

整理番号	- J -	報告者氏名	小飼真人
------	-------	-------	------

研究課題名
機械学習を用いた保磁力改善因子の自動解析

<代表研究者> 機関名：東京理科大学 職名：教授 氏名：小飼真人

<共同研究者> 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：
 機関名： 職名： 氏名：

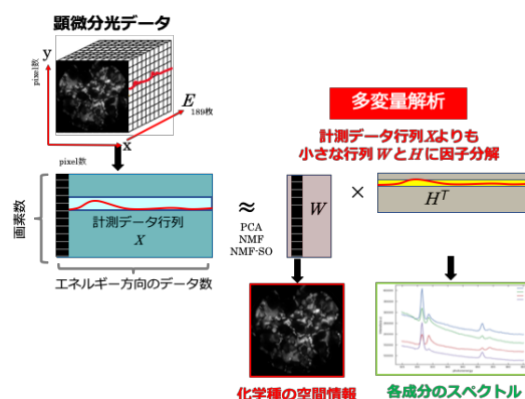
<研究内容・成果等の要約>

電気自動車市場の急速な拡大を背景に、モーターのエネルギー変換効率の向上は社会的かつ産業的な課題である。モーターのエネルギー変換効率は電磁鋼板の鉄損によって決定づけられ、電磁鋼板の保磁力を下げるのが材料工学上の課題となる。その一方で保磁力の理解は単純では無く、金属組織と磁区構造に大きく依存することから、粒界析出相をマッピングすることが課題解決の糸口となる。

本研究では、電気自動車のモーターのエネルギー変換効率向上を目標に、放射光顕微分光と機械学習を用いて、電磁鋼板の保磁力改善因子の自動解析技術を開発した。放射光顕微分光法は、試料表面の微細組織と化学結合状態を数十 nm の高い空間分解能で可視化できる。その反面、得られる大規模顕微分光データを人力で解析することは困難であった。

そこで本研究では、機械学習による多変量解析を活用し、大規模データの中から特徴的なスペクトル情報を抽出すると共に、自動的に化学種のマッピングを行う技術を開発した。多変量解析の利用により、大規模な多変量データを統計的に取り扱い、少数の説明変数で記述することができる。開発では、主成分分析法(PCA)、独立成分分析法(ICA)、非負値行列要素分解法(NMF)など様々な機械学習手法を検討した。また距離尺度の検討、またスペクトルデータのバックグラウンド処理など、実用面の技術的検討を行った。

開発の結果、多変量解析は非負値行列要素分解法が、バックグラウンド処理は Arctangent 法が適切であることを明らかにできた。また CuO の標準スペクトルと NMF による分類結果の類似度を評価したところ、0.939 の相関係数を得ることができた。また分類結果を元の顕微画像に戻したところ、試料の形状が明確に分離できていることを確認できた。この結果から、CuO は適切にクラスタリングできた事が示された。また Cu₂O、Mn および Ti についても良好な結果が得られた。これにより人力では困難であった複雑な構造の解析に利用できることを示せた。



<研究発表（口頭、ポスター、誌上別）>

口頭

- [1] M. Kotsugi “機械学習を用いた放射光顕微分光解析” 応用物理学会ナノインプリント研究会, 11, June (2021) Online
- [2] M. Kotsugi “Microstructure analysis in materials by topological data analysis” IISc-Tokyo University of Science Joint Workshop in Data Sciences, 13 May (2021) Online
- [3] M. Kotsugi, “Coercivity Analysis based on extended Landau free energy landscape” 日本磁気学会学術講演会 16, Dec. (2020) Online
- [4] A. L. Foggiatto, S. Kunii, C. Mitsumata, M. Kotsugi, “Drawing the extended Landau free energy landscape of polycrystalline magnetic thin films”, 16, Dec. (2020) Online
- [5] M. Kotsugi, “自由エネルギーモデリングに基づく材料機能-微細組織の自動解析”, 日本学術振興会, R026 先端計測技術の将来設計委員会, 4. Nov. (2020) Online
- [6] M. Kotsugi, “機能の解釈に踏み込む新しいAI 顕微解析手法の提案”, 日本学術振興会 先端AI 計測委員会, 17. Nov. (2020) Online
- [7] M. Kotsugi “位相的データ解析を用いた磁性材料の機能解析” 位相的データ解析とマテリアルズインフォマティクスのワークショップ 13-14, Nov. (2020), Online
- [8] M. Kotsugi “擬自由エネルギーを用いた多様な安定相の探索：微細組織構造の情報解析” 日本応用物理学会, 8-11, Spr. (2020), Kyoto
- [10] 山本雅大, 大河内拓雄, 小飼真人, “ハイスループットの材料合成・計測・解析に基づく Fe-Cr 二元系合金における 臨界 指数の 導出”, 応用物理学会秋季学術講演会 8-11, Sep. (2020) オンライン
- [11] 西尾直, 山本雅大, 大河内拓雄, 小飼真人, “試料合成・物性計測・情報統計を組み合わせた磁気相転移現象のハイスループット解析”, 応用物理学会春季学術講演会, 12-15 Apr. (2020) , Tokyo, Japan

