晶構造群、thio-LISICON, argyrodite, garnet, NASICON タイプの構造を持ち、マテリアルプロジェクト (MP) で計算が行われている材料について、HomCloud[1]を用いてパーシステントホモロジー解析を行った。

対称性の高い cubic 構造を持つ材料は garnet タイプの一部の材料のみで、ほとんどの材料はより対称性が低い。図に示したのは、非常に高いリチウムイオン伝導率を持つことが知られている $\text{Li}_{10}\text{Ge}(\text{PS}_6)_2$ (MP#696138) の一次元および二次元パーシステント図 (PD 図) である。非 cubic 構造を持つ高イオン伝導体材料十数個の PD 図と良イオン伝導体とは考えられない材料の PD 図を比較すると、高イオン伝導体材料の PD 図には、一次元 PD 図の birth : ~1.5、death : 3.5-4 あたりに点密度が高い領域があることが共通していた。この共通点を頼りに、NASICON タイプの $\text{LiZr}_2(\text{PO}_4)_3$ において、MP にある 6 種類の多形の結晶構造のうちどの結晶構造が高いイオン伝導率をもつ材料であるかを予想したところ、文献で高イオン伝導率が報告されている多形と一致した。この共通点は thio-LISICON, argyrodite, garnet, NASICON とタイプが異なっても適用できると考えられ、今までに知られていない基本結晶構造をもつ材料の発掘に利用できる可能性がある。

[1] Ippei Obayashi, Takenobu Nakamura, Yasuaki Hiraoka, J. Phys. Soc. Jpn. 91, 091013 (2022): <https://homcloud.dev/index.html>



1D (left) and 2D (right) persistent diagrams of $\text{Li}_{10}\text{Ge}(\text{PS}_6)_2$ (MP#696138)

ウェーブレットと PCA を組み合わせた TEM 画像の ハイコントラスト化

High-contrast TEM images by combining Wavelet and PCA

NIMS¹ ○上杉 文彦¹, 原野幸治¹, 木本浩司¹, 石井真史¹

NIMS¹, Fumihiko Uesugi, Koji Harano, Koji Kimoto, Masashi Ishii

E-mail: UESUGI.Fumihiko@nims.go.jp

Uesugi によって開発された画像処理方法は、同心円状のマザーウェーブレットで展開した要素を適宜選択・重ね合わせることで、特徴抽出・画像強調・ノイズフィルタリングを行うことができる [1]。これをよく知られたフーリエフィルタリングと比較したものが図 1 であり、赤線で囲まれた TEM 画像のメンブレン上のポリマーが鮮明化されることが分かる（左上：元画像、右上：フーリエフィルタリング結果、左下：同心円状ウェーブレット法）。同心円状のマザーウェーブレットによる展開は 3 次元データとなっており、 x, y は入力画像の 2 次元位置情報、 z はマザーウェーブレットの波数になる。ここでの鮮明化は、同心円状のウェーブレットの半径、すなわち波数を最適化することに相当し、フーリエ変換同様、高周波成分を一律に除去する。

この波数の最適化は TEM 画像内のオブジェクトに対してカスタマイズしたものではなく、過剰な微細構造の消失を招く可能性がある。本研究では、3 次元のウェーブレットデータに対して主成分分析 (PCA) を行い、画像内のターゲットオブジェクトの「特徴量」を抽出し、画像を再構築することで微細構造の消失を最小限に抑えることを狙った。また特徴量抽出が可能であれば、別画像におけるターゲットオブジェクトが選択的に鮮明化されると期待される。図右下は PCA にて特徴量を抽出した結果を示す。微細構造を消失することなくポリマーの画像が再構築できた。

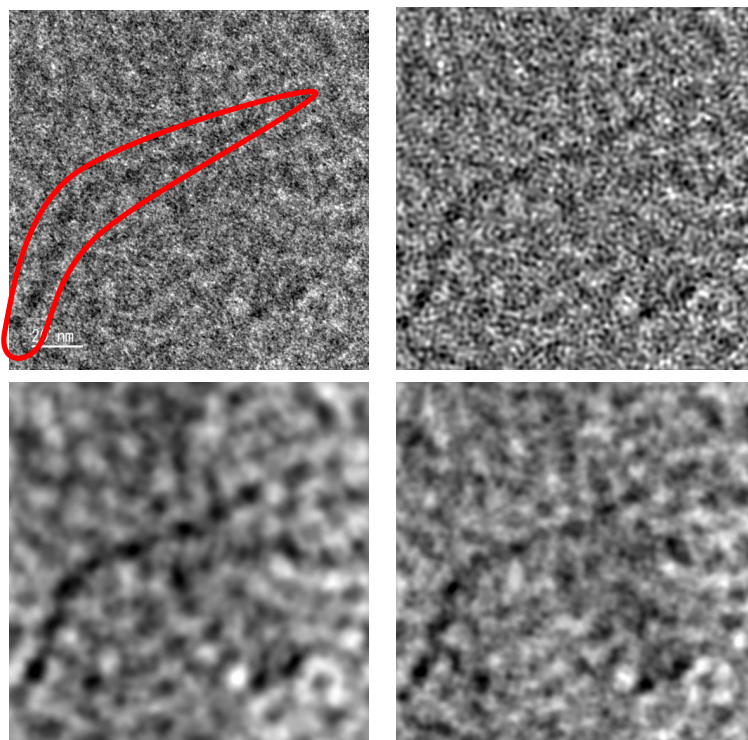


図 1.元画像 (左上)、フーリエフィルタリングを施した画像 (右上)、同心円状ウェーブレットを利用した画像処理結果 (左下)、同心円状ウェーブレットの後 PCA を行った結果 (右下)

[1] Fumihiko Uesugi.
Novel image processing method
inspired by wavelet transform.
Micron. 168 (2023) 103442

セグメント回帰を用いたデータ変化点の抽出と解析

Extraction and analysis of data change points using segment regression

NIMS¹ ○柳生 進二郎¹, 長田 貴弘¹

NIMS¹, °Shinjiro Yagyū¹, Takahiro Nagata¹

E-mail: YAGYU.Shinjiro@nims.go.jp

近年、マテリアルインフォマティクス (MI) や実験の自動化により、大量の測定スペクトルが生成され、それに伴い解析の効率化が望まれている。これまで我々は、セグメント回帰 (今後 PW 法と呼ぶ) を利用して、スペクトルの特徴 (変化点とその前後の傾き) を微分とは異なる方法で自動で捉えることができることを報告してきた[1,2]。この手法は、一連の自動自律化実験におけるスペクトル解析の自動化に利用できるだけでなく、その他のスペクトル解析によって生じた二次加工データの解析においても有用である。例えば、ピーク点の時系列変化をプロットしたグラフにおける変化点の自動抽出などである。自動抽出された中から、これまでの解析結果や実験条件を考慮して変化点が選ばれる。自動自律化における自動解析の構築には、PW 法を利用して変化点やその前後の傾きを自動で抽出し、スペクトル統計指標や事前物理モデルを考慮して判定指標を作成し、その内容を含むプロトコルにより実現される。本報告では、実測定スペクトルである光電子収量分光スペクトル、超電導の VI スペクトル、IV ショットキースペクトル、UV-VIS 吸収スペクトルについて、自動解析の実施例を紹介する。

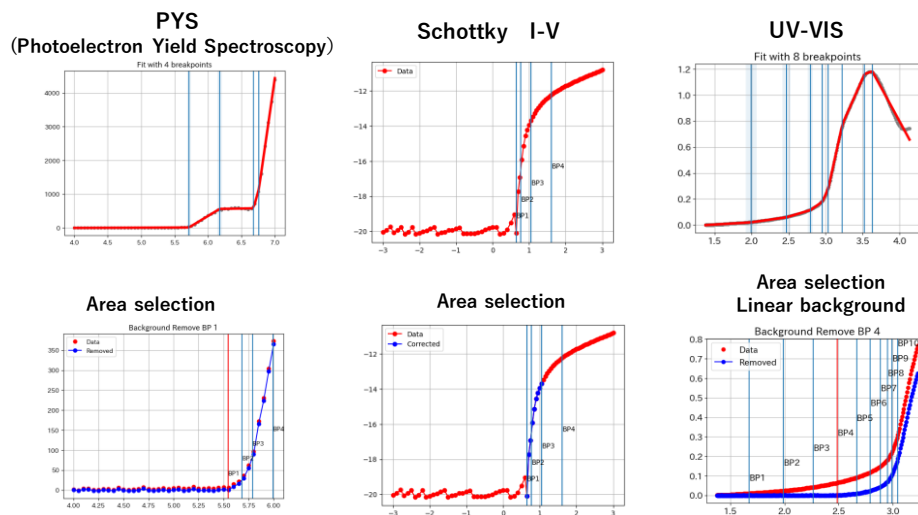


図 PYS、I-V、UV-VIS のスペクトル解析の実施例

[1] 柳生進二郎、吉武道子、長田貴弘、”セグメント回帰を用いたスペクトル前処理法” 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会 20a-P04-7(2023).

[2] S.Yagyū, M.Yoshitake, T.Nagata.. J. Surface Analysis. Accepted.

23 Joint Session N "Informatics" | Oral presentation : 23.1 Joint Session N "Informatics"

[18a-A21-1~11] 23.1 Joint Session N "Informatics"

[18a-A21-1]

Verification of Material Exploration Method Utilizing Quantum-Inspired Technologies

○Kazuhiro Hashiguchi¹, Akito Maruo¹, Shinji Iwane¹, Hideyuki Jippo¹, Yoshinori Suga² (1.Fujitsu Ltd., 2.Toyota Motor Corp.)

[18a-A21-2]

Modeling and Optimization of Materials Property in Binary Latent Space

○Masahiko Ishida¹ (1.NEC Corp.)

[18a-A21-3]

Geometric concept learning of crystal structures

○Keisuke Ozawa¹, Teppei Suzuki¹, Shunsuke Tonogai², Tomoya Itakura² (1.DENSO IT Lab., 2.DENSO CORP.)

[18a-A21-4]

Crystal structure generation based on polyhedra by graph theory

○Tomoyasu Yokoyama¹, Kazuhide Ichikawa¹, Hisashi Naito² (1.Panasonic Holdings Corp., 2.Nagoya Univ.)

[18a-A21-5]

Study of a Graph Neural Network Using Isolated Atom Electronic Structures as Descriptors

○Kiyoh Shibata¹, Teruyasu Mizoguchi¹ (1.The Univ. of Tokyo)

[18a-A21-6]

Global mapping of thermoelectric material properties using crystal graph

○Yusuke Hashimoto¹, Xue Jia², Hao Li², Takaaki Tomai¹ (1.FRIS Tohoku Univ., 2.AIMR Tohoku Univ.)

[18a-A21-7]

Investigation of Training Dataset for Reproducing Ni/Ge interfaces in a Graph Neural Network Potential

○(M1)Machika Naito¹, Yusuke Nishimura¹, Takanobu Watanabe¹ (1.Waseda Univ.)

[18a-A21-8]

Investigation of effective dataset required to construct graph neural network potential for SiO₂/Si interface

○(M1)Kotaro Takematsu¹, Kentaro Hirai¹, Yusuke Nishimura¹, Takanobu Watanabe¹ (1.Waseda Univ.)

[18a-A21-9]

Thermal Boundary Resistance between Interconnect Unitary Metals for Beyond 2nm Logic Nodes and SiO₂ Dielectric: Molecular Dynamics Calculation based on Neural Network Potential

○Shuichiro Hashimoto¹, Yusuke Nishimura², Takanobu Watanabe^{1,2} (1.Wasda Univ. SEES, 2.Waseda Univ. FSE)

[18a-A21-10]

Crystal Structure Prediction Using Universal Neural Network Potential PFP

○Takuya Shibayama¹, Kohei Shinohara¹, Hideaki Imamura¹, Katsuhiko Nishimura¹, So Takamoto¹, Chikashi Shinagawa¹ (1.PFN)

[18a-A21-11]

Support for all stable elements and improved robustness of universal neural network potential PFP

○So Takamoto¹, Chikashi Shinagawa¹ (1.PFN)

量子インスパイアード技術を活用した無機材料探索手法の検証

Verification of Material Exploration Method Utilizing Quantum-Inspired Technologies

富士通株式会社¹, トヨタ自動車株式会社²

○橋口 和弘¹, 丸尾 昭人¹, 岩根 慎司¹, 實宝 秀幸¹, 菅 義訓²

Fujitsu Ltd.¹, Toyota Motor Corporation²

°Kazuhiro Hashiguchi¹, Akito Maruo¹, Shinji Iwane¹, Hideyuki Jippo¹, Yoshinori Suga²

E-mail: k.hashiguchi@jp.fujitsu.com

【背景】昨今、パワー半導体や高エントロピー合金等の無機材料へのマテリアルズインフォマティクスの適用が期待されている。特に多元素を含む組成の最適化のような、膨大な組み合わせに対する革新的な材料探索手法の確立は喫緊の課題である。本研究は、富士通の量子インスパイアード技術であるデジタルアニーラ (DA) を活用した数値最適化技術と Quantum Espresso (QE) による密度汎関数理論 (DFT) 計算を組み合わせることにより、所望のバンドギャップを示すダイヤモンド構造の C, Si, Ge の元素配置最適化を可能としたものである。最適化には、機械学習手法である FM (Factorization Machine) と DA、遺伝的アルゴリズム (GA) を組み合わせた FM-DA&GA を用い、従来手法である GA との優位性を確認した。

【方法】QE による DFT 計算により、バンドギャップを求めた。QE では、ウルトラソフト型の擬ポテンシャルを用い、交換相関汎関数に LDA、波動関数・電荷密度のカットオフエネルギーをそれぞれ、25Ry、225Ry とし、C, Si, Ge の 16 原子、54 原子において scf 計算に用いる k 点数を kpts=(2, 2, 2) とした。また、元素種によって原子半径が大きく異なるため、格子定数は推薦構造の構成元素比率により可変した。目的変数は、ターゲットとするバンドギャップ (E_{target}) と推薦構造のバンドギャップ (E_g) の絶対値誤差とした。なお、 E_{target} は上記条件で計算された SiC のバンドギャップの値 (1.16 eV) とした。C, Si, Ge の 3 元素配置は、1hot エンコーディングでビット表現し、1way1hot 制約下で求解した。

【結果】図 1 に各手法における C, Si, Ge の 54 原子、3 元素置換最適化の比較を示す。初期点として 162 点計算した後、それぞれのアルゴリズムに移行した。図 1 より、FM-DA、FM-DA&GA では、163 回以降 E が急激に減少した。一方で、Random Search、GA では 300 回程度の計算では E_{target} を有する構造の求解には至らなかった。最終的に探索された E_g の最良解は、Random Search、GA、FM-DA、FM-DA&GA でそれぞれ、0.57 eV、0.74 eV、1.163 eV、1.163 eV であり、FM-DA、FM-DA&GA では、 E_{target} と非常に近い値が得られた。当日は、元素の種類数や計算時間にも着目し、多目的最適化に関しても発表を行う。

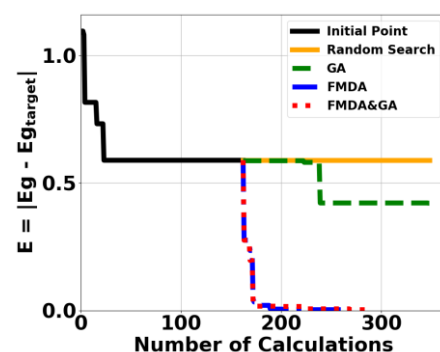


図.1 各手法における最適化計算の比較

二値化潜在空間を使った材料特性のモデル化と最適化 Modeling and Optimization of Materials Property in Binary Latent Space

NEC 事業開発統括部 °石田 真彦

Business Development Dept., NEC Corp, °Masahiko Ishida

E-mail: ishida_ma@nec.com

近年、材料物性予測モデルの作成に VAE, GAN, 拡散モデルなど様々な深層学習モデルが活用されている[1]。これらは材料自体を多次元連続空間上のベクトルの形で表し、その特性との関連を探るもので、特性の変化が材料の構造や作製プロセスなどに応じてなだらかである場合に非常に有効である。そして十分な量のデータがあって予測精度の高いモデルが学習できる状況になると、次にモデルが与える最適値の探索が課題となる。

これまで様々な高速探索の手法が提案されている中で、量子アニーリング(QA)は局所解にとらわれずに大域解を探索できる手法として非常に興味深い。ただ QA が最適化するイジングモデルは二値変数を扱うモデルであり、これが材料全般を表現する有効なモデルになり得るかどうか、について直観的には疑問が残るかもしれない。材料の二値表現は、例えば分子の Fingerprint 記述子として、古くから創薬分野のリード化合物探索の手法として利用されている例[2]や、材料そのものを二値表現できる形で定義し QA を行った例[3]などの報告があるが、汎用性の観点では課題が残っていた。しかしこちらも深層学習モデルを取り入れる流れが起き、VAE を使い二値化潜在空間へ変換し QA を行った例[4]、記述子から分子構造への逆変換に難がある Fingerprint の課題を改善した Junction Tree(JT)型の表現 [5]を取り入れて、さらに二値化ベクトルに変換する bJTVAE を用いることで GPU アニミラによる最適化を実現した例[6]が報告されており、改めて二値化潜在空間の活用に期待が集まっていると感じる。

我々は、次世代半導体配線層形成プロセス向けの有機金属プリカーサ材料の開発に取り組んでおり、候補分子探索に同手法を適用する検討を進めている。深層学習モデルを使って作成した二値化潜在空間上で Factorization Machine を使って分子特性予測モデルを学習し、最終的にはベクトルアニーリングを使った特性最適化を行う。講演では、その手法の概要、特性予測モデル学習のためのデータ生成やモデル精度の検証などについて議論する。

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）の委託業務（JPNP23003）の結果得られたものです。

[1] R. Gómez-Bombarelli et al., ACS Cent. Sci. 4, 268 (2018).

[2] G. Landrum, RDKit: Open-source cheminformatics; <http://www.rdkit.org> (2010).

[3] K. Kitai et al., Phys. Rev. Research 2, 013319 (2020).

[4] B.A. Wilson et al., Appl. Phys. Rev. 8 041418 (2021).

[5] W. Jin et al., ICML 2018 (Proceedings of the 35th International Conference on Machine Learning).

[6] Z. Mao et al., Digital Discovery 2, 1098 (2023).

結晶構造の幾何概念学習

Geometric concept learning of crystal structures

デンソーアイティラボラトリ¹, デンソー² ○小澤圭右¹, 鈴木哲平¹, 外海俊輔², 板倉智也²

DENSO IT Laboratory¹, DENSO CORP.² ○Keisuke Ozawa¹, Teppei Suzuki¹, Shunsuke Tonogai², Tomoya Itakura²

E-mail: ozawa.keisuke@core.d-itlab.co.jp

機械学習における結晶構造の表現について、我々は、空間群や局所的な結合といった幾何的な側面に着目し、それら幾何的な概念の埋め込み方法を検討してきた。機械学習の分野で知られる CLIP（画像とテキストの対照学習）[1]をベースに、結晶構造の幾何概念学習手法を提案した[2]。提案手法では、化学的な実体である個々の結晶構造をグラフで与え、対し結晶構造に付随する幾何をテキストで記述し、グラフとテキストとの間で対照学習を行う。この対照学習済みモデルは、類似構造検索や少数データを用いた結晶構造分類器へのファインチューニングに有効であったが、その特徴空間には未知の部分が多い。提案手法の報告とともに、与えられた幾何概念のテキストに対して特徴空間上で近い結晶構造を調べた結果について議論する。

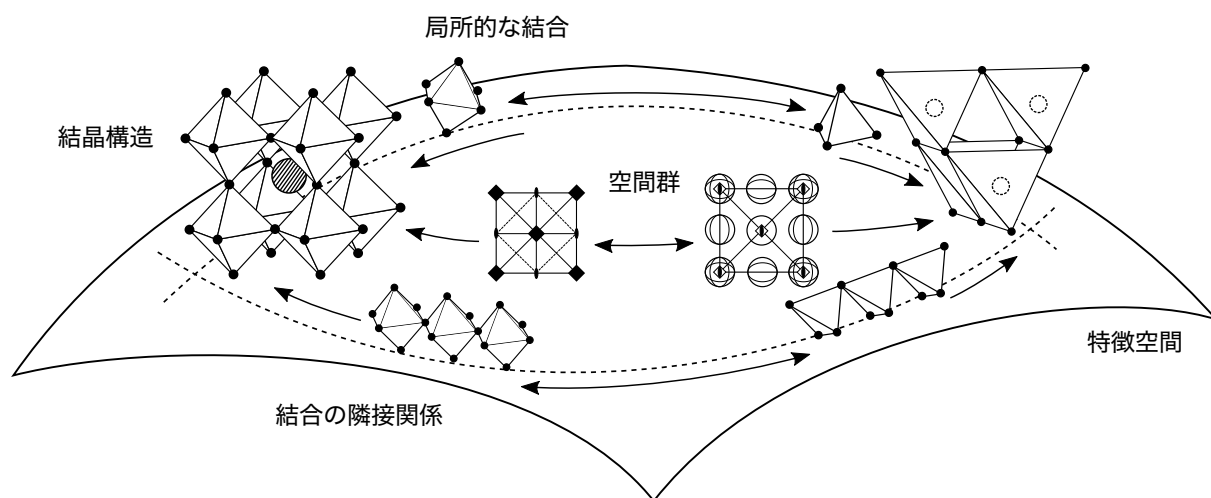


図 グラフエンコーダは結晶グラフを、テキストエンコーダは幾何概念を記述したテキストを受け取り、特徴空間上でペア同士が近づき、ペア以外が互いに遠ざかるよう学習させる。

[1] A. Radford, et al., ICML, 2021. (<https://proceedings.mlr.press/v139/radford21a/radford21a.pdf>)

[2] K. Ozawa, T. Suzuki, S. Tonogai, T. Itakura, ChemRxiv, 2024. (doi:10.26434/chemrxiv-2024-mpl8l)

グラフ理論による多面体に基づいた結晶構造生成手法の構築

Crystal structure generation based on polyhedra by graph theory

パナソニック ホールディングス株式会社¹, 名古屋大学²

○横山 智康¹, 市川 和秀¹, 内藤 久資²

Panasonic Holdings Corporation¹, Nagoya University²

○Tomoyasu Yokoyama¹, Kazuhide Ichikawa¹, Hisashi Naito²

E-mail: yokoyama.tomoyasu@jp.panasonic.com

背景: 近年, 生成モデルを用いた結晶構造予測は, 新材料の発見に向けた研究として非常に活発に行われている. これまでの多くの研究は, 既に合成報告のある結晶構造や, これらの構造に元素置換を施すことで得られる仮想構造を学習データとして用いてきた. しかし, このアプローチは既知のデータ範囲内, すなわち内挿領域での予測には有効であるものの, 未知の結晶構造, 特に外挿領域に位置する結晶構造の予測には限界がある. この外挿領域にある未知の結晶構造を探索するためには, 既存のデータセットに依存しない新たな結晶構造の生成手法の開発が不可欠である. そこで我々は結晶構造の最小要素として多面体に注目し, 離散幾何解析により多面体に基づきグラフから結晶構造を生成する新たな手法を構築した[1].

