

2021.09.16

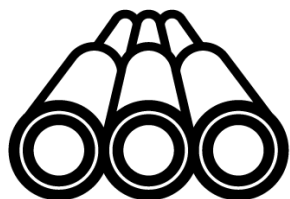
未来社会創造事業キックオフ公開シンポジウム
マテリアル探索空間拡張プラットフォームの構築



マテリアル探索のためのマテリアルドックの構築

大阪大学大学院工学研究科物理学系専攻

小野 寛太

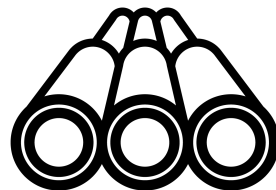


Materials Exploration space
Extension Platform



Autonomous Prototyping

Autonomously synthesize and fabricate
target materials



MEEP

Materials Exploration space Extension Platform



Materials AI

Transforming data into
knowledge

Materials Dock

Multiscale multimodal
characterization

メンバー



小野寛太 (大阪大学 / KEK)



上野哲朗 (QST)



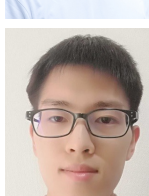
斉藤耕太郎 (KEK / ランデフト)



羽合孝文 (KEK)



鈴木雄太 (総合研究大学院大学 / KEK)



中島優作 (総合研究大学院大学 / KEK)



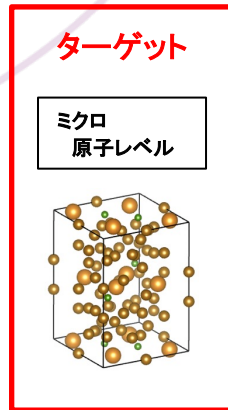
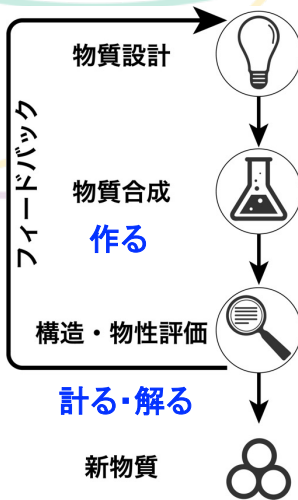
マテリアル研究開発の未来像

持続可能社会の実現に必要な革新的物質・材料の探索・開発

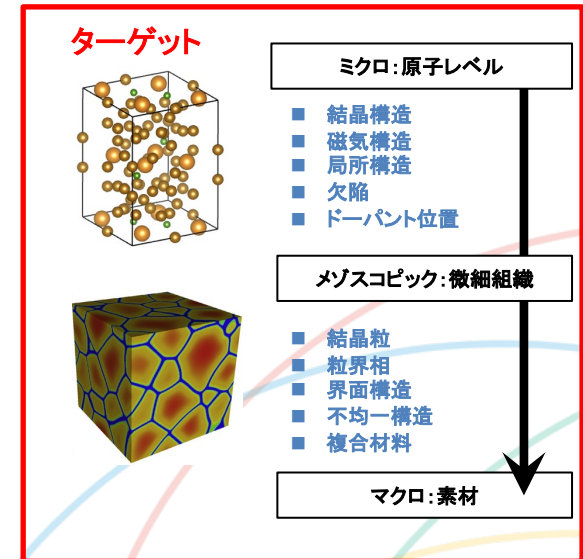
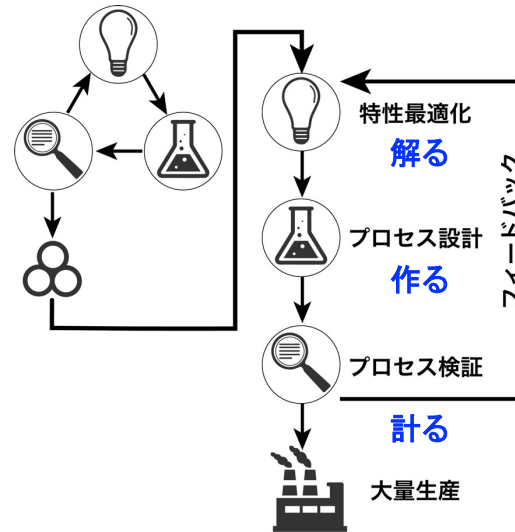
→ インフォマティクス・AI・ロボティクスを活用した物質・材料開発

必要とする特性から逆問題として材料や製造プロセスをデザイン

現在のパラダイム



社会(産業界)で必要とされる AI 利用(物質設計+組織・プロセス設計)



