

## 先端計測とマテリアル研究開発の自律化



研究室紹介

小野寛太\*

Autonomous Experimentation in Materials Science  
and Advanced Measurement Techniques

Key Words : Autonomous experimentation, Materials informatics

### はじめに

マテリアルはわれわれ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であるといっても過言ではない。石器時代(石)、青銅器時代(銅)、鉄器時代(鉄)に続き、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、その時代における最先端のマテリアル研究開発が人類の発展に大きな役割を担ってきた。

われわれの将来に目を向けると、2050年カーボンニュートラルの実現に向けて、クリーンなエネルギーの生成、送電、蓄電などが必要となる。カーボンニュートラル実現に必要な上記の全てのプロセスにおいて、非常に厳しい性能仕様を満たし、なおかつ希少資源を使わず持続可能であり、さらには安全性も担保されたマテリアルが必要とされている。要求される仕様は年々複雑化しており、全てを満たすマテリアルを生み出し、カーボンニュートラル実現のためには、従来のマテリアル研究開発手法とは異なる。新たなイノベーションが不可欠である。

われわれの研究室では、工学から新しい物理学を生み出し、マテリアル研究開発に新たなイノベーションを起こすことを目的として、これまで知ることができなかった現象を観るための先端計測技術開発を行うとともに、マテリアル研究のための新しい人

工知能(AI)アルゴリズムや最先端の智能ロボット科学の活用による自律型研究システム(プラットフォーム)を構築するための要素技術の研究を行っている。

### マテリアル研究開発への情報科学技術の応用

ハードウェアおよびソフトウェアの両面での情報科学の進展に伴う、計算機の計算能力の飛躍的な発達と人工知能技術の発展により、従来は取り扱うことが不可能であった大量かつ複雑なデータを取り扱うことが可能になってきた。また、データから有用な情報や新しい知識を抽出することが可能となり、さまざまな分野に変革をもたらしている。これら情報科学を活用した材料科学が一分野として確立し、マテリアルズインフォマティクス(MI: Materials Informatics)と呼ばれ、国内外で盛んに研究されている。マテリアルズインフォマティクスの導入により、マテリアル研究開発は大きなメリットがもたらされると考えられている。例えば新物質の探索や材料特性の改善といったマテリアル研究開発において、新物質から最終製品に至るまでのプロセス工程には莫大な数のパラメータが存在し、マテリアル研究開発とは莫大な数のパラメータからなる多次元の探索空間から最適プロセス条件を見出す最適化と考えることができる。一方で多次元の探索空間から最適解を効率的に見出すことが困難であることは容易に想像がつくであろう。さらに、複数の材料特性の両立やコスト、環境安全性など、多数の目的を達するように同時に最適化することも求められる。これらのマテリアル研究開発のパラメータ探索は、従来は熟練した人間が勘・コツ・経験といった暗黙知をもとに行われてきたが、さらに複雑化するパラメータ探索を人間が行うことは事実上不可能になりつつある。このように、次世代のマテリアル研究開発で求めら



\* Kanta ONO

1969年1月生まれ  
東京大学大学院 理学系研究科 化学専攻  
攻博士後期課程(1996年)  
現在、大阪大学大学院 工学研究科  
物理学系専攻 教授 博士(理学)  
TEL: 06-6879-7842  
E-mail: ono@ap.eng.osaka-u.ac.jp

れるデジタル化は、人間が行っていた単純作業をソフトウェアやロボットに繰り返し実行させるような単なる自動化ではない。そこで、新たに必要とされる自律型システムでは、熟練者の勘・コツ・経験といった明文化されていない暗黙知に基づく意思決定を含め、未知の状況にも柔軟に対応できるシステム構築が重要となる。また、マテリアル研究開発プロセスにおいては、人間には簡単でもロボットには難しい操作が多数含まれている。それらのプロセスの自動化・自律化に向けては最先端のロボット技術などとの融合も不可欠となる。次世代のマテリアル研究開発では、人工知能技術とロボット技術とを活用し、従来は熟練者が行っていた意思決定に関することまで含めて研究開発を完結させることが可能な、自律型の実験システムが実験の短縮や研究開発の効率化には必須であるとわれわれは考えている。

#### 先端計測：高分解能で広い視野の電子状態・化学状態を観測する

現代の複雑化したマテリアルの動作機構解明のためには、高度な計測・解析を駆使し、構造、電子状態・化学状態、材料特性との相関を解き明かすことが不可欠である。先端計測により新しい科学的知見がもたらされることは数多く、近年でもクライオ電子顕微鏡など新しい計測技術に関する研究がノーベル賞を受賞するなど、計測技術と科学研究は密接に結びついている。マテリアル研究開発においても、物質の結晶構造や局所構造を原子レベルで知ることだけでなく、微細組織や界面などメゾスケール構造、さらには材料（部材）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やその構造変化、時空間変化を可視化することで明らかにし、科学的知識へと転換することが必要となる。