計算方法: 本手法では, 多面体を考慮するために双対グラフを導入した. 双対グラフとは, 双対構造から得られるグラフである. 双対構造とは, 結晶構造中の空間充填多面体の中心点を頂点とし, 隣接する多面体に対応する頂点を辺で結んだグラフであり, 結晶構造中の空間充填多面体を直接表現することができる. 図 1 に示すように, 空間充填多面体に基づき双対グラフが与えられると, 標準実現の理論[2]を用いて双対グラフから双対構造を生成し, 重心ボロノイ分割により双対構造を結晶構造へ変換することで結晶構造を生成した.

計算結果: 本手法を FCC 構造, HCP 構造, BCC 構造に対して適用した結果, いずれも正しい構造を生成することに成功した. この結果は多面体から未発見の結晶構造を生成するための第一歩となる. このような

結晶構造の生成手法の進化により, 豊富な構造情報を機械学習モデルに教え込むことが可能となるため, マテリアルズ・インフォマティクス of the さらなる進展が期待される.

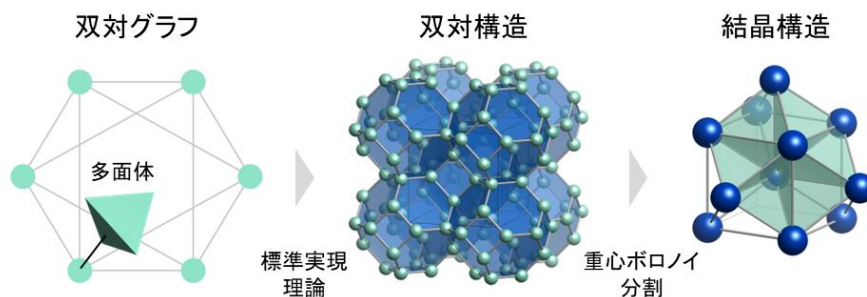


図 1. 我々が提案する結晶構造生成手法の概略図.

[1] T. Yokoyama *et al.*, *Cryst. Growth Des.* **24**, 2168-2178 (2024).

[2] M. Kotani and T. Sunada, *Trans. Am. Math. Soc.* **353**, 1–20 (2001).

孤立原子の電子構造を説明変数とする グラフニューラルネットワークの検討

Study of a Graph Neural Network

Using Isolated Atom Electronic Structures as Descriptors

東大生研¹ °柴田 基洋¹, 溝口 照康¹

IIS, the Univ. of Tokyo¹, °Kiyou Shibata¹, Teruyasu Mizoguchi¹

E-mail: kiyou@iis.u-tokyo.ac.jp

近年、機械学習による物性予測において原子配置から構成したグラフ構造を説明変数とするグラフニューラルネットワーク(GNN)が成功を収めている。更に物質の物性或化学反応性の背景にある電子構造の予測への GNN の活用も進められている。多くの GNN では原子番号と原子座標からなる構造グラフを説明変数としており、その多くは原子番号から作成した埋め込み表現をノード特徴量として用いている。しかし、原子番号を説明変数とする場合、訓練データに少数あるいは含まれていない原子番号の元素を含む構造に対しては当該元素についての埋め込み表現が十分に学習されていないため、物性予測が難しいと考えられる。

一方、物質の電子構造は孤立原子の電子構造が相互作用で変調されて生じる。孤立原子の電子構造を記述子とし、それらの相互作用による変調自体を学習できれば、訓練データに少量あるいは含まれない原子を含む構造に対する電子構造や物性の予測精度を改善できる可能性がある。そのため我々のグループでは、孤立原子の電子状態密度から結合後の物性の予測[1]や電子状態密度の予測[2]を試みてきたが、三体以上の構造自由度を考慮した予測はできないモデルであった。

これらの背景から、孤立原子の電子構造を説明変数とする GNN を三体間の相互作用を考慮した DimeNet++[3]をベースに考案した。考案したモデルでは、密度汎関数理論に基づく第一原理計算で孤立原子について得た軌道毎の部分電子状態密度(PDOS)をガウス平滑化したものをノード毎の説明変数とし、孤立原子 PDOS を特徴量に変換し、特徴量空間内でサイト周囲の構造情報に依存した Attention 機構で更新してから、特徴量空間から戻すことでサイト毎の PDOS を予測する。

元素に関する外挿性を評価するため、まずは単純な二体の例として元素の網羅的な組み合わせからなる構造緩和済みの二原子分子の計算データについて特定の原子を含む分子をテストデータとして分割し、PDOS の予測に関する汎化性能を DimeNet++と比較した。その結果、訓練データについての平均二乗誤差(MSE)は増加し、テストデータについての MSE にはわずかに改善が見られた。当日はより一般の二原子分子や金属ナノクラスターの計算データなどを対象に、原子番号と座標を説明変数とする通常の GNN との PDOS 予測精度の比較などについて報告する予定である。

本研究は JSPS 科研費 JP24K08016 と公益財団法人池谷科学技術振興財団の助成で実施された。

参考文献

- [1] E. Suzuki, K. Shibata, and T. Mizoguchi, Appl. Phys. Express **14**, 085503 (2021).
- [2] 鈴木勲輝, 柴田基洋, 溝口照康, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会 9p-Z09-13, (2020).
- [3] J. Gastegger *et al.*, Machine Learning for Molecules Workshop, NeurIPS (2020).

結晶グラフによる熱電材料特性グローバルマッピング

Global mapping of thermoelectric material properties using crystal graph

東北大学際研¹, 東北大 AIMR² °橋本佑介¹, Xue Jia², Hao Li², 筈居高明¹

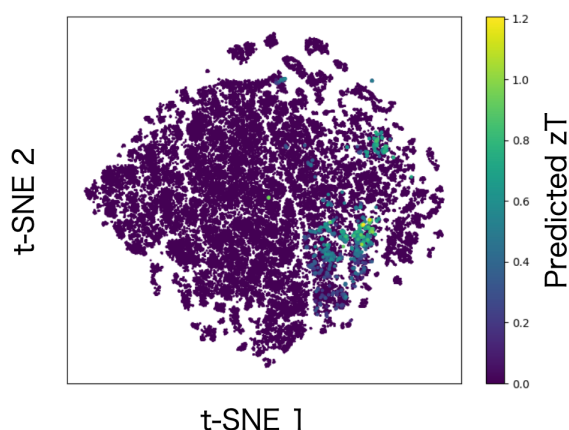
FRIS Tohoku Univ.¹, AIMR Tohoku Univ.², °Yusuke Hashimoto¹, Xue Jia², Hao Li², Takaaki Tomai¹

E-mail: yusuke.hashimoto.b8@tohoku.ac.jp

原子を頂点、原子間相互作用を辺として表現する結晶グラフは、第一原理計算などが与える構造データに適用することで材料特性特微量の効率的な抽出を実現する。深層学習と組み合わせることで材料特性予測精度の飛躍的向上を実現し、大きな注目を集めている[1]。他方、材料の実験データは原子構造に関する情報が欠如しているものが多く、結晶グラフの適用が難しい。多くのデータベースが整備された多数のデータを取得できる計算データと、データ数は少ないがものづくりに欠かせない実験データを上手に組み合わせ、より効果的で効率的な材料開発を実現することが重要だと考えられる。

前回の講演会で我々は、①熱電材料特性に関する実験データ (zT) を機械学習によりモデル化[2]、②材料データベース (The Materials Project: MP) から選択した計算データに結晶グラフを適用して特微量を抽出し、t-SNE での次元削減により材料マップを作成、③実験データから構築したモデルからの熱電材料特性の予測値を材料マップのカラーとすることで、計算と実験を組み合わせた直感的かつ包括的な材料探索手法に関する報告を行った。

今回の講演では、本手法を MP に掲載された全ての無機材料に適用範囲を拡張する。10 万以上の計算データに含まれる構造データに結晶グラフを適用して特微量を抽出し、t-SNE での次元削減により作成した無機材料マップを右図に示す。色は、zT のモデル予測値を反映し、対象以外の材料にはゼロを代入して色付けした。右図から、選択した材料が複数の領域に局在していること、そして zT の予測値がなだらかな変化を示すことが見て取れる。発表では、実験データと計算データの相関分析、マップに見られる領域ごとの材料特性分析、そしてこれらを活用した効果的な材料選択手法について議論する。



結晶グラフにより作成した材料特性マップ。色は熱電材料特性 (zT) のモデル予測値を反映。

[1] Tian Xie and Jeffrey C. Grossman. Physical Review Letters **120**, 145301 (2018)

[2] Xue Jia, Alex Aziz, Yusuke Hashimoto, Hao Li, Sci. China Mater. **67**, 1173 (2024).

グラフニューラルネットワークポテンシャルで Ni/Ge 界面を再現するための 訓練データセットの検討

Investigation of Training Dataset for Reproducing Ni/Ge interfaces in a Graph Neural Network Potential

早大理工 °内藤 真慈, 西村 祐亮, 渡邊 孝信

Waseda Univ., °M. Naito, Y. Nishimura and T. Watanabe

E-mail: naito_machika@suou.waseda.jp

【はじめに】NiGe 化合物は Ge との界面において良好なコンタクトを形成するが、組成比や結晶性の違いでショットキー障壁高さや電気抵抗値が変化することが知られている^[1-3]。半導体プロセスにおいて NiGe 化合物の組成比や結晶性を制御するため、NiGe 化合物の形成プロセスの原子論的理解が求められるが、古典分子動力学(MD)法で再現できる Ge-Ni 混合系用原子間ポテンシャルは提案されていない。前回^[4]、ガウス過程を用いた機械学習ポテンシャル VASP-MLFF^[5]で Ge-Ni 混合系を再現するための訓練データセットに関する検討結果を報告したが、この時用意した訓練データのみでは Ge の融点付近の高温領域まで適用できず、Ni/Ge 界面における化合物形成を再現するに至らなかった。ガウス過程の計算時間は訓練データ量とともに増えるため、訓練データを増やすことは容易でない。そこで今回、学習効率の良さと計算速度の高さで注目されているグラフニューラルネットワークポテンシャル「Allegro」^[6]を用いて、NiGe/Ge 界面の再現を試みた。

【計算方法】訓練データとして用いた構造の例を Fig.1 に示す。Ni および Ge の結晶もしくはアモルファス構造、表面構造を含むスラブ構造、NiGe 化合物の結晶構造を採用し、第一原理計算プログラム VASP^[7]を用いてエネルギーや各原子にかかる力、ベリアル情報を集めた。ユニットセルが大きくなる Ni/Ge 界面構造は訓練データに含めず、どこまで NiGe/Ge 界面を再現できるかを本研究のねらいとしている。次に、LAMMPS^[8]を用いて、訓練後の Allegro を用いて Ni/Ge 界面構造の最適化およびアニーリングプロセスの MD 計算を行った。MD 計算は NVT アンサンブルで行い、設定温度を 300K から 1000K まで、一定の速度 14K/ps で昇温させた。

【計算結果】Ni/Ge 界面の MD シミュレーションの結果を Fig.2 に示す。Fig.2(a)は MD 計算の初期構造の Ni/Ge 界面構造、Fig.2 (b)、2(c)はそれぞれ 300K 一定と 300~1000K で 50ps 間保持して得られた構造である。1000K のアニーリングで、Ni 層と Ge 層が混合する様子が再現された。訓練データに Ge、Ni の結晶バルクや化合物だけでなく、結晶表面構造、アモルファス、アモルファス表面構造を学習させることが NiGe/Ge 界面の再現に有効であることがわかった。特に表面構造の学習は効果的で、この点については前回報告した VASP-MLFF と同様であった。ただし Allegro は約 168 分の 1 の計算時間で Ni/Ge 界面の再現をできたため、実用性は VASP-MLFF を大きく上回ると言える。

【謝辞】本研究は科学研究費 基盤研究 (B) (23K22800)の支援を受けて行われた。

【参考文献】[1] J. Y. Spann, et al. IEEE Electron Device Letters, vol. 26, no. 3, pp. 151-153 (2005). [2] S. Gaudet, et al. J. Vac. Sci. Technol. A 24, 474-485 (2006). [3] H. J. Ahn et al., IEEE Transactions on Electron Devices, vol. 64, no. 6, pp. 2599-2603 (2017). [4] M. Naito, et al. JSAP EXPO spring 2024. [5] R. Jinnouchi, et al. Phys. Rev. Lett. 122, 225701 (2019). [6] A. Musaelian, et al., Nature Communications, 14(1), 579 (2023). [7] G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B 47, 558 (1993); ibid. 49, 14251 (1994). [8] A. P. Thompson, et al., Comp Phys Comm, 271 (2022) 10817.

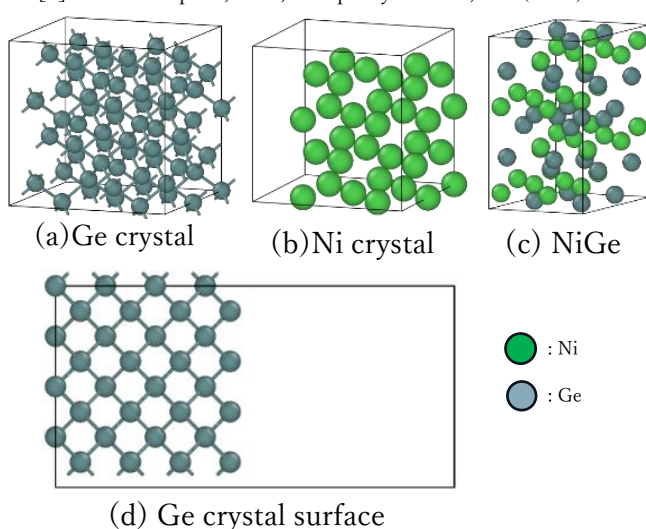


Fig.1 Training structure

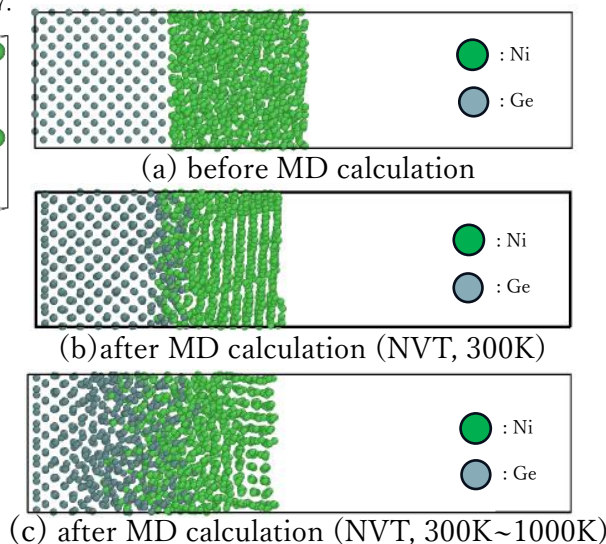


Fig.2 Interface models

SiO₂/Si 界面用グラフニューラルネットワークポテンシャルの構築に 効果的なデータセットの検討

Investigation of effective dataset required to construct graph neural network potential for SiO₂/Si interface

早大理工, °竹松 孝太郎, 平井 健太郎, 西村 祐亮, 渡邊 孝信
Waseda Univ., °K. Takematsu, K. Hirai, Y. Nishimura, T. Watanabe

E-mail: kotakematsu@toki.waseda.jp

【はじめに】機械学習ポテンシャルを空間的に一様な系に適用した例は多いが、異種材料界面に対して適用した例は少ない^[1,2]。その理由として、界面の格子不整合による歪を抑えるにはユニットセルを大きくとる必要があり、界面を含む第一原理計算のデータを数多く用意することが難しい点があげられる。本研究では、SiO₂/Si 界面構造を対象として、界面構造の第一原理計算のデータセットを用意しなくても、界面構造を再現できる機械学習ポテンシャルの構築を目指している。前回、Behler-Parrinello のニューラルネットワークポテンシャル (NNP) で SiO₂/Si 界面構造の再現に必要なデータセットの検討を行った^[3]。今回、グラフニューラルネットワークを用いた機械学習ポテンシャルである Allegro^[4]を用いて、SiO₂/Si 界面構造の再現能力を比較した。

【計算方法】今回は2種類のデータセット (1 と 2) を用意し、SiO₂/Si 界面構造の再現能力を比較した。両データセットにはバルクの Si 結晶と SiO₂ 結晶の構造が含まれており、データセット 2 にはさらに Fig.1 に示す Si サブオキサイド種を含む Si 結晶構造を含んでいる。用意したデータセットの 90%を学習に使い、残り 10%を検証データとした。次に、学習済みの Allegro で Fig.2 に示す SiO₂/Si 界面構造の MD 計算を行った。この SiO₂/Si 界面構造は拡張 Stillinger-Weber ポテンシャル^[5]を用いて用意した。酸化膜部は layer-by-layer 酸化法^[6]により形成した。界面と平行に 2 次元周期境界条件を設け、温度 300K の NVT アンサンブルを用いた。

【計算結果】データセット 1 と 2 で学習させた Allegro を用いて NVTMD 計算を実行した後の構造を Fig.3 に示す。データセット 1 で学習させた場合、Fig.3(a)に示すように SiO₂ 層が Si 層から分離した。これは Si サブオキサイド構造を学習していないため、界面の組成遷移領域を再現できなかったことを示している。一方、Si サブオキサイド構造を含むデータセット 2 で学習させた場合は、Fig.3(b)に示すように SiO₂/Si 界面の構造が維持された。これは前回報告した Behler-Parrinello NNP と同様の結果である。一方、今回 Allegro 用に準備したデータセットには表面構造やアモルファス構造は含めてなかったが、それに関わらず SiO₂/Si 界面構造が維持できた点が前回の Behler-Parrinello NNP との顕著な違いである。性能の比較はより詳しく行う必要があるが、Allegro の方がより効率良く予測能力を獲得できる感触が得られた。

【謝辞】本研究は科研費・基盤研究(B) (23K22800)の補助を受けて実施された。

【参考文献】 [1] S. Wyant, A. Rohskopf, A. Henry, Comp. Mat. Sci., 200, 110836 (2021). [2] S. K. Achar, J. Schneider, D. A. Stewart, ACS Appl. Mater. Interfaces, 14(51), 56963-56974 (2022). [3] K. Hirai, K. Takematsu, T. Watanabe, 25p-61C-2, JSAP (2024). [4] A. Musaelian, S. Batzner, A. Johansson, L. Sun, C. J. Owen, M. Kornbluth, M. Kozinsky, Nat. Commun., 14, 579 (2023). [5] Watanabe, T., D. Yamasaki, K. Tatsumura, I. Ohdomari, Appl. Surf. Sci., 234(1-4), 207-213 (2004). [6] T. Watanabe, K. Tatsumura, I. Ohdomari, Appl. Surf. Sci., 237(1-4), 125-133 (2004).

