

計測インフォマティクスとデータベースの 統合による客観・高速結晶構造解析

(国研) 物質・材料研究機構 統合型材料開発・情報基盤部門 石井真史, 上杉文彦
(株)リガク 小澤哲也

Masashi ISHII, Fumihiko UESUGI and Tetsuya OZAWA: Objective and Rapid Crystal Structure Analysis by Integration of Measurement Informatics and Database

Along with the advancement of measurement technologies, a large amount of experimental crystallographic data can be obtained easily, so that objective and rapid analysis suitable for batch process is strongly required. This article introduces recent research on objective and rapid analysis of crystal structure using X-rays or electron beams. For one-dimensional X-ray diffraction pattern, non-negative linear regression (NNLS) using diffraction patterns provided by public database has achieved more objective and faster analysis than conventional manual works. With regard to two-dimensional electron and X-ray diffraction, good objective and rapid analysis was realized for several types of materials by using artificial intelligence (AI) based on convolutional neural network. On the other hand, the sparsity inherent in the diffraction pattern was found to cause a lack of information, and universal applicability of material property prediction using AI that depends on training data is still open to question. However, the fact that AI itself has the potential ability to solve complex images, a breakthrough technology for universal two-dimensional objective and rapid analysis might be found in progressing research.

1. はじめに

X線は発見当初、可視光用の回折格子に当てても干渉縞を示さないことから、未知の光という意味でX線と名付けられたことは有名であるが、結晶からの回折が確認されたラウエの実験以来、波長が原子レベルの光として電磁波の一種と認知された。¹⁾その後ブラッグにより結晶構造解析への道が引かれ、²⁾次第に複雑な結晶構造が明らかになっていった。こうして確立したX線回折は、現在さまざまな分野で合成物質の素性を知るために最初に行う実験の1つとなっている。その汎用性の高さをここで改めて述べる必要もなかろうが、他方、世の中に存在する一般的な材料は混合物が大多数であり、さらに各成分に結晶欠陥など不完全因子が入ることから、その解析は教科書どおりにいくわけではない。日々の解析の現場ではこれらの事実を反映して、以下のような切実な声がある。

- ・複数の材料や相が混在する系では、一見しただけでは回折ピークがどの材料に帰属するかわからない
- ・回折ピークが多くて、解析に長時間かかる
- ・ほかの解析結果がより良い可能性を否定できない
- ・解析が終わったら解釈がつかないピークが残ったが、処置がわからない

さらに検出器の高性能化によりデータ量が多くなったこ

とは、これらの問題を深刻化している。コンビナトリアルな手法³⁾による多様な試料の生成→高速時分割測定→解析→大量データの数理的処理(マテリアルズ・インフォマティクス⁴⁾)の流れは、途中のボトルネックである“解析”の客観性の保証と高速化への期待を強くしている。ここでは、この期待に対して既知の関連データを最大限活用する方法(以下、「客観・高速解析」という)を紹介するとともに、実例を2つ述べる。1つ目は、公知情報を使ったアプローチ、2つ目はシミュレーションによる網羅的なデータを使う人工知能によるアプローチである。

ここで人工知能は、回折の特徴量(一般性や法則性)の線形代数的なパラメータ群への繰込みと考えれば、「知能」の名のとおり、回折パターンに関する知識の集まりと考えて良く、ユーザーの要求に対して、必要な情報を提供する意味でデータベースと等価と考えられる。したがって、ここで述べる2つのアプローチは、機械による知識基盤という形で将来統合されると考えている。

2. 公知情報を使ったアプローチ

2.1 従来の解析法

まず従来の解析の例を示す。図1はNIST(National Institute of Standard and Technology)のセメント標準試料(SRM 2686a)の回折パターンとその旧来の解析結果で

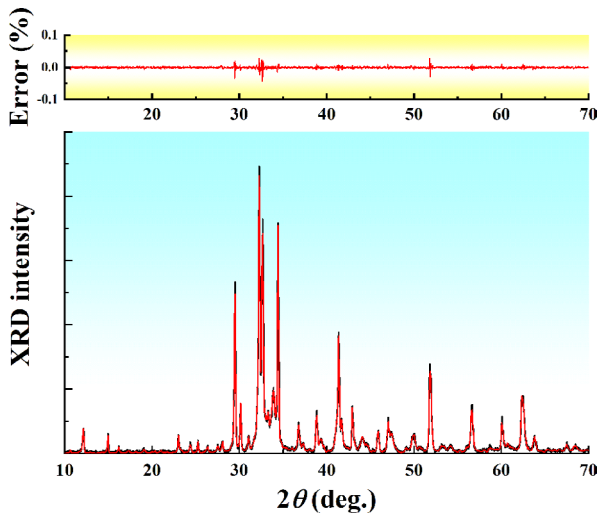


図1 従来法による標準セメント (SRM 2686a) の解析.
(Conventional analysis of a standard cement sample, SRM 2686a.)

