

東京大学  
生産技術研究所（マテリアル工学専攻）

JST さきがけ  
京都大学・化学研究所

# 溝口照康

## マテリアルズインフォマティクス

物質・分子探索ではなく

機械学習の有機的な融合により

膨大な候補構造の中から



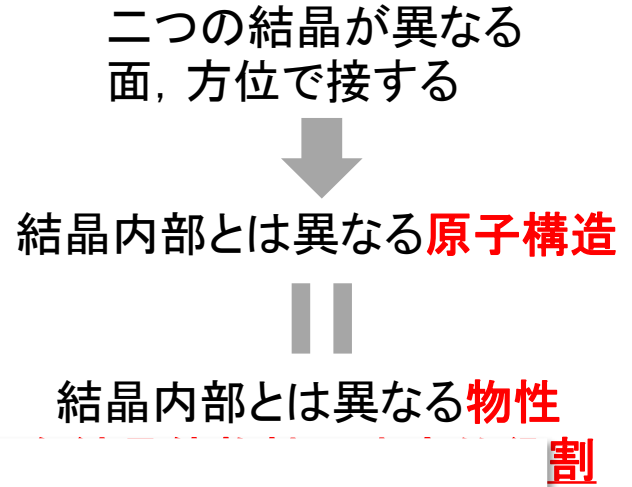
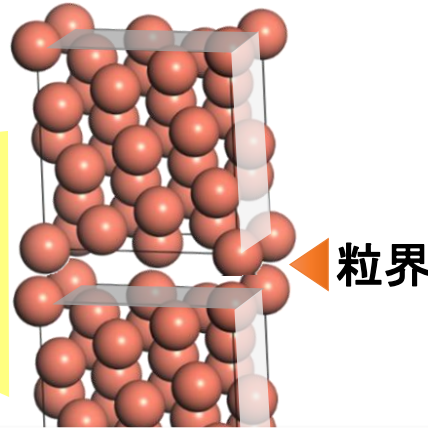
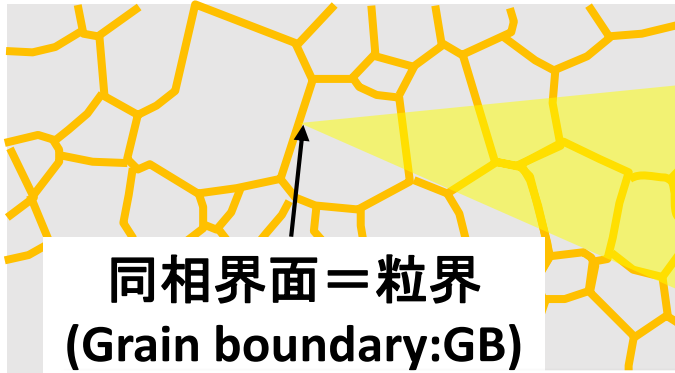
**結晶界面の構造決定**



データ数が膨大になっている

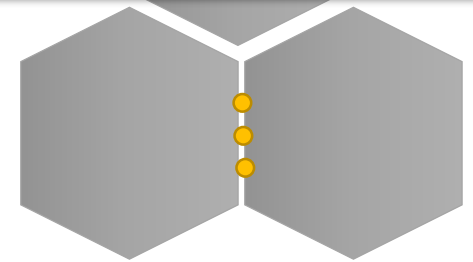
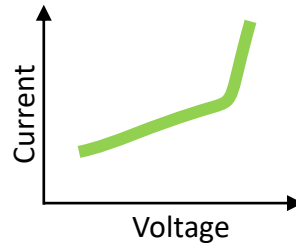
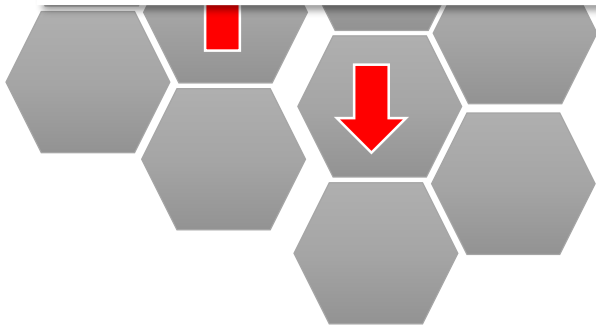
**スペクトル解釈**