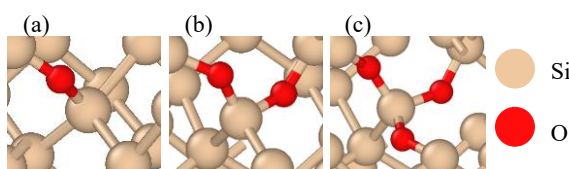


Fig.1: Si suboxide structure (a)Si+ (b)Si2+ (c)Si3+

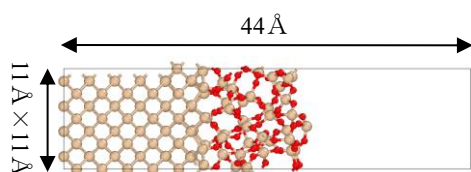


Fig.2: SiO₂/Si interface structure

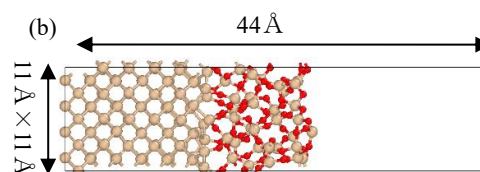
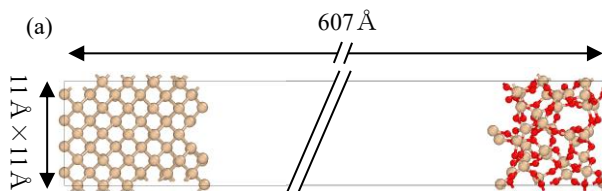


Fig.3: SiO₂/Si interface structure after NVTMD at 300K

(a)Dataset 1(after 100ps) (b)Dataset 2(after 100ps)

Beyond 2nm ロジックノード向け単元系金属配線—SiO₂ 絶縁膜間の界面熱抵抗 : ニューラルネットワークポテンシャルを利用した分子動力学計算

Thermal Boundary Resistance between Interconnect Unitary Metals for Beyond 2nm Logic Nodes and SiO₂ Dielectric: Molecular Dynamics Calculation based on Neural Network Potential

早大 SEES¹, 早大理工² ○橋本 修一郎¹, 西村 祐亮², 渡邊 孝信^{1,2}

Waseda Univ. SEES¹, Waseda Univ. FSE², [○]Shuichiro Hashimoto¹, Yusuke Nishimura², Takanobu Watanabe^{1,2}

E-mail: s.hashimoto7@kurenai.waseda.jp

【はじめに】従来の Cu 配線では層間絶縁膜への金属拡散を防止するバリアメタルが必要であったが、Beyond 2nm ロジックノードにおいては、バリアメタルを必要としない高融点配線金属材料が Interconnect Booster として期待されている^[1]。配線故障要因となるエレクトロマイグレーションを引き起こす Self-Heating Effect は金属配線材料および層間絶縁膜材料に影響される^[2]。Interlayer を含む Ru/SiO₂ 界面構造では材料間の接合状態に応じて界面熱抵抗 (TBR) が変化する^[3]。このため、細線化された多層配線構造では異種材料間の熱輸送が重要となる。本研究は、Ru 等の単元系高融点金属と SiO₂ 層間絶縁膜の界面熱抵抗について分子動力学計算 (MD) を行った。

【計算方法】Fig.1 に示すとおり、本研究では、a-SiO₂/nc-M/a-SiO₂ 積層構造 (nc-M: nanocrystalline-Metal、M=Ru, Mo, W) を作成した。nc-M の多結晶構造は、金属領域中に設定した母点を核とする Voronoi 分割で各結晶粒領域を決定し、異なる結晶方位の金属結晶を各領域に当てはめて作成したものである。結晶粒は 5nm 均一に設定した。本研究では、Behler-Parrinello 型ニューラルネットワークポテンシャル (BPNN) について、nc-M、SiO₂ および M/SiO₂ の第一原理計算結果を利用し学習を行っている^[4]。学習済み BPNN を利用して、高温領域および低温領域に対し一定の熱量 (±1.0eV/ps) を付加する非平衡 MD (NEMD) を行い、M/SiO₂ 界面熱抵抗を計算した。

【計算結果】Fig.2 は、a-SiO₂/nc-M/a-SiO₂ 積層構造における NEMD 計算結果を示す。Fig.2(a) のとおり、セル長の異なる nc-Ru/a-SiO₂ 構造の熱抵抗から切片を界面熱抵抗 (TBR) として評価した。nc-Mo および nc-W においても同様に TBR を評価したところ、Fig.2(b) のとおり、Mo/SiO₂ および W/SiO₂ と比較して高い TBR が Ru/SiO₂ において確認された。Fig.2(b) では、金属 M の酸化物 (MO₂) 中におけるイオン半径 (M⁴⁺) を横軸にしているが、こうすると 3 種類の M/SiO₂ 界面の熱抵抗が直線に並ぶことが判明した。この結果は、M および S のイオン半径差が界面における格子熱伝導に大きく影響していることを示唆している。講演会当日では、フォノン状態密度 (DOS) の解結果も示しながら、異なる高融点金属配線材料 (M) における M/SiO₂ 界面熱抵抗の決定要因を議論するとともに、Thermal Management の観点から VLSI 多層配線構造における材料設計指針を議論する。

【謝辞】本研究は JSPS 科研費 23K22800 の助成を受けて実施された。

【参考文献】[1] IEEE, IRDS, More Moore (2023). [2] K. Croes *et al.*, IEDM2018, 5.3.1 (2018). [3] T. Zhan *et al.*, ACS Appl. Mater. Interfaces, 14, 5, 7392 (2022). [4] S. Hashimoto *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys., 63, 03SP88 (2024).

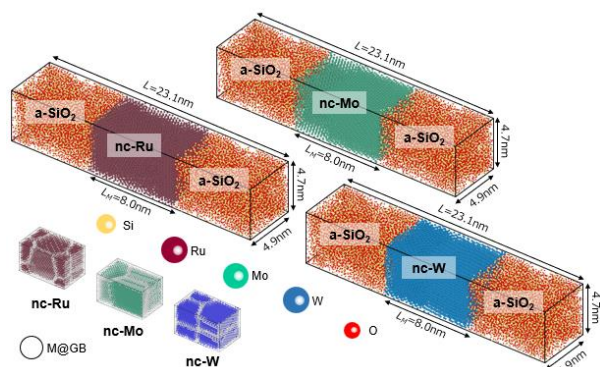


Fig.1 a-SiO₂/nc-M/a-SiO₂ 積層構造 (M=Ru, Mo, W)

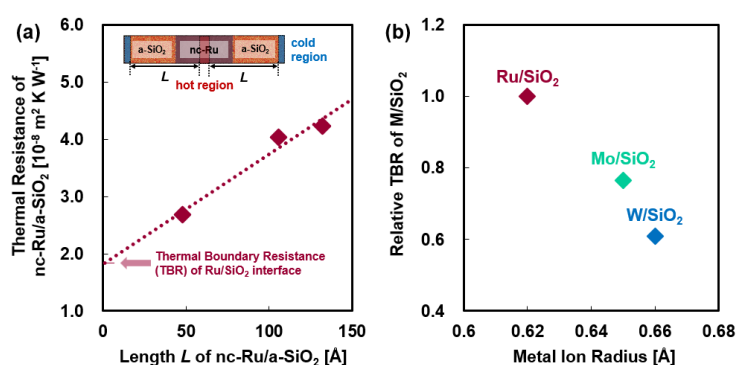


Fig.2 非平衡 MD による M/SiO₂ 界面熱抵抗の計算結果

汎用ニューラルネットワークポテンシャル PFP を用いた結晶構造探索

Crystal Structure Prediction Using Universal Neural Network Potential PFP

株式会社 Preferred Networks¹ ○柴山 拓也¹, 篠原 航平¹, 今村 秀明¹, 西村 亮彦¹, 高本 聡¹, 品川 幾¹Preferred Networks, Inc.¹, [○]Takuya Shibayama¹, Kohei Shinohara¹, Hideaki Imamura¹, Katsuhiko Nishimura¹, So Takamoto¹, Chikashi Shinagawa¹

E-mail: shibayama@preferred.jp

自動実験やハイスループット実験により多数の材料を高速に評価することが可能となったが、材料の探索空間は膨大になるため、計算を活用した大規模探索手法は引き続き重要な役割を占める。第一原理計算に基づく結晶構造予測 (CSP) は、様々な分野において材料探索のために使用されているが、第一原理計算の計算コストによって用途が制限されている。精度が高くかつ汎用的なニューラルネットワークポテンシャル (NNP) を用いることで、計算コストを大幅に削減し、幅広い現実的な材料の探索に対して CSP の使用が可能となる。

我々のグループは汎用原子間ポテンシャル PFP[1] を開発しており、特に今春にリリースした PFP v6.0.0 に至るまでの精度向上により結晶構造間のエネルギーの順序を精度良く推論できるようになった。我々はこの PFP を活用し、アルゴリズムや計算環境にも工夫を施した CSP システムを開発した。この CSP システムは 0 K, 0 Pa における熱力学的凸包上に位置する結晶構造を発見することを目的とし、PFP と遺伝的アルゴリズム (GA) を使用して局所最適化と構造サンプリングを行う。GA アルゴリズムは Atomic Simulation Environment (ASE) ライブラリをもとに、原子数や組成が可変となる突然変異や交叉等の拡張を加えた。また、CSP と多目的最適化問題の類似性を考慮し、Non-Dominated Sorting Genetic Algorithm III (NSGA-III) を結晶構造探索向けに拡張した。分散最適化の管理には、弊社が開発を主導するハイパーパラメータ最適化用のオープンソースソフトウェアフレームワークである Optuna を採用し、独自の拡張を施すことで効率的な分散最適化を行う。以上により、凸包上の結晶構造を効率的かつ網羅的に発見することを可能とした。

この CSP システムを用いて 2-10 種類の元素を含むいくつかの元素系に対して探索を行い、凸包上の構造を探索した。PFP の評価において安定構造であるとみなされた構造に関しては PFP の教師データと同一の条件での PBE 汎関数と PAW 法を用いた DFT 計算を行い、DFT においても安定構造であるか検証を行った。その結果、一部の構造は Materials Project (MP) の既知の構造に比べてさらに安定な新しい安定結晶候補であることが確かめられた。これらは酸化物、合金、リン化合物、窒化物等多様な系に見られた。標準的な一回の探索では 5 基の NVIDIA V100 GPU を用いて数日間で 50000 サンプルの局所最適化と評価が可能であった。また、弊社が開発する MN-Core ディープラーニングアクセラレータ[2]を使用した環境で CSP システムをテストし、NVIDIA V100 GPU と同等以上のパフォーマンス (一基あたり) が得られることを確認した。これらの結果により、PFP および GA を活用した CSP には材料探索と設計を加速する効果があると考えられる。

References:

[1] S. Takamoto, et al. Nat Commun 13, 2991 (2022). doi: 10.1038/s41467-022-30687-9

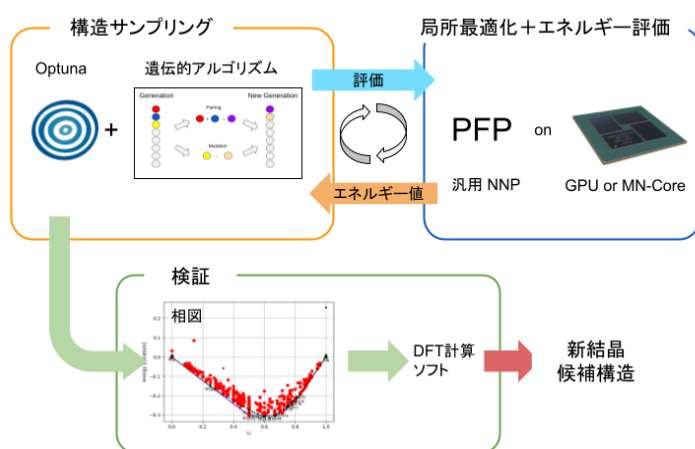
[2] <https://projects.preferred.jp/mn-core/>

Figure1: Schematic diagram of the CSP system

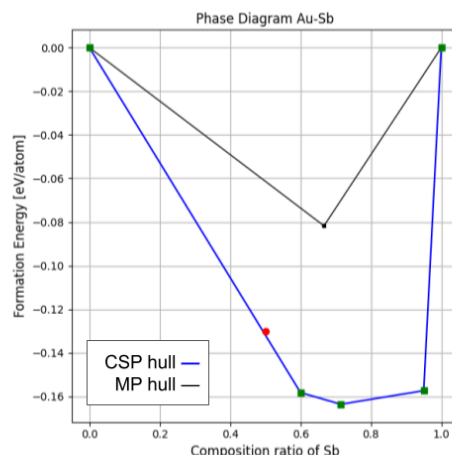


Figure 2: Phase diagram of Au-Sb

汎用ニューラルネットワークポテンシャルPFPの
全安定元素対応とロバスト性の向上

Support for all stable elements and improved robustness of
universal neural network potential PFP

株式会社 Preferred Networks¹ [○]高本 聡¹, 品川 幾¹
Preferred Networks, Inc.¹, [○]So Takamoto¹, Chikashi Shinagawa¹
E-mail: takamoto@preferred.jp

領域を限定せず様々な系に適用可能な汎用原子間ポテンシャルの概念に注目が集まっており、原子系の基盤モデルに位置づけられる技術として多くの研究機関で開発が進められている。著者らが開発しているニューラルネットワークポテンシャルPFPは、解析対象の系ごとにファインチューニングを行うのではなく、単一のモデルで任意の元素の組み合わせを扱うことのできる汎用性を特徴としている。PFPの開発はデータセットの拡充とアーキテクチャの改善の両面から継続して行われており、より広い汎用性と精度の両立を目指している。

汎用性の観点からは、PFPが対応する元素は当初の45元素から始まって55、72元素とデータセットの拡張と共に順次拡大を行ってきており、現在開発中のPFPでは96元素への拡張が進んでいる(Fig. 1, Table 1)。対応元素の中で最大となる96番元素は超ウラン元素のCm(キュリウム)で、地上に安定して存在する元素はすべて網羅されることになる。このように、対応元素の面からは十分に汎用といえる領域に到達した。

また、シミュレーションを行う際には外挿領域で推論が破綻しないロバスト性が重要となる。特に結晶構造予測のような探索的なタスクでは、複数の原子が安定結晶構造よりも近い位置に配置された構造のようなエネルギー的に不安定な構造を扱うことがあり、このような入力に対して推論が破綻しない性質が求められる。圧縮された構造に対しては原子のグラフ表現が過剰に密になるため、グラフニューラルネットワークに基づくアーキテクチャは動作が不安定になりがちである。PFPはアーキテクチャとデータセットの両面でこの問題に取り組み、PFP v6.0.0で大幅に安定に推論できる領域を広げることができた。

なお、PFP は材料探索のための汎用原子シミュレーションソフトウェア MatlantisTM に搭載されている。分子、表面、界面、結晶、またそれらの複合現象を対象としたPFPの活用事例は Web ページにて公開されている [2]。

References:
[1]S. Takamoto, et al. Nat Commun 13, 2991 (2022). doi: 10.1038/s41467-022-30687-9
[2] <https://matlantis.com/cases>

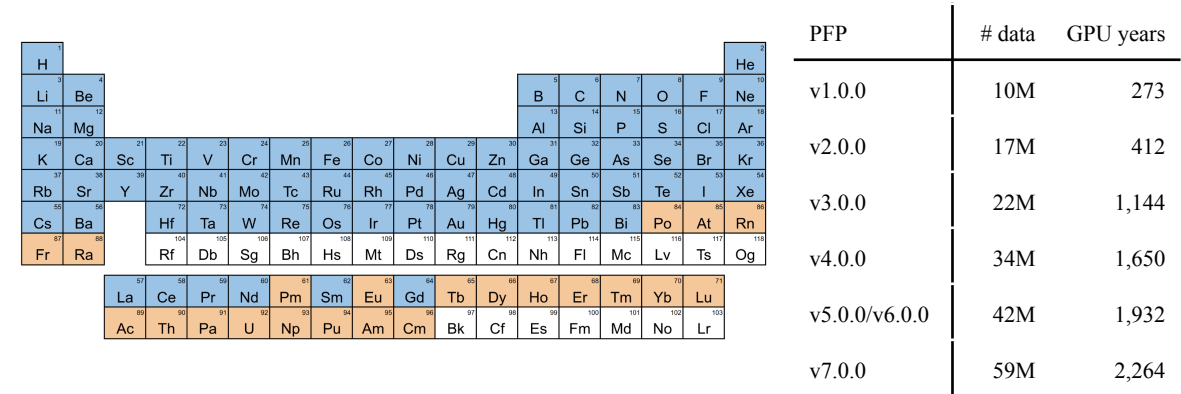


Fig. 1 96 target elements in PFP. Orange cells correspond to newly introduced elements. Table 1 Dataset size comparison.

23 Joint Session N "Informatics" | Oral presentation : 23.1 Joint Session N "Informatics"

[18p-A24-1~13] 23.1 Joint Session N "Informatics"

[18p-A24-1]

Exploration of novel crystal structures of titanium oxynitrides via the local formal charge estimation

○Yuta Aoki¹ (1.Schrodinger, K.K.)

[18p-A24-2]

Elucidating Determining Factors of Material Properties Using Combinatorial Optimization of Features

○Noriaki Ozaki¹, Jun Ikeda¹ (1.Murata Mfg.)

[18p-A24-3]

Extrapolative Property Prediction Using Pretrained Models as Feature Extractors

○Tasuku Sugiura^{1,2}, Kiyoh Shibata^{1,3}, Naoto Kawaguchi³, Teruyasu Mizoguchi^{1,3} (1.IIS, the Univ. of Tokyo, 2.Mitsubishi Materials Corp., 3.Sch. Eng., the Univ. of Tokyo)

[18p-A24-4]

Material Design Method Using Gradient-Based Inverse Problem Solving to Achieve Desired Crystal Structures and Properties

○Akihiro Fujii¹, Augustin Lu¹, Yoshitaka Ushiku², Satoshi Watanabe¹ (1.Tokyo Univ., 2.OMRON SINIC X Corp.)

[18p-A24-5]

[The 56th Young Scientist Presentation Award Speech] Direct inverse analysis of defect distribution and electron transport in field-effect transistors by tandem neural network

○Masatoshi Kimura¹, Keisuke Ide¹, Hideo Hosono¹, Toshio Kamiya¹ (1.Tokyo Tech)

[18p-A24-6]

Estimation of Thermal Diffusivity and Carrier Lifetime of Si from Laser Heterodyne Photothermal Displacement Signals using Machine Learning

○Shota Urano¹, Tomoki Harada¹, Kentaro Kutsukake², Noritaka Usami², Tetsuo Ikari¹, Atsuhiko Fukuyama¹ (1.Univ. of Miyazaki, 2.Nagoya Univ.)

[18p-A24-7]

Inverse-problem Approach to Designing Dispersion Properties of 2D Phononic Crystals using Deep Learning and Particle Swarm Optimization Algorithm

○(M2)Yuji Sato¹, Yuri Fukaya¹, Kenji Tsuruta¹ (1.Graduate School of Environmental, Life, Natural Science and Technology, Okayama Univ.)

[18p-A24-8]

Spectral Imaging Analysis of InGaN QWs Using Nonnegative Matrix Factorization

○Kazunori Iwamitsu¹, Kenta Sakai², Zentaro Akase¹, Atsushi A. Yamaguchi², Shigetaka Tomiya¹ (1.NAIST, 2.Kanazawa Inst. of Tech.)

[18p-A24-9]

Interpretable structural evaluation of nanostructures via persistent homology

○Ryuto Eguchi^{1,2}, Wen Yu^{1,2}, Ayako Hashimoto^{1,2} (1.NIMS, 2.Univ. Tsukuba)

[18p-A24-10]

Development of reliability evaluation for material image prediction using uncertainty

○U OU¹, Hiroyuki Yamamoto¹, Sayaka Tanimoto¹ (1.Hitachi Ltd. Research & Development Group.)

[18p-A24-11]

3D Information Analysis of Surface SEM Images using Deep Learning

○(DC)Takamitsu Ishiyama^{1,2}, Koki Nozawa¹, Takashi Suemasu¹, Kaoru Toko¹ (1.Univ. of Tsukuba, 2.JSPS Research Fellow)

[18p-A24-12]

3D Filament Microstructure Analysis of Superconducting Wires Using Deep Learning

○Kosuke Ando¹, Yoshiki Nishiya¹, Tatsunori Ishibashi¹, Yusuke Shimada², Motomune Kodama³, Hideki Tanaka³, Akiyasu Yamamoto¹ (1.Tokyo Univ. Agri. & Tech., 2.Kyushu Univ., 3.Hitachi, Ltd.)

[18p-A24-13]

Generation of pseudo 3D multicrystalline Si structure using Generative Adversarial Networks

○Takumi Deshimaru¹, Kentaro Kutsukake^{1,2,3}, Hiroaki Kudo⁴, Ryoji Katsube¹, Noritaka Usami^{1,2,5} (1.Grad Eng Nagoya Univ, 2.IMaSS, 3.AIP RIKEN, 4.Grad Info Nagoya Univ, 5.InFuS)

Local formal charge を用いた新規チタン酸窒化物構造の探索

Exploration of novel crystal structures of titanium oxynitrides via the local formal charge estimation

シュレーディンガー(株)¹ °青木 祐太¹

Schrödinger, K.K.¹, °Yuta Aoki¹

E-mail: yuta.aoki@schrodinger.com

可視光応答光触媒による水分解に適したバンド構造を持つ光触媒材料として、新たなチタン酸窒化物構造を得るアプローチを提案する。このアプローチでは、親構造として $\text{Ti}_n\text{O}_{2n-1}$ ($n \geq 2$) という一連の組成を持つ既存のチタン酸化物系をテンプレート構造として、 $2n-1$ 個の O 原子を 2 個の N 原子で置き換えることで $\text{Ti}_n\text{N}_2\text{O}_{2n-3}$ ($n \geq 2$) という一連の組成の構造を作る。これらの組成においては、いかなる n に対しても Ti の酸化数は+4 に保たれ、Ti にとって最も安定な酸化状態が実現されるとともに、親構造の $\text{Ti}_n\text{O}_{2n-1}$ とは異なりバンド絶縁体となること、さらにそのバンドギャップは高濃度に存在する N 原子によって TiO_2 などと比べて大きく縮小され、可視光による水分解に適したバンド構造を持つであろうことが期待される。実際に筆者による過去の先行研究においては、最も N 濃度が高くなる $n=2$ のケースにおいて、 $\text{Ti}_2\text{N}_2\text{O}$ が可視光水分解に適したバンド構造を持つことが第一原理計算によって示されている^[1,2]。

このアプローチで得られる構造を第一原理計算によって詳細に調べるにあたっては、 $\text{Ti}_n\text{O}_{2n-1}$ から $\text{Ti}_n\text{N}_2\text{O}_{2n-3}$ への置換に伴って生成される大量の構造候補から安定な構造を効率的にスクリーニングすることが必要となる。今回筆者は、このスクリーニングのために local formal charge という概念を考案し、それを対象となる Ti 原子周囲の局所環境 (local atomic environment) から算出する方法を提示する。この方法を用いると、第一原理計算による電荷分布計算を行うことなく個々の Ti 原子ごとの formal charge を算出することができるため、 $\text{Ti}_n\text{N}_2\text{O}_{2n-3}$ において実現される Ti の理想的な酸化数+4 (構造全体で平均した酸化状態)と、個々の Ti 原子の局所的な formal charge との乖離を調べることができ、これを用いて安定構造をスクリーニングすることができる。

この local formal charge を用いたスクリーニングによって得られた構造と、そのスクリーニングから外れた構造のエネルギーを第一原理計算によって調べたところ、実際に安定な構造が local formal charge によってスクリーニングできていることが確かめられた。また、それらの構造について第一原理計算によって得られたバンド構造を調べると、 TiO_2 のバンド構造と比べて価電子帯の幅が大きく広がり価電子帯上端が 1 eV 以上上昇し、伝導帯下端の位置をほぼ保ったままバンドギャップを 1 eV 以上縮小できていることが確認できた。このバンド構造は、可視光による光触媒水分解反応に適した構造となっている。

[1] Y. Aoki et al., arXiv:1701.06251 (2017).