ある。セメント(クリンカー)の原料は大きく分けてAlite (C₃S), Belite (C₂S), Aluminate (C₃A), Ferrite (C₄AF)の四成分である(本論文では、これを「主要四成分」と呼ぶ)。これらは水和速度、強さ、水和熱、化学的抵抗性、乾燥収縮性状などに異なる特徴をもつため、セメントの用途に従って混合比を調整する必要がある。⁵⁾さらにこれらの主要四成分は作製条件によって結晶性に差が生じ、同種の成分に属していても厳密には異なる回折パターンをもつ。さらに主要成分以外にもセメントの産地固有の鉱物が混入し、また最近のエコセメントでは、産業廃棄物、スラグ、灰などが混ぜ込んであり、それら微量成分の回折も当然混ざってくる。こうした複雑な成分をもつセメントのX線回折パターンから、混合成分を手軽に決定することへの期待がある。ここで、前節で述べた解析現場の声を、実例をもとに掘り下げてみる。図1の赤線はX線回折のエキスパートが数時間かけてフィッティングを行った結果である。この解析時間が示すとおり、セメント用にプレスクリーニングした物質(90種)から5つ(主要四成分+不純物一成分)の候補を選び出し、計算により結晶パラメータを決定する作業は容易ではなく、結果の一意性も保証されない。しかし黒線の実測結果から求まる残差二乗和(図1上)は 5.0×10^{-6} であることから、一般的には信頼に値するものと認知される。

2.2 公知情報を使った客観・高速解析

2.2.1 高速解析

これに対して、われわれは図2に示す方法により客観・高速解析を行った。上記の従来法と同じ90種のセメント成分について、X線回折ライブラリを公知情報から作成する。これらを基底関数とみなして、実測データを非負最小二乗法(NNLS, Non-Negative Least Square)⁶⁾を使って線形回帰を行う。このタスクを数学的に書き下す

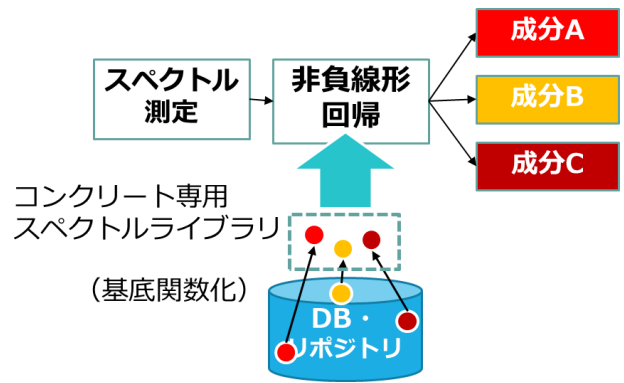


図2 データベースとNNLSによる客観・高速解析法.
(Objective and rapid analysis using database and NNLS.)

ならば、ライブラリのデータ群(基底関数)を \dot{x} 、成分比を \dot{a} 、計測データを \dot{Y}_{obs} とすれば

$$\dot{x} \cdot \dot{a} = \dot{Y}_{obs} \quad (1)$$

の \dot{a} (ここで $\dot{a} > 0$)を求める線形回帰の問題に帰結できる。この問題を解く方法としては、NNLS以外の方法、例えば特異値分解(SVD, Singular Value Decomposition)といった、誤差二乗(フロベニウスノルム)を最小にする成分を抽出する近似解法も考えられる。⁷⁾この手法は特異値が小さいものを0とすれば、基本的に主成分回帰(PCR, Principal Component Regression)と等価である。SVDやPCRのように分散最大を基準にした座標変換による成分特定は、主成分を決定する際に安定解をもたらす点で優れており、応用例も多く示されている。⁸⁾一方で、同じ材料でも生成法の違いによる結晶性のわずかな差を有意と捉え、また微小成分を含めて全混合成分を客観解析する今回のタスクにおいては、主成分を縮退させるSVDやPCRよりNNLSがより適していると思われる。このように、最良の回帰のアルゴリズムをどのように定めるかは、本来はX線検出器の物理的な特徴(量子ノイズがポアソン分布であるなど⁹⁾)も含めて考察する必要があるが、その詳細な議論は紙数の都合、他所で行うことにし、数理的一般論として客観性と高速性を議論する。

今回のNNLSは、90の基底関数を使って観測データの全6001点(2θの範囲: 10~70度 0.01度ステップ)を回帰する6001×90のマトリクス演算となるが、最近ではごく普通のノートパソコンで解いても一秒とかわからない。プログラムはMatLabによる検証を行いつつPythonで自作した。得られた結果が図3の青線である。黒線は図2の実測結果を再掲した。残差二乗和は 2.0×10^{-5} となり(図3上)従来法の4倍程度に悪化したが、圧倒的な解析速度の高速化は、セメントの成分解析に要求される解析精度を考えると、本手法が十分実用的な手法となる根拠となる。

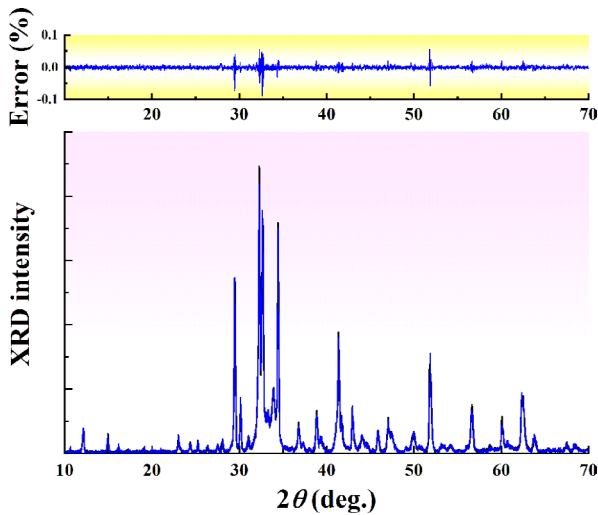


図3 提案手法による標準セメント (SRM 2686a) の解析. (Proposed analysis of a standard cement sample, SRM 2686a)

表1 主要四成分と微小成分のフィッティングにおいて使用した基底関数の数. (Number of Major four-component and minor component used for fitting.) 従来法と提案法の比較

	主要四成分	微小成分
従来法 (人手)	4	1
提案手法 (NNLS)	19	17

2.2.2 客観解析

次に本手法の客観性について議論をする. 本手法では90の基底関数 \hat{x} , 言い換えると図2のコンクリートスペクトルライブラリを使って計測データをNNLSで回帰した. このことは, 可能性がある成分候補は回帰係数(式(1)における \hat{a} の成分)の大小はあるがすべて考慮されることを意味する. この人為的な意図を伴わない数理的な処理は, 従来の人手において材料候補を恣意的に4つに事前に絞り込んだ場合と大きく異なる. 実際, 従来法と提案手法で得られた主要四成分と微小成分の数を表1にまとめると, その違いは明確である.