ポスター

- [1] 西尾直, 山本雅大, 大河内拓雄, 小飼真人 “試料合成・物性計測・情報統計を用いた磁気相転移現象のハイスループット解析” 日本放射光学会年会 10-12, Jan. (2020) Nagoya, Japan. (学生賞)

<研究の目的、経過、結果、考察（5000字程度、中間報告は2000字程度）>

研究の目的

電気自動車市場の急速な拡大を背景に、モーターのエネルギー変換効率の向上は社会的かつ産業的な課題である。モーターのエネルギー変換率は電磁鋼板の鉄損によって決定づけられ、電磁鋼板の保磁力を下げるのが材料工学上の課題となる。その一方で保磁力の理解は単純では無く、金属組織と磁区構造に大きく依存することから、粒界析出相をマッピングすることが課題解決の糸口となる。

本研究では、電気自動車のモーターのエネルギー変換効率向上を目標に、放射光顕微分光と機械学習を用いて、電磁鋼板の保磁力改善因子の自動解析技術を開発した。放射光顕微分光法は、試料表面の微細組織と化学結合状態を数十 nm の高い空間分解能で可視化できる。その反面、得られる大規模顕微分光データを人力で解析することは困難であった。

そこで本研究では、我々は発展の著しいデータサイエンスの手法を活用し、大規模計測データからの自動的な情報抽出を試みた。機械学習による多変量解析を活用し、大規模データの中から特徴的なスペクトル情報を抽出すると共に、自動的に化学種のマッピングを行う技術を開発した。多変量解析の利用により、大規模な多変量データを統計的に取り扱い、少数の説明変数で記述することができる。開発では、主成分分析法(PCA)、独立成分分析法(ICA)、非負値行列要素分解法(NMF)など様々な機械学習手法を検討した。また距離尺度の検討、またスペクトルデータのバックグラウンド処理など、実用面の技術的検討を行った。本報告では光電子顕微鏡(PEEM)のスペクトルデータを例に、教師無し学習である非負値行列因子分解を適用すると共に、バックグラウンド処理手法を整備することで、スペクトルの自動的な解析手法の開発について述べる。

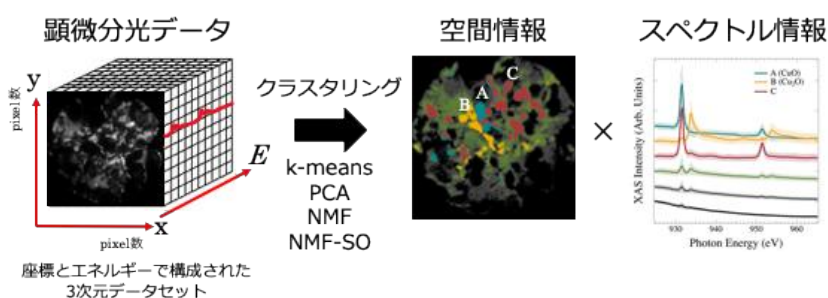


Fig.1 教師無し学習による大規模顕微分光データのクラスタリング

経過と背景

放射光顕微分光法は、固体表面における電子状態や化学結合状態を解析する上で重要なツールである。近年の高分解能化に伴い、放射光顕微分光法で得られるデータセットは大容量化の一途をたどっており、得られたデータを高速かつ自動的に解析するための方法論の開発が求められている。このような膨大なデータを効率的に解析するための枠組みとして、近年ではマテリアルズインフォマティクス(MI)が注目されている。機械学習の活用によってこれまで人間では取り扱うことが困難であった大規模かつ高次元のデータを高速に処理することが可能となっている。さらに、材料の識別に有効な特徴を高速かつ自動的に抽出することも可能になるとされている。

結果

そこで本研究では、①得られた膨大な分光スペクトルを効率的かつ自動的に解析するための枠組みを開発すると共に、②バックグラウンド処理の方法を最適化することで分類精度の向上を行うことを

目的とした。具体的には光電子顕微鏡(PEEM)で得たスペクトルのクラスタリングと顕微画像のセグメンテーションを目的に、主成分分析(PCA)および非負値行列因子分解(NMF)を適用した(Fig.1)。PEEM では画像の画素数個分のスペクトルが得られる。これらを成分に対応したクラスタに分けることができれば解析の負担が大幅に減るほか、意図しない成分の分布を見つけられる可能性がある。