[2] Y. Aoki et al., *Phys. Rev. B* **99**, 075203 (2019).

特徴量の組み合わせ最適化による材料特性決定要因の解明

Elucidating Determining Factors of Material Properties

Using Combinatorial Optimization of Features

株式会社村田製作所¹ [○]尾崎 仁亮¹, 池田 潤¹

Murata Manufacturing, Co., Ltd.¹ [○]Noriaki Ozaki¹, Jun Ikeda¹

E-mail: noriaki.ozaki@murata.com

自動車の自動運転や EV 化など、モビリティの電装化に伴い、積層セラミックコンデンサの中でも、動作安定性が高く、摩耗故障を起こしにくい製品への需要が高まっている。本分野でのより良い製品の設計のためには、比誘電率 (ϵ_r) を飛躍的に向上する必要がある、これまでにない新しい材料設計指針が求められている。この実現には、材料特性の決定要因に基づく、根拠ある作業仮説の立案と検証を繰り返すことが有効である。しかし、各種計測や計算による仮説立案は、しばしば時間コストが高い。そこで、筆者らは、材料化学の知見とデータ科学の手法を組み合わせることで、信頼のおける作業仮説を、短時間で得られる手法の開発に取り組んだ。本研究では、特に ϵ_r をターゲットに、材料特性の決定要因を推定し、検証実験を行った。

本研究では、実験により構築したデータセットを用いる。データセット中の一部の材料（既知材料）は、第一原理計算によって、 ϵ_r の決定要因が、特定の局所構造（要因構造）にあることがわかっている。その他の材料（未知材料）については、こうした情報は得られていない。このデータセットに対して、まず、要因構造の定量化を含むような、構造特徴量 $\mathbf{x} = (\mathbf{x}_0 \ \mathbf{x}_1 \ \dots \ \mathbf{x}_n)^T$ を計算し、線形回帰モデル ($\hat{\epsilon}_r = \mathbf{x}\boldsymbol{\beta}$) を作成した。ここで、 \mathbf{x}_i は、材料 i の特徴量ベクトル $\mathbf{x}_i = \{x(X)\}$ 、(X : 材料 i 中の金属サイト) を表す。続いて、材料 i の ϵ_r の予測値 $\hat{\epsilon}_{r,i} (= \mathbf{x}_i\boldsymbol{\beta})$ について、予測誤差 $(\epsilon_{r,i} - \hat{\epsilon}_{r,i})^2$ が最小化するように、 \mathbf{x}_i を整理（組み合わせを最適化）した（図 1a）。この特徴量を用いて、再び回帰モデルを作成した結果、重要な特徴量は、既知材料に関しては、要因構造を表す特徴量であった。これにより、回帰式は物理的に適切に作成できていると判断した。未知材料については、上記の重要な特徴量の表す局所構造が、要因構造であると推定し、検証実験によって、これを確認した。さらに、新しく材料設計を行い、 ϵ_r を評価した結果、設計した材料群の多くは、既存材料の ϵ_r を上回る値を示した（図 1b）。以上の結果は、既知の材料化学的な知見を基に、特徴量の組み合わせ最適化と線形回帰を用いて、未知材料の特性決定要因を推定できる可能性を示している。

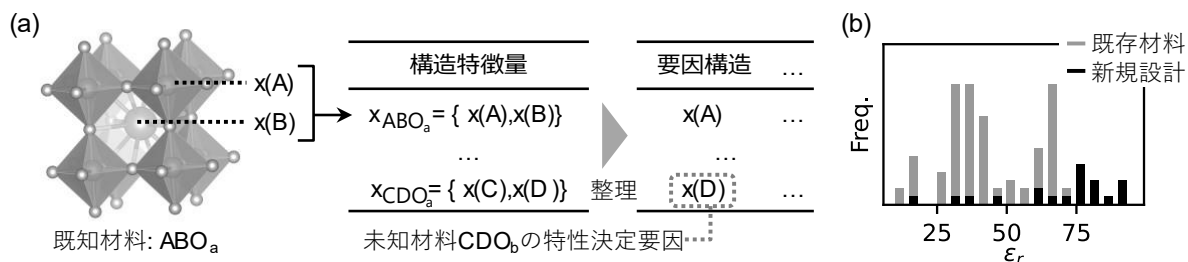


図 1. (a) 本研究で行った特性決定要因推定の概念図. (b) 得られた ϵ_r のヒストグラム.

学習済みモデルを特徴量抽出器として用いた外挿的物性予測の検討

Extrapolative Property Prediction Using Pretrained Models as Feature Extractors

東大生研¹, 三菱マテリアル², 東大院工³

○杉浦 佑^{1,2}, 柴田 基洋^{1,3}, 川口 直登³, 溝口 照康^{1,3}

IIS, the Univ. of Tokyo¹, Mitsubishi Materials Corp.², Sch. Eng., the Univ. of Tokyo³

○Tasuku Sugiura^{1,2}, Kiyoyu Shibata^{2,3}, Naoto Kawaguchi³, Teruyasu Mizoguchi^{2,3}

E-mail: tsugiura@mmc.co.jp

効率的な材料開発を行うには物性予測を通じたスクリーニングが重要である。特に結晶構造からの物性予測において、近年はグラフニューラルネットワーク(GNN)によって結晶構造を表現したモデルが主流になってきており、高い表現力に基づく高い予測性能を示している^[1-3]。それらのGNNを大規模データで訓練することで、様々なタスクに活用できる基盤モデルが開発されている^[4,5]。一方で実際の材料開発においては汎用的なデータベースに含まれない固有の材料系がターゲットとなることが多い。さらに既知材料の物性値の範囲から外れた予測を行う「物性値の外挿」や既知材料にない物質群について物性値を予測する「物質の外挿」などが求められるが、機械学習モデルの開発では内挿的予測の評価が行われることが多く、外挿的予測は十分に検証されていない。また、表現力の高いモデルでは一般に外挿的予測は困難である。

そこで本研究では基盤モデルが持つ広範な物質の情報とシンプルな回帰モデルを組み合わせた、特徴量抽出と物性値予測の2段階からなる先行研究^[6]の手法が、外挿的予測に有効かどうかを検討した。検証には層間化合物に関する構造・物性データセット^[7]を用いた。このデータセットはホスト及び積層様式の異なる層間化合物の構造188種類とインターカレント48種類から系統的に構築されており、様々な外挿的予測の状況を想定した検証が行える。予測対象の物性値には、インターカレーションエネルギーや生成エネルギー、フェルミエネルギーを用いた。特徴量抽出にはOC20データセット^[4]で学習済みのGNNであるCGCNN^[1], SchNet^[2], DimeNet⁺⁺^[3]を用い、特徴量からの物性予測にはリッジ回帰、サポートベクター回帰を用いた。また、比較のためファインチューニングしたGNNのみによる予測も行った。

内挿的予測では全てのモデルが高い性能を示し、さらにリッジ回帰とサポートベクター回帰を用いたモデルでは物性値の外挿も可能であった。物質の外挿では全てのモデルが精度を落としたもののある程度の性能を示し、物性値と物質群両方の外挿は予測対象によっては困難だった。これらの結果から、本手法は用途によって有力な物性予測手法となりうることを確認された。

【参考文献】

- | | |
|---|--|
| [1] T. Xie <i>et al.</i> , Phys. Rev. Lett. 120 , 145301 (2018). | [4] L. Chanussot <i>et al.</i> , ACS Catal. 11 , 6059 (2021). |
| [2] K. T. Schütt <i>et al.</i> , J. Chem. Phys. 148 , 241722 (2018). | [5] I. Batatia <i>et al.</i> , arXiv:2401.00096v1. |
| [3] J. Gastegger <i>et al.</i> , the Machine Learning for Molecules Workshop at NeurIPS (2020). | [6] K. Nishio <i>et al.</i> , Appl. Phys. Express 17 , 037002 (2024). |
| | [7] N. Kawaguchi <i>et al.</i> , ACS Phys. Chem Au 4 , 281 (2024). |

勾配ベースの逆問題解法により所望の構造と物性を有する結晶を得る マテリアルデザイン手法

Material Design Method to Obtain Crystals with Desired Properties and Structures Using Gradient-Based Inverse Problem Solving

東京大学¹, オムロンサイニックス²

○ 藤井亮宏¹, Anh Khoa Augustin Lu¹, 牛久祥孝², 渡邊聡¹

University of Tokyo¹, OMRON SINIC X Corporation²

○ Akihiro Fujii¹, Anh Khoa Augustin Lu¹, Yoshitaka Ushiku², Satoshi Watanabe¹

E-mail: akihiro.fujii@cello.t.u-tokyo.ac.jp

機械学習はマテリアルデザインの強力な手法である。特に近年、コンピュータビジョン分野で成功を収めた条件付き生成モデルを用いて所望の物性をもつ材料を生成する研究が活発に進められている。しかし、条件付き生成モデルでは生成された材料が所望の物性をもつとは限らず、また生成モデル自体は生成材料の物性を評価できない。さらに、生成された材料が電気的中性条件を満たす保証もなく、ある特定の結晶構造を生成するには専用のデータセットで学習する必要がある。

以上の状況に鑑み、本研究では勾配ベースの逆問題解法 [1] を用い、誤差逆伝播を用いて入力情報を直接最適化することにより、所望の物性と構造をもつように結晶を最適化する手法を提案する。具体的には、物性を予測する汎用的な深層学習モデルを用いて予測された物性値と目標物性値の差分を損失として定義し、適当に初期化した結晶構造の結晶ベクトル、原子ごとの座標、原子種を損失の勾配を用いて最適化する (Fig.1 (left))。物性予測モデルの予測値をもとに最適化を行うため、モデルの精度の範囲で候補材料の物性が保証される。なお、原子種はそのままでは微分できないため、微分可能な原子分布に変換して最適化する手法 [2] を採用する。

本手法の利点は、最適化の際にさまざまな条件を適応的に課せることである。例えばペロブスカイト型結晶構造を最適化したい場合は、A,B,X の各サイトの電荷を 1:2:-1、結晶ベクトルの成す角を 90° に保つ必要がある。この場合、まずランダムなペロブスカイト構造を初期値とし、結晶軸長さと原子座標、原子分布を最適化対象にして結晶軸の成す角度は 90° で固定する。原子分布は各サイトそれぞれで、許される電荷をもつ原子のみで構成される原子分布 (例:A サイトは 1 価の陽イオンになる原子のみで構成) を適用する。これにより、従来の条件付き生成モデルと異なり、本手法は電気的中性条件を容易に満足でき、専用データセットで再学習せずともペロブスカイト構造を維持したりしたまま、所望の物性をもつように結晶構造を最適化できる。

例として、バンドギャップを予測する学習済み深層学習モデルを用いて所望のバンドギャップをもつようにペロブスカイト構造の最適化を行なった (Fig.1 (right))。学習済みモデルとしてさまざまな結晶を含む Materials Project で学習した Crystalformer[3] を用い、バンドギャップが目標値 1.00 ± 0.02 eV または 3.00 ± 0.02 eV となるように結晶を最適化した。その結果、バンドギャップが指定範囲内に収まる材料候補 BaCeOS₂ (予測値 1.02 eV) および CsYbF₂Cl (予測値 3.02 eV) を提案できた (括弧内は Crystalformer によるバンドギャップの予測値)。

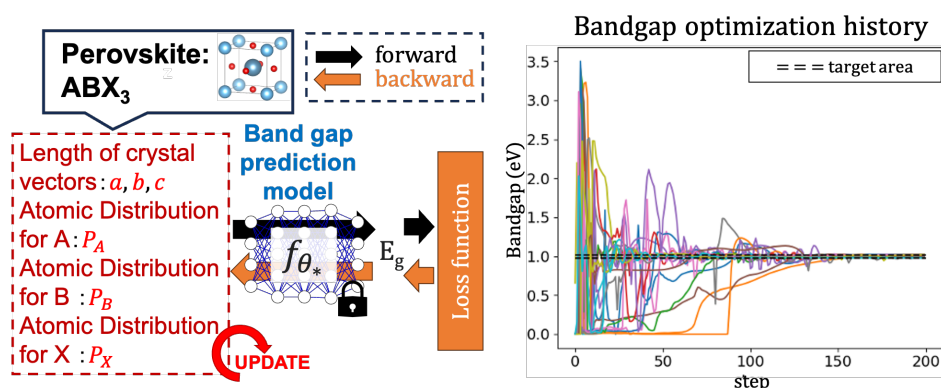


Fig. 1: (left) Overview of our method. (right) History of perovskite optimization to achieve a band gap of 1.00 ± 0.02 eV.

[1] Fujii, A., et al. arXiv preprint arXiv:2304.13860 (2023). [2] Fujii, A., et al. arXiv preprint arXiv:2403.13627 (2024). [3] Tanai, T, et al. arXiv preprint arXiv:2403.11686 (2024).

タンデムNNによる薄膜トランジスタの欠陥分布・電子伝導の逆問題解析 Direct inverse analysis of defect distribution and electron transport in field-effect transistors by tandem neural network

東工大¹, [○]木村 公俊¹, 井手 啓介¹, 細野秀雄¹, 神谷 利夫¹

Tokyo Tech¹, [○]Masatoshi Kimura¹, Keisuke Ide¹, Hideo Hosono¹, Toshio Kamiya¹

E-mail: m-kimura001@outlook.jp

【はじめに】材料・デバイス開発では、測定結果から物性などを知る逆問題を解く必要が出てくる。例えば半導体デバイスの改良・開発では、「デバイスの電気特性を測定し、構成する半導体物性を抽出してフィードバックする」というサイクルを回すため、逆問題をいかに効率的に解けるかが重要である。しかし逆問題を解く汎用的手法は未確立であり、試行錯誤的な計算を必要とする非線形最適化によるパラメータ解析が行われている。また、半導体デバイス特性を再現するパラメータは多値性を持つことが多い。私たちは、半導体薄膜トランジスタ (TFT) の解析を題材とし、機械学習によりこの多値逆問題を直接解く手法の開発を行った。今回は、多値性が及ぼす影響を詳細に検討し、また逆問題で得られた解について、TFT 特性の再現性を検討した。

【方法】様々な特性をもつ TFT をデバイスシミュレーションで計算し、1000 個の訓練データを収集した後、多層ニューラルネットワーク (NN) により TFT 特性の予測 (順解析) と半導体物性の予測 (逆解析) を行った。単純な逆解析は多値問題になるため、逆解析モデルの後方に順解析モデルを接続し、その誤差を最小化する逆解析モデル (Tandem NN) を構築した (Fig 1 a)。また、このモデルを用いて、TFT の電流電圧 (IV) 特性の実測値から半導体物性を逆解析したのち、デバイスシミュレーションによって TFT 特性の再現性を調べた (Fig 2 a)。

【結果】記述子と目的変数を入れ替えた単純な逆解析では、半導体物性の予測精度は低いが、Tandem NN を用いた逆解析により、 $R^2 \sim 0.99$ の高い精度で TFT 特性を再現可能な半導体物性を予測できた (Fig 1 b)。また、TFT 特性に与える影響の強さが多値性として反映されており、どの半導体物性が TFT 特性を決める上で重要であるか可視化できるとともに、影響の大きな半導体物性の値を高精度に逆解析できることがわかった (Fig 1 c)。本モデルを TFT の実験データの解析に応用すると、理想的なデバイスだけでなく、性能の悪いデバイスに対しても、高精度・高速に半導体物性を逆解析できることが実証された (Fig 2 b, c)。本手法は、半導体デバイスに限らず、一般的な多値逆問題解析にも応用できると期待される。

【謝辞】本研究は文部科学省 データ送出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト #JPMXP112268340 の支援により実施した。

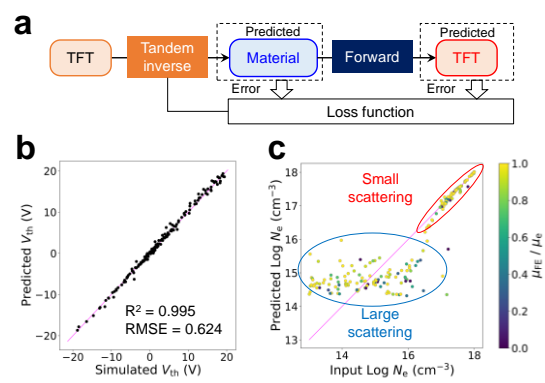


Figure 1: Inverse problem analysis with Tandem NN. (a) Tandem NN architecture. (b) Prediction accuracies of TFT characteristics (threshold voltage, V_{th}). (c) Correlations between input and predicted semiconductor properties (electron density, N_e). Symbol colors indicate the field effect mobility.

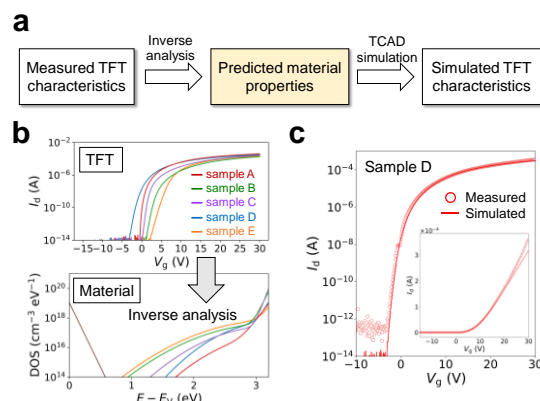


Figure 2: (a) Workflow of direct analysis of semiconductor properties, (b) measured TFT characteristics and predicted semiconductor properties (defect distributions), and (c) comparison between measured and simulated IV characteristics of TFTs.

機械学習を用いた光ヘテロダイン光熱変位信号からの

Si の熱拡散率とキャリア寿命の推定

Estimation of Thermal Diffusivity and Carrier Lifetime of Si from
Laser Heterodyne Photothermal Displacement Signals using Machine Learning宮崎大工¹, 名大院工², °浦野 翔大¹, 原田 知季¹, 沓掛 健太郎²,宇佐美 徳隆², 碓 哲雄¹, 福山 敦彦¹Univ. of Miyazaki¹, Nagoya Univ.², °Shota Urano¹, Tomoki Harada¹, Kentaro Kutsukake²,Noritaka Usami², Tetsuo Ikari¹, Atsuhiko Fukuyama¹

E-mail: hk20003@student.miyazaki-u.ac.jp

【はじめに】半導体の微細化や集積化に伴う発熱量の増加が問題であり、発熱の抑制には物性値の適切な評価が重要である。そこで、励起光照射により生じた光励起キャリアの非発光再結合時に発生する熱による試料表面の熱膨張変位を測定してキャリアや熱物性を評価する光ヘテロダイン光熱変位 (LH-PD) 法を開発した^[1]。得られた変位量の時間変化を数値計算によってフィッティングすることで物性値を算出できるが、関係する物性値が多く算出には数十時間を要する。そこで本研究では、機械学習を用いて短時間に物性値を推定する。

【機械学習モデル】熱拡散率、キャリア寿命、キャリア移動度をランダムに変化させた数値計算を実施し、変位量の時間変化を算出した。機械学習では、数値計算結果である変位量の時間変化から熱拡散率とキャリア寿命を推定するモデルを構築した。キャリア移動度は入力パラメータとし、モデルは全結合ニューラルネットワークを採用した。詳細は以下の通りである。

- (i) 入力層に 500 個のニューロンを用意し、変位量の時間変化を入力した。移動度は中間層に入力した。
- (ii) 活性化関数は正規化線形関数を採用した。
- (iii) 出力層は 2 個のニューロンを用意し、推定する熱拡散率とキャリア寿命を出力させた。

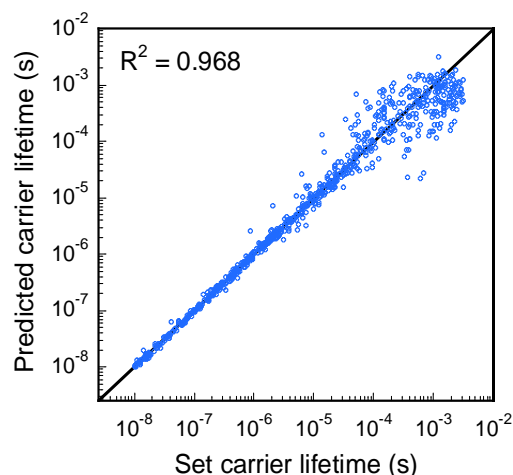


Fig.1 Prediction results of carrier lifetime

【結果と考察】 Fig.1 にキャリア寿命の予測結果を示す。図中の対角線は設定値と予測値が等しく、データが対角線に近いほど予測が正確であることを表す。キャリア寿命の決定係数 (R^2) は 0.968 となり、Fig.1 に示すように 10^{-5} s 以上の範囲で予測誤差が増加した。これは、数値計算においてキャリア寿命が長くなると変位量の時間変化に差が現れないためである。一方で熱拡散率の R^2 は 0.999 と高精度に推定できた。なお、機械学習を用いた物性値推定に要する時間は約 0.05 秒であり従来の方法で要していた時間と比較して大幅に短縮が出来た。

また、LH-PD 法はマッピング測定が可能のため当日は本モデルを適用して物性値マッピングに変換させた結果についても報告する。

[1] T. Harada *et al.*, J. Appl. Phys. **131**, 195701 (2022).