本研究の目的に照らしてこの結果を検証するならば, 残念ながら解析前に材料を選んだ従来法では客観的に材料を選別したとは言い難い. 一方で, 確かに提案手法では数理的に可能性がある成分はすべて示されるが, 逆に絞り切れていないことは直観的に見てとれる. 試料として用いたNISTのSRM 2686aのデータシートによれば, 微小成分は少なくとも3種入っているとされるが, 微小成分の成分比はペリクレーズ (Periclase) 以外のアルカリ硫酸塩は, 1%以下とされているため, 一般的なX線回折では十分検出できないと予想される. そのような背景から考えても, 17の微小成分の混入を認めるのは物理的に無理があろう. こうした状況を考えて本手法の客観

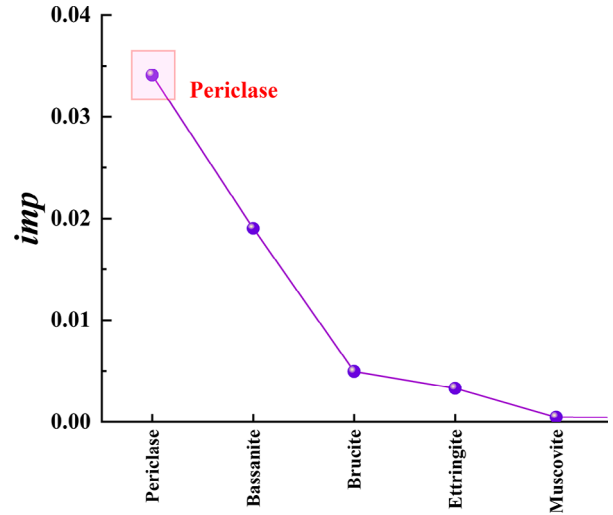


図4 重要度 (imp) による微小成分の確からしさの評価. (Most probable minor component obtained from a importance (imp) defined by equation (2).)

性を示すためには, これらの17の微小成分の内から, 数理的に最も確からしいものとしてペリクレーズを選び取るアルゴリズムの導入と実証実験が必要になる. 以下に図2で提案した客観解析に確からしさをくわえて微小成分を特定する手法を述べる.

2.2.3 客観解析における確からしさの付与

ここで確からしさの指標として, 重要度 imp を導入する. 式(1)において, あるライブラリ成分 x_k を強制的に0にして, NNLSを解くことを考える. 物理的には特定の物質 k を候補から外すことを意味し, 当然解析解ではその成分比 a_k は0になる. すべての x を使用した場合の通常のNNLSの残差二乗和 (RSS, Residual Sum of Squares) を RSS_{full} とし, 成分 k を強制的に0にした場合のRSSを $RSS_{k=0}$ とする. ここで成分 k の imp を

$$imp = \frac{RSS_{k=0} - RSS_{full}}{RSS_{full}} \quad (2)$$

と定義する. すなわち, 成分 k がなかった場合にどの程度回帰の精度が下がるかを, その成分の重要度として指標化したことになる.

imp を全成分に対して計算して, 大きい順に上位5位をプロットしたものを図4に示す. この図から明らかなおりペリクレーズの imp が最も高く, この指標を導入することによって, 恣意的な材料の選択をすることなく, 公知情報から微小成分が特定可能であることがわかる. 一方で, NISTのデータシートで1%以下のアルカリ硫酸塩成分, アフチタライト (Aphthitalite) とアーカナイト (Arcanite) は図4の材料リストになく, imp では特定できなかった. この点では従来法に対する優位性は得られなかったが, 図1で議論したとおり, これらを考慮しなくても残差二乗和 5.0×10^{-6} 以内で説明可能な測定

結果であることを考えると, 測定法固有の検出限界としてほぼ妥当な結論と考えている. *imp* は主要四成分に対しても適用することは可能である. おおむね各成分 *imp* が顕著に高いものを1~2に絞り込むことが可能で, 表1の19の主要四成分から, 詳細解析の出発点として客観的に確からしい成分を決定することが可能である.

2.2.4 公知情報を使ったアプローチのまとめ

ここでは典型的な工業材料であるセメントを対象に, いわゆる「先人の知恵」とも言えるデータベースを活用する方法を述べた. 公知情報を使った観測データの回帰は, 解析の任意性を避けられること, 関連データの中での自身の結果の位置づけが明確になることなど, データ駆動のリソースとして必要な統合データの作成モデルの1つになると期待される.

3. 人工知能を使ったアプローチ

3.1 「順方向解析」から「逆方向解析」へ

2章でも述べたとおり, 従来の混合物の分析においては, それらしいスペクトルを直観的に選び出し, シミュレーションを繰り返すことによって, 測定結果によく合うようにさまざまなパラメータを調整するのが定石である. これを本論文では, 「順方向解析」と呼ぶことにする.