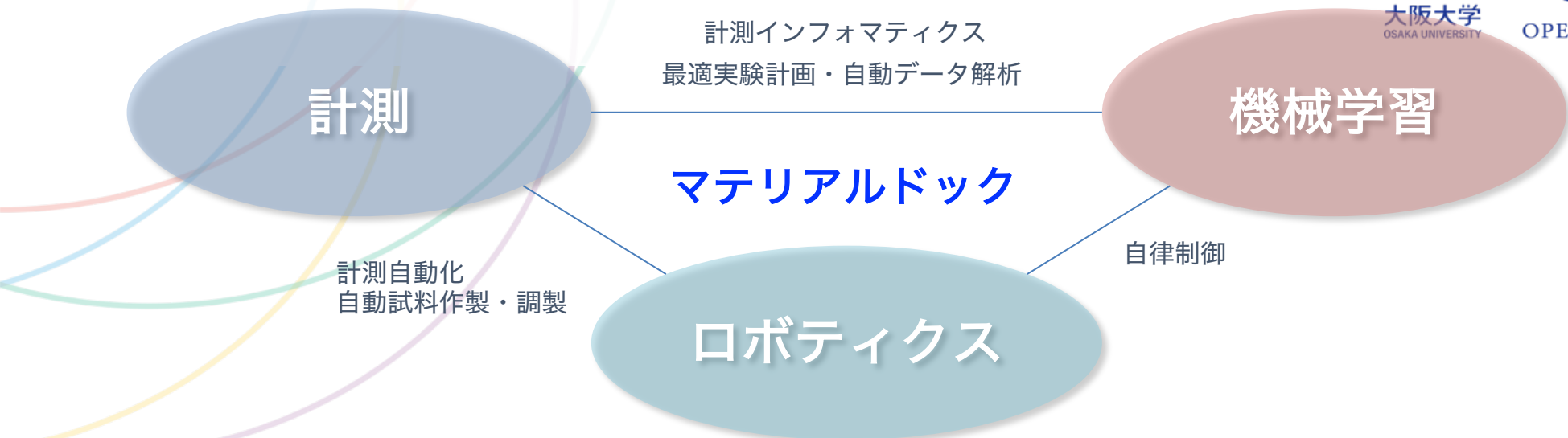
コア技術

異なるモダリティ・異なるスケールで得られたデータを統合的・多面的に理解するための機器・解析法・数理技術

マテリアルドック

マテリアルドックのコモディティ化により計測が生み出す価値を飛躍的に向上

マテリアルドック構築



マテリアルドックの要素技術

最適な実験計画を自動で策定する方法論

- 意思決定と関連している
- 最適な計測時間、計測ポイント
- 次に計測すべき探索点をデータから決める
- どこで終了すれば良いか

計測データ解析の自動化

- 熟練者の経験と勘に頼っていた解析の自動化
- 次元削減：計測データ (高次元) → 物理量 (低次元)
- パラメータ最適化
- 知識発見
- 意思決定の支援

計測から生み出される価値

Value
計測から生み出される価値

Wisdom
知恵

科学法則、新しい概念

科学法則の発見
構造と物性の関係式
シンボリック回帰
研究者の関与

Knowledge
知識

形式知
暗黙知 (経験則、熟練者の勘・コツ)

知識獲得
構造と物性の因果関係
因果推論
階層構造、不確実性評価

Information
情報

データベース
マテリアルズインフォマティクス

データ解析
構造と物性の相関関係
機械学習、多目的最適化
自然言語処理

Data
データ

実験、シミュレーション
メタデータ (熟練者の勘・コツのデータ化)

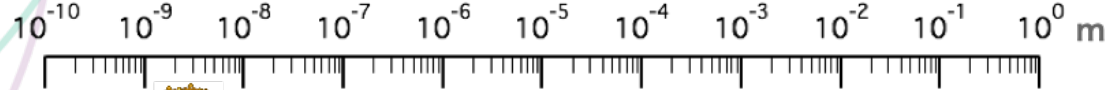
ハイスループット計測
構造と物性のデータ取得
ロボット、能動学習
大規模文献情報