深層学習モデルと粒子群最適化アルゴリズムを組み合わせた 2次元フォノン結晶の分散特性に関する逆問題解析

Inverse-problem Approach to Designing Dispersion Properties of 2D Phononic Crystals using Deep Learning and Particle Swarm Optimization Algorithm

岡山大学院環境生命自然¹ ○(M2) 佐藤 雄治¹, 深谷 優梨¹, 鶴田 健二¹

Graduate School of Environmental, Life, Natural Science and Technology, Okayama Univ.¹,

°Yuji Sato¹, Yuri Fukaya¹, Kenji Tsuruta¹

E-mail: tsuruta@okayama-u.ac.jp

フォノン結晶(PnC)^[1]の設計において、トポロジー最適化^[2]やモンテカルロシミュレーション^[3], その他最適化手法^[4]によってバンドギャップ(BG)の大きさを最大化する研究が多く行われてきた。一方, 所望の周波数帯・大きさの BG を持つ PnC の構成材料・構造等を探索する“逆問題解析”を試みるのは困難であり, 近年の人工知能技術の発展に伴ったアプローチが注目されている。しかし, 単なる機械学習では, 特定の PnC から BG の周波数帯・大きさを予測する順問題しか解決できず, その反対である逆問題はブラックボックス最適化問題を解く必要があり, 容易ではない。(これらの関係性を Fig1(a)に示す。)本研究では, 逆問題を解くための手法として粒子群最適化アルゴリズムを採用し, 所望の BG の周波数帯・大きさをそれぞれ設定, 有用な PnC の材料・構造パラメータを逆問題的に探索する方法論を構築した。

本研究では, 正方格子状の 2 次元 PnC を考える。まず, 材料・構造パラメータを変化させて, それに対応する BG データを収集した。続いて, 深層学習モデルを構築し, 学習を行った結果, 順方向 BG 予測において決定係数 0.999 と優れた学習結果を得ることを確認した。次に, この学習済みのモデルを適用して, 所望の BG を設定し, 粒子群最適化アルゴリズム(Fig1(b))で逆問題解析を行った。そのパラメータ探索過程を Fig1(c)に示す。探索して得た材料・構造パラメータをもとにバンド計算を行った結果, 誤差率 0.1%前後で逆問題が解けていることを確認した。講演では, 逆問題解析手法の詳細や, 形状の自由度を増やした際の機械学習手法についても報告する。

参考文献: [1] M.S.Kushwaha *et al.*, *Phys.Rev.Lett.* **71**, 2022(1993). [2] X.Zhang *et al.*, *Comput. Mater. Sci.* **160**, 159(2019). [3] R.Pourabolghasem *et al.*, *J.Appl.Phys.* **116**, 013514(2014). [4] B.Huang *et al.*, J.Cui, *Appl.Phys.Express* **10**, 037301(2017).

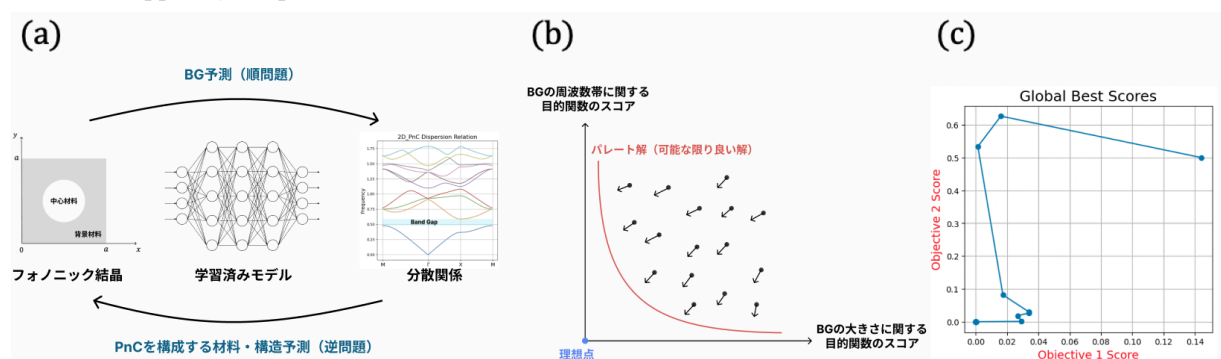


Fig1(a) Relationship between forward and inverse problems in PnC and BG applying machine learning models. **(b)** Diagram of particle swarm optimization algorithm. **(c)** Parameter exploration with particle swarm optimization algorithm.

非負値行列因子分解を活用した InGaN 量子井戸構造の マルチモーダル発光スペクトルイメージング解析

Spectral Imaging Analysis of InGaN QWs Using Nonnegative Matrix Factorization

奈良先端大¹, 金沢工大²

○岩満 一功¹, 坂井 健太², 赤瀬 善太郎¹, 山口 敦史², 富谷 茂隆¹

NAIST¹, Kanazawa Inst. of Tech.²,

○Kazunori Iwamitsu¹, Kenta Sakai², Zentaro Akase¹, Atsushi A. Yamaguchi², Shigetaka Tomiya¹

E-mail: k.iwamitsu@naist.ac.jp

化合物半導体デバイスにおける所望の電子物性・光物性を実現するために、混晶組成の制御を通じて行われるバンドギャップエンジニアリングは極めて重要な技術である。III 族窒化物半導体は、原理的に深紫外から赤まで広範囲な波長域の発光デバイスを実現できる可能性がある。しかしながら、発光デバイスとして高い発光効率を得られているのは、近紫外から緑色程度の波長域であり、それより短いもしくは長い波長域では急激にその発光効率が低下する[1]。これは、点欠陥や転位などの結晶欠陥の影響に加え、発光層として用いられる InGaN 量子井戸においては、In 組成の増加に伴い非混和性の影響が大きくなるため、ポテンシャルや歪分布の不均一程度が大きくなる[2]などの様々な要因が考えられるなど、これまで多くの研究がなされているものの、いまだ不明点が多い。このために、複数の評価・計測手法を用いて多角的視点で解明する必要がある。

そこで本研究では、InGaN 量子井戸層における In 組成ゆらぎとキャリアの振る舞いを解明するために、フォトルミネッセンス(PL)およびカソードルミネッセンス(CL)といった異なる計測手法の発光スペクトルイメージング測定を実施・組み合わせ、それらのデータを統計的に解析した結果を報告する。まず初めに、図中左に示される様な、InGaN 単一量子井戸の PL スペクトルイメージングデータ X を空間構造 x, y における統計解析を行う事で、PL 発光強度の空間分布に斑がある事を確認した。その空間軸 x, y とエネルギー軸 E で構成される高次元なイメージングデータから物性特徴量の空間分布を得るために、解析対象 X を二軸に低次元化する。更にスペクトルは空間軸 x, y で指定される各ピクセルに対し

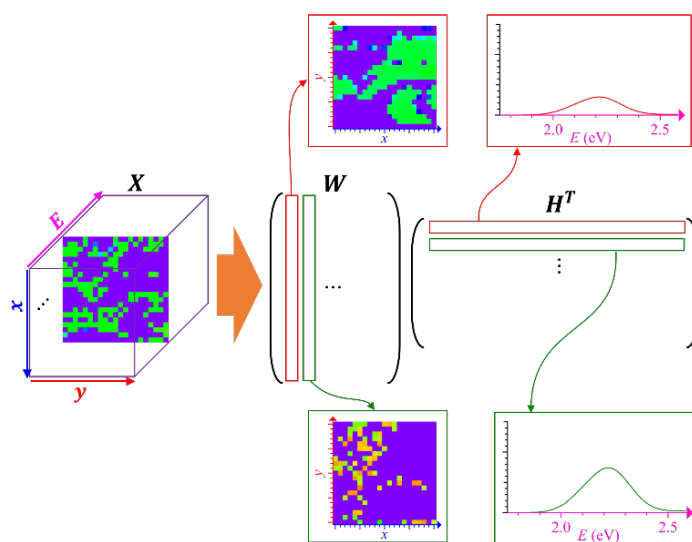


図: 片側直交性非負値行列因子分解[3]による $\text{In}_{0.34}\text{Ga}_{0.66}\text{N}$ 単一量子井戸構造 PL スペクトルイメージングデータ解析

して大きな変化を示さず、ピークの位置・強度が僅かに変化しているのみである。よって、その微弱なスペクトル変化を検出するために、解析対象 X をスペクトル平均との差分スペクトルに変換し、片側直交性非負値行列因子分解[3]を実行した。その因子分解によって、空間構造 W ・スペクトル構造 H^T に分離・抽出される各モードでの情報を統計的評価する事で、材料固有の物理的現象に即した解釈が可能となる。

講演では発光スペクトルイメージングデータに対して片側直交性非負値行列因子分解に適用した結果を報告する。その抽出された物性特徴量・その空間分布は PL・CL 計測それぞれで得られるので、異なる計測データの包括的解釈についても議論する。

[1] K. Mori-Tamamura et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **62**, 105501 (2023).

[2] T. Kunikiyo et al., *Jpn. J. Appl. Phys.* **58**, SCCB05 (2019).

[3] H. Tanimoto et al., *J. Phys. Commun.* **5**, 115005 (2021).

パーシステントホモロジーを用いた微細組織の解釈可能な構造評価

Interpretable structural evaluation of nanostructures via persistent homology

物材研¹, 筑波大² ○(D)江口琉斗^{1,2}, Yu Wen^{1,2}, 橋本綾子^{1,2}

NIMS¹, Univ. Tsukuba², °Ryuto Eguchi^{1,2}, Wen Yu^{1,2}, Ayako Hashimoto^{1,2}

E-mail: EGUCHI.Ryuto@nims.go.jp

近年、パーシステントホモロジー(PH)という数学的な枠組みによって、原子スケールからナノスケールといった幅広いスケールで材料構造情報の定量化が可能になった。PH では、データ内の「穴」構造の生成・消滅のスケールとそれらの頻度を 2 次元ヒストグラムに示した、パーシステント図(PD)によって構造が表現される。本研究では、PH を走査型透過電子顕微鏡(STEM)画像へ適用した。一般的に、PD 解析においては次元削減により構造情報が抽出されるが、本研究では解釈性を高めるため、PD から直接的に解釈可能な特徴量を抽出し、それらによる構造評価を行った。

対象画像データは Pt と CeO₂ の 2 相複合材料の STEM 像である。この材料は合成条件 (温度・CO/O₂ ガス雰囲気)によって迷路状構造や縞状の異なる形態を示す。STEM 画像は 2 値化処理した後、CeO₂ 相に注目して PD 解析した。

0 次の PD からは CeO₂ のドメインの数・縞の幅や長さ、1 次の PD からは CeO₂ のリング・湾状構造の個数情報を特徴量として抽出できた。それら特徴量を用いたランダムフォレストによる画像分類の結果、CeO₂ の縞の幅と湾状構造の個数が重要な特徴量であることが分かった。更に、これら 2 つの特徴量で散布図を作成することで、Fig.1 のように Pt/CeO₂ の微細構造が合成条件ごとに分類可能であることが分かった。つまり、本研究で抽出した解釈可能な特徴量は構造評価に有効に働き、さらには物理的な議論にも有効であることが示唆された。

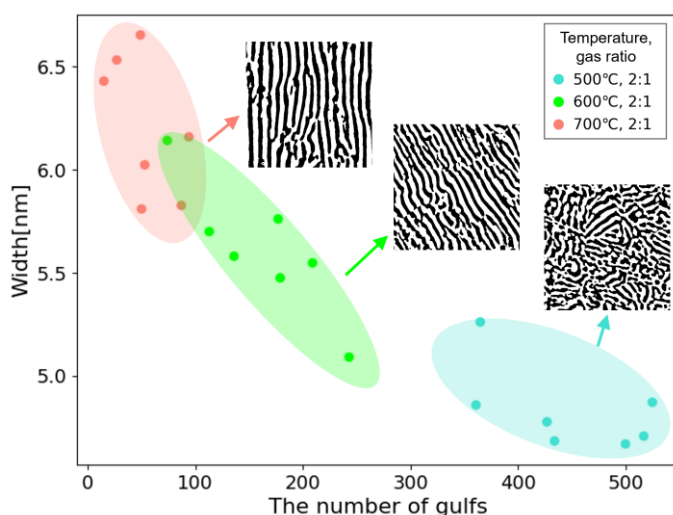


Fig.1 Scatter plot of the number of gulfs and the width of CeO₂ phase in three Pt/CeO₂ nanostructures at different annealing temperatures and identical gas ratio. The three nanostructures could be well-classified (colored) by the interpretable features.

不確実性を活用した材料画像予測の信頼性判定技術の開発

Development of reliability evaluation for material image prediction using uncertainty

日立製作所 研究開発グループ °王 宇, 山本 浩之, 谷本 明佳

Hitachi Ltd. Research & Development Group. °Yu Wang, Hiroyuki Yamamoto, Sayaka Tanimoto

E-mail: yu.wang.rb@hitachi.com

[背景]

近年、新材料・デバイスの開発を加速する方法としてマテリアルズインフォマティクス(MI)の適用が進められている。材料特性を予測するモデル構築のためには、組織画像からの特徴量抽出は重要な課題であり、機械学習による領域分割(セマンティックセグメンテーション、SS)が有効な手段である(入力画像: Fig. 1(a)、予測結果: Fig. 1(b))。更に、Monte Carlo Dropout(MCD)^[1-3]を適用した SS モデルの使用により「不確実性」を算出し、それを可視化した「不確実性マップ」を参照することで(Fig. 1(c))、予測結果を誤った可能性がある領域をある程度判別できる。しかし、不確実性指標は連続的であり、確認対象が明確でないためユーザー側の作業負担が大きい。本研究では、従来は属人性であった不確実性の閾値(予測の信頼度が低い領域)の自動算出手法を開発した。

[実験]

Fe 基熱間圧延ロール金属材の電子顕微鏡画像(反射電子像と二次電子像)を用い、MCD を適用した SS モデルによる評価検証を行った。MCD を適用した SS で複数回の予測を行い、全画素について各クラス(各相)の判定確率の分布を得た。判定確率の分布において複数のクラスの分布の重なり度合の特徴に基づき、該当画素の予測結果の信頼度を分類した(Fig. 1(f), (g))。例えば、複数のクラスの分布が一定値以上重なっている場合は、予測信頼性が低い画素と判定する(Fig. 1(f))。

[結果・考察]

新たな不確実性指標を用い、予測結果の信頼性が高い領域(Fig. 1(d)の白)、信頼性が低い領域(Fig. 1(e)の白)に分類した。予測結果の信頼性が低い領域を参照し、従来の不確実性マップ(Fig. 1(c))と比べ、特徴解析として使用する画像の確認作業を大幅に効率化できることを実証した。また、予測結果の信頼性が低い領域を参照し、教師画像を修正した後、予測正解率が向上した。

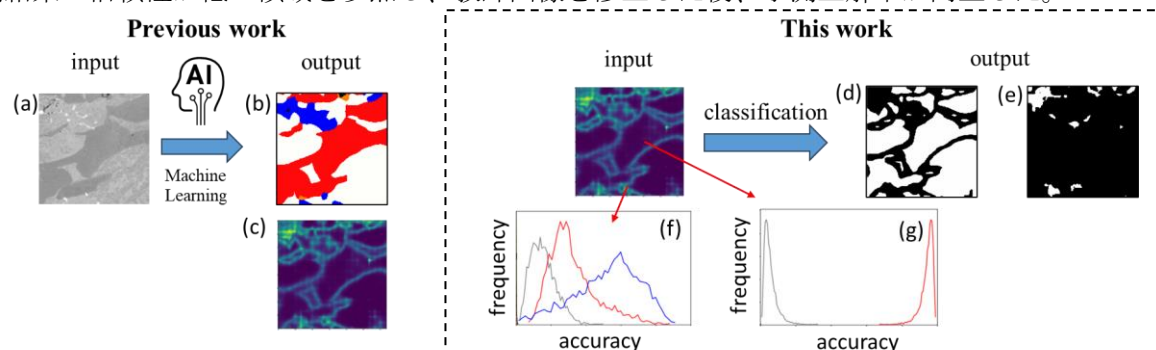


Fig. 1 Prediction results and uncertainty level classification. (a) Input SEM image, (b) Prediction results, (c) Uncertainty map (d) Uncertainty map (high reliability area), (e) Uncertainty map (low reliability area). (f) An example of probability distribution of low prediction reliability and (g) high prediction reliability.

[1] Y. Gal *et. al.*, ICML, 2016. [2] R. Seoh, arXiv: 2007.01720. [3] K.Zou *et. al.*, Meta-Radiology 1 (2023) 100003.

深層学習による表面 SEM 像の三次元情報解析 3D Information Analysis of Surface SEM Images using Deep Learning

筑波大院 数理工質¹, 学振特別研究員²・石山隆光^{1,2}, 野沢公暉¹, 末益崇¹, 都甲薫¹

Univ. of Tsukuba¹, JSPS Research Fellow²・T. Ishiyama, K. Nozawa, T. Suemasu, and K. Toko

E-mail: ishiyama.takamits.ta@alumni.tsukuba.ac.jp

【はじめに】表面加工や積層技術の高度化に伴い、高速かつ汎用的な表面測定技術の開発が求められている。従来の原子間力顕微鏡 (AFM) は、走査測定に数分を要する上、急激な凹凸変化 (Fig. 1(a) 枠内) に弱い。そこで本研究では、画像認識 AI (Fig. 1(b)) を用いることで、短時間で広域の情報を取得できる走査電子顕微鏡 (SEM) 像から、試料の表面粗さ (RMS) と最大高さ (Height) の予測を試みた (Fig. 1(c))。

【実験方法】成膜条件を調整し表面様態を変化させた Al 膜 (膜厚 50–200 nm、堆積温度 室温–600 °C) に加え、Ag (膜厚 50 nm、室温堆積) と Cu 膜 (膜厚 50 nm、室温堆積) をそれぞれ 1 試料ずつ、単結晶 Si 基板上にスパッタ成膜した。その後、各試料につき、5 μm 四方の SEM 像を 120 枚、AFM 像を 4 枚取得した。続いて、ImageNet[1]の学習済み ResNet-34[2]をベースとした機械学習 (ML) モデルに、SEM 画像を入力として、対応する試料の RMS 及び Height を学習させた。この際、Al 膜のうち 15 枚は 3-fold 交差検証の訓練データとして、残り 1 枚の Al 膜と、Ag および Cu 膜はテストデータとして用いた。

【結果・考察】Fig. 2(a,b)に示す学習曲線より、50 エポック程度で損失関数が収束したことが判る。どの fold においても、training と validation の誤差の乖離は小さく、RMS および Height の決定係数 R^2 は ~ 0.9 と高い値を示した。ML モデルが表面凹凸の認識性能を獲得したと推察される。その汎化性能を検証するため、学習した Al とは別材料である Ag および Cu 膜を用いて評価を行った。Fig. 3(c,d)に示す試料表面の高さ分布は Ag と Cu で大きく異なり、評価用のデータとして適切と言える。SEM 像から予測された RMS_{SEM} , $\text{Height}_{\text{SEM}}$ は、AFM 測定で得られた値 (RMS_{AFM} , $\text{Height}_{\text{AFM}}$) とよく一致し、ML モデルは材料に依存しない高い汎化性能を示した。その上、この ML モデルはラップトップを用いながらも、1 秒未満の高速推論を実現した。以上、本研究は、AI 時代のパラダイムシフトを迎えた電子顕微鏡の新しい姿を提示し、材料工学における表面測定技術の発展に大きく貢献するものである。

[1] O. Russakovsky et al., *IJCV*, **115**(3), pp.211-252 (2015).

[2] K. He et al., *Proc. IEEE Conf. CVPR*, pp.770-778 (2016).

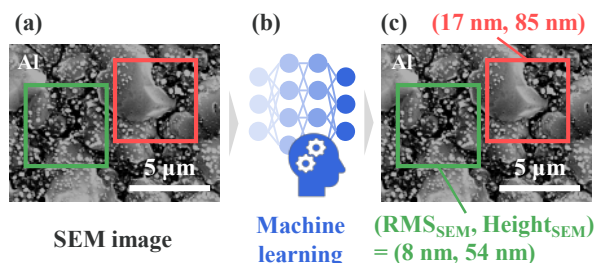


Figure 1. (a) SEM image of the Al test-sample surface. (b) Schematic diagram of the machine learning. (c) Predicted values of RMS_{SEM} and $\text{Height}_{\text{SEM}}$ within the specified regions, using the model trained. The predictions are made on regions marked in the SEM image.

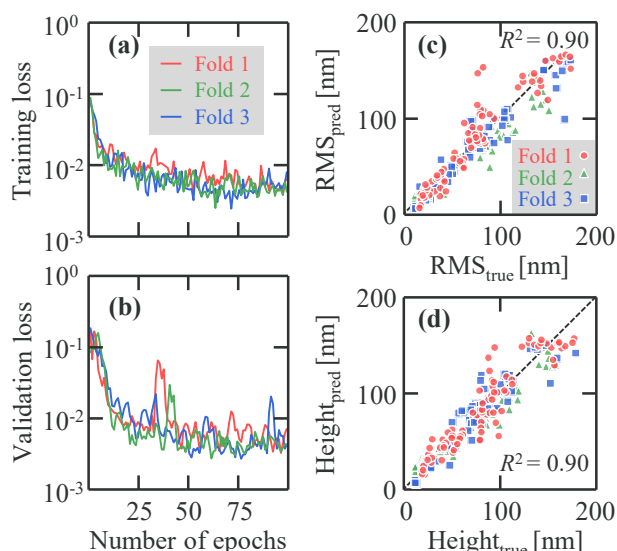


Figure 2. (a) Training and (b) validation loss convergence for the machine learning model trained on Al samples. Comparison of RMS and Height predictions from SEM data with measurements obtained from AFM data, including R^2 . Red, green, and blue colors correspond to the different cross-validation folds.

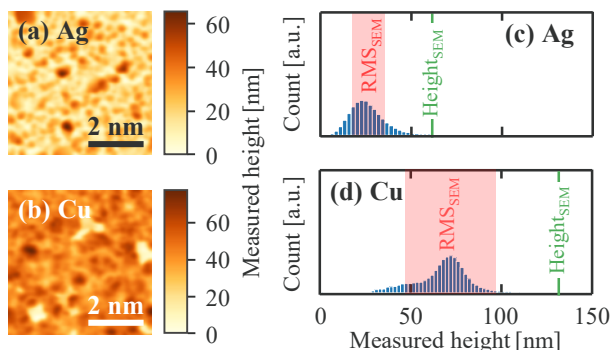


Figure 3. AFM images of the (a) Ag, and (b) Cu film surface used for testing. Histogram of the height distribution in the (c) Ag, and (d) Cu AFM image. The red area represents RMS_{SEM} , and the green line indicates the $\text{Height}_{\text{SEM}}$.