ここで少し目を転じて世の中の科学技術の動向を考えると, 「人工知能」は外せないキーワードであろう. ニューラルネットワーク (NN, Neural Network) の構築は, 後述のとおり特別な知識がなくても簡単にでき, あとは入出力インターフェイスをつければ, 画像認識はすぐにできる. 人工知能の使い方はきわめて単純で, 多くの教師データと正解データを読み込むことで, その対応が正しくつけられるようにNNのパラメータを最適化する. その後にテストデータのみ入力されれば, 正解を予測可能というものである.

この考えをそのまま二次元計測に適用することは, 当然思いつく. 例えば多くの二次元X線回折パターンを教師データとして, それに対応する結晶構造を正解データとすれば, 学習済みの人工知能は回折パターンから, 結晶構造を直接予測することができるであろう. ここで指摘したいことは, 前章の一次元の実験から一歩進んで多次元化となること, また従来の方法が「順方向の解析」であるのに対して「逆方向の解析」と位置付けられる点である.

学習済みの人工知能は, 本論文のテーマである客観性を保証するとともに, 高速に結晶構造を予測することができる. ここでのNNの役割は, 多くの実験データから正解を導くのに必要な特徴量を見出し, その特徴量を正解に回帰すること, と書き下すことができる. 1章で述べたとおり, ラウエは回折スポットが結晶の特徴量であることを見出し, これがブラッグらによって結晶構造解析

理論として体系化された. このフローを人工知能がNNのパラメータセット内に折り込むことができれば, 原理的には人手による解析は不要になり, 2で述べた公知情報を含めたすべてが人工知能の中に集約されることになる. このことは, これまで構築してきたデータベースが, 人工知能に置き換わることを示している. ここでは人工知能によるデータベースAI-DBと呼ぶことにする. 多次元データの客観・高速分析をもたらすAI-DB実現の可能性の検討はX線回折に限らず, 結晶構造解析に関して同様の問題を抱える電子線回折についても進めているので, 合わせて紹介しておく.

3.2 人工知能を使った客観・高速解析

3.2.1 電子線回折パターンからの結晶構造分類

最近まで透過型電子顕微鏡 (TEM, Transmission Electron Microscope) を使った実験における実像と電子線回折パターンのデータセットは, たかだか数十枚程度であった. その中から, 見栄えのする画像や想定される結果に近い結果を主観的に選択して解析を行うことは珍しくなかった. すなわち前述のX線回折の場合と同様, 従来の方法は必ずしも客観解析とは言い難いものであった.

しかしながら, 近年TEMで取得できるデータの質と量は飛躍的に増加している. 検出器の素子は急速に高精度化するとともに, それを制御するコンピュータの処理速度は高速化し, ストレージも大容量化してきているためである. このような技術革新に後押しされ, 走査透過型電子顕微鏡 (STEM, Scanning Transmission Electron Microscope) 像の取得と同時に回折パターンを取得する手法も一般的になってきた.^{10,11)} この手法を使うと数十秒から数分間に数百~数万枚のデータが取得できる. このような状況においては, 人間がすべてのデータを確認することは難しく, 取得できたデータを高速に解析する手段を考えなくてはならない.

一方, 最近では機械学習用のプラットフォームの利用環境が整い, 例えば画像識別においては事前学習済みのConvolutional Neural Network (CNN) であるVGG¹²⁾などは誰にでも手軽に利用でき, 各分野で目覚ましい成果を上げている. 成功事例のほとんどは, 動物や車, 人などが映り込んでいる情報量がきわめて多い場合の画像認識である. 一方, ここで議論する回折パターンは少数の回折スポットで構成されるため, 一般的な画像より情報が疎 (スパース) であるため, 十分な予測ができない可能性がある. そこでまず, スパースな回折パターンに対するCNNの能力を, 結晶構造の分類問題として検証した.

CNNのライブラリとしてGoogle社の提供するTensorFlow¹³⁾とオープンソースのKeras¹⁴⁾を用い, Pythonで結晶構造分類プログラムを自作した. ハードウェアは一般に流通しているパーソナルコンピュータと外部接続

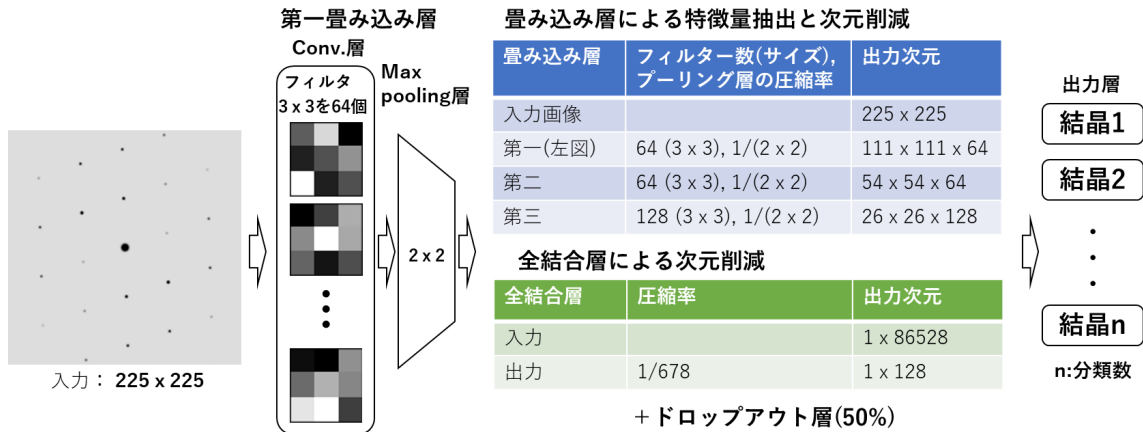


図5 CNNによる結晶構造分類器. (Crystal structure classifier by using CNN.)