Measurement
計測

回折・散乱・分光、NMR、EM、
放射光、中性子

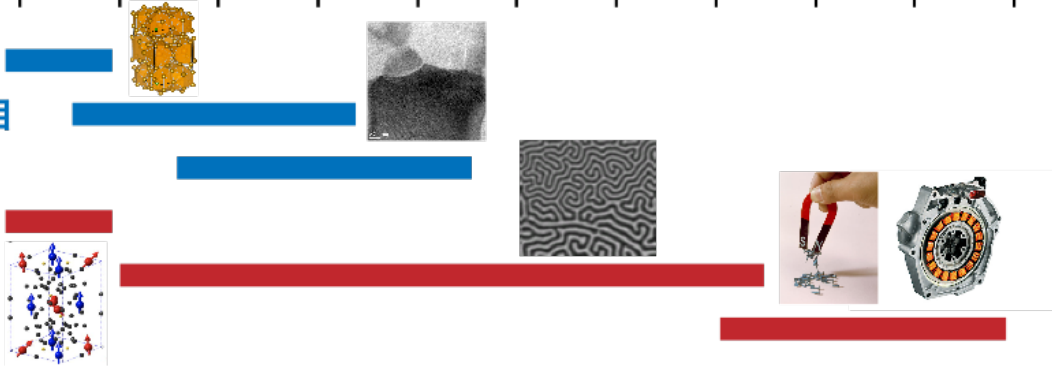
マルチスケール・マルチモーダル構造解析

空間スケール



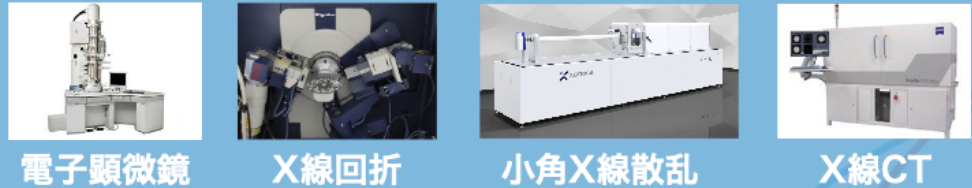
磁石材料

- 構造
 - 結晶構造
 - 結晶粒界相
 - 結晶粒
- 磁性
 - 磁気構造
 - 磁区構造
 - 製品



モダリティ

構造解析



磁性解析

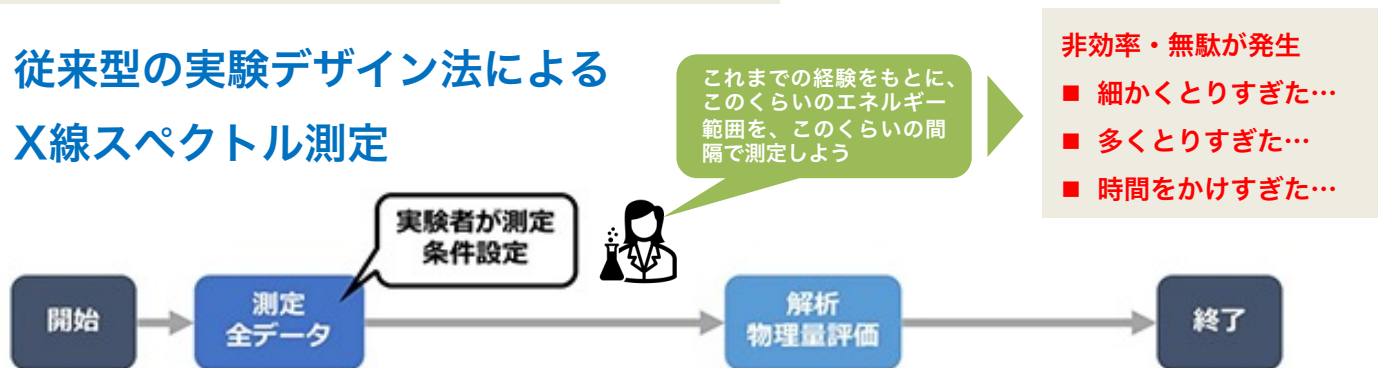


マテリアルドック：最適な実験計画



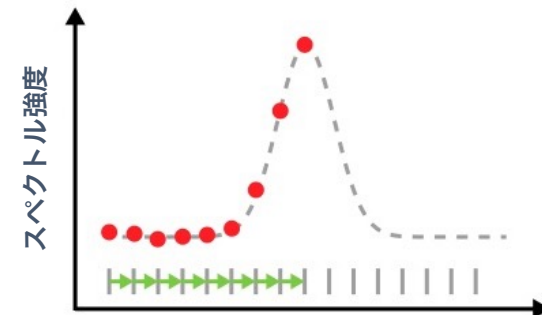
X線スペクトル測定の流れ

従来型の実験デザインによる X線スペクトル測定



測定の様子

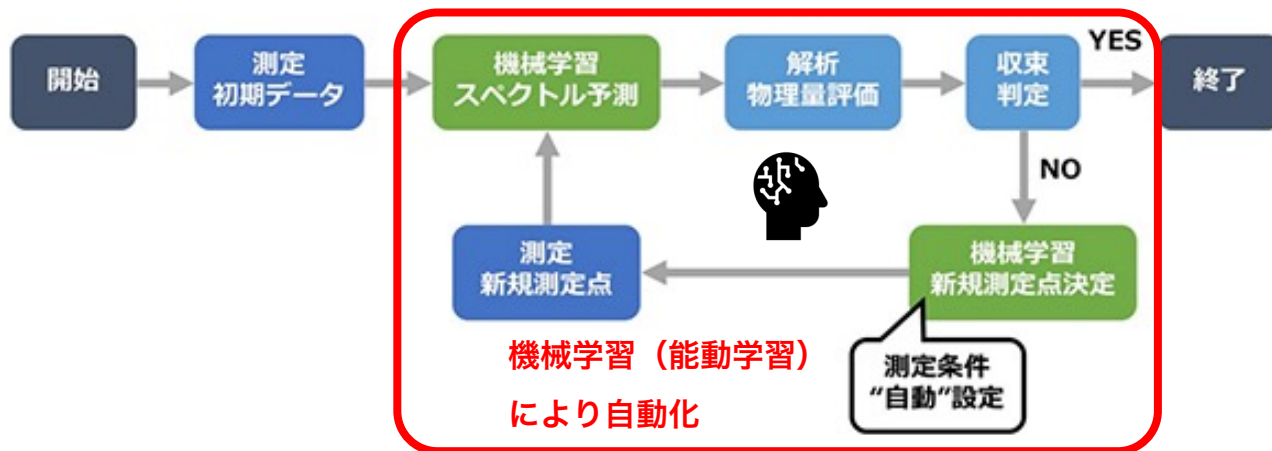
従来型の実験デザイン



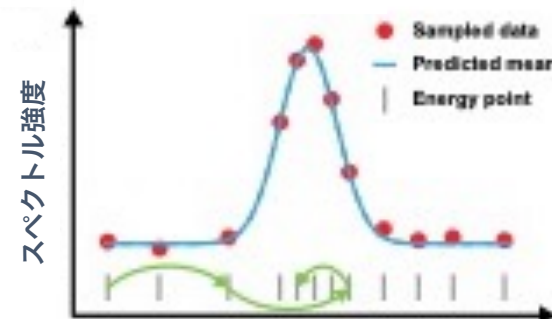
順番に測定 X線エネルギー

能動学習によるX線スペクトル測定

以前の論文で提案
T. Ueno et al., npj Comput. Mater. 4, 4 (2018)