深層学習を活用した超伝導電線の 3D フィラメント微細構造解析

3D Filament Microstructure Analysis of Superconducting Wires Using Deep Learning

東京農工大学¹, 九州大学², 日立製作所³ ○(B)安東 昂亮¹, 西谷 慶輝¹,

石橋 辰則¹, 嶋田 雄介², 児玉 一宗³, 田中 秀樹³, 山本 明保¹

Tokyo Univ. Agri. & Tech.¹, Kyushu Univ.², Hitachi, Ltd.³, °Kosuke Ando¹, Yoshiki Nishiya¹,

Tatsunori Ishibashi¹, Yusuke Shimada², Motomune Kodama³, Hideki Tanaka³, Akiyasu Yamamoto¹

E-mail: s216621y@st.go.tuat.ac.jp

[背景] ニホウ化マグネシウム (MgB_2) は高い超伝導転移温度を持つため、希少な寒剤を必須とすることなく、冷凍機冷却や液体水素温度で応用可能な材料として期待されている。 MgB_2 は多結晶型の超伝導材料であるため結晶配向のプロセスが不要であり、超伝導前駆体粉末を内封した金属シース管に対して冷間加工を行った後に、熱処理を施して超伝導化する Powder-in-tube (PIT) 法による長尺超伝導電線の製作が可能である。近年では変動磁場応用向けにマルチフィラメント化が施された長尺電線の研究開発が進められているが[1]、超伝導フィラメント数の増大と径の縮小にともない臨界電流性能が減少するケースが報告されている。一方、我々は、医用画像処理[2]等にも応用される深層学習手法の一つであるセマンティックセグメンテーションに着目し、複雑な微細構造を持つ多結晶材料に対して高い精度で構成相を識別したことを報告している[3]。

本研究では、 MgB_2 超伝導電線のフィラメント構造の三次元解析を目的として、FIB-SEM による三次元観察データに深層学習を用いて微細構造の定量化を行った。

[方法] 解析対象の試料には研究開発中の超伝導マルチフィラメント電線[4]を用いた。Fig. 1(A)に電線の断面構造を示す。径が約 $10\ \mu\text{m}$ の超伝導フィラメント 51 本が円周状に配置されており、この中の数本のフィラメントが存在する領域(B)に対して FIB-SEM 観察を行った。教師データセットとして FIB-SEM より得た二次電子像(B)と、その画像に対し手動で相識別を行ったものを用いた。深層学習モデルには、Encoder - Decoder モデルに基づく U-Net[2]を用いた。

[結果] 観察した 1232 枚の画像を元に深層学習により相識別、及び三次元再構築を行い(C)、FIB-SEM の定量化及びフィラメント内部構造の可視化に成功し、フィラメントの傾斜や一部の内部欠陥がフィラメント長手方向に連なる様子などが確認できた。

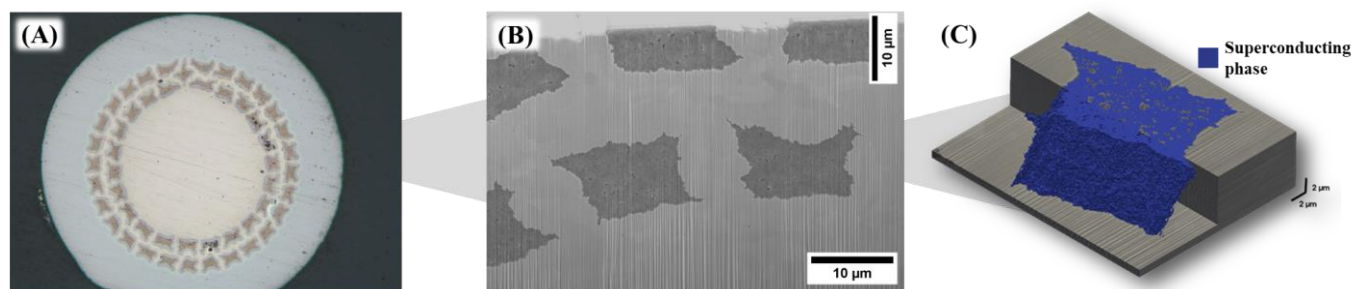


Fig. 1 Multiscale structure of MgB_2 superconducting multi-filamentary wire fabricated by the PIT method.

(A) Optical image, (B) Secondary electron image, (C) 3D reconstruction of superconducting phase.

[謝辞] 本研究の一部は JST CREST (JPMJCR18J4)、科研費(JP21H01615)の支援により行われた。

[参考文献]

[1] H. Tanaka *et al.*, *J. Cryo. Super. Soc. Jpn.* **56**, 327 (2021) [2] O. Ronneberger *et al.*, *Proc. MICCAI* **9351** (2015)

[3] Y. Hirabayashi *et al.*, *npj Comput. Mater.* **10**, 46 (2024) [4] M. Kodama *et al.*, *Supercond. Sci. Technol.* **34**, 025018 (2021)

GAN を活用した擬似的な三次元多結晶 Si 組織の生成

Generation of pseudo 3D multicrystalline Si structure using Generative Adversarial Networks

名大院工¹, 名大未来研², 理研 AIP³, 名大院情報⁴, 名大未来機構⁵○(M2) 弟子丸 拓巳¹, 沓掛 健太郎^{1,2,3}, 工藤 博章⁴, 勝部 涼司¹, 宇佐美 徳隆^{1,2,5}Grad. Eng., Nagoya Univ.¹, IMaSS², AIP, RIKEN³, Grad. Info.⁴, InFuS⁵ Nagoya Univ.*Takumi Deshimaru¹, Kentaro Kutsukake^{1,2,3}, Hiroaki Kudo⁴, Ryoji Katsube¹, Noritaka Usami^{1,2,5}

E-mail: deshimaru.takumi.k1@s.mail.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに

多結晶材料の特性や性能は結晶粒界分布や粒形状といったマイクロ構造に大きく依存する。そのため、優れた性能を持った多結晶材料作製のためには組織と特性の関係性の解明や制御、デザインが重要である。組織と特性の関係性解明に関する研究では三次元ボロノイ図で表現した多結晶組織に対する特性予測や物理シミュレーションが主流であるが、ボロノイ図では正確に組織を再現できない場合がある。例えば本研究のモデル試料である一方向凝固法で成長させた多結晶 Si は成長方向・高さが重要な情報であるため、等方性を持つボロノイ図での再現は適さない。また、フェーズフィールドシミュレーションをはじめとした計算科学的手法では物理法則や経験則に基づき戦略的に結晶組織を作製する。そこで、本研究ではより高速で網羅的な多結晶組織作製を可能とすることを目的とし、画像生成 AI のひとつである敵対的生成ネットワーク (GAN) の活用により結晶粒界分布・粒形状・方位・成長高さ情報を含む三次元多結晶組織の生成手法を構築した。

2. 実験方法

使用したサンプルはハイパフォーマンス多結晶 Si インゴットから 180 μm 間隔で切り出した 15.6 cm 角のウエハ 30 枚である。これらの Si ウエハについて独自の輝度測定装置で入射光を水平方向に 360° 回転させて撮影し、結晶方位を反映した輝度プロファイルを取得した。LSTM ニューラルネットワークと全結合層で構成された結晶方位推定モデルに輝度プロファイルを入力することで大面積での結晶方位マッピングを行った[1]。取得した方位画像には結晶粒界分布や粒形状、方位情報が含まれる。15.6 cm 角のウエハ 30 枚から 2.6 cm 角にランダムクロップした方位画像 1300 枚を使用し、GAN モデルの一種である StyleGAN2-ADA を訓練した。ADA と呼ばれる訓練過程の段階に応じてデータ拡張の適応量を調整する手法が採用された本モデル

は少ない教師画像でも訓練が可能である[2]。訓練後はノイズからバラエティ豊富な方位画像を生成できる。次に、15.6 cm 角の方位画像 30 枚から作成した 180 μm の等間隔な 2.6 cm 角の方位画像ペア 900 組を使用し、画像から画像へのマッピングを学習する pix2pix を訓練した[3]。訓練後は入力 of 180 μm 上方の方位画像を出力できる。Fig. 1 に示すようにノイズから最下端の方位画像を生成し、上方の方位画像の予測を繰り返し積層させることで疑似的な三次元多結晶 Si 組織の生成を可能とした。

3. 結果と考察

ノイズから生成した方位画像、180 μm 上方の方位画像、30 枚の方位画像を積層させた多結晶 Si 組織とその断面の一例を Fig. 1 に示す。結晶粒界分布や粒形状、方位情報を含んだ多結晶組織の生成に成功した。一度モデルの訓練を終えてしまえば、大量に疑似的な三次元多結晶組織を生成することが可能である。一方で、Fig.1 の組織断面図からも見て取れるように結晶方位が不自然な変化を示す領域があり、組織成長の連続性には課題が残る。今後は pix2pix への入力を 2 枚のペア画像ではなく複数枚の方位画像を重ねたセットにすることで、組織の連続性の精度向上を図る。この提案手法は他材料・組織に展開でき、様々な結晶組織の網羅的かつ迅速な解析を可能にすることで高機能材料の開発に貢献しうる。

【謝辞】

本研究は JST CREST(JP MJCR17J1)支援のもと行われた。

【参考文献】

- [1] K. Hara *et al.*, APL Mach. Learn. **1** 026113 (2023)
- [2] T. Karras *et al.*, Advances in neural information processing systems **33**, 12104-12114 (2020)
- [3] P. Isola *et al.*, IEEE Conference on CVPR 2017, 1125-1

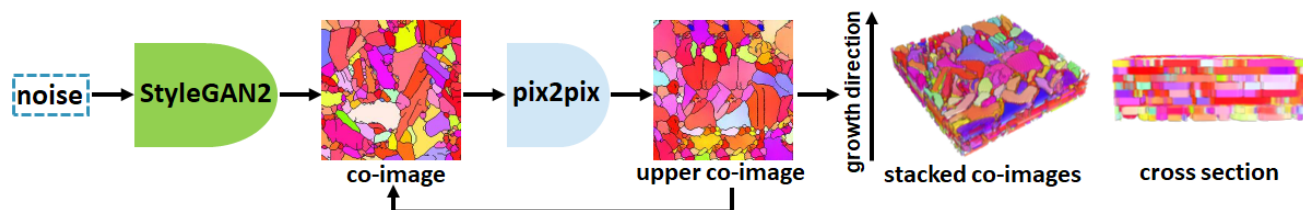


Fig. 1. Overview process of pseudo 3D multicrystalline Si structure generation.

23 Joint Session N "Informatics" | Oral presentation : 23.1 Joint Session N "Informatics"

[20a-A21-1~10] 23.1 Joint Session N "Informatics"

[20a-A21-1]

Validation experiments of machine learning for Eu valence in phosphor materials

○Yukinori Koyama¹, Yukako Kohriki¹, Masamichi Harada¹, Naoto Hirotsaki¹, Takashi Takeda¹
(1.NIMS)

[20a-A21-2]

Classification of crystal systems by complexity

○(B)Yuki Nishihori^{1,2}, Yusei Ito^{1,2}, Yasuo Takeichi^{1,2}, Kanta Ono^{1,2} (1.Osaka Univ., 2.SRN-OTRI Osaka Univ.)

[20a-A21-3]

Efficient Material Exploration for Anion Exchange Membranes using Combined Materials Map-Supervised Machine Learning

○(D)Yin Kan Phua¹, Tsuyohiko Fujigaya^{1,2,3}, Koichiro Kato^{1,2,4} (1.Grad. Sch. of Eng., Kyushu Univ., 2.CMS, Kyushu Univ., 3.I2CNER, Kyushu Univ., 4.RIIT, Kyushu Univ.)

[20a-A21-4]

Realization and Release of International Cross Search of XAFS Databases

○Masashi Ishii¹, Asahiko Matsuda¹, Yamashita Shohei², Yasuhiro Niwa², Yasuhiro Inada³
(1.NIMS, 2.KEK, 3.Ritsumeikan Univ.)

[20a-A21-5]

A Study on the Application of the Science Knowledge Graph using Research Papers Catalogue OpenAlex for Battery Materials

○Mikiko Tanifuji¹, Masaharu Hayashi¹, Kazutsuna Yamaji¹, Luca Foppiano², Dieb Sae³
(1.National Institute of Informatics, 2.ScienciaLAB, 3.National Institute for Materials Science)

[20a-A21-6]

Contrastive Learning of Text and Crystal Structure for Materials Representation and its Application

○Yuta Suzuki¹, Tatsunori Taniai², Ryo Igarashi², Kotaro Saito^{3,4}, Naoya Chiba⁵, Yoshitaka Ushiku², Kanta Ono⁴ (1.Toyota Motor Corp., 2.OMRON SINIC X, 3.Randefelt Inc., 4.Osaka Univ., 5.Tohoku Univ.)

[20a-A21-7]

Application of Large Language Models for Automated Screening of Research Articles

○Yuta Suzuki^{1,2}, Shuhei Kurita^{3,2} (1.Toyota Motor Corp., 2.RIKEN AIP, 3.NII)

[20a-A21-8]

Extraction of experimental conditions from papers using large language models

○Hirotaka Sakamoto¹, Hiroki Shirakawa¹ (1.Toyota Motor Corp.)

[20a-A21-9]

Materials Development with LLM (I): Development Scope through Model Comparison

○Masashi Ishii¹, Yasufumi Watanabe¹, Hiroyuki Oka¹, Hiroyuki Shindo² (1.NIMS, 2.MatBrain)

[20a-A21-10]

The mechanism of occurrence of breakthrough scientific research based on Structural Hall Theory (II)

○Keisuke Shinagawa¹ (1.Fukuoka womens Uni.)

蛍光体における Eu 価数に対する機械学習の検証実験

Validation experiments of machine learning for Eu valence in phosphor materials

物材機構 [○]小山 幸典, 高力 由香子, 原田 昌道, 広崎 尚登, 武田 隆史

NIMS [○]Yukinori Koyama, Yukako Kohriki, Masamichi Harada, Naoto Hirosaki, Takashi Takeda

E-mail: KOYAMA.Yukinori@nims.go.jp

Eu は蛍光体のホスト結晶中において 2 価と 3 価の状態をとる。Eu²⁺では 4f-5d 遷移が利用され、吸収・発光強度が大きい、発光ピーク波長がホストによって大きく異なる、発光ピーク幅が広いなどの特徴がある。一方、Eu³⁺では 4f-4f 遷移を利用し、発光ピーク幅が非常に狭い、発光ピーク波長がほぼ一定などの特徴がある。Eu の価数は合成条件によって変わることがあるが、多くのホストでは一方の価数のみが得られる。したがって、所望の価数が得られるホストの選択が必要である。そこで、我々はホスト中の Eu 価数を予測する機械学習モデルを構築してきた^[1]。今回、構築した機械学習モデルの検証実験を行い、新規な Eu²⁺賦活蛍光体を発見したので報告する。

我々は 2 価に注目しており、無機材料データベース AtomWork-Adv に登録されている蛍光体ホストに使用される元素からなる化合物 26,305 件を実験対象の母集団とした。構築した機械学習モデルにより 2 価の確率が 50%以上と予測された化合物 8,947 件を抽出し、さらに、酸化物、硫化物、ハロゲン化物、および、これらの混合アニオン化合物に限定、実験研究者の経験から合成が困難と思われる化合物を除外するなどして、候補化合物 35 件を選択した。Eu を添加した候補化合物は大気中で焼成後に還元雰囲気下で熱処理、もしくは、還元雰囲気下で焼成することにより合成した。得られた試料を粉末 X 線回折(XRD)とフォトルミネッセンス(PL)測定で分析した。

合成した試料を粉末 XRD で解析したところ、6 化合物では目的相の割合が 70 wt%に満たず、合成に失敗したと判断した。残りの 29 化合物に対して PL 測定を実施したところ、16 化合物では有意な強度の発光を観測できず、非発光と判断した。発光が観測された 13 化合物の内、12 化合物では Eu²⁺由来の発光に特徴的な幅の広い発光ピークが観測されたが、1 化合物からは Eu³⁺に特徴的な幅の狭い発光ピークが観測された。Eu²⁺由来の発光が観測された BaB₂S₄ と、Eu³⁺由来の発光が観測された BaLa₂ZnS₅ の励起・発光スペクトルを Fig. 1 に示す。発光が観測された候補化合物に対する Eu²⁺由来の発光の割合は 12/13 であり、高い確率で Eu²⁺賦活蛍光体を得られた。Eu 価数の機械学習を利用することにより、新規 Eu²⁺賦活蛍光体を効率的に探索できるようになると期待できる。

本研究は JST CREST (JPMJCR19J2)の支援を受けた。

参考文献

[1] 小山幸典 他、2023 年 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会、19p-C601-6。

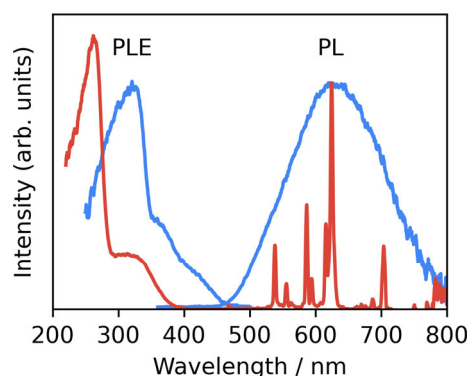


Fig. 1 Photoluminescence (PL) and PL excitation (PLE) spectra of BaB₂S₄ (blue) and BaLa₂ZnS₅ (red).

結晶構造の複雑性による結晶系の分類

Classification of crystal systems by complexity

阪大工¹, 阪大 OTRI スピン², ○(B)西堀 結貴^{1,2}, (M2)伊藤 優成^{1,2}, 武市 泰男^{1,2}, 小野 寛太^{1,2}

Osaka Univ.¹, SRN-OTRI Osaka Univ.² °Yuki Nishihori^{1,2}, Yusei Ito^{1,2}, Yasuo Takeichi^{1,2},
Kanta Ono^{1,2}

E-mail: yuki_nishihori@ap.eng.osaka-u.ac.jp

結晶構造を理解する手法として、その複雑さを定量化する方法が提案されている[1]。結晶の複雑さを定量化することにより、三方晶系では多くの非常に複雑な鉱物が存在することなどが知られている[2]。シャノンの情報理論に基づく結晶の複雑性は、基本単位格子に含まれる原子数とワイコフ位置の多重度を用いて式(1), (2), (3)のように表される。

I_G : 原子当たりの複雑性

$I_{G,total}$: 基本単位格子当たりの複雑性

M : 基本単位格子中の原子数

M_i : ワイコフ位置の多重度

$$I_G = H_N(\mathcal{M}) = \sum_{i=1}^N L\left(\frac{M_i}{M}\right) \tag{1}$$

$$I_{G,total} = M \cdot H_N(\mathcal{M}) = M \cdot \sum_{i=1}^N L\left(\frac{M_i}{M}\right) \tag{2}$$

$$L(x) = -x \log_2 x \tag{3}$$

結晶の複雑性は安定性や合成可能性とも密接な関連があり、複雑性を理解することは新材料を設計するうえで重要である。しかしながら、これまでおよそ 4,000 件の鉱物について複雑性が調べられているのみである[2]。本研究では、結晶の複雑性を理解することを目的として、The Materials Project から取得した約 50,000 件の実在する結晶構造について複雑性を計算した。また、X 線回折(XRD)パターンも計算した。XRD は物質の結晶構造を解析するための重要な手法であり、得られるピークの数や位置は結晶構造の詳細な情報を提供

する。この計算結果から、シャノンの情報理論に基づく複雑性、基本単位格子の体積、XRD パターンのピーク本数間には相関があることが分かった。特に、結晶系ごとに異なる相関関係が観察され、各結晶系において、基本単位格子の体積や XRD パターンのピーク本数が複雑性に与える影響を解明した。

この結果は、リートベルト解析をはじめとする結晶構造解析において、データ処理、結果の解釈、新材料の設計など、さまざまな側面で役立つことが期待される。

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

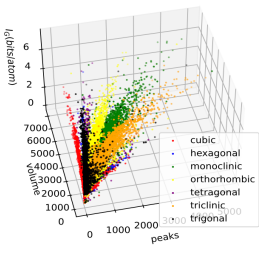


Fig.1 A 3D plot illustrating the relationship between the number of XRD peaks, the complexity, and the unit cell volume.

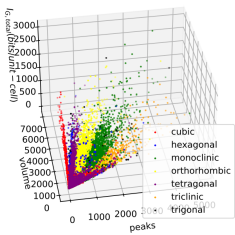


Fig.2 A 3D plot illustrating the relationship between the number of XRD peaks, the total complexity, and the unit cell volume.