多くの実用材料 → 多結晶体



界面物性の起源 = 界面構造 を決定する

➔ 物質研究における重要なテーマ

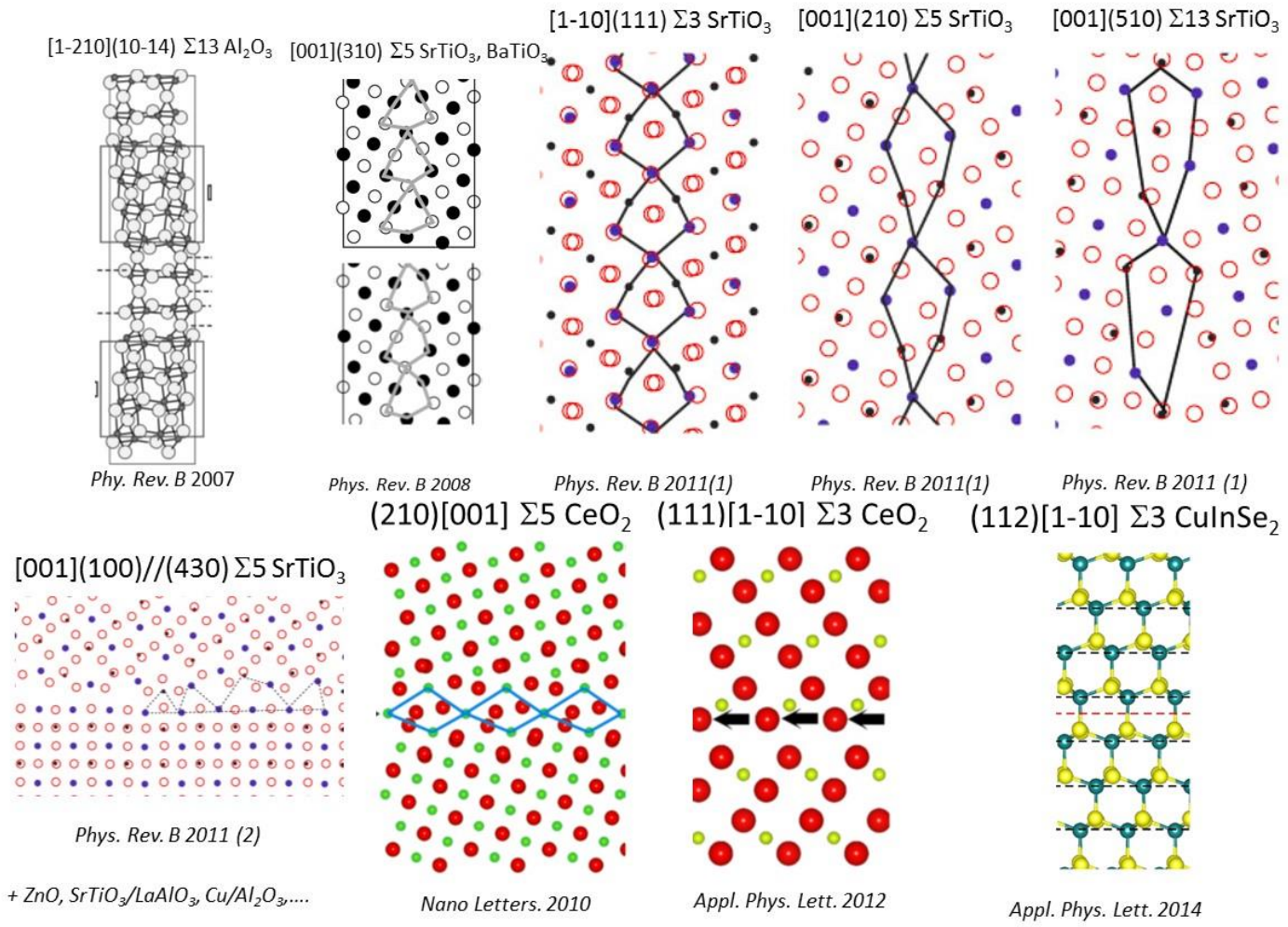


粒界固有の **物性**



粒界固有の **原子構造**

# 結晶界面インフォマティクス：界面の重要性



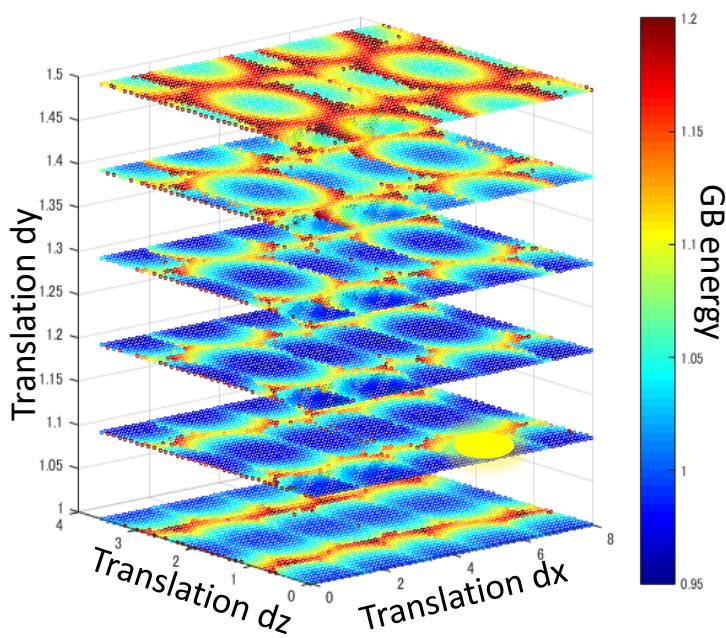
**これまでの界面研究 = 粒界の各個研究**  
**➔ 構造決定に多大な労力が必要**

