

## 放射光計測と研究室を結ぶ—AI と自動化による高付加価値モデル



小野 寛太  
Ono Kanta

### 1 はじめに

マテリアルは我々の生活のあらゆる場面で重要な役割を担っている。人類の歴史はマテリアル研究開発の歴史そのものであるといっても過言ではなく、石器時代（石）、青銅器時代（銅）、鉄器時代（鉄）やその後の産業革命（繊維や鉄鋼）、情報革命（シリコン）においても、文明の発展にはその時代の最先端のマテリアル開発が大きな役割を担ってきた。人類の将来に向けたカーボンニュートラル実現では、クリーンなエネルギーの生成、送電、蓄電等が必要となるが、これらのすべてにおいて非常に厳しい性能仕様を満たす新たなマテリアル開発が不可欠であり、マテリアル研究開発プロセスを効率的に進めなければグローバルな社会課題を解決することはできない。社会課題の解決のためには、革新的マテリアル研究開発を飛躍的に効率化することが急務である。このためにはAI及びロボットを活用した自律型マテリアル研究開発システムの実現が不可欠であると考えている。

革新的なマテリアル研究開発のためには、原子レベルで物質の結晶構造や局所構造をマイクロに知ることだけでなく、微細組織や界面等メゾスケール構造、更には素材・製品として用いられるマクロスケールに至る階層的な不均一構造の情報を明らかにし、そこからマテリアルの知識を抽出することにより、マルチスケールでの階層的不均一構造とマテリアル特性・マテリアルプロセスとの相関を解き明かすこと

が不可欠である。

このような階層的不均一構造の解明には放射光計測は非常に有用である。放射光計測をマテリアル研究開発に更に役立てるためには、計測から（学術的・産業的に）どれだけの価値が生み出されるか、という指標を高めていくことが重要となると考え、数理学を活用した高効率・高精度かつ自律的な計測・分析・評価技術の研究開発を進めてきた。筆者らが目指しているのは、マテリアルのマイクロからマクロスケールに至る階層的な不均一構造を、自律的に全自動で定量的に計測・分析・評価することを可能とする、革新的な自律型マテリアル計測・分析・評価 Characterization as a Service (CaaS) システムを実現し、CaaSによるマテリアル計測・分析・評価の変革をマテリアルプロセスの革新につなげることである。CaaSにより、放射光計測をはじめとする計測をコモディティ化することにより、マテリアルの計測・分析・評価から生み出される価値を飛躍的に高め、マテリアルズインフォマティクスに代表されるAIを活用したマテリアルデザイン、更にはロボットによる自律型マテリアル実験システム (Self-driving Laboratory) との連携によりマテリアル研究開発プロセスすべての高速化を実現することを目指して研究を進めている。

### 2 放射光計測の自動化の要素技術

放射光計測・解析をはじめとした計測・分析・評

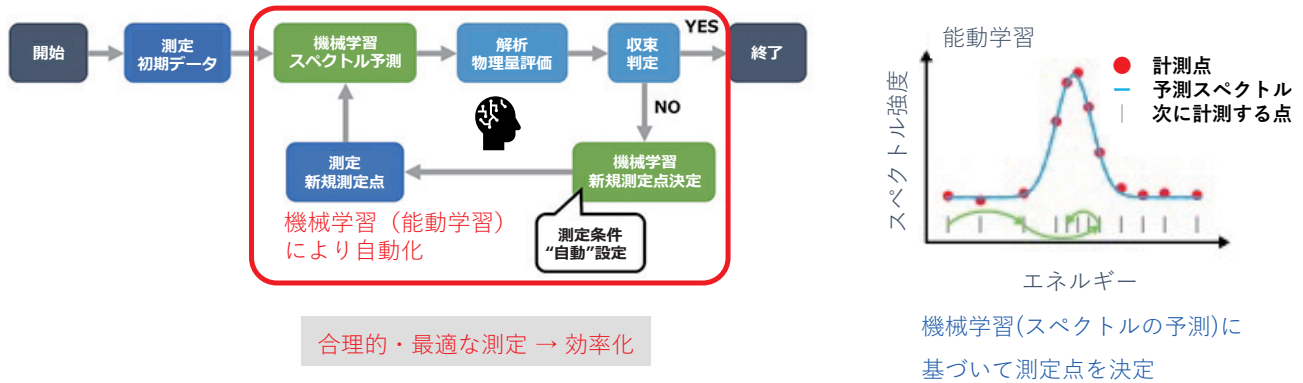


図1 能動学習により合理的な実験計画を自動で策定する手法の模式図

粗い計測点からスペクトル全体を予測すると共に、最も不確実性の大きいエネルギーを次の計測点とすることで合理的かつ効率的な計測を実現している

価にはさまざまな暗黙知に基づく意思決定が含まれている。AIを活用することにより、それらの暗黙知を定式化することを試み、放射光計測の自動化・自律化に向けた要素技術に関する研究を行ってきた。計測の自動化・自律化の要素技術とこれまでにを行った研究について紹介する。