能動学習



X線エネルギー

機械学習(スペクトルの予測)に
基づいて測定点を決定

合理的・最適な測定 → 効率化

マテリアルドック：実験をいつ止めるか

汎用的な停止基準 = “期待汎化誤差”に基づく停止基準

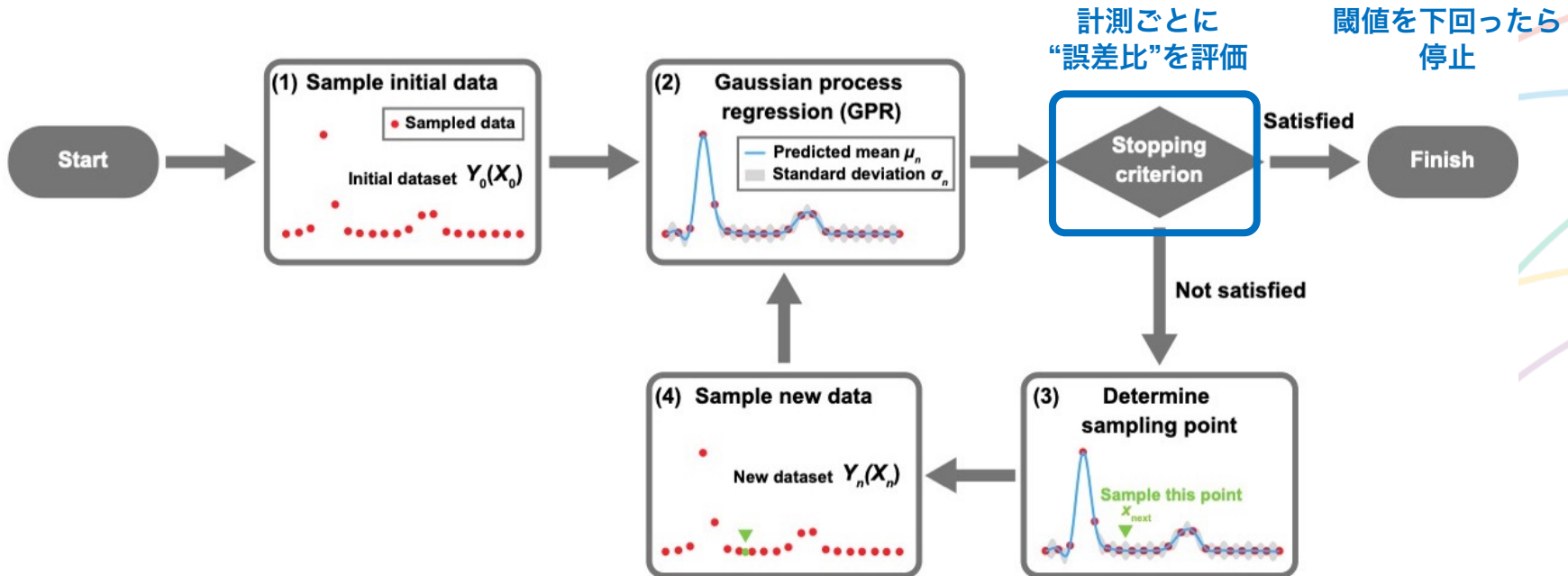
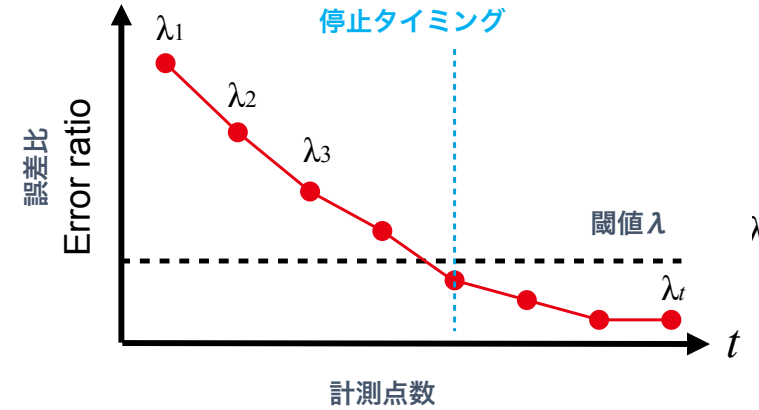
どのようなスペクトル(スペクトルでなくても)にも適用可能