結果の評価のため、各手法でCuOとCu₂O試料のX線吸収スペクトルを標準試料として、クラスタリングの妥当性を検討した。また分光スペクトルのバックグラウンド除去手法について検討を行い、分類精度の向上を試みた。さらにMnやTiなどCu以外の顕微分光データに水平展開を行い、クラスタ分析の手法の確立を試みた。

実験はSPring-8 BL-17SUに設置された光電子顕微鏡(PEEM)を用いて、X線吸収分光スペクトル(XAS)の測定を行った。標準試料としてCu酸化物、Mn酸化物、Ti酸化物の粉末を準備し、In板上に塗布してPEEM測定を行った。放射光はCu, Mn, TiのL₃吸収端でエネルギーをスキャンし、合計30万本のスペクトルをハイスループットで取得した。

機械学習ではPEEMで得られるX線吸収スペクトルのクラスタリングを目的に、教師無し学習手法であるPCAとNMFを適用した。これらは、高次元のデータをより低次元な基底ベクトルとその重み付き和で近似する手法である。PCAは基底ベクトルが直交するという制約のもと、分散が最大になるように基底ベクトルを定める。NMFは行列要素に非負値の制約をつけて基底を定める。NMFを拡張した拡張型NMF(NMF-SO)では、非対角要素にゼロでない成分を許すという点が通常のNMFと異なる。PCAについてはPythonの機械学習ライブラリscikit-learnを、NMFについては先行研究の実装を用いた。クラスタ数は、CuO、Cu₂O、基板のInの3種の組成に加え、Cuの酸化を考慮して3、4を検討した。

またバックグラウンド処理を検討するため、スペクトルをピークの両端を直線で差引く直線法、低運動エネルギー側の強度と高運動エネルギー側の強度を面積に応じて差引くShiley法、逆正接関数を利用したArctangent法の3種の手法を適用した。その後、NMF-SOでスペクトルをクラスタリングし、またNMF-SOの対角行列の直交制約を示すハイパーパラメータの最適化を行った。

NMF-SOでは、算出されたスペクトルの値を0以上にする制約をかけられ、二次元空間情報の領域に対しての空間の重なりを減らす制約を加える事ができるのが利点である。しかし、空間情報の制約に対しての最適なハイパーパラメータの値に対して課題があるため、最適なハイパーパラメータの値を算出することを目的に、スペクトルの類似度をピアソン距離から算出して最適なハイパーパラメータの値の算出を行った。また各成分の重みの画像を着色し重なり合わずに貼り合わせる事が出来た画像を最適なハイパーパラメータとして選択した。また、定量的に判断するため2つのグラフの相関性を求めるピアソン距離を使って標準試料のXASスペクトルとクラスタリング結果のスペクトルの妥当性の評価を行った。

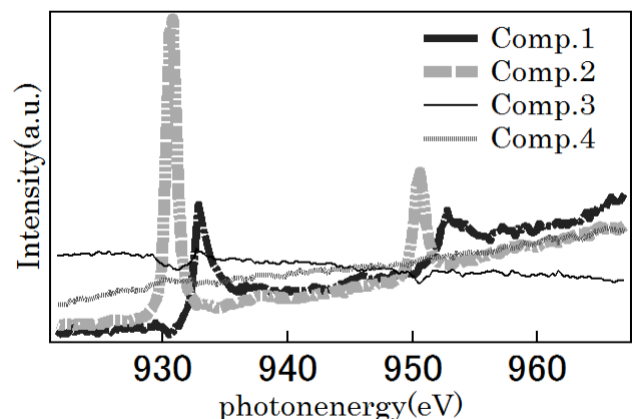


Fig.2 NMF-SOでクラスタリングされたXASスペクトル

考察

1. NMFによるスペクトルクラスタリング

NMF-SO で得られたクラスタリング結果を示す。Fig. 2 には NMF-SO によって 4 成分にクラスタリングしたスペクトルを示し、Fig. 3 には各成分の重みを可視化した画像を示した。Fig. 1 の結果では、930eV と 933eV 付近に試料の化学結合状態に由来するピークがみられた。これらを標準試料の XAS スペクトルと比較すると、Comp.1、Comp.2 が CuO、Cu₂O にそれぞれ対応する。この結果より、各成分のスペクトルが教師データなしで適切にクラスタリングできることを示している。PCA および通常の NMF を用いた場合はスペクトルにディップが生じるなど不自然な形状を示したことから、NMF-SO の妥当性が示唆される。