# 結晶界面インフォマティクス：界面の重要性

## 界面構造決定の難しさ

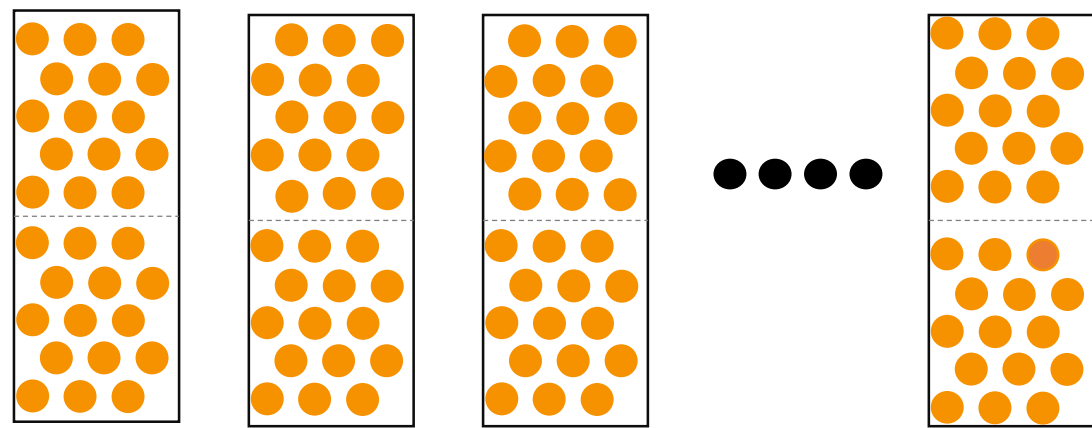
### → 構造の自由度

例) モデル化された金属のCSL粒界



**しかも界面の種類は無数！**  
対称  $\Sigma$  100以下 50種類以上  
+ 非対称, ねじり, ランダム...

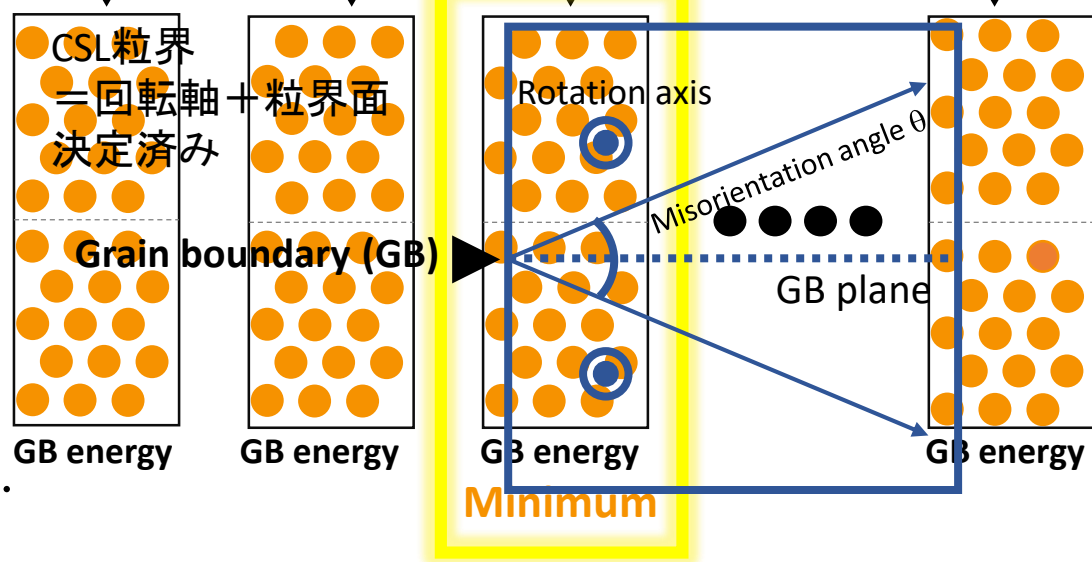
## Candidate configurations (before optimization)



Several hundreds ~ Several tens thousand configurations!!

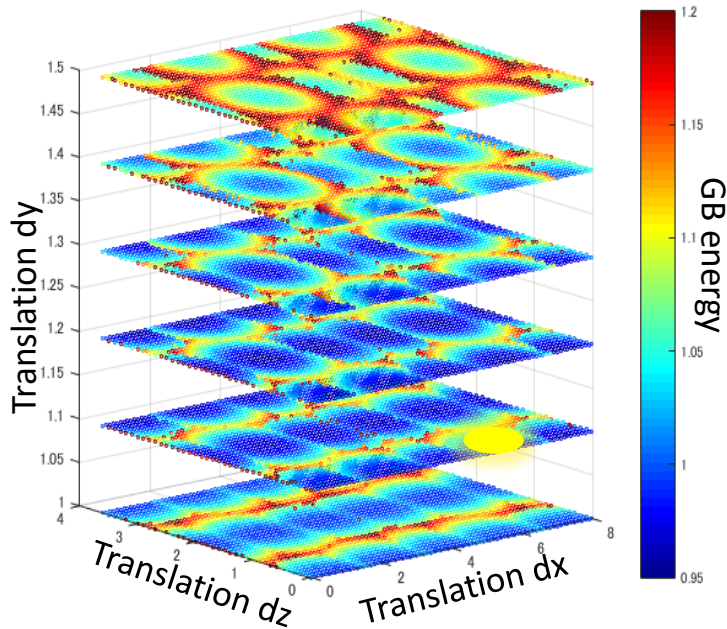
**DFT or MD simulations**  
for structure & energy calculation  
→ **Time Consuming!!**

Interface on Coincidence Site Lattice (CSL) theory



界面研究を加速 = **構造決定の過程を加速**

構造決定の過程 = **最適値探索問題**



▶ by 仮想スクリーニング

S. Kiyohara et al., Science Adv. (2016) 2, e1600746

▶ by ベイズ最適化 (Kriging)

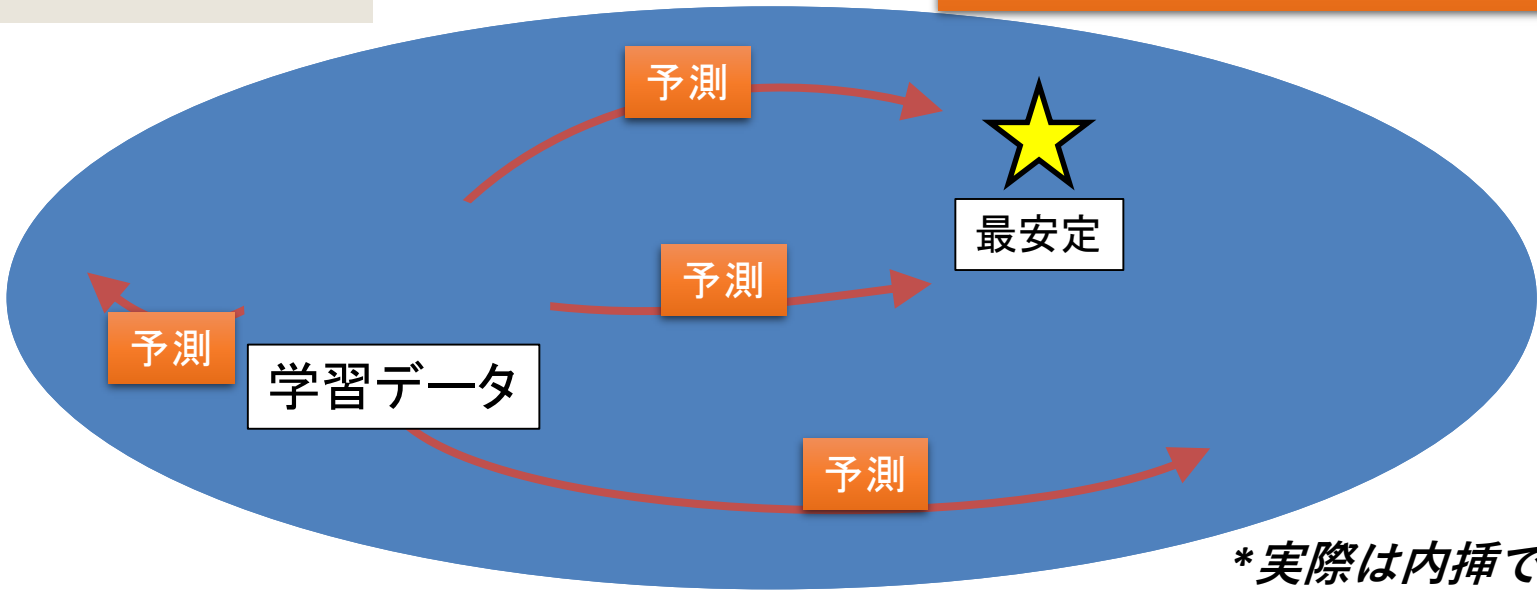
S. Kiyohara et al., Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 045502