期待汎化誤差

$$\mathcal{L}_t = \int df p_t(f) \mathcal{L}(f).$$

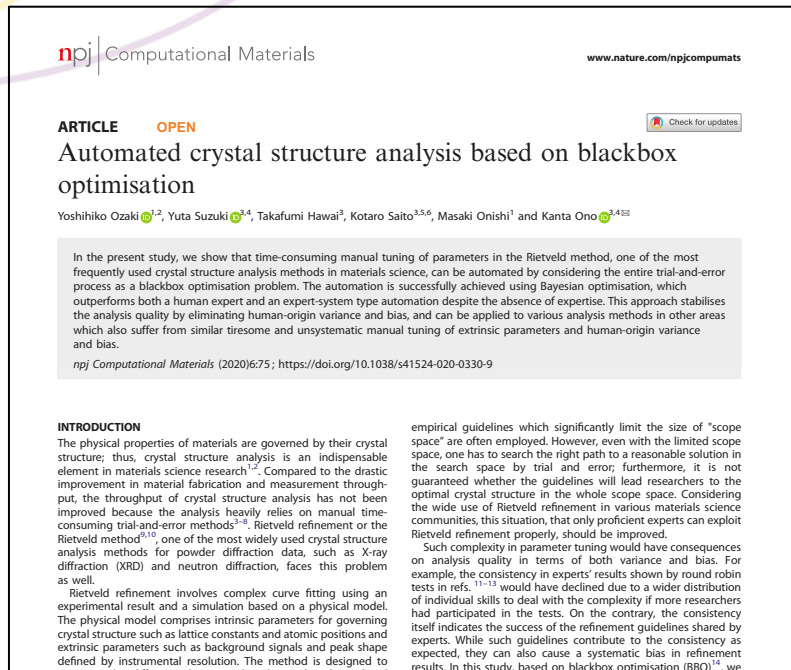
誤差比

$$\lambda_t = \frac{r(p_t, p_{t+1}) + r(p_{t+1}, p_t)}{r(p_1, p_2) + r(p_2, p_1)}.$$



ブラックボックス最適化を用いた結晶構造解析の自動化

Y. Ozaki, *et al.* *npj Computational Materials*, 6, 75 (2020)



npj | Computational Materials www.nature.com/npjcomputats

ARTICLE OPEN [Check for updates](#)

Automated crystal structure analysis based on blackbox optimisation

Yoshihiko Ozaki^{1,2}, Yuta Suzuki^{3,4}, Takafumi Hawai³, Kotaro Saito^{3,5,6}, Masaki Onishi¹ and Kanta Ono^{3,4,5,6}

In the present study, we show that time-consuming manual tuning of parameters in the Rietveld method, one of the most frequently used crystal structure analysis methods in materials science, can be automated by considering the entire trial-and-error process as a blackbox optimisation problem. The automation is successfully achieved using Bayesian optimisation, which outperforms both a human expert and an expert-system type automation despite the absence of expertise. This approach stabilises the analysis quality by eliminating human-origin variance and bias, and can be applied to various analysis methods in other areas which also suffer from similar tiresome and unsystematic manual tuning of extrinsic parameters and human-origin variance and bias.

npj Computational Materials (2020)6:75; <https://doi.org/10.1038/s41524-020-0330-9>

INTRODUCTION
The physical properties of materials are governed by their crystal structure; thus, crystal structure analysis is an indispensable element in materials science research^{1,2}. Compared to the drastic improvement in material fabrication and measurement throughput, the throughput of crystal structure analysis has not been improved because the analysis heavily relies on manual time-consuming trial-and-error methods^{3,4}. Rietveld refinement or the Rietveld method^{5,6}, one of the most widely used crystal structure analysis methods for powder diffraction data, such as X-ray diffraction (XRD) and neutron diffraction, faces this problem as well.

Rietveld refinement involves complex curve fitting using an experimental result and a simulation based on a physical model. The physical model comprises intrinsic parameters for governing crystal structure such as lattice constants and atomic positions and extrinsic parameters such as background signals and peak shape defined by instrumental resolution. The method is designed to minimize the difference between the observed and simulated empirical guidelines which significantly limit the size of "scope space" are often employed. However, even with the limited scope space, one has to search the right path to a reasonable solution in the search space by trial and error; furthermore, it is not guaranteed whether the guidelines will lead researchers to the optimal crystal structure in the whole scope space. Considering the wide use of Rietveld refinement in various materials science communities, this situation, that only proficient experts can exploit Rietveld refinement properly, should be improved.

Such complexity in parameter tuning would have consequences on analysis quality in terms of both variance and bias. For example, the consistency in experts' results shown by round robin tests in refs. 11–13 would have declined due to a wider distribution of individual skills to deal with the complexity if more researchers had participated in the tests. On the contrary, the consistency itself indicates the success of the refinement guidelines shared by experts. While such guidelines contribute to the consistency as expected, they can also cause a systematic bias in refinement results. In this study, based on blackbox optimisation (BBO)¹⁴, we



KEK 産総研 SOKENDAI JST

令和2年6月4日

報道関係者各位

大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構
国立研究開発法人 産業技術総合研究所
国立大学法人 総合研究大学院大学
国立研究開発法人 科学技術振興機構

結晶構造解析の自動化

～ブラックボックス最適化により熟練者を上回る解析精度を達成～

本研究成果のポイント

- 数値最適化の応用により X線回折パターン解析を自動化、熟練者を越える解析精度を実証
- 熟練者が1日を要する解析作業を、PC1台で1時間に
- データ解析における解析者の主観を除き、新しい解の候補を発見可能

【概要】
大学共同利用機関法人 高エネルギー加速器研究機構 (KEK) 物質構造科学研究所 量子ビーム連携研究センターの小野 寛太 准教授を中心とするKEKおよび総合研究大学院大学、産業技術総合研究所、国立研究開発法人 産業技術総合研究所、国立研究開発法人 科学技術振興機構