されたGPU (Graphics Processing Unit) を用いた。GPUはもともと画像処理のための演算装置で、画像処理で使用するアフィン変換などの演算に特化した回路が組み込まれている。CNNではアフィン変換を多用するため、GPUを使用することで計算速度の向上が図れる。最近はより汎用のGPU (GPGPU, General-Purpose computing on Graphics Processing Units) が一般化してきている。今回使用したGPUはNvidia社のTesla P100である。

構成したCNNは、二次元画像 (225 × 225 pixel) の情報を圧縮していく畳み込み層 (コンボリューション層とプーリング層を組み合わせたもの) と、その結果得られた情報を一次元に変換して圧縮していく全結合層とで構成される。コンボリューション層 (図中conv.層) ではある面内分布をもったフィルタと入力画像との畳み込みを行う。この面内分布が特徴に相当し、結局フィルタの特徴をもつ画像部分が強調されて出力される。プーリング層は、特徴の空間的な揺らぎに対するロバスト性を確保する働きをしており、特定の入力に左右されない特徴の一般化とともに次元圧縮の役を果たしている。フィルタの面内分布はランダムから始められるが、学習が進むにつれて、必要としている特徴を反映するように整えられていく。この畳み込み層を多層にすることで、特徴はさらに圧縮され最終的な結晶分類出力のためのパラメータとなる。今回は、図5に示すとおり畳み込み層は3段とした。その後3段の全結合層により、二次元画像は一次元データに圧縮され最終的には分類したい数の出力に全情報が集約される (今回は後述する2, 4, 6の三種)。全結合層には過学習を防ぐためのドロップアウト層を1層設けた。最適化にはadam (Adaptive moment estimation) を用い、学習の評価には交差エントロピー誤差 (cross entropy) を用いた。

今回の三種の実験の狙いとスキームを図6および表2に示す。分類対象として、まず閃亜鉛鉱構造のGaAsをベンチマークとして、まったく構造が異なり分類が容易と予想される結晶構造 (アナターゼ) を取り上げて実験

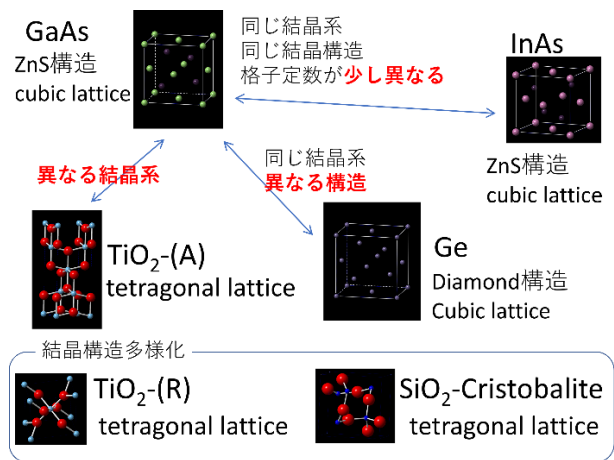


図6 予測対象の結晶構造とベンチマーク (GaAs) との対応. (Crystal structures as prediction target, and their correlation with a benchmark structure (GaAs).)

表2 結晶分類実験のスキーム. (Experimental scheme for crystal structure classification.)

結晶数	試料	結晶構造	
2	GaAs TiO ₂ (A)	閃亜鉛鉱 アナターゼ	(基準) 異なる結晶系
4 (上記+2)	Ge InAs	ダイヤモンド 閃亜鉛鉱	類似構造
6 (上記+2)	TiO ₂ (R) SiO ₂	ルチル クリストバライト	多様な構造

し、次に難易度を上げるために結晶系が同じ2種 (ダイヤモンド構造と閃亜鉛鉱) を追加し、最後に汎化に向けて2種の新たな構造を加えた (ルチルとクリストバライト)。このスキームに従って最大6種類まで分類対象を増やすことで予測精度 (Accuracy) の変化から人工知能の能力を評価した。教師データおよびテストデータとなる回折パターン、各200枚はシミュレータ SingleCrystal (CrystalMaker Software Limited) を用いて、ランダムな方位について作成した。