**仮想スクリーニングとは**（有機EL，電池材料探索）  
膨大な候補の中から最安定なポイントを見つけたい  
→ 最適値探索問題

網羅的計算-ニング

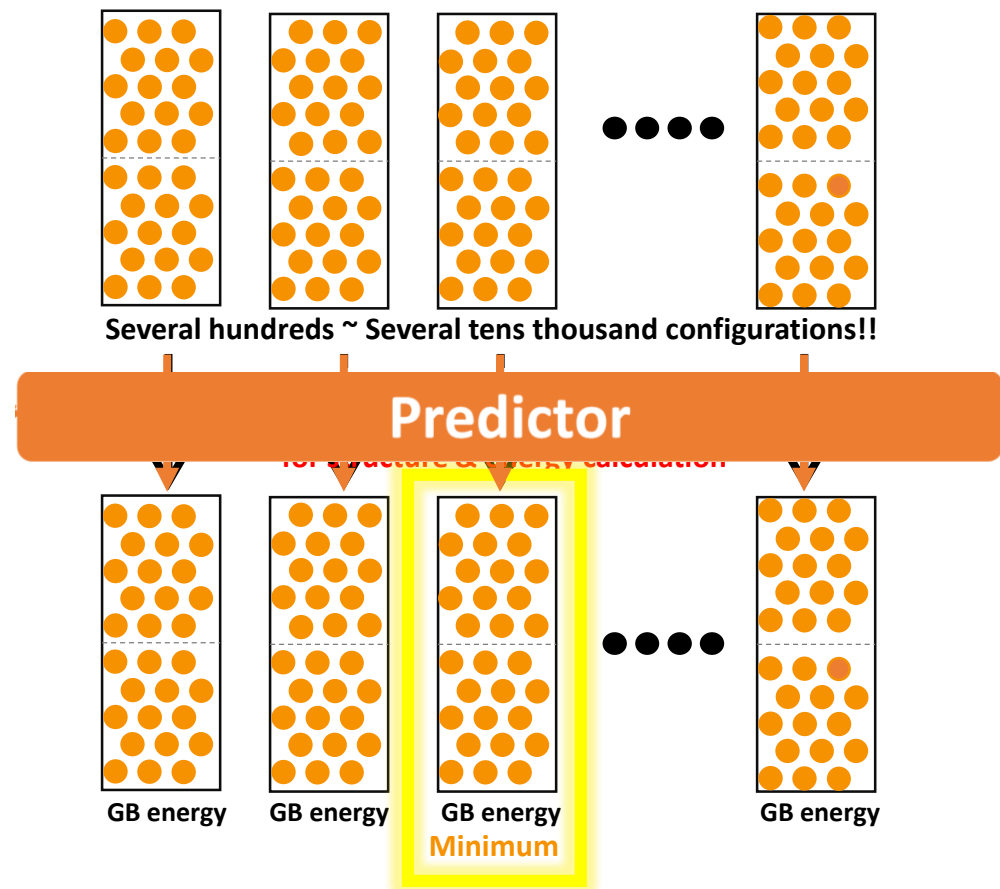
探索候補全体

予測は予測モデル＝Predictor  
(回帰器)を用いて行う



機械学習により計算コスト削減

# 結晶界面インフォマティクス：仮想スクリーニング

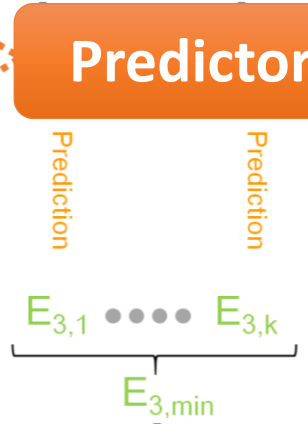
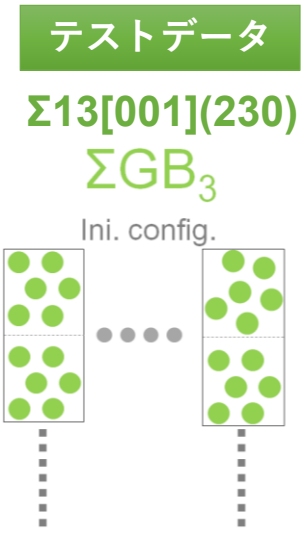
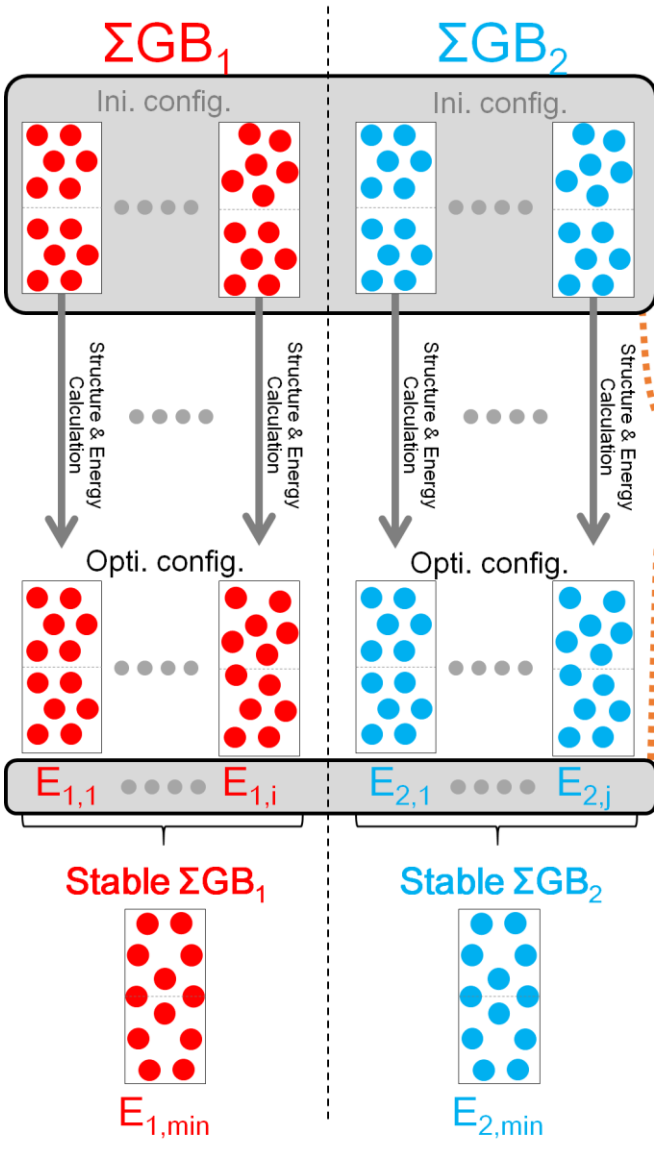