結晶構造解析の自動化

結晶構造解析の問題点

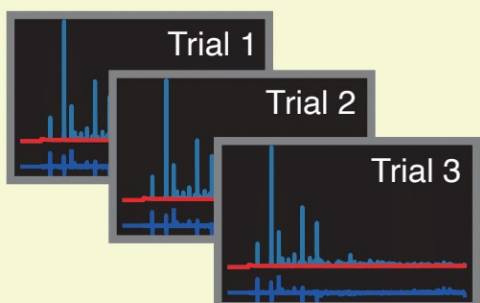
- 非常に多くのパラメータ。局所解に収束。
- 専門家（熟練者）が試行錯誤してパラメータを設定（数時間～数日）

ブラックボックス最適化

Minimise $R_{wp}(x)$
subject to $c(x)$

- これまでの精密化結果を基に
新しい設定 x を生成

- 制約条件を満たすか確認

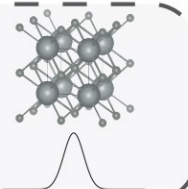


物理モデル設定

background function : **Chebyshev**
degree of background function : **9**
background refinement : **True**
peak shape refinement : **True**
etc.
⋮

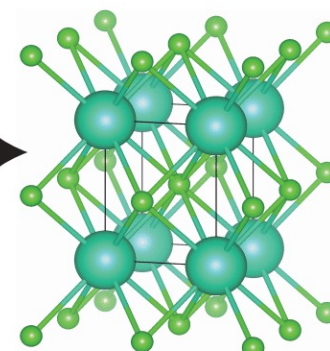
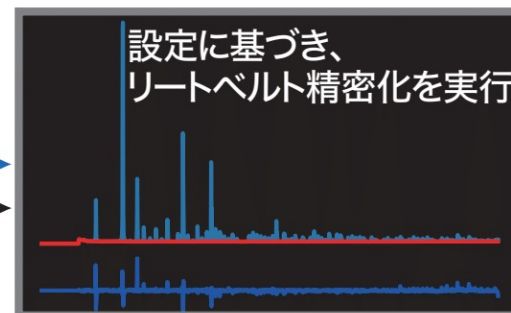
初期パラメータ

initial crystal structure
instrument parameters
etc.
⋮



リットベルト精密化

設定に基づき、
リットベルト精密化を実行



精密化された結晶構造

$R_{wp}(x)$

ブラックボックス最適化ループ

Y. Ozaki, K. Ono et al., *npj Comp. Mat.* **6**, 75 (2020)

結晶構造解析を完全自動化：数時間～数日 → 数分 **10倍以上**

結晶構造解析の自動化：専門家を凌駕



Le Bail 先生



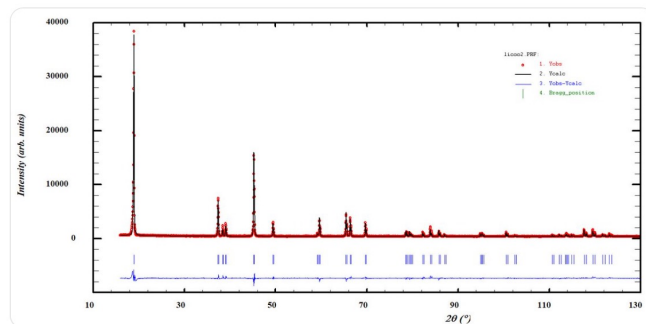
Armel Le Bail
@xtalb

フォローする

最小の Rwp ~ 8.6%

Given the 2019 Chemistry Nobel, time to play with LiCoO2 powder diffraction real data :

cristal.org/LiCoO2.zip



0:28 - 2019年10月10日



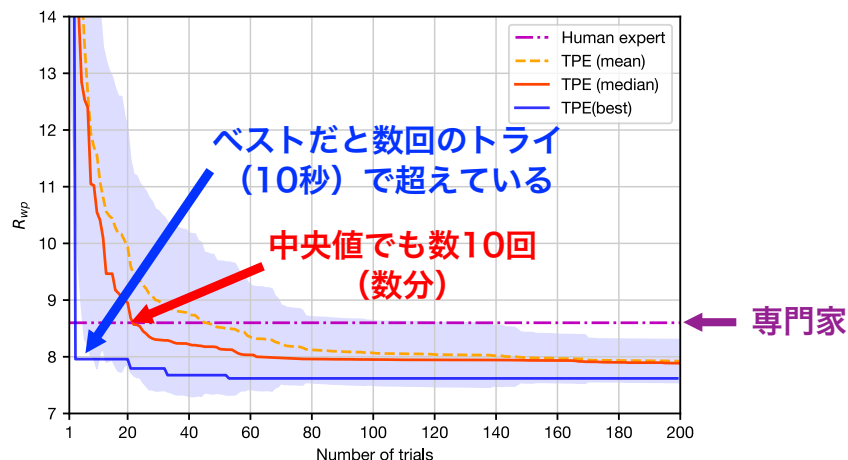
Armel Le Bail @xtalb · 10月10日

No. The pattern is a bit noisy and this influences the various available Rwp, the smallest being 8.6% :

```
==> RELIABILITY FACTORS WITH ALL NON-EXCLUDED POINTS FOR PATTERN: 1
=> Cycle: 18 => MaxCycle: 30
=> N-P+C: 3969
=> R-factors (not corrected for background) for Pattern: 1
=> Rp: 5.88 Rwp: 8.59 Rexp: 4.14 Chi2: 4.32 L.S. refinement
=> Conventional Rietveld R-factors for Pattern: 1
=> Rp: 18.9 Rwp: 17.5 Rexp: 8.41 Chi2: 4.32
=> Deviance: 0.181E+05 Dev* : 4.548
=> DW-Stat.: 0.6334 DW-exp: 1.9174
=> N-sigma of the GoF: 147.713

==> RELIABILITY FACTORS FOR POINTS WITH BRAGG CONTRIBUTIONS FOR PATTERN: 1
```