### 3 計測：実験計画の自動策定

#### 3-1 合理的な実験計画を自動で策定<sup>1)</sup>

マテリアル計測・分析・評価においては、所望の情報を最短の時間で効率的に取得するための実験計画を自動で策定することが不可欠である。従来法では計測を行う前にすべての計測条件をあらかじめ設定していたため、必要以上の計測点数や計測時間等ムダが発生していた。図1に示すように能動学習により、計測中に計測結果を予測し、計測データから次に計測すべき点を決定し、合理的な実験計画を自動で策定することを可能にした。ガウス過程回帰を用いて計測途中のデータから未知の計測点における平均（計測結果の予測）と標準偏差（計測における不確実性）を求めた。計測の不確実性が小さくなるよう、次に計測すべき点を決定した。新たに考案した実験計画により、従来法と比べて5分の1の時間で従来と同等以上の精度で物理量を求めることができることを明らかにした。

#### 3-2 実験を停止する判断の自動化<sup>2)</sup>

計測等実験全般において、いつ実験を終了するかということは、合理的な研究開発を進める上で非常

に重要なポイントである。マテリアル計測・分析・評価において、実験を終了する判定基準を合理的に定めた研究はこれまでなかった。筆者らは統計的学習理論に基づき、（人間が知ることができない）真の実験結果と計測データとの間の誤差の上界を期待汎化誤差として求めることに成功した。計測ごとに期待汎化誤差の改善率、すなわち誤差率を求め、合理的に実験を終了するための理論を構築した。X線吸収スペクトル計測に適用することにより、合理的に計測実験を自動終了することに成功した。

### 4 解析：専門家以上の精度かつ高速に自動で行うデータ解析

#### 4-1 AIを活用し熟練者を上回る精度を実現するマテリアル構造解析の自動化<sup>3)</sup>

計測データからマテリアル情報を抽出する計測データ解析は、マテリアル計測・分析・評価プロセスの根幹を成す技術である。従来法ではデータ解析は熟練者が自ら行っていることがほとんどで、データ解析の自動化は進んでいない。X線回折で用いられるリートベルト解析は非常に多くのパラメータを最適化する必要があり、多数の局所解が存在することから、正しい解析を行うためには熟練が必要であった。筆者らは計測データ解析を最適化問題として解決することを着想し、ブラックボックス最適化を用いて解決した。筆者らの研究成果により、熟練者が数時間～数日かかっていたリートベルト解析について、10分程度で熟練者以上の信頼性での解を