次に、各成分の重みを画像化することによって、各々の化学結合状態の分布を示すことができた(Fig.3)。PCA での結果と比較すると、NMF-SO では、界面でのクラスタリングが明瞭であった。これは、スペクトルのクラスタリング結果でも示された通りである。上記より、NMF-SO は界面でのクラスタリングを精度よく行える可能性を示した。

2. バックグラウンド処理方法の検討

Fig. 4 に、Cu 混合粉末(CuO,Cu₂O,In)を Arctangent 法でバックグラウンド除去した後、 $\omega=0$ でクラスター数 3 にした各成分の重みの可視化画像を示す。空間分布が重なり合わずに分かれているので、各成分のクラスタリングは適切にできている事が明らかとなった。また Fig. 5 に、 $\omega=0$ でクラスタリングした結果のグラフを示す。標準スペクトルを比べると 933eV, 936eV の CuO, Cu₂O のピークが成分 2, 3 に対応していた。この結果を基に判断すると成分 2, 3 は CuO, Cu₂O のクラスタリングしたグラフと予想される。

Fig5 は、成分 2,3 と標準スペクトルの CuO, Cu₂O の相関性を示したピアソン距離で示したグラフである。相関性を示したグラフを基に判断すると対角行列の直交制約を示すハイパーパラメーター $\omega=0$ では、CuO, Cu₂O は標準スペクトルとの相関性 0.939, 0.906 で高い相関性を示した。この結果から CuO, Cu₂O は適切にクラスタリングできた事が示唆される。

また Arctangent 法でバックグラウンド除去した Cu 混合物のスペクトルと標準試料のスペクトルから算出したピアソン距離を Fig.6 に示す。Fig.6 のグラフから NMF-SO で求めたスペクトルは混合物から各成分のスペクトルの抽出を行う事ができている事が確認された。特に、ハイパーパラメーターの値が 0 の時に高い相関性を持っていることが確認された。クラスタリングされたスペクトルを確認したところ、ハイパーパラメーターが 0.1 以上で、実測では観測されない突起が 932(eV)付近において出現したことからハイパーパラメーターは 0.1 以上は不適切であり、0 が最適であること

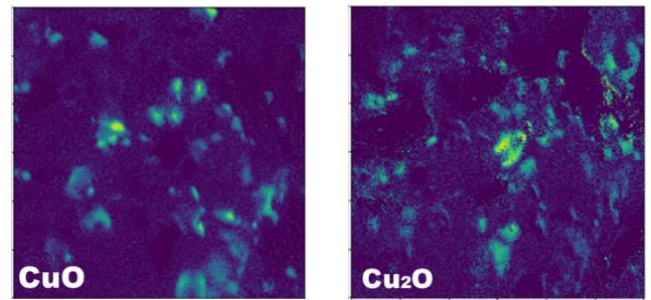


Fig.3 NMF-SO による各成分の重みの可視化結果
(a)Comp.1 (b)Comp.2

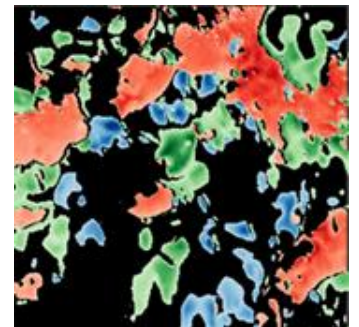


Fig. 4 各成分の重みの画像

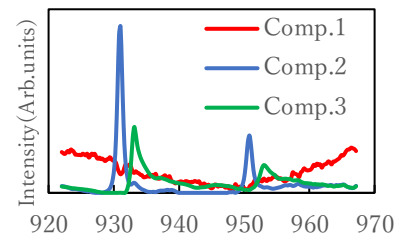


Fig. 5 バックグラウンド処理後のクラスタリング結果

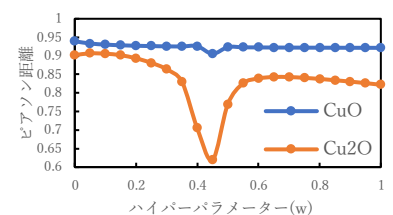


Fig. 6 標準スペクトルとクラスタリング結果の相関

が示唆された。さらに同様の結果を Mn および Ti について適用し、良好な結果を得ることができた。

【今後の展望】

本研究では NMF-SO を CuO と Cu₂O の二元系試料の PEEM データに適用し、自動かつ瞬時に各成分の適切な分離が行えることを示した。クラスタリング結果を可視化することにより、画像中で成分の分布を明瞭に可視化することができた。PCA を用いた場合との比較において、複数の成分が混在する界面では NMF が良好な結果を示した。これにより、人力では困難であった複雑な構造の解析に利用できる可能性が示唆された。本手法からは様々な分光データへの展開が考えられ、金属組織解析で得られる、種々の実験データへの適用が期待される。