われわれの方法



- 専門家を凌駕
- X線回折だけでなく、電子線回折、中性子回折にも適用可能
- 課題：問題を解かせるとドンドン賢くなる：メタ学習 (learning to learn)¹

Y. Ozaki, K. Ono et al., *npj Comp. Mat.* **6**, 75 (2020)

マテリアルドック：解析自動化は熟練者を超える



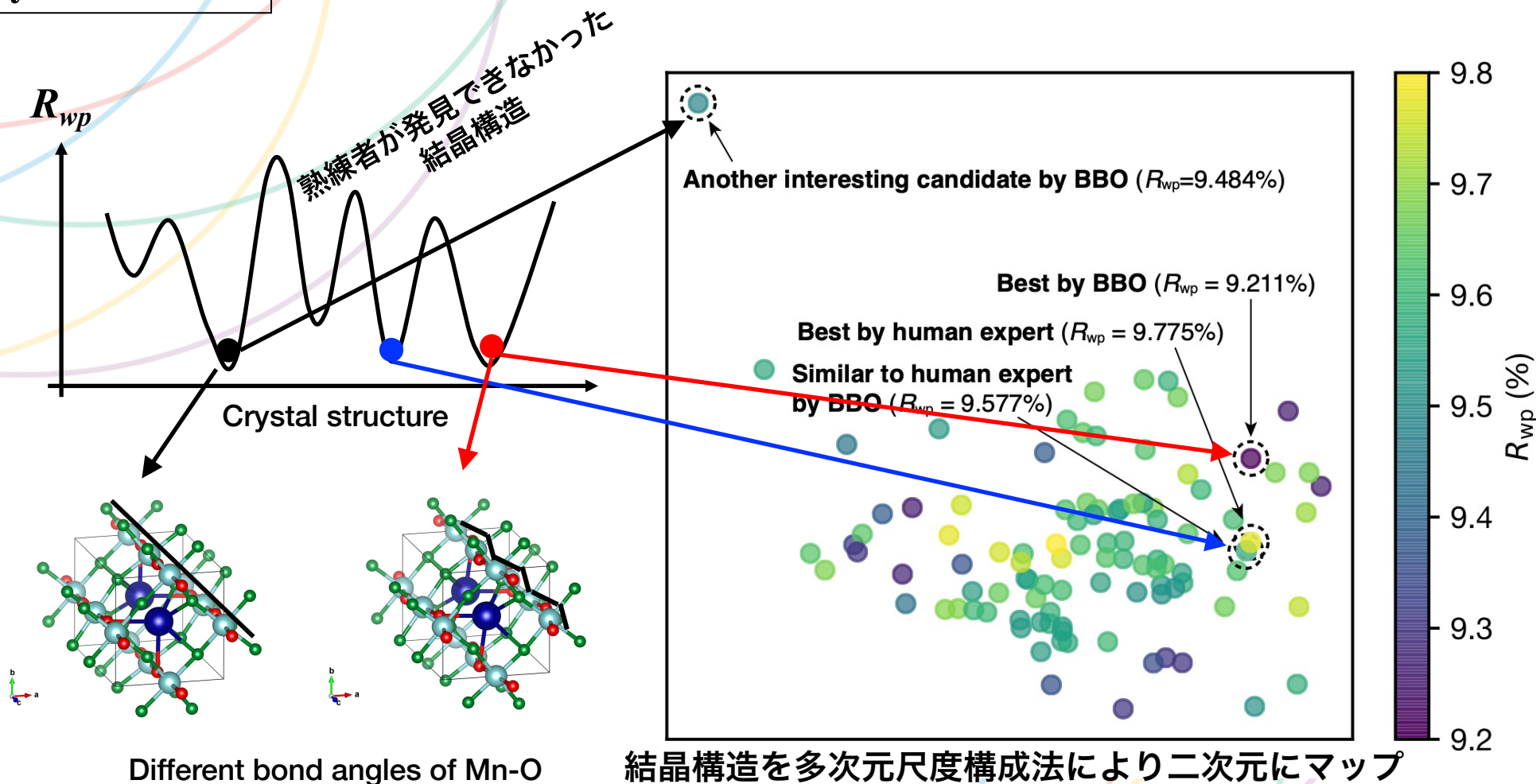
大阪大学
OSAKA UNIVERSITY



OPEN 2021

Y. Ozaki, K. Ono et al., *npj Comp. Mat.* **6**, 75 (2020)

Dy_{0.5}Sr_{0.5}MnO₃

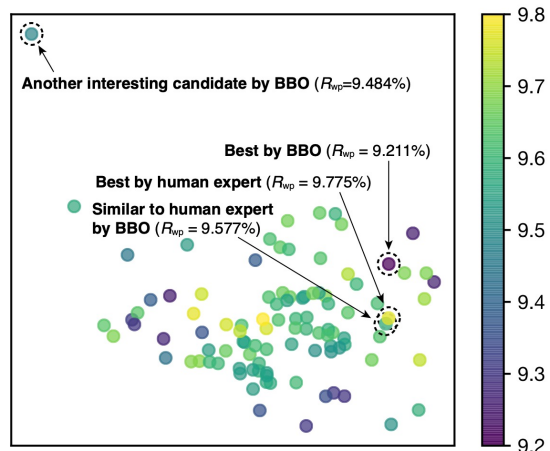
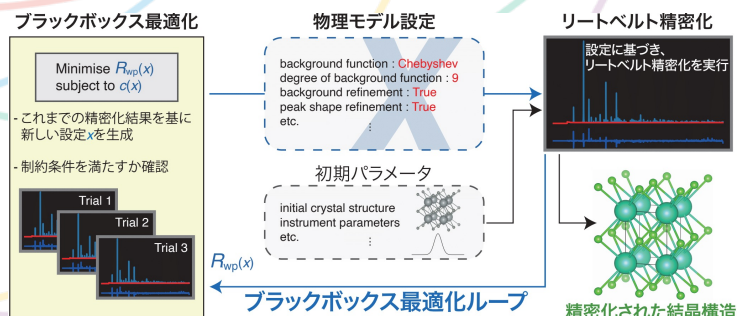


人間では発見できなかった結晶構造候補を見つけた
どれが正しい結晶構造なのだろうか？

ハイブリッドデータ解析

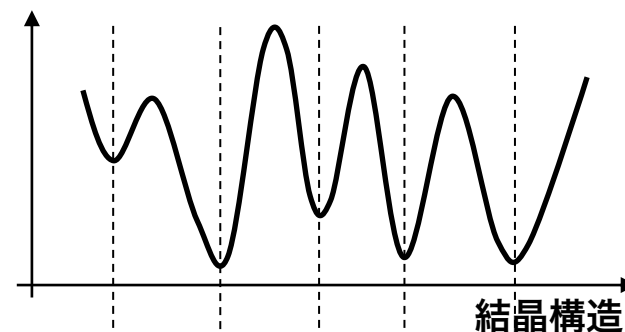
計測+機械学習と理論計算の両面からの最適化

Matsumoto, Hawaii, and K. Ono
Phys. Rev. Applied **13**, 064028 (2020)



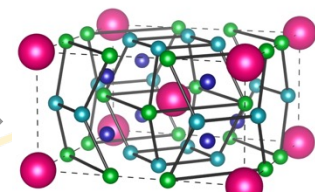
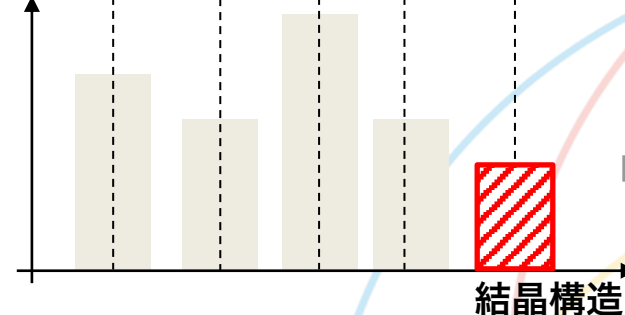
結晶構造解析

R 因子



第一原理計算

生成エネルギー



計測データ解析では熟練者による意思決定が行われている