図7は結晶数を2, 4, 6と変化させた場合の学習時と検証時 (Validationと表示) の精度と損失である。前者は

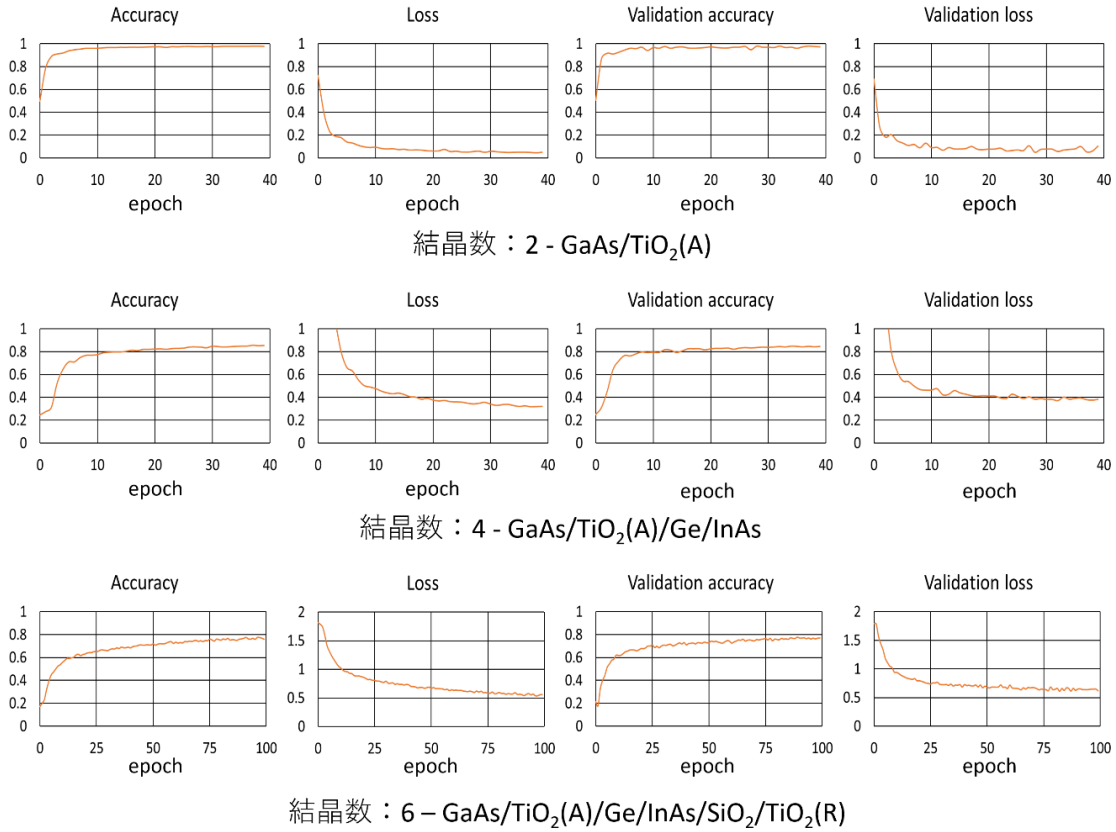


図7 結晶数を2, 4, 6とした場合の学習時と検証時の精度と損失。(Accuracy and loss during learning and validation for target crystals of 2, 4, and 6.)

正解に近いほど1に近くなり、後者はどれくらい正解と離れているかを表す。横軸は学習数(エポック)を表している。いずれの結晶数でも、Accuracyを見ると学習時と検証時で差はなく、過学習に陥っていないことがわかる。結晶の数を増やしていくにつれて精度は少しずつ下がっていき、損失は増加する。結晶数4の実験結果では、ベンチマークである結晶数2の実験で1に近かった精度が、0.8近くに一挙に下がっている。これは想定どおりGaAsやInAs, Geの回折パターンが似ていることに起因すると考えられる。実際これらの材料の代表的な三方位[001][011][111]電子線回折パターンを図8に示す。Geについては、禁制のために[001]でパターンに明確な違いが見られるが、GaAsとInAsについては、分類に際してスポットの間隔を理解する、ほかの材料とは本質的に違った学習が必要になると考えられる。CNNの場合、特徴量を引き出すために揺らぎを許容する操作(マックスプーリング)が加わっているため、この間隔の理解を妨げていると考えられる。構造に多様性をもたせた結晶数6の実験結果では精度・損失とも収束が遅く、図の横軸で示すとおり、学習のエポック数をほかの実験の2.5倍の100まで増やしている。結晶数4の実験結果と比較すると、精度の悪化は思いのほか進んでおらず、ほぼ0.8を維持している。

以上の実験から、スパースな回折パターンからでも分

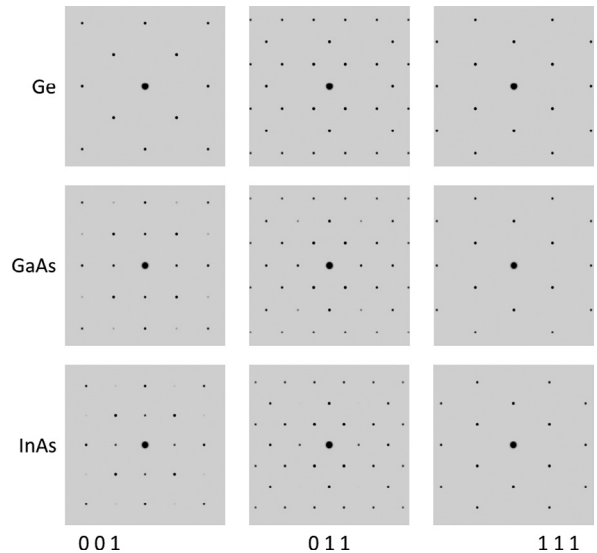


図8 Ge, GaAs, InAsの[001], [011], [111]入射の電子線回折パターン。(Electron diffraction patterns of [001], [011], and [111] for Ge, GaAs and InAs.)

類は0.8程度の精度で可能であることがわかる。特に異なる結晶数4の実験からは、人による判断が難しい場合についても、ある程度の客観評価ができていていることを示唆している。一方で、結晶数4~6の精度の悪化に比べて結晶数2~4の悪化が著しかったことから、類似なものの判別能力が不足しており、教師データの工夫など情報の