**Predictor = 回帰器, 予測モデル**

**モデルとしてCu [001]対称傾角粒界の系統的決定**

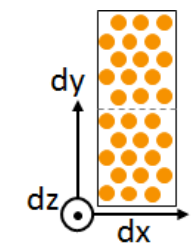
# 結晶界面インフォマティクス：仮想スクリーニング

$\Sigma 5[001](210)$ ,  $\Sigma 5[001](310)$   
 $\Sigma 17[001](350)$ ,  $\Sigma 17[001](410)$



**Predictor**

Cu [001]対称傾角粒界  
 の系統的決定



$dx, dy, dz = 5.0, 1.0, 0$  ang.  
**GB Energy = 0.96 J/m<sup>2</sup>**

**答え合わせ!**  
 $dx, dy, dz = 5.0, 1.0, 0$  ang.  
**GB Energy = 0.84 J/m<sup>2</sup>**

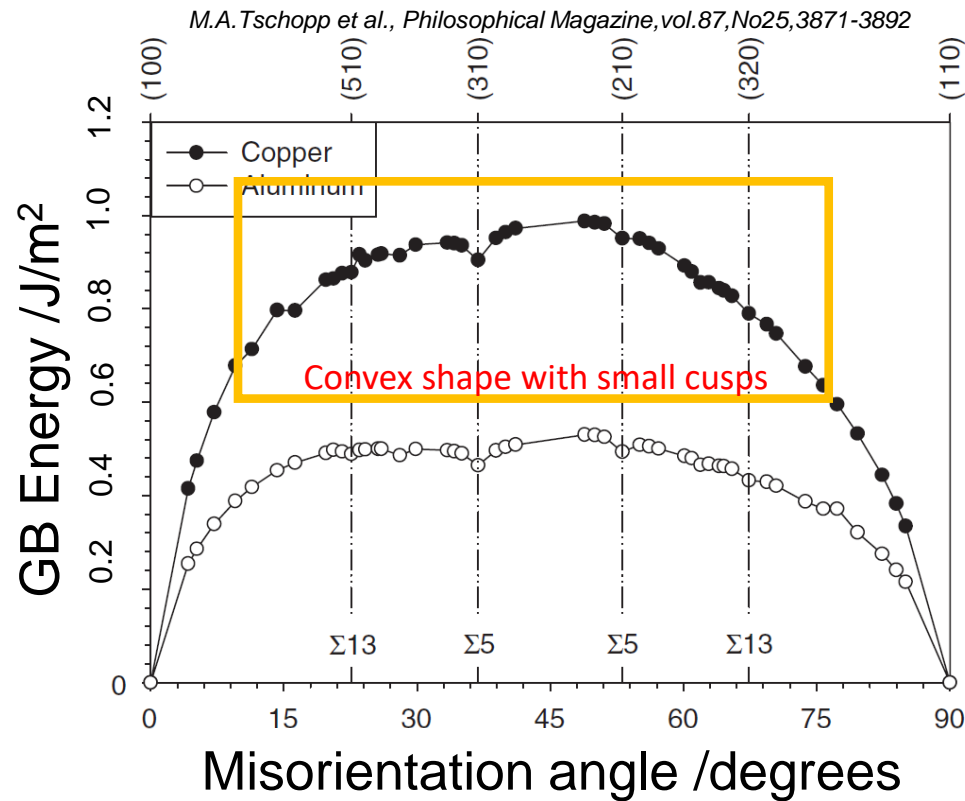
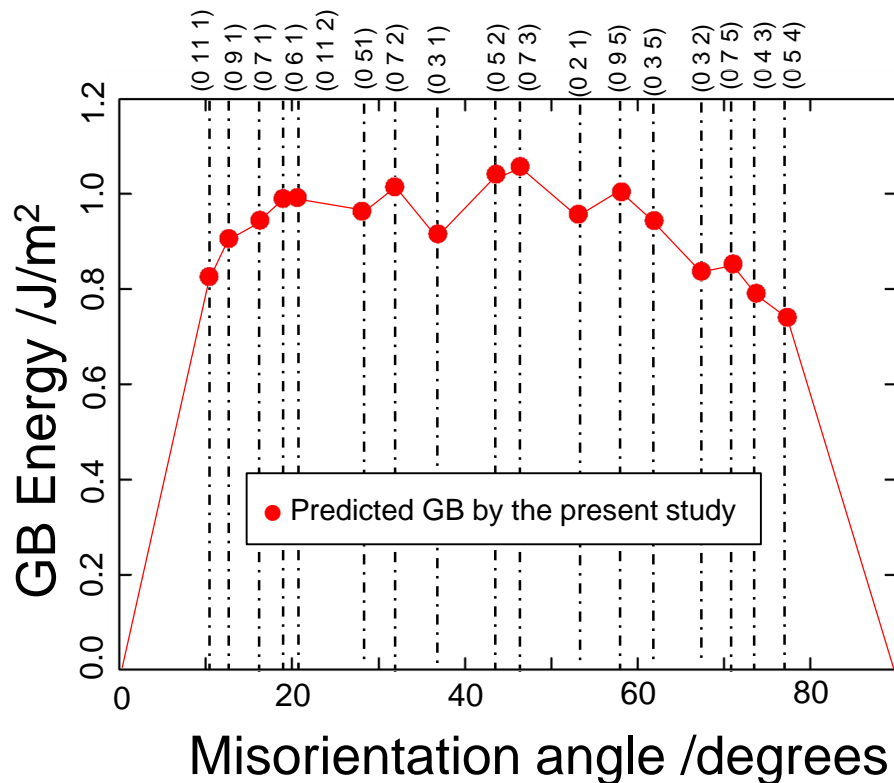
数千個の候補構造から  
 正確に1つをスクリーニング  
 ↓  
 計算コストを大幅に削減