マルチモーダル（計測データ解析と理論計算）の統合が重要 13

CaaS : Characterization as a Service

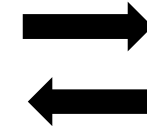


個別のモダリティ(計測・解析手法)について数理科学を活用して自動化・高速化・最適化

異なる計測 (マルチモーダル) データの融合とマルチスケール定量情報・知識獲得

CaaS - XRD

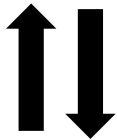
- Automatic XRD Control Module
- Optimal Design of Experiments Module
- Crystal Structure Database (ICSD, COD)
- Automated Analysis (BBO-Rietveld)
- DFT Structure Optimizer Module



CaaS - NMR

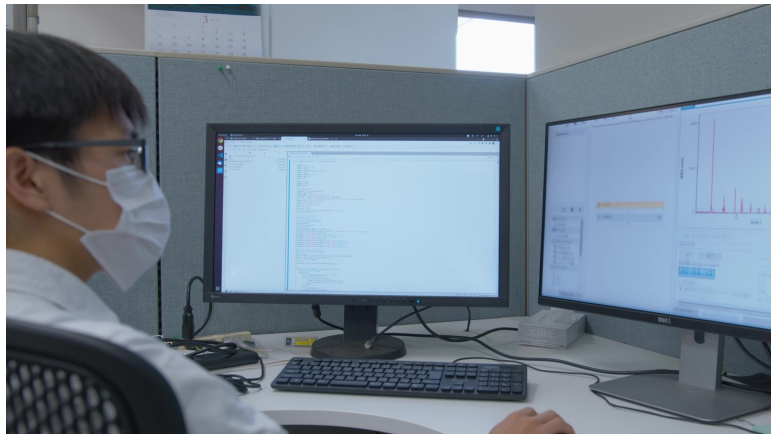
開発予定

Set samples
Run XRD



Results
(Quantitative, Structure)

Control
XRD patterns



まとめ：マテリアルドック



大阪大学
OSAKA UNIVERSITY



OPEN 2021

計測

計測インフォマティクス
最適実験計画・自動データ解析

機械学習

計測自動化
自動試料作製・調製



自律制御

ロボティクス



MEEP

Materials Exploration space Extension Platform