## 自動結晶構造解析システム

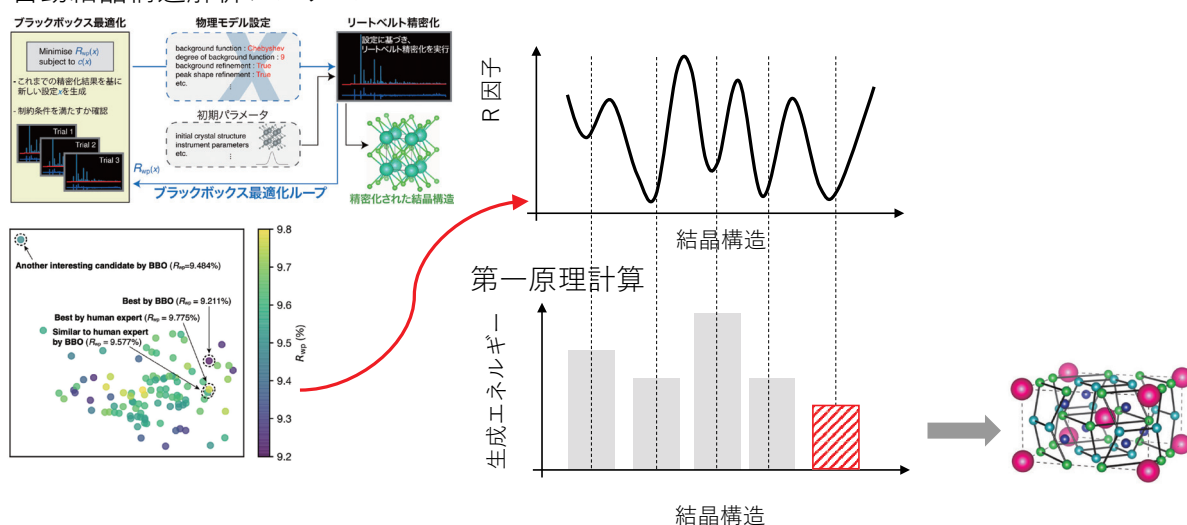


図2 粉末X線回折実験からリートベルト解析，第一原理計算を経て，合理的な結晶構造を自動で推定可能な自動結晶構造解析システムの模式図

導くことに成功した。

### 4-2 AIを活用し熟練者を上回る精度を実現するスペクトル解析の自動化<sup>4)</sup>

材料の電子状態・化学状態の評価にはX線ラマン等スペクトル解析が用いられている。筆者らは機械学習技術をX線スペクトル解析に適用した。多様体学習及び距離学習と呼ばれる機械学習により，スペクトル間の類似度を初めて明らかにした。また，求めたい物理量とスペクトルの類似度との関係解明により電子状態・化学状態に関わる物理量を直接推定した。従来は熟練者が1つのスペクトルの解析に1分程度かかっていたが，開発手法では1スペクトル当たり100 $\mu$ s程度で解析可能とした。10万倍以上の高速化により，従来は不可能であった顕微分光データの100万本のスペクトルの解析を可能にした。

## 5 評価：実験データの解析結果をAIが解釈し定式化・意思決定

### 5-1 実験データをAIが解釈し熟練者の勘・コツ・経験を定式化<sup>5)</sup>

材料研究開発プロセスにおいて重要なことは，計測データから材料に関する知見を引き出すことである。これらには実験データ及びその解析結果を解釈し，科学法則として定式化することな

どの意思決定が必要となる。熟練者の意思決定に関わる問題は，これまでほとんど研究されていない。解釈可能な機械学習技術である決定木を用いることにより，X線回折パターンから結晶格子の対称性や空間群を推定するルールを定式化することに成功し，実験データをAIが解釈し熟練者の勘・コツ・経験を定式化する技術を確立した。

### 5-2 物理シミュレーションと実験データ解析の融合による熟練者の意思決定の自動化<sup>6)</sup>

熟練した研究者は，実験結果とシミュレーション結果とを見比べることで，数あるモデルの中から最も適したモデルを選択する等の意思決定を行っている。筆者らは図2に示すように，計測データ解析と物理シミュレーション（第一原理計算）とを組み合わせることにより，熟練者の意思決定を代替することに成功し，最も適したモデルを選択するための自動化技術の開発に成功した。極めて構造の複雑な磁石材料の磁気構造解析に適用し，熟練者が磁気構造決定に数日を要していた解析について，全自動かつ15分で正しい解を得られることを示した。

## 6 自律型材料研究開発のための要素技術

### 6-1 過去の文献情報から将来有望となる研究トピックスを自律的に発見する技術<sup>7)</sup>

材料デザイン・合成から解析・機能解明ま

で AI ロボットが実施するためには、過去の膨大な文献情報を AI を用いて探索し過去の文献情報から将来有望となる研究トピックスを自律的に発見することが重要となる。筆者らは自然言語処理を用いた大量の論文データの解析と、抽出キーワード間のネットワーク解析によりキーワードの時系列変化を予測し、将来の研究動向を予測することに成功した。この技術により、AI が予測した有望な研究のアイデアを AI ロボットによるマテリアル合成・解析・機能解明で実現することが可能となるほか、AI から触発されたヒラメキを研究者にフィードバックすることにより、科学研究の進歩に役立てることが可能となる。

## 6-2 AI・ロボットを活用したマテリアル研究開発システムの研究<sup>8)</sup>

筆者らはマテリアルの研究開発で重要となる、無機化合物の全自動合成をターゲットとして、粉体試料をハンドリング、粉碎、混合し、少量多品種での無機化合物合成が可能な AI ロボットシステムを開発している。将来的にはマテリアル合成や試料準備（試料の粉碎、搬送等）もロボットでの実装を目指し現在研究開発中である。