[1] W.Hornfeck, *Acta Crystallogr A Found Adv*, **76**, 534-548.(2020)
[2] S.V. Krivovichev, *et al. Mineralogical Magazine*, **86**, 183-204.(2022)

アニオン交換膜の材料マップ及び教師あり機械学習の統合運用による材料探索の効率化

Efficient Material Exploration for Anion Exchange Membranes using Combined Materials Map-Supervised Machine Learning

九大工¹, 九大 CMS², I²CNER³, 九大 RIIT⁴ °Phua Yin Kan¹, 藤ヶ谷 剛彦^{1,2,3}, 加藤 幸一郎^{1,2,4}
Kyushu Univ. Grad. Sch. of Eng.¹, Kyushu Univ. CMS.², I2CNER³, Kyushu Univ. RIIT⁴ °Yin Kan
Phua¹, Tsuyohiko Fujigaya^{1,2,3}, Koichiro Kato^{1,2,4}

E-mail: fujigaya.tsuyohiko.948@m.kyushu-u.ac.jp, kato.koichiro.957@m.kyushu-u.ac.jp

水素社会の実現に重要な固体高分子形燃料電池は、イオン伝導膜であるアニオン交換膜(AEM)などのイオン伝導度とその性能が大きく左右される。AEM 分野は従来、実験中心的な研究開発が行われてきたが、機械学習 (ML) の導入により、AEM 材料開発期間の短縮化が期待されている[1]。ML は教師の有無で分類され、教師あり ML は目的変数と説明変数の相関関係を学習する。教師なし ML は目的変数なしに、説明変数間の相関関係を探索し、特徴を学習する。今まで我々は、AEM 材料に対する教師ありの説明可能 ML モデルの構築及び教師なし ML モデルによる材料マップ作成を進めてきた[2,3]。これまで両モデルを独立に開発してきたが、本研究では、AEM 材料を対象に教師なし ML で得た 2 次元マップを材料設計指針として活用して新規有望材料を設計し、教師あり ML で設計した新規有望材料のアニオン伝導度予測を行う統合運用を試みた(図 1)。

現時点において入手可能な AEM データベース(DB)は存在しないため、独自で 78 報分の論文データからなる DB を構築して使用した。AEM 化学構造の記述子変換には Mordred library [4]を用いた。二次元マップは主成分分析 (PCA) と uniform manifold approximation and projection (UMAP)を組み合わせて作成した。教師あり ML には CatBoost を用いた。CatBoost の学習には、Mordred 変換後の記述子及びPCA で32次元に削減して得た記述子の二種類を用いた。CatBoost の学習検証精度を決定係数 R^2 で評価したところ、両記述子で 0.961、0.957 と高い精度を得た。既にアニオン伝導度が判明しているポリ(2,6-ジメチル

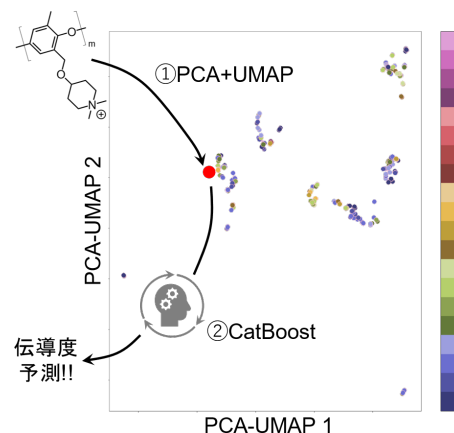


図1. 本研究の流れ.教師なしMLで作成した二次元マップを基に新たにデザインした AEM 材料のアニオン伝導度を教師あり ML で予測する。

-1,4-フェニレンオキシド)系 AEM 材料[5]を仮想新規材料として AEM 材料マップと CatBoost の統合運用の実用性を評価した結果、2 次元マップでは類似構造の近傍に位置し、異なる温度で測定されたアニオン伝導度も両記述子でそれぞれ $R^2 = 0.906$ 、 0.888 と高い精度で予測できた。

[1] S.T. Thompson et al., *J. Electrochem. Soc.*, **2020**, 167, 084514. [2] Y.K. Phua et al., *Sci. Technol. Adv. Mater.*, **2023**, 24, 1, 2261833. [3] Y.K. Phua et al., *ChemElectroChem*, **2024**, in press. [4] H. Moriwaki et al., *J. Cheminformatics*, **2018**, 10, 4. [5] J. Chen et al., *Ind. Eng. Chem. Res.*, **2022**, 61, 4, 1715–1724.

XAFS データベースの国際横断検索の実現と公開

Realization and Release of International Cross Search of XAFS Databases

NIMS¹, KEK², 立命館大学³ ○石井真史¹, 松田朝彦¹, 山下翔平², 丹羽尉博², 稲田康宏³

NIMS¹, KEK², [○]Ritsumeikan Univ.³ Masashi Ishii¹, Asahiko Matsuda¹, Shohei Yamashita²,

Yasuhiro Niwa², and Yasuhiro Inada³

E-mail: ISHII.Masashi@nims.go.jp

【序】データ集約による知識統合が、材料科学における新しい研究開発基盤となりつつある中で、国を越えた統合の難しさは顕著になっている。放射光実験の中で、代表的な分析法であるX線吸収分光(X-ray Absorption Fine Structure, XAFS)は、他のスペクトルを参照することで、理解が深まることから潜在的なデータ共有の要望がある。このことから、2018年から国内の代表的な学術機関が共同でXAFSスペクトルをNIMSのMaterials Data Repository (MDR)に集約し公開する、MDR XAFS DBプロジェクトを展開している[1]。ここでは、NIMSで構築している材料語彙管理基盤MatVocで材料名を名寄せし、同一材料であれば、漏れなくかつ機関の違いを感じさせずに見つかる横断検索を実現した。<https://doi.org/10.48505/nims.1447> 本研究では、この取り組みを拡張し、日米欧のXAFSデータベースを横断検索するポータルを実現した。

【方法】図1に今回構築したInternational XAFS DB Portal (IXDB)の動作原理を示す。(1)ユーザーが入力する人可読な検索材料名は、MatVocによって機械可読な一意な材料IDに変換される。(2)変換されたIDは、XAFS測定を概念化した「ナレッジ」に送られ、データベースの違いに無関係に、提供機関名とリンクの一覧がIXDBに返却される。(3)このリンクにより、ユーザーは各データベースの希望のデータにたどり着くことができる。

【実装】この国際的な横断検索のカギになるXAFS DBプロジェクト材料辞書は、<https://matvoc.nims.go.jp/explore/ja/dictionary/Q713> で一般に公開されている。ここでは、1,678の項目とその類義語9,656、化学式828が格納されており、エンドポイントを介してIXDBか

ら逐次参照されている。ナレッジは Resource Description Framework (RDF) で記載され、SPARQL エンドポイント <https://materials-open-rdf.nims.go.jp/sparql> からアクセス可能である。結果的に日本のMDR XAFS DB (2,263 スペクトル)、EUのSSHADE/FAME (516 スペクトル)、米国のXASLIB (277 スペクトル)の合計3,056 スペクトル (62 吸収元素、116 吸収端) が横断検索可能になった。現在IXDBは、<https://materiage.org/xafs/> で試験公開しているが、近日日本XAFS研究会の公式ページへの移設を予定している。

【謝辞】

本研究の一部は、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム (SIP)第3期「マテリアル事業化イノベーション・育成エコシステムの構築 マテリアルユニコーン育成のための材料情報基盤連携と人材創出」の助成を受けました。

【参考文献】

[1] M. Ishii, K. Tanabe, A. Matsuda, H. Ofuchi, T. Matsumoto, T. Yaji, Y. Inada, H. Nitani, M. Kimura and K. Asakura, STAM: Methods, 3, 2197518 (2023).

<https://doi.org/10.1080/27660400.2023.2197518>

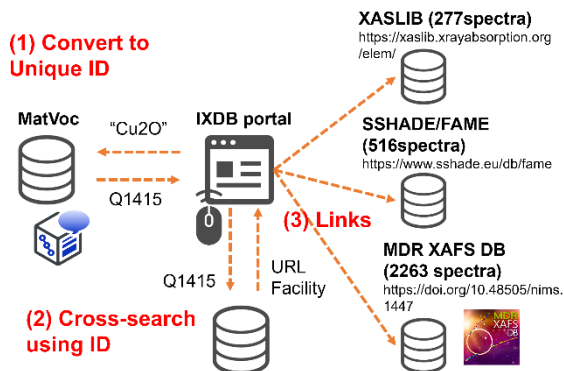


図1 IXDBの動作原理

テキストと結晶構造の対照学習による材料の埋め込み表現と応用

Contrastive Learning of Text and Crystal Structure for Materials Representation and its application

トヨタ自動車¹, オムロンサイニックエックス², ランデフト³, 阪大工⁴, 東北大情報⁵ :
○鈴木雄太¹, 谷合竜典², 五十嵐亮², 斉藤耕太郎^{3,4}, 千葉直也⁵, 牛久祥孝², 小野寛太⁴
TOYOTA Motor Corp.¹, OMRON SINIC X², Randeft Inc.³, Osaka Univ.⁴, Tohoku Univ.⁵:
○Yuta Suzuki¹, Tatsunori Taniai², Ryo Igarashi², Kotaro Saito^{3,4}, Naoya Chiba⁵,
Yoshitaka Ushiku², Kanta Ono⁴
E-mail: yuta_suzuki_ah@mail.toyota.co.jp

材料開発では、広大な物質空間から所望の材料を探索するために多大な労力を要する。機械学習の枠組みの一つである深層表現学習を用いて、物質同士の類似性を物質のベクトル表現 (embedding) 同士の距離として記述できることが明らかになり、embedding を用いた類似材料の検索や、物質空間の可視化が実現された¹。しかし、これまでの研究では物質 embedding の学習は結晶構造による自己教師あり学習として行われていたため¹、得られた embedding を解釈・活用するためには、1 件ずつ元の結晶構造や組成式を確認し、その物質の機能を類推する必要があった。これはいわば地図はあっても地名や住所録が無く、人を探して家々を 1 軒ずつ訪ねて回るような状況である。すなわち、研究者が大規模な材料データから所望の材料を見つけ出すという目的の達成には、テキストと物質を関連付け、言葉により材料を検索可能にする必要がある。

本研究では、テキストと材料を関連付けるために、約 50 万件の結晶構造に対して説明文を付与したデータセットを作成し、このテキストと結晶構造ペアに対する深層表現学習手法を提案する。本手法により、任意のテキスト (例: superconductor) の embedding と結晶構造 embedding 間の距離としてテキストと結晶構造の類似度を直接評価できることを示した。これにより、画像検索のように材料をテキストから検索したり、大規模な物質空間の地図を「地名」と共に可視化したりすることが可能となり (Fig.1)、より戦略的な材料探索が実現すると見込まれる。当日の講演では、一連の結果の解釈と応用を中心に議論する。

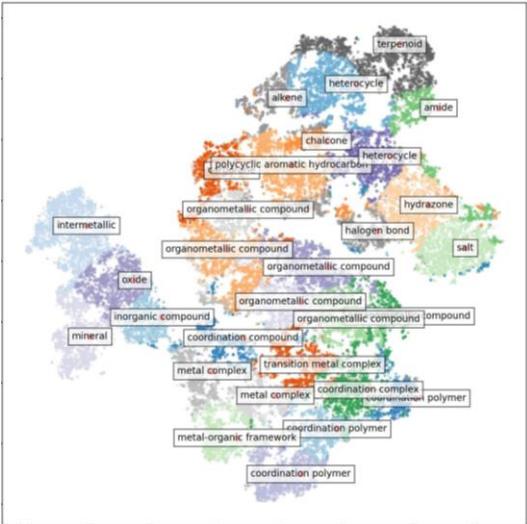


Fig. 1 Visualization of crystal structure embeddings. 30-clustered embeddings showcasing associated keywords.

References

[1] Yuta Suzuki *et al* 2022 *Mach. Learn.: Sci. Technol.* **3** 045034

論文の自動スクリーニングのための大規模言語モデルの応用

Application of Large Language Models for Automated Screening of Research Articles

トヨタ自動車¹, 理研 AIP², 国立情報学研究所³

○鈴木雄太^{1,2}, 栗田修平^{3,2}

TOYOTA Motor Corp.¹, RIKEN AIP², National Institute of Informatics³

○Yuta Suzuki^{1,2}, Shuhei Kurita^{3,2}

E-mail: yuta_suzuki_ah@mail.toyota.co.jp

機械学習や統計的推論を用いた材料開発の加速のためには、大量のデータが必要となる。計算による物性データセットは整備されつつある一方で、実験的な物性や材料合成法に関する情報は論文や特許などのテキスト中に構造化されずに散在することから、これらのデータの計算機上における活用には大きな制約が伴っている。近年の大規模言語モデル（LLM）の発展によって、膨大な文書から高度かつ高速に情報を抽出することが可能になりつつある。そこで本研究では、LLM を用いて論文から情報を抽出するための前処理の例として、固相合成に関する論文の自動スクリーニングを試みた。このようにして大量の論文から所望の論文を抽出し、さらに詳細な解析に供することで、言語データの効率的な活用が可能になると期待される（Fig.1）。

LLM には、Google 社により開発された Gemini 1.5 Flash を用いた。最大 100 万 token という非常に長い文章を扱える点および、各種ベンチマークで高い性能を示していることからこのモデルを選定した。解析対象データとして、Nature Communications 誌の創刊から 2023 年末までの論文より 3 万件をランダムに選定し、HTML からタイトルと本文全文を抽出して用いた。なお Nat. Comm.誌のデータは Creative Commons 4.0 ライセンスのもと利用可能である。各論文に対して、固相合成に関する記述が含まれる場合は 1（pos）、そうでない場合は 0（neg）を返すようにプロンプトで指示し、LLM により文書分類を行った。プロンプト中に例示は用いない設定（zero-shot）とした。その結果、3 万件中 1209 件が固相合成に関する論文と判定された。pos, neg と判定された論文を各 50 件ずつランダムに抽出して人手で評価したところ、真に pos であったのは 50 件中 6 件、neg については 50 件全てが neg と評価された。この結果から、現時点での LLM による zero-shot 予測結果では、偽陽性が非常に多いと示唆された。当日は、より詳細な分析結果や、他の手法との比較を含め報告する。

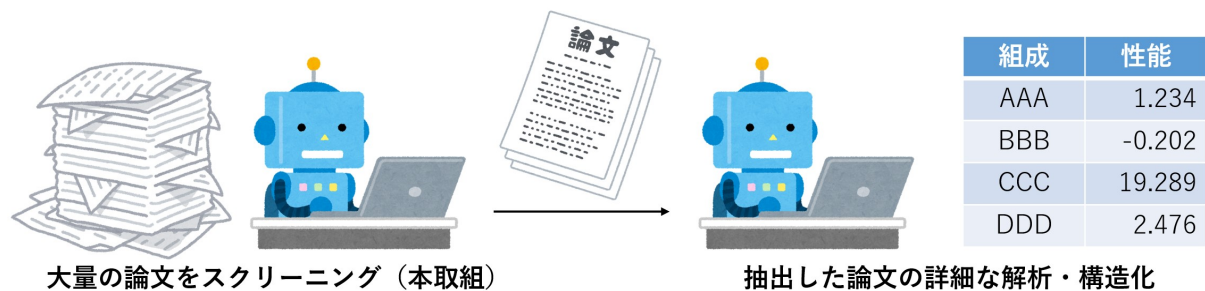


Fig. 1 Overview of proposed method.

大規模言語モデルによる論文からの実験条件抽出

Extraction of experimental conditions from papers using large language models

トヨタ自動車 (株)¹

Toyota Motor Corp.¹, [○]Hiroataka Sakamoto¹, Hiroki Shirakawa¹

E-mail: hirotaka_sakamoto@mail.toyota.co.jp

2022年に発表されたChatGPTは、初の商用化された大規模言語モデルとして幅広いユーザに受け入れられ、テキスト生成や応答生成のタスクにおいて驚異的な性能を発揮している。大規模言語モデルのテキスト編集能力は、これまで労働集約的だった科学研究の様々な作業を効率化する可能性がある。大規模言語モデルはテキストの入力に対しテキストを出力する汎用モデルであるため、大量の情報を処理する必要がある既報論文のサーベイなどに活用が考えられる。

トヨタ自動車では、排ガス触媒やエレクトロニクスなどの応用のため金属ナノ粒子を用いた合成プロセスの研究開発を行ってきた[1]。金属ナノ粒子を用いた合成プロセスでは金属種や還元剤など多様なパラメータが存在するため、合成プロセス検討を効率よく行うために既報論文から網羅的に知見を収集し、検討すべき対象を絞り込む必要がある。既報論文から合成に必要な情報を抜き出しデータベースとして整理する作業には専門的に訓練された人間が長い時間を費やす必要があった。本研究では大規模言語モデルを用いて触媒の合成法に関わる情報を論文から抽出し、整理されたデータベースを効率的に作成することを目的とする。

大規模言語モデルを用いた情報抽出に関する既存の研究では、対象とする論文を細かく分割し順次処理することで精度の高い処理を行う手法が提案されている[2]。我々は既存研究の手法を元に大規模言語モデルに与える情報の粒度をコントロールすることでさらなる精度向上を図った。また実験条件の抽出では論文の記述方法に応じて、数値等がそのまま抽出できる形で記載されていないことがしばしばある。このようなケースに柔軟に対処するため、Chain of Thought (CoT) という考え方に基づき大規模言語モデルの回答を制御する手法を検討した。CoTは大規模言語モデルに回答のためのステップをまず記述させ、中間的な推論ステップを順次処理することで複雑な推論を実現する手法である[3]。これにより簡単な計算を行った上でデータベースの要求に答える形式で情報を記載することを目指した。本発表では、これらの手法を検討した結果を報告する。

現状ではこのような処理を行った際に、誤答が一定の割合が含まれ、またその誤答がどこに存在しているか事前に知ることが出来ないため、一定の誤答率を許容した作業設計を行う必要がある。今後の課題として精度よく誤答を検出し、その修正を行う手法の開発が挙げられる。

参考文献

- [1] 村井盾哉, 久保山大貴, Toyota Tech. Rev., **69**, 2, p.78 (2024)
- [2] Polak, M.P and Morgan, D., Nat. Commun., **15**, 1569 (2024).
- [3] Jason, W., et al., arXiv:2201.11903, (2022).

LLM を使った材料開発(I)

モデル比較による開発スコープ

Materials Development with LLM (I): Development Scope through Model Comparison

NIMS¹, MatBrain 株式会社² [○]石井真史¹, 渡邊泰史¹, 岡 博之¹, 進藤裕之²

NIMS¹, MatBrain², [○]Masashi Ishii¹, Yasufumi Watanabe¹, Hiroyuki Oka¹, Hiroyuki Shindo²

E-mail: ISHII.Masashi@nims.go.jp

【序】大規模言語モデル (Large Language Model) は、大量のデータをニューラルネットワークで学習した言語モデルである。我々は、これまで、マテリアルズインフォマティクス (MI) 用に論文や特許などの公知情報から、主に材料名や数値データを自然言語処理によって自動抽出する試みを続けてきたが、今回そこから一歩進め、材料開発の指針の策定、課題と解決策の抽出、実例と最適解の特定、材料モデルの構築と推測を LLM によって実施するための技術的検討を開始した。公知情報に、過去の材料開発の全情報が含まれていたとして、そこからの類推で、新たな材料開発の筋道が構築されるストーリーを、LLM によって具現化しようというのが本研究の狙いである。挑戦的には、LLM により過去から導けないアイデアを得る、またはそれをアシストすることをスコープとする。

【検討】タスクとしては、①問いに対して答えが書いてある文章を見つける、②図表を解釈し文章化する、③専門用語を文章化し、その語彙から別の専門知識への接続を作る、④個別の研究における最適解の確定、⑤複数の研究結果を統合し、最適解を推測する、⑥一般材料モデル構築とその限界の特定、が考えられるが、現在の LLM の原理から考えて、⑤以降は挑戦的かもしれない。いずれにしても、何を使い、何がわかり、何ができず、どうすればよいかを明確にすることが、LLM を使った材料開発につながる。

【実験と結果】現在、様々な LLM が公開されているが、それぞれに戦略的な意図がある。

モデル	文脈長	特徴
GPT-4o (OpenAI)	128K	総合的に最もベンチマーク性能が高い
Gemini 1.5 pro (Google)	2M	長いプロンプトを入力でき、性能も高い
Llama3 70B (Meta)	8K	OSS。様々な派生モデルが存在

これらについて、高密度磁気記憶媒体の材料開発に関する 4 通の論文を読ませ、前述のタスク①③④に相当する質問に対する回答を収集し、正解率を算出したのが次の結果である。評価は、人手に依るため定量性はないが、複数人で定性的に妥当であることは確認している。

GPT-4o (OpenAI)	Gemini 1.5 pro (Google)	Llama3 70B (Meta)
95%	87%	19%

GPT-4o と Gemini 1.5 pro で良好な結果が得られている。Llama3 の正解率の低さは、文脈長の短さに主に起因すると考えられるが、詳細な回答内容は、将来的な展望を伺わせるものもあり、研究のスコープから外れるものではないと考えている。

【謝辞】本研究の一部は、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（データ創出・活用型磁性材料研究拠点）JPMXP1122715503、内閣府総合科学技術・イノベーション会議の戦略的イノベーション創造プログラム (SIP)第3期「マテリアル事業化イノベーション・育成エコシステムの構築 マテリアルユニコーン育成のための材料情報基盤連携と人材創出」の助成をいただきました。

ストラクチャル・ホール理論に基づく
画期的研究発生メカニズム解明(Ⅱ)

The mechanism of occurrence of breakthrough scientific research
based on Structural Hall Theory (Ⅱ)

福岡女子大, 品川啓介

Fukuoka women's Univ.

E-mail: k.shinagawa@fwu.ac.jp

経営学の主要理論の一つであるストラクチャル・ホール理論をベースに新しい科学知識の発生過程を検証する. この理論では「思考の同質性を有する人々の社会的繋がりで構成されるクラスターと, それとは異なる同質性からなるクラスターが存在する場合, この二つを繋ぐ人(=ストラクチャル・ホール)が現れると, そこに両クラスターの情報が流入し新規性のあるアイデアが生まれ易くなる」と解釈される. その一方でこの理論を用い, 任意の自然科学分野で生まれた新概念 (=科学論文の著者キーワード) における共起関係の時系列的観察を行い, 新規性のある知識が発生する過程を議論するものはない. そこで青色 LED 開発において競合した GaN 結晶開発研究および ZnSe 開発研究を対象に, 比較分析を行った. なお, これらの研究の結果, 現在青色 LED の発光素材には GaN 結晶が用いられている.

先ず両研究の論文累積数を科学進歩の代理変数として推移をプロットしたところ, 両研究ともイノベーションの普及理論で論じられるロジスティック式に従う増加が見られ, それは 1991 年ころから始まっていることがわかった (増加の起点は前回報告のリニア式を用い決定した). 次に, この年に両研究において新規性のある知識が発生していると仮定し, この年以前より著者キーワードが共起関係を築いていく推移を観察した. その結果, 前者においては後にノーベル物理学賞を受賞する研究 (Nakamura (1991)) に用いられたキーワードがストラクチャル・ホールに位置する結果が得られた. また, 後者においては, ストラクチャル・ホールに位置すると捉えるには難しい箇所に, 当時画期的とされた研究 (Haase et al., (1991); 3M 社の青色レーザーダイオードの研究) のキーワードが発見された. 本研究は JSPS 科研費 JP23K01513 の助成を受けたものです.