そこで、われわれの研究室ではナノスケールの空間分解能でセンチメートルサイズのマテリアルの全領域での構造・電子状態・化学状態を全て計測するギガピクセル X 線顕微鏡 (G-XRM: Giga-pixel X-Ray Microscopy) を開発している。G-XRM は、放射光を用いて入射する X 線のエネルギーを変化させながら、高分解能で大視野を観察することができる X 線顕微鏡装置であり、われわれの研究室で試作したものである。われわれの開発した G-XRM では、1 回の実験で膨大な (10 億本の) スペクト

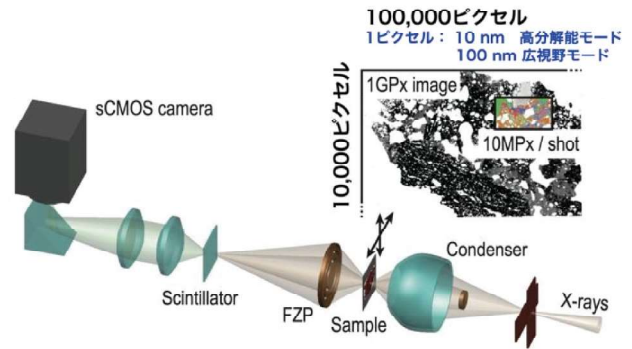


図1 開発した G-XRM の模式図

ルを取得する。これら膨大なスペクトルから、機械学習技術を用いて解析することにより、高い空間・時間分解能で電子状態・化学状態の情報を得ることが可能となる。

#### 先端計測：計測データ解析の自動化・自律化

マテリアルの動作機構解明のためには、最先端の計測技術で計測を行うだけでは不十分であり、むしろ得られた計測データから有用な知見を引き出すことが重要である。計測機器が高性能であれば、得られた計測データ解析は容易であると感じられるかもしれない。材料の分析・評価においては計測データ解析の方が難しいとしばしば言われ、その一因として計測データ解析に熟練が必要であることがあげられる。計測データ解析もマテリアル研究開発と同様に、最適すべきパラメータが膨大な多次元のパラメータ空間の探索問題に帰着されることがほとんどである。熟練した研究者は人間の手で実験やデータ解析が実行可能となるようにパラメータの数を減らすように訓練されていると言われており、このことが計測データ解析に熟練が必要だと信じられている要因となっていると考えている。このように計測データから知見を引き出すためには、高次元の探索空間での効率的なパラメータ探索を行うことが重要であり、それを実現するためには自律型の計測データ解析システムが必要である。

われわれは、マテリアル研究をはじめとした自然科学分野で最も汎用的に使われている計測の一つである X 線回折実験について、自律型の計測データ解析を行なっている。一般的に物質の物性や特性は、その物質の結晶構造に大きく依存する。そのため、結晶構造を実験的に決定することが可能な X 線回

折実験はマテリアル研究開発において最も重要な計測手法となっている。粉末 X 線回折実験では粉末試料に X 線を照射したときに生じる回折 X 線の回折角度依存性を計測し、回折角度に対する強度のデータを取得する。得られた計測データは X 線回折パターンと呼ばれ、含まれる化合物の種類や重量比、結晶構造、結晶粒の大きさなど重要な情報を含んでいる。一方で計測されるデータは回折波の振幅の二乗となっているため、位相情報は失われており、直接的に X 線回折パターンから結晶構造を決定することはできない。

通常の X 線結晶構造解析と呼ばれる手法では、計測で得られた X 線回折パターンと、仮定した結晶構造に関する X 線回折シミュレーションの結果を比較し、結晶構造を変化させ、最も計測結果とシミュレーションが合う結晶構造を求める。この手法は Rietveld 解析と呼ばれ、結晶構造に関する格子定数や原子位置のみならず、装置に関するパラメータなど数 10 から多い時には数 100 に及ぶパラメータを最適化する。結晶構造解析は数 10~数 100 次元のパラメータ空間から最適解を探索する最適化問題と言える。数 10~数 100 次元の高次元パラメータ空間の探索は人間には不可能に思われるが、熟練者は物質に関する専門知識（形式知）と経験則（暗黙知）とを両方駆使することにより、探索空間を狭め結晶構造解析を行ってきた。われわれは結晶構造解析における高次元パラメータ空間の探索をブラックボックス最適化として定式化し、熟練者よりも良いパラメータの探索に成功した。情報科学の進展により、自律的な計測データ解析は、専門知識と経験則が必要とされる計測データ解析において専門家の結果を上回る結果を実現するようになってきている。