## 7 放射光計測と研究室を結ぶ～大規模放射光計測データの取得と共有・公開を通じた知の創出～

序文でも述べたが、地球温暖化抑制やカーボンニュートラル実現等地球規模の問題解決には、革新的なマテリアルが鍵を握っている。革新的なマテリアルの効率的な探索のためには、ミクロからマクロスケールに至る材料の複雑な階層的不均一構造と化学状態・電子状態との相関を実験的に観察し、材料特性発現メカニズム解明や新材料設計、材料プロセス最適化に繋げることが不可欠である。しかしながら、材料の階層的不均一構造のデータ取得が困難であるためデータセットが存在せず、データを利活用できていないことや AI を活用したデータ駆動型研究及びデータ駆動での新材料設計等につなげていないことが問題である。

材料の階層的不均一構造とその化学状態・電子状態に関する膨大な実験データ取得を目的として、筆者らはミクロからマクロスケールに至る階層的不均一構造を計測するギガピクセル X 線顕微鏡 (G-XRM)

を開発した。G-XRM ではセンチメートル領域をナノメートルの空間分解能ですべて観察する。10 億ピクセルの画素の全ピクセルで X 線吸収スペクトル計測するため、電池材料、構造材料等の材料について 1 回の計測（数時間～10 時間）により 10 億本のスペクトルが得られ、X 線吸収スペクトルの解析により化学状態・電子状態の情報が得られる。このように G-XRM は材料の階層的不均一化学状態に関する大規模実験データセットを創出する画期的な計測手法である。G-XRM で得られた大規模計測データセットの効率的な解析・可視化により得られた材料に関する知見は、新材料・プロセス開発にフィードバック可能となる。本実験データセットには膨大な材料情報が含まれるため、データセットを研究者間で共有・公開し、それぞれの目的に応じた解析・可視化をオンデマンドで行うことで材料開発に多大な貢献が期待される。X 線顕微鏡は、はやぶさ 2 がリュウグウで採取した試料の解析に利用されている、G-XRM による大規模実験データセットの創出はマテリアル分野だけでなく、生命科学や惑星科学など広い自然科学コミュニティでの利活用が期待される。

大規模放射光計測データセットの創出で課題となるのは、G-XRM により計測・創出したこれらの大規模実験データセットを効率的に解析し、研究者間で共有、更には論文化が終わったデータセットを公開することにより、材料研究コミュニティ等で利活用し、コミュニティ全体で知の創出を目指すためのエコシステムが存在しないことである。そこで筆者らは大規模放射光計測データの共有・公開を通じた知の創出のためのエコシステム構築を目指した研究を進めている。

一例を紹介すると、G-XRM で創出された大規模実験データ（1 データセット当たりスペクトル 10 億本）から自然科学に有用な情報を抽出し、データを利活用することにより知の創出を目指す。そのためには、1 回の計測で生み出されるテラバイトスケールの大容量データを解析するための計算基盤、及び膨大なデータの中から有用な情報を抽出するためのデータ科学的解析手法の構築が不可欠である。また、放射光施設における大規模放射光計測データセット取得、データ管理、研究室でのデータ解析及びデータ利活用による知の創出のプロセスにおいて、それ

.....

それぞれの場所は地理的にも離れていることも多く、放射光計測と研究室を結び、各グループ間でデータ及び解析手法を共有する仕組みを構築する必要がある。

これらの「放射光計測と研究室を結ぶ」エコシステム構築により、マテリアル・生命科学・惑星科学等の広範な分野でのデータ共有・利活用が促進される。更に、放射光計測データについて秘匿性を担保しながら解析・共有する仕組みを構築し、産業界での材料創出を飛躍的に効率化することを目指した研究を進めている。

## 参考文献

---

- 1) Tetsuro, Ueno, *et al.*, *npj Computational Materials*, **4**, 4 (2018)
- 2) Tetsuro, Ueno, *et al.*, *npj Computational Materials*, **7**, 139 (2021)
- 3) Yoshihiko, Ozaki, *et al.*, *npj Computational Materials*, **6**, 75 (2020)
- 4) Yuta, Suzuki, *et al.*, *npj Computational Materials*, **5**, 39 (2019)
- 5) Yuta, Suzuki, *et al.*, *Scientific Reports*, **10**, 21790 (2020)
- 6) Munehisa, Matsumoto, *et al.*, *Physical Review Applied*, **13**, 064028 (2020)
- 7) Eri, Teruya, *et al.*, *Machine Learning: Sci. Technol.*, **3**, 025005 (2022)
- 8) Yusaku, Nakajima, *et al.*, *2022 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems (IROS)*, 2320-2326 (2022)

(大阪大学大学院工学研究科)