12 GBs

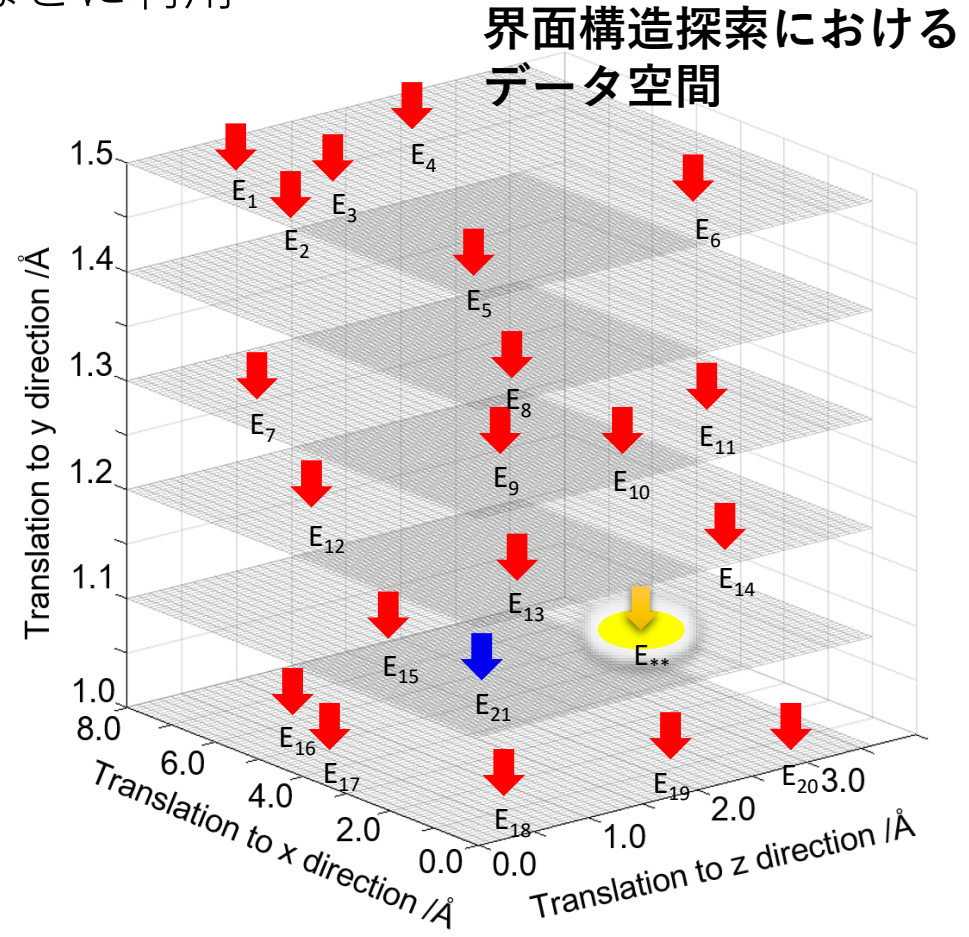
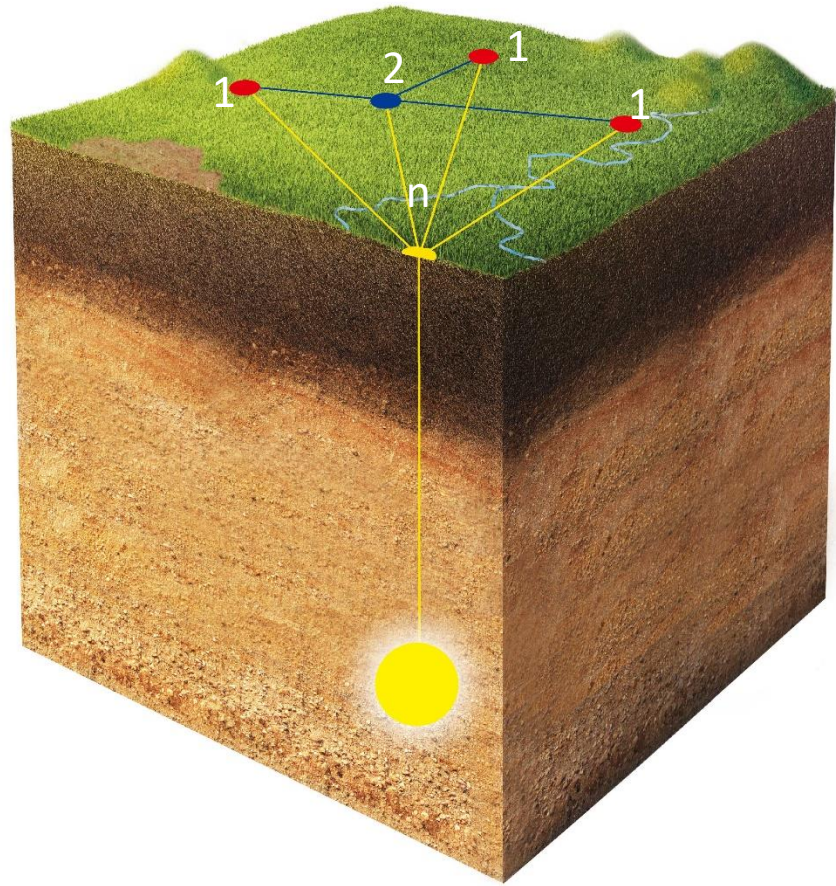
$\Sigma 25(043), \Sigma 25(071), \Sigma 29(052), \Sigma 29(073), \Sigma 37(061), \Sigma 37(075)$   
 $\Sigma 41(054), \Sigma 41(091), \Sigma 53(072), \Sigma 53(095), \Sigma 61(0\ 11\ 1), \Sigma 125(0\ 11\ 2)$

were “predicted” from the regression results.