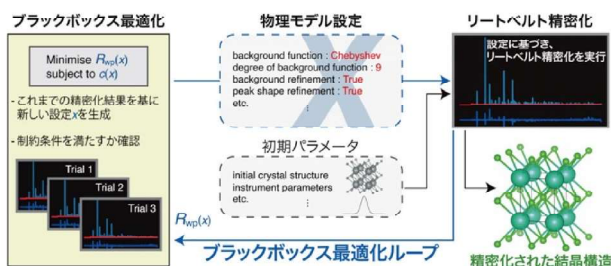


図 2 結晶構造解析の自動化の模式図

## おわりに

従来のマテリアル研究開発では、新しい材料を探索するための研究に着手してから、新材料の発見、改良、社会実装するまでのタイムラインは長い。一般的に新しいマテリアルを市場に出すまでには、10~20年の基礎・応用研究開発が必要だと言われている。このため、マテリアル研究開発には多額の投資が必要となってきている。マテリアル研究開発の自律化、すなわち材料の合成から、特性評価、機構解明などマテリアル研究開発プロセスの自律化と、人工知能技術や知能ロボット技術など新たな科学技術との統合により、材料の探索から改良、実装までのマテリアル研究開発プロセス全体を加速することが可能となり、市場に出るまでの時間を従来の10~20年から数年へと一桁短縮することが期待される。自律型実験システムに関する研究は、アカデミアのみならず産業界にとっても極めて重要である。マテリアル探索・改良・実装プロセスの自律化による研究開発の加速により、潜在的な経済的利益は指数関数的に増大することが見込まれるからである。また、マテリアル研究開発の自律化に早くから着手することによる大きな先行者利益が見込まれ、より多くのシェアを獲得するために必要なノウハウを自前で培うことができることも重要である。

科学研究の自律化について北野宏明は下記のように論じている。「科学的発見そのものの本質を深く理解することが必要であり、「科学の科学」を確立し、自律型実験システムを用いて実際に実行できるようにする必要がある。自律型実験システムが実現するものは、これまで人間の科学者が行ってきた科学研究のプロセスとは似て非なるものであるかもしれない。また、人間の認知的限界と社会的制約に大きく阻まれた現在の科学研究の限界を打ち破る、別の形の科学となるかもしれない。」

新しい科学を構築することが出来るよう、研究を進めていきたいと考えている。

## 参考文献

- 1) Eri Teruya, Tadashi Takeuchi, Hidekazu Morita, Takayuki Hayashi, and Kanta Ono, "ARTS: autonomous research topic selection system using word embeddings and network analysis", Mach. Learn.: Sci. Technol. 3, 025005 (2022).

- 2) 中島優作、羽合孝文、小野寛太、“自立型計測実験システム開発への挑戦”、書籍「研究開発部門へのDX導入によるR&Dの効率化、実験の短縮化」(2022).
- 3) Tetsuro Ueno, Hideaki Ishibashi, Hideitsu Hino, and Kanta Ono, “Automated stopping criterion for spectral measurements with active learning”, *npj Computational Materials* 7, 139 (2021).
- 4) Yoshihiko Ozaki, Yuta Suzuki, Takafumi Hawaii, Kotaro Saito, Masaki Onishi, and Kanta Ono, “Automated crystal structure analysis based on blackbox optimization”, *npj Computational Materials* 6, 75 (2020).
- 5) Yuta Suzuki, Hideitsu Hino, Takafumi Hawaii, Kotaro Saito, Masato Kotsugi, and Kanta Ono, “Symmetry prediction and knowledge discovery from X-ray diffraction patterns using an interpretable machine learning approach”, *Scientific Reports* 10, 21790 (2020).
- 6) Munehisa Matsumoto, Takafumi Hawaii, and Kanta Ono, “(Sm,Zr)Fe<sub>12-x</sub>M<sub>x</sub>(M=Zr,Ti,Co) for Permanent-Magnet Applications: Ab Initio Material Design Integrated with Experimental Characterization”, *Physical Review Applied* 13, 064028 (2020).
- 7) Kotaro Saito, Masao Yano, Hideitsu Hino, Tetsuya Shoji, Akinori Asahara, Hidekazu Morita, Chiharu Mitsumata, Joachim Kohlbrecher, and Kanta Ono, “Accelerating small-angle scattering experiments on anisotropic samples using kernel density estimation”, *Scientific Reports* 9, 1526 (2019).
- 8) Yuta Suzuki, Hideitsu Hino, Masato Kotsugi, and Kanta Ono, “Automated estimation of materials parameter from X-ray absorption and electron energy-loss spectra with similarity measures”, *npj Computational Materials* 5, 39 (2019).
- 9) Tetsuro Ueno, Hideitsu Hino, Ai Hashimoto, Yasuo Takeichi, Masahiro Sawada, and Kanta Ono, “Adaptive design of an X-ray magnetic circular dichroism spectroscopy experiment with Gaussian process modelling”, *npj Computational Materials* 4, 4 (2018).