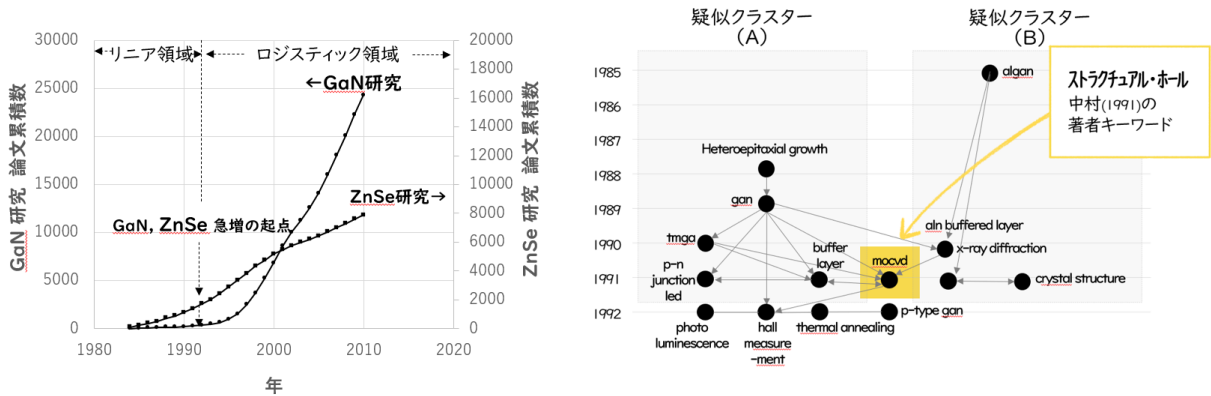


図1. GaN研究とZnSe研究の論文累積数推移
(Scopusにて著者が調査した結果)

図2. GaN結晶開発研究の共起キーワード推移
(1985年~1993年の累積結果)

23 Joint Session N "Informatics" | Oral presentation : 23.1 Joint Session N "Informatics"

[20p-A21-1~11] 23.1 Joint Session N "Informatics"

[20p-A21-1]

Identification of High-dimensional Dynamical Systems
via Multi-trajectory Dynamic Mode Decomposition

○Ryoji Anzaki¹, Shota Yamada¹, Takuro Tsutsui¹, Takahito Matsuzawa¹ (1.Tokyo Electron Ltd.)

[20p-A21-2]

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

○Takanao Sakamoto¹, Kutsukake Kentaro^{1,2}, Harada Shunta^{1,2}, Toru Ujihara^{1,2} (1.Grad. Sch. Eng., Nagoya Univ., 2.IMaSS Nagoya Univ.)

[20p-A21-3]

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

○Keichi Osada¹, Teruyuki Katsuoka¹, Riku Tanaka¹, Fumiya Kawate¹, Shota Seki¹, Sepasy Saeed², Yoshifumi Watanabe² (1.Aixtal, 2.Mipox Corporation)

[20p-A21-4]

Examination of optimization methods for overall optimization of cascade process

○(M2)Ryotaro Kasahara¹, Kentaro Kutsukake^{1,2}, Shunta Harada^{1,2}, Toru Ujihara^{1,2} (1.Grad. Sch. Eng., Nagoya Univ., 2.IMass Nagoya Univ.)

[20p-A21-5]

Synthesis of superconducting alloys using automatic arc furnace system

○Kensei Terashima¹, Wei-Sheng Wang^{1,2}, Yoshihiko Takano^{1,2} (1.NIMS, 2.Univ. of Tsukuba)

[20p-A21-6]

Size-controlled robotic powder grinding

○(M1)Ryusei Takamoto^{1,3}, Yusaku Nakajima^{1,3}, Yasuo Takeichi^{1,3}, Masashi Hamaya², Yoshitaka Ushiku², Kanta Ono^{1,3} (1.Osaka Univ., 2.OSX, 3.SRN-OTRI Osaka Univ.)

[20p-A21-7]

Development of Automated Powder Dispensing System for Autonomous Materials Synthesis Experiments

○Takuya Miyajima^{1,2}, Yusaku Nakajima^{1,2}, Yasuo Takeichi^{1,2}, Kanta Ono^{1,2} (1.Osaka Univ., 2.SRN-OTRI Osaka Univ.)

[20p-A21-8]

Robotic Mechanochemical Reaction Control by Compressive and Shear Stresses

○Yusaku Nakajima^{1,2}, Kai Kawasaki^{1,2}, Yasuo Takeichi^{1,2}, Hasashi Hamaya³, Yoshitaka Ushiku³, Kanta Ono^{1,2} (1.Osaka Univ., 2.SRN-OTRI Osaka Univ., 3.OMRON SINIC X)

[20p-A21-9]

Chemical reaction control using robotic mechanochemical synthesis

○(M1)Kai Kawasaki^{1,2}, Yusaku Nakajima^{1,2}, Yasuo Takeichi^{1,2}, Masashi Hamaya³, Yoshitaka Ushiku³, Kanta Ono^{1,2} (1.Osaka Univ., 2.SRN-OTRI Osaka Univ., 3.OSX)

[20p-A21-10]

The Challenges of Often Overlooked Data Management in Automated Experiments

○Saito Kotaro¹, Yusaku Nakajima², Yuto Yotsumoto², Kai Kawasaki², Kanta Ono² (1.Randefelt, 2.Osaka Univ.)

[20p-A21-11]

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

○Toshiro Osawa^{1,2}, Asako Yoshinari^{1,2}, Yasunobu Ando³, Tarojiro Matsumura⁴, Masato Kotsugi¹, Naoka Nagamura^{1,2} (1.Tokyo Univ. of Sci., 2.NIMS, 3.Tokyo Tech, 4.AIST)

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¹, [○]安崎 遼路¹, 山田 翔太¹, 筒井 拓郎¹, 松沢 貴仁¹Tokyo Electron Ltd.¹, [○]Ryoji Anzaki¹, Shota Yamada¹, Takuro Tsutsui¹, Takahito Matsuzawa¹E-mail: 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のに対応する。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]。

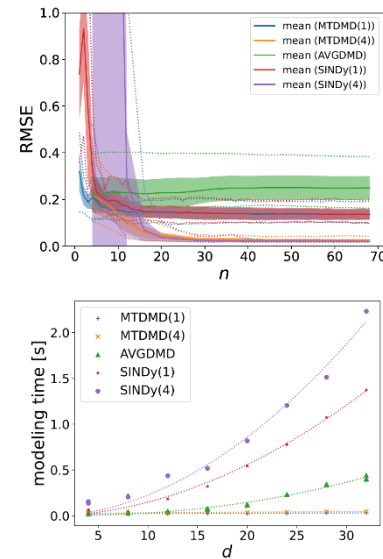


Fig. 1. Top panel: Root mean squared reconstruction error (RMSE) vs. the number of train data n . Bottom panel: modeling time vs. spatial dimension d of the system.

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_{μ}, B_{μ} and a time-dependent input vector $u(t)$ for $\mu = 1, 2, 3, 4$. Each variation μ 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}_{μ} 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¹, 名大未来研²○坂本 隆直¹, 沓掛 健太朗^{1,2}, 原田 俊太^{1,2}, 宇治原 徹^{1,2}Grad. Sch. Eng., Nagoya Univ.¹, IMaSS Nagoya Univ.²○Takanao Sakamoto¹, Kentaro Kutsukake^{1,2}, Shunta Harada^{1,2}, Toru Ujihara^{1,2}

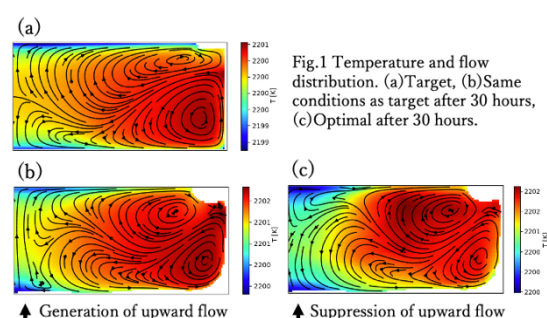
E-mail: sakamoto.t@unno.material.nagoya-u.ac.jp

【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¹⁾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²⁾。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³⁾。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¹, Mipox 株式会社² ○長田 圭一¹, 勝岡 輝行¹, 田中 陸久¹, 川手 章也¹, 関 翔太¹, セパシィ サイド², 渡辺宣文²

Aixtal¹, Mipox Corporation², °Keiichi Osada¹, Teruyuki Katsuoka¹, Riku Tanaka¹, Fumiya Kawate¹, Shota Seki¹, Sepasy Saeed², Yoshifumi Watanabe²

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。

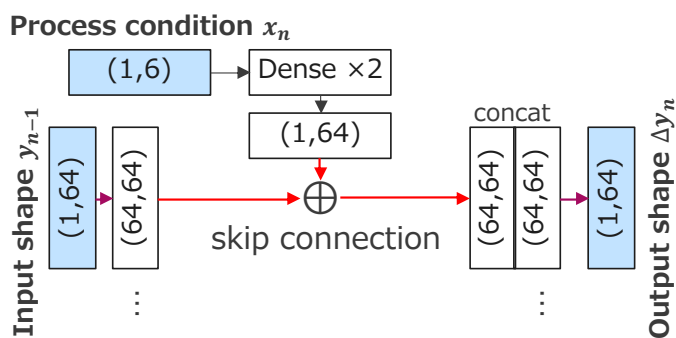


Fig. 1 Schematic diagram of proposed skip connection.

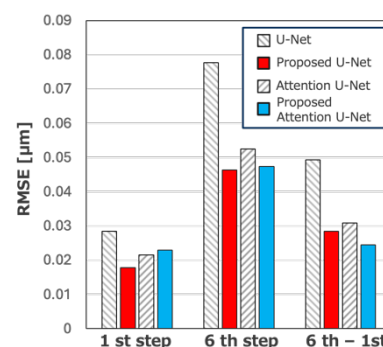


Fig. 2 Results of RMSE via repeated prediction.

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¹, 名大未来研²

○(M2) 笠原 亮太郎¹, 沓掛 健太郎^{1,2}, 原田 俊太^{1,2}, 宇治原 徹^{1,2}

Graduate School of Engineering, Nagoya Univ.¹, IMass Nagoya Univ.²

°Ryotaro Kasahara¹, Kentaro Kutsukake^{1,2}, Shunta Harada^{1,2}, Toru Ujihara^{1,2}

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)^[1]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。

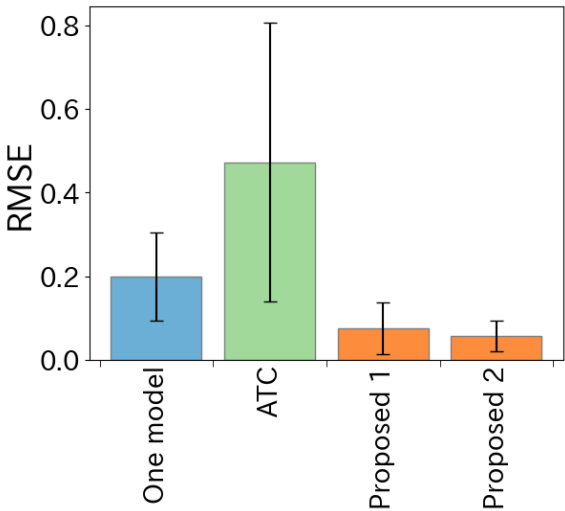


Fig. 1 Result of overall optimization in 5 process.

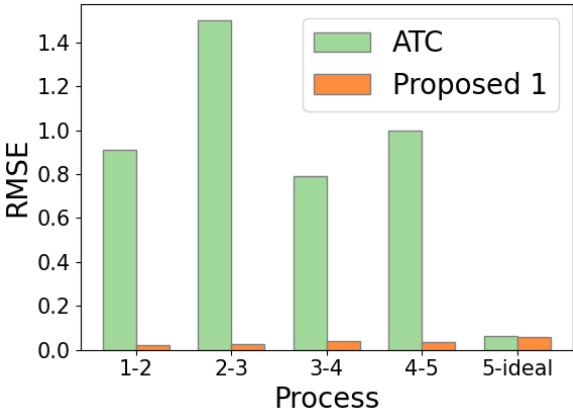


Fig. 2 RMSE of the optimal solution for each process.

【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

NIMS¹, 筑波大², °寺嶋 健成¹, (D2)王 威勝^{1,2}, 高野 義彦

NIMS¹, Univ. of Tsukuba², °Kensei Terashima¹, Wei-Sheng Wang^{1,2}, 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。

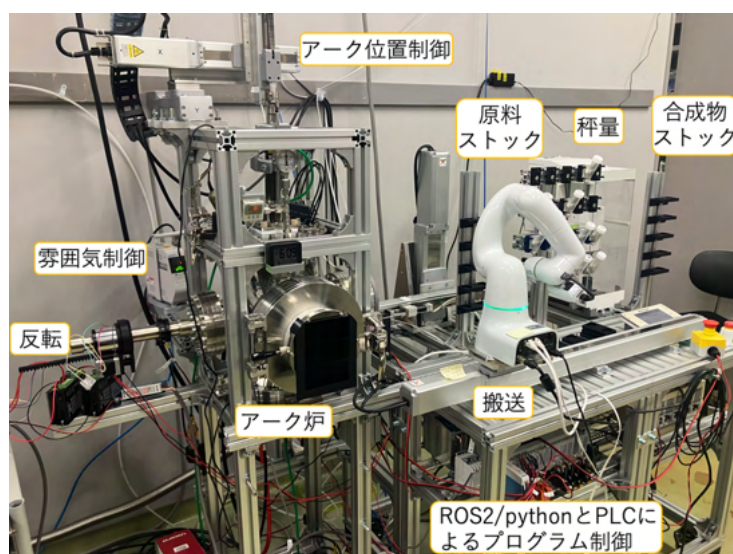


図 1 構築した自動アーク炉。XRD 測定は今のところ手動

[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¹, OSX², 阪大 OTRI スピン³, ○(M1)高本 龍世^{1,3}, (D)中島 優作^{1,3}, 武市 泰男^{1,3},
濱屋 政志², 牛久 祥孝², 小野 寛太^{1,3}

Osaka Univ.¹, OSX², SRN- OTRI Osaka Univ.³, ○Ryusei Takamoto^{1,3}, Yusaku Nakajima^{1,3},
Yasuo Takeichi^{1,3}, Masashi Hamaya², Yoshitaka Ushiku², and Kanta Ono^{1,3}

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)

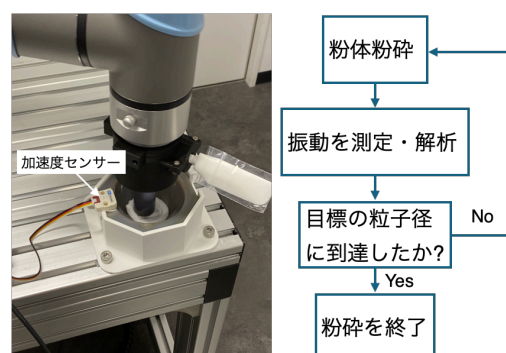


Figure1. Size-controlled grinding process with a robotic arm.

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¹, 阪大 OTRI スピン², ○(B) 宮島 拓也^{1,2}, 中島 優作^{1,2}, 武市 泰男^{1,2}, 小野 寛太^{1,2}

Osaka Univ.¹, SRN-OTRI Osaka Univ.²,

○Takuya Miyajima^{1,2}, Yusaku Nakajima^{1,2}, Yasuo Takeichi^{1,2}, Kanta Ono^{1,2}

E-mail: takuya_miyajima@ap.eng.osaka-u.ac.jp

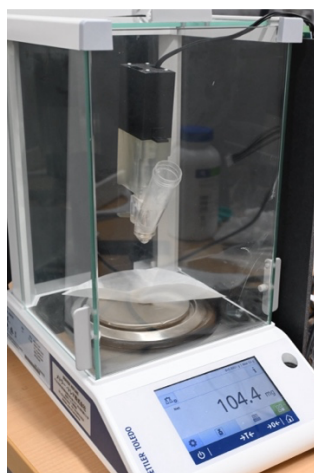


Figure1. Automated powder dispensing machine and electronic balance

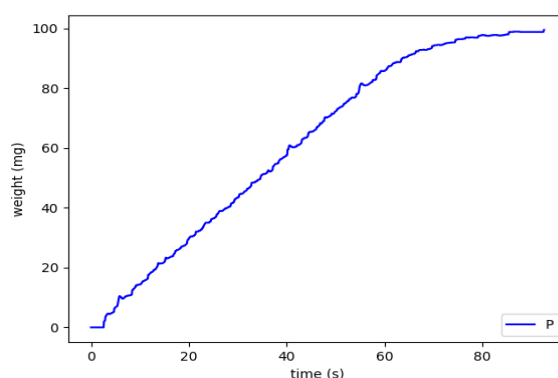


Figure2. Mass change of CeO₂ powder over time using proportional control

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¹, 阪大 OTRI スピン², オムロンサイニックス株式会社³

○(D2)中島 優作^{1,2}, 川崎 海^{1,2}, 武市 泰男^{1,2}, 濱屋 政志³, 牛久 祥孝³, 小野 寛太^{1,2}

Osaka Univ.¹, SRN-OTRI Osaka Univ.², OMRON SINIC X Corporation³

○Yusaku Nakajima^{1,2}, Kai Kawasaki^{1,2}, Yasuo Takeichi^{1,2}, Masashi Hamaya³, Yoshitaka Ushiku³,

Kanta Ono^{1,2}

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 CsPbBr₃ と Cs₄PbBr₆ 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 Cs₄PbBr₆ が CsPbBr₃ 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).

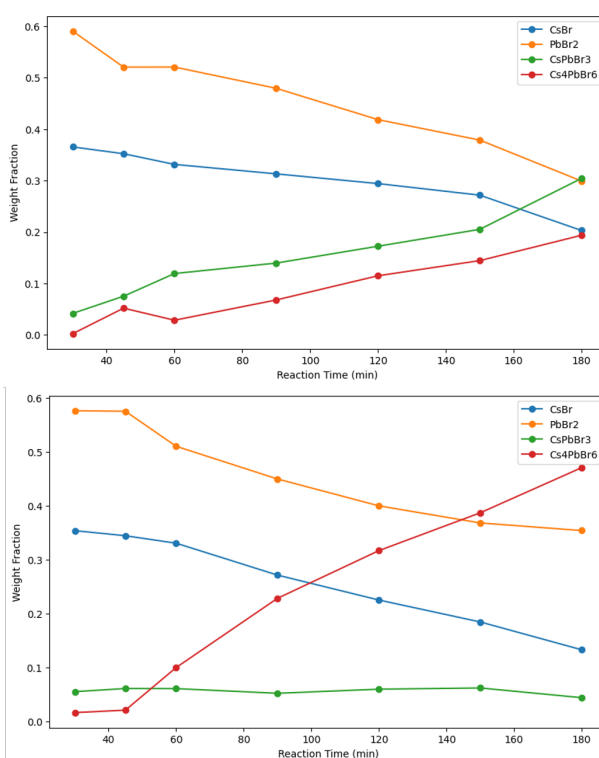


Fig1. The reaction process under different milling speeds. The vertical axis represents the weight fraction, and the horizontal axis represents the reaction time. The upper figure corresponds to a milling speed of 0.5 seconds per rotation, while the lower figure corresponds to a milling speed of 1 second 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¹, 阪大 OTRI スピン², オムロンサイニックス株式会社³

○(M1)川崎 海^{1,2}, 中島 優作^{1,2}, 武市 泰男^{1,2}, 濱屋政志³, 牛久祥孝³, 小野 寛太^{1,2}

Osaka Univ.¹, SRN-OTRI Osaka Univ.², OMRON SINIC X Corporation³

○Kai Kawasaki^{1,2}, Yusaku Nakajima^{1,2}, Yasuo Takeichi^{1,2}, Masashi Hamaya³, Yoshitaka Ushiku³,
Kanta Ono¹²

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。

PbBr₂ の粒径約 30 μm 程度に対し、CsBr の粒径(小)100 μm 未満と(大)約300 μm 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¹, 阪大工² ○斉藤 耕太郎¹, 中島 優作², 四本 優斗², 川崎 海², 小野 寛太²Randeft¹, Osaka Univ.² °Kotaro Saito¹, Yusaku Nakajima², Yuto Yotsumoto², Kai Kawasaki²,Kanta Ono²

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¹, 物材研², 東工大化生研³, 産総研⁴ ○(M1)大澤 俊郎^{1,2}, (D)吉成 朝子^{1,2},
安藤 康伸³, 松村 太郎次郎⁴, 小嗣 真人¹, 永村 直佳^{1,2}

Tokyo Univ. of Sci.¹, NIMS², Tokyo Tech³, AIST⁴, °Toshiro Osawa^{1,2}, Asako Yoshinari^{1,2}, Yasunobu Ando³,
Tarojiro Matsumura⁴, Masato Kotsugi¹, Naoka Nagamura^{1,2}

E-mail: 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^[1,2]。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^[3,4]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/>

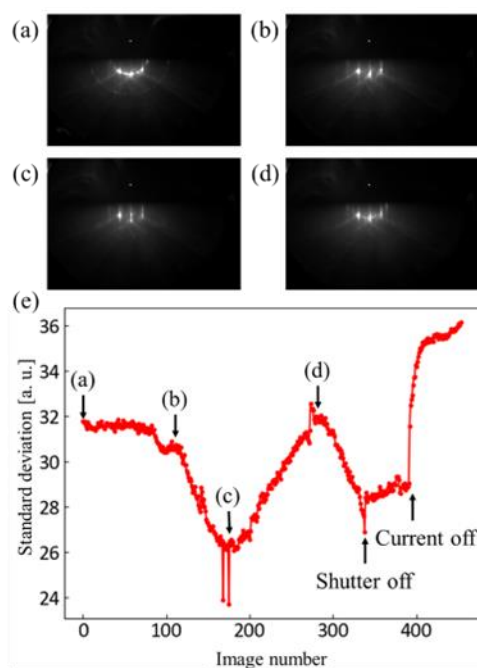


Fig. 1 RHEED pattern after (a) 0 sec, (b) 150 sec, (c) 220 sec, (d) 350 sec deposition, and (e) Image number vs. standard deviation of a peak component of the luminance histogram