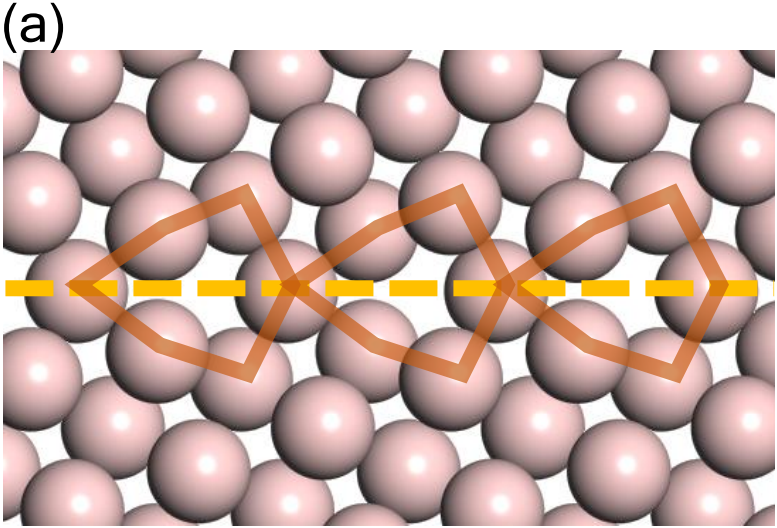
粒界構造を高速かつ高精度に決定  
**約60,000倍ほどの高速化**

**Kriging:** ガウス過程回帰 + ベイズ最適化による空間補完法  
→ 地下資源探索などに利用



実測と推定 (予測) を繰り返して効率的に最適値を探索  
→ 最適値探索問題に非常に有効

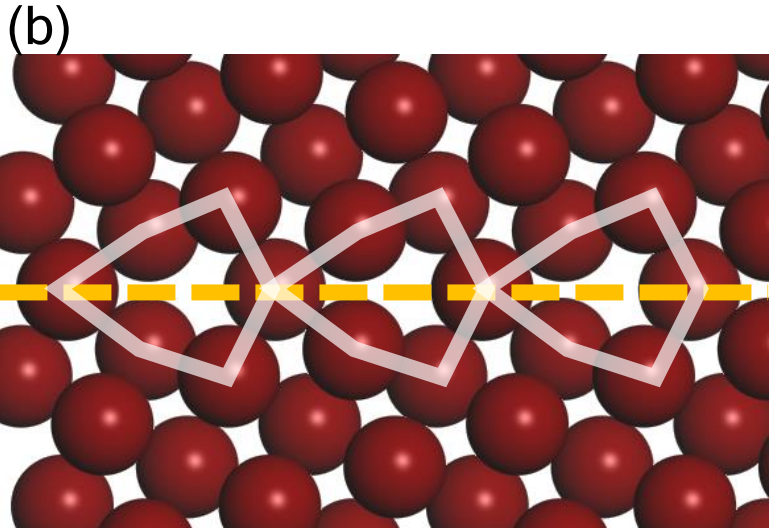
Cu [001] (210)  $\Sigma$ 5 GB



全候補計算

GB energy=0.96J/m<sup>2</sup>

計算回数 (候補構造) = 16,983回



**Kriging method**

GB energy=0.96J/m<sup>2</sup>

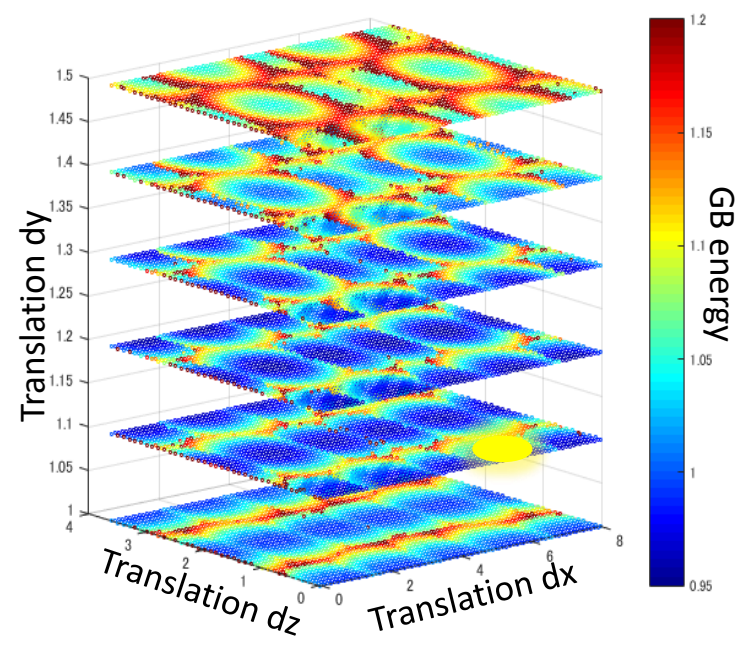
**探索回数 = 69回**  
**(最初のランダム探索20回含む)**



Krigingにより **200 倍** 高い効率で最安定構造を決定!

界面研究を加速 = **構造決定の過程を加速**

構造決定の過程 = **最適値探索問題**



▶ by 仮想スクリーニング  
S. Kiyohara et al., Science Adv. (2016) 2, e1600746

+ **“Universal” Predictor**

▶ by ベイズ最適化 (Kriging)  
S. Kiyohara et al., Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 045502