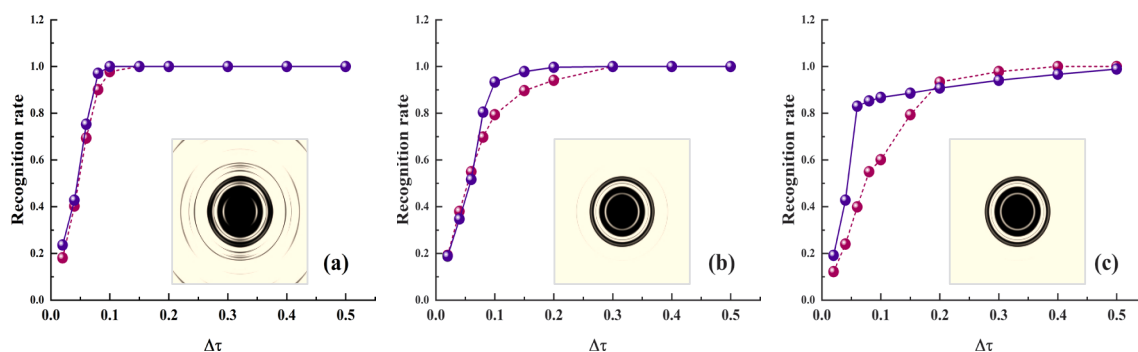


図9 $\Delta\tau$ に対する学習済み人工知能の認識率。(Recognition rate of a learning artificial intelligence with respect to $\Delta\tau$.) 正解の τ の範囲はそれぞれ (a) $0 \sim 30^\circ$, (b) $30 \sim 60^\circ$, (c) $60 \sim 90^\circ$ とした。破線は256階調による学習結果, 実線は実数による学習結果を示す。

補完の必要性を示唆している。

3.2.2 X線回折パターンからの結晶構造回帰

X線回折パターンの二次元検出器によるデータ取得は、2000年のCCDカメラの低雑音化、高集積化、高速化、広ダイナミックレンジ化などの技術革新を境に急速に普及し¹⁵⁾ 時間軸と空間軸を含めた多次元分析へ可能性が広がった。電子線の場合と同様に、多次元化に伴い客観・高速解析に対する要望が増加している。2章で議論した一次元回折パターンの回帰問題は、二次元ではさらに複雑化し、もはや公知情報を使ったNNLSで解くことは不可能になる。そこでわれわれはより多くの情報を内包できる人工知能を使った客観・高速解析を検討している。一次ビームが異なるとはいえ、人工知能の構造や構築のフローは3.2.1の電子線回折パターンの場合とよく似ている。ここでは、議論をさらに一歩進めるために、分類ではなく回帰の問題から人工知能の能力評価と展望を述べる。

本節における人工知能のタスクとして「二次元X線回折パターンから結晶の不完全性を予測する」を設定し、解析対象としてエンスタタイト (Enstatite) (001) を選び、結晶配向度を予測する。結晶配向度 τ を $[001]$ 方向を 0° としたときの結晶方位のばらつき範囲と定義する。例えば $\tau = 10^\circ$ であれば $[001]$ から 10° の範囲内に方位が分散した結晶があることを意味する。したがって、 $\tau = 0^\circ$ であれば単結晶、 $\tau = 90^\circ$ であれば多結晶となる。今回のタスクでは、 τ を $0 \sim 90^\circ$ まで(単結晶から多結晶まで)のエンスタタイトのX線回折パターンをシミュレータで計算・可視化し、それを教師データとして学ばせた後、教師データ以外の任意の τ のX線回折パターンを予測させる。構築したCNNは、二次元入力画像を 350×350 pixelにしたものの、基本的には図5と同じ三段の畳み込み層をもち、全結合層で τ の値を出力するように設定している。ここでは結果の定量評価のため、認識率を $N_{total}/N_{<\Delta\tau}$ と定義した。ここで N_{total} は予測全数、正解に対して許容誤差 $\Delta\tau$ 以内の予測ができた数を $N_{<\Delta\tau}$ とした。

図9破線は $\Delta\tau$ に対する学習済み人工知能の認識率で

ある。ここで図9 (a)~(c)は正解の τ の範囲をそれぞれ $0 \sim 30^\circ$, $30 \sim 60^\circ$, $60 \sim 90^\circ$ とし、単結晶に近いものから多結晶に近いものまで三段階に分けて評価している。いずれの結果でも、 $\Delta\tau$ が十分大きければ、認識率100%になるが、単結晶に近いほど小さな $\Delta\tau$ で100%の認識率に達しており、予測精度が高いことがわかる。この理由は、図9 (a)~(c)の挿入図を見ればわかるとおり、単結晶に近いほど回折パターンがスポットになり、 τ による違いが明確なためと考えられる。逆に、ほぼ同心円状の多結晶の回折パターンにおける τ の違いは見分けにくく、実際図9(b)と図9(c)の挿入図の違いを人の目で判断することはほぼできない。逆に考えると、こういった人の目で判別が難しくなった場合であっても、 $\Delta\tau = 0.5^\circ$ 程度の精度で、人工知能が τ を100%予測できることは、少なくとも人以上の能力で客観的な回帰が可能であることを示している。

3.3 人工知能を使ったアプローチのまとめ

これまで示したデータは、多次元の結晶構造解析に係る分類や回帰の人工知能の能力が理解できる反面、

- ・回折パターンにおける情報不足
- ・分析対象の汎化

が課題として残っている。

1つ目の課題「情報不足」に関しては3.2.1の分類問題における同種の結晶系の判別、3.2.2回帰問題における多結晶の配向度の推測精度によって、見ることができた。情報量を増す観点では、今回使用したパターン画像はCCDカメラの利用を想定して256階調としたが、これをシミュレーションで得られる実数をそのまま使えば、図9の実線で示すとおり、特に小さな $\Delta\tau$ で予測精度は向上する。予測精度の律速要素が、人工知能の能力ではなく情報不足に帰結された中で客観性を増すためには、ほかの測定結果との統合解析など、ブラッグの理論により集約されたデータ(回折スポット)からの情報抽出に限らず、多次元データからの情報抽出に向かうことは問題解決への方向付けの1つであろう。