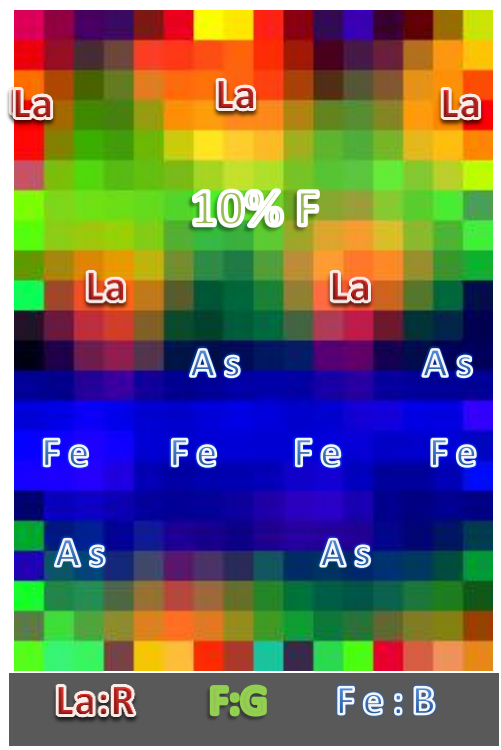
+ **転移学習**

H. Oda et al., J. Phys. Soc. Jpn, 86 (2017) 123601

+ **界面構造DB + 界面物性DB → 構造機能相関**

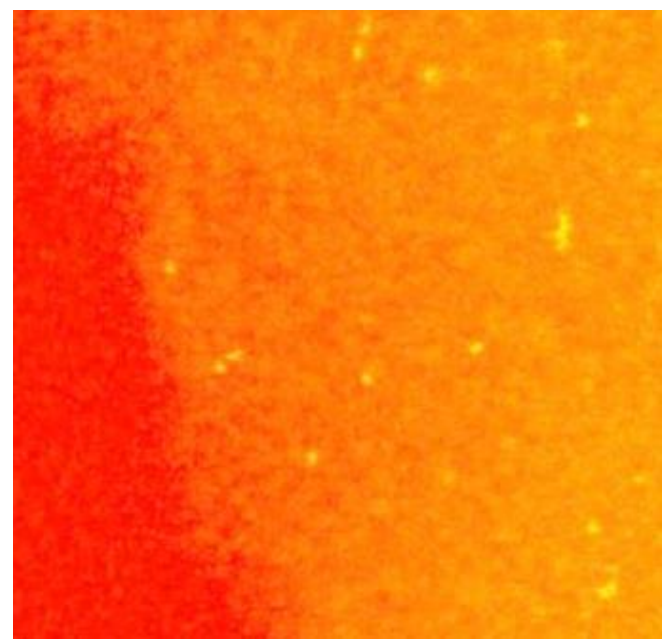
+ **“データ駆動型”のスペクトル解釈**

# 固体 中単原子観察



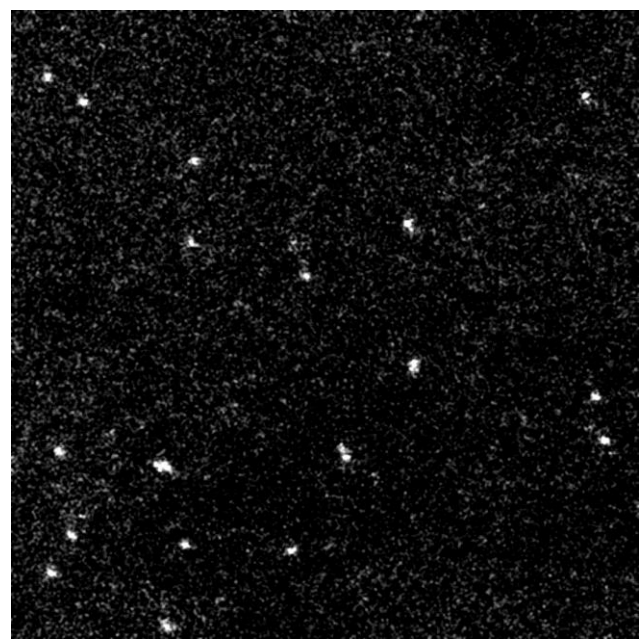
**F doped LaFeOAs**  
T. Tohei, T. Mizoguchi et al. APL 2009

# ガラス 中単原子観察



T. Mizoguchi et al., ACS nano (2013)

# 液体 中単原子観察



T. Miyata et al., Science Adv. (2017)

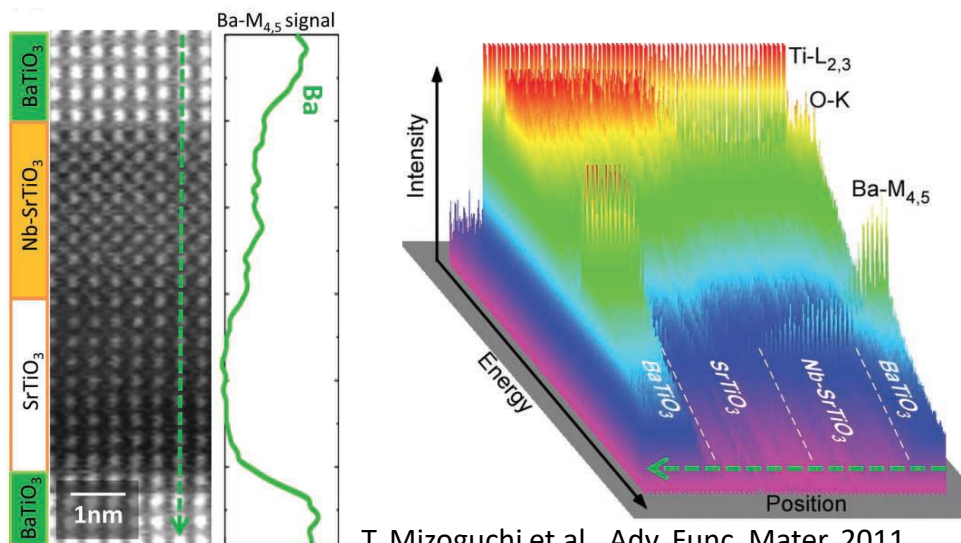
計測からみた機械学習への期待

空間分解スペクトル  
時間分解スペクトル

多次元スペクトルの測定



データ（スペクトル）量が**急増**



1本のラインスキャンで64本のスペクトル

専門の研究者が一本一本スペクトルを理論計算して解釈する

“研究者駆動型”のスペクトル解釈の**限界**



“データ駆動型”のスペクトル解釈

## まとめ (セルフ Q & A)

仮想スクリーニング : S. Kiyohara et al., Science Adv. (2016) 2, e1600746

ベイズ最適化 (Kriging) : S. Kiyohara et al., Jpn. J. Appl. Phys. 55 (2016) 045502

転移学習 : H. Oda et al., J. Phys. Soc. Jpn, 86 (2017) 123601

- 第一原理計算も可能? ➡ 可能です。 計算手法に非依存
- 半導体にも可能? ➡ 可能です。 酸化物等も。 物質に非依存
- 異相界面に利用可能? ➡ 可能です。 ただし semi-coherentは難しい
- 結晶以外は? ➡ モデルがあれば可能では。

液体の原子分解能計測 : T. Miyata et al., Science Adv. 3 (2017) e1701546

気体のナノ振動計測 : H. Katsukura et al., Sci. Rep. 7 (2017), 16434

# ご清聴ありがとうございました

# 謝辞

## 研究室の学生諸氏



## Alumni



Funding: 新学術領域「ナノ構造情報」, JST-PRESTO