もう1つの課題「汎化」に関しては、人工知能の一般的

課題としてとらえられる。例えば、数百、数千の結晶に対して識別を行うのに必要な学習量の多さ、人工知能の複雑さは容易に想像がつく。今回は、分類問題において6種の単相結晶、回帰問題において1種の結晶しか扱っておらず、逆方向解析を使った客観・高速解析の限られた例の提示と、かろうじてAI-DBの原理検証をしたに過ぎない。学術的な興味としては、これらの限られた系からの特徴量抽出とその別な結晶構造への転移学習はあり得るが、完全な外挿にはならない。結晶構造分類に引き続く特定構造での結晶パラメータの回帰といったシーケンシャル処理を想定した人工知能のタンデム構造、あるいは理論自体を理解して処理ができる一般性の内包が、人工知能による客観・高速解析に求められる課題と言える。挑戦的な技術としてオントロジーのような概念の体系化やそのグラフ構造の学習¹⁶⁾など、より進んだNN周辺の技術強化が有効になると考えられる。

4. まとめ

客観・高速分析を、一次元において非負最小二乗回帰で示すとともに、二次元への拡張を人工知能を使って試みた。本稿では、検出器や計測技術の発展が著しいX線および電子線による回折を使った結晶構造解析について、最近の研究例を紹介した。一次元のX線回折については、データベースなど公知情報を使った回折パターンの回帰により、解析に数時間を要し、かつ結果の一意性に課題がある従来の人手による解析に対して、秒レベルの優れた客観・高速解析が実現された。二次元の電子線・X線回折については、人工知能を使うことで、限られた種類のターゲットに対しては良好な客観・高速解析が実現された。一方で、回折パターン固有のスパース性は情報不足の原因になっていることを示した。また、あらゆる材料に適用できる汎化性の実現に十分な方策が見出されていない状況を示した。人工知能自体は、複雑なものを処理できる潜在能力があることを考えると、ブレークスルーとなる技術の創出は可能であると考えられる。すなわち、解析理論など、概念を含んだ情報を人工知能に内包することにより、汎化性が実現されることは、近未来像として思い描くに足ることであり、研究領域として今後取り組むべき点と思われる。

文 献

- 1) S. Stuart: "Nobel Lectures, Physics 1901-1921", Elsevier Publishing Company, Amsterdam (1967).
- 2) L. Bragg: "The Development of X-ray Analysis", Dover Publications, New York (1992).
- 3) H. Koinuma, R. Takahashi, M. Lippmaa, S.-Y. Jeong, Y. Matsumoto, T. Chikyo and S. Suzuki: "Combinatorial Nanoscience and Technology for Solid-State Materials, Handbook of advanced ceramics: materials, applications, processing, and properties, 2nd edition", Elsevier Academic Press Inc., California (2013).

- 4) K. Rajan: *Annu. Rev. Mater. Res.* **45**, 153 (2015).
- 5) 例えば 荒井康夫: "セメントの材料化学", 大日本図書 (2016).
- 6) C. L. Lawson and R. J. Hanson: "Solving Least-Squares Problems", Upper Saddle River, Society for Industrial and Applied Mathematics, p.160 (1995).
- 7) C. J. Gilmore, G. Barr and J. Paisley: *J. Appl. Cryst.* **37**, 231 (2004).
- 8) G. Barr, W. Dong and C. J. Gilmore: *J. Appl. Cryst.* **37**, 874 (2004).
- 9) J. Beutel, H. L. Kundel and R. L. Van Metter, eds: "Handbook of Medical Imaging", Vol.1. Physics and Psychophysics, SPIE Press, Washington (2000).
- 10) F. Uesugi, A. Hokazono and S. Takeno: *Ultramicroscopy* **111**, 995 (2011), <https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2011.01.035>.
- 11) F. Uesugi: *Ultramicroscopy* **135**, 80 (2013), <https://doi.org/10.1016/j.ultramic.2013.07.003>.
- 12) K. Simonyan and A. Zisserman: Very Deep Convolutional Networks for Large-Scale Image Recognition. arXiv:1409.1556 [cs] (September 2014).
- 13) Google, <https://www.tensorflow.org/>
- 14) François Chollet, <https://keras.io/>
- 15) 石井真史: 応用物理 **85**, 223 (2016).
- 16) U. Lössch, S. Bloehdorn and A. Rettinger: "The Semantic Web: Research and Applications", p.134, Springer (2012).

プロフィール



石井真史 Masashi ISHII
(国研)物質・材料研究機構 材料データプラットフォームセンター
National Institute for Materials Science, Materials Data Platform Center
〒305-0044 茨城県つくば市並木1-1
1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki 305-0044, Japan
最終学歴: 博士(工学)
専門分野: 情報工学, 計測工学
現在の研究テーマ: データベース構築, セマンティックウェブ技術



上杉文彦 Fumihiko UESUGI
(国研)物質・材料研究機構 電子顕微鏡ステーション
National Institute for Materials Science, Transmission electron microscopy station
〒305-0047 茨城県つくば市千現1-2-1
1-2-1 Sengen, Tsukuba, Ibaraki 305-0047, Japan
最終学歴: 博士(理学)
専門分野: 物性物理
現在の研究テーマ: 透過型電子顕微鏡を用いた測定・解析技術
趣味: 熱帯魚(肺魚)の飼育



小澤哲也 Tetsuya OZAWA
(株)ガク X線機器事業部 SBU 粉末・薄膜解析
Rigaku Corporation X-ray Instrument Division SBU: Powder & Thin Film Analysis
〒196-8666 東京都昭島市松原町3-9-12
3-9-12 Matsubara-cho, Akishima-shi, Tokyo 196-8666, Japan
最終学歴: 修士(理学)
専門分野: X線結晶学
現在の業務: X線の回折および散乱現象による分析装置の開発