

令和 3 年 6 月 25 日現在

機関番号：82502

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K13984

研究課題名（和文）磁区構造・局所磁化曲線同時計測と機械学習の融合による新規磁性材料開発基盤の構築

研究課題名（英文）Platform for development of novel magnetic materials by integration of machine learning and simultaneous observation of magnetic domains and local magnetization curves

研究代表者

上野 哲朗（UENO, Tetsuro）

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光科学研究所 放射光科学研究センター・主任研究員

研究者番号：20609747

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,000,000円

研究成果の概要（和文）：磁性材料の磁区構造と局所磁化曲線を同時に測定する手法を開発し、これらの計測・データ解析を機械学習と融合することで革新的な磁性材料開発基盤を構築した。局所磁化曲線の詳細な解析によって、磁化反転過程や保磁力発現に寄与する特異な物質相や微細構造の特定が可能となる。磁気光学Kerr効果顕微鏡FORC(First-order reversal curves)測定システムの構築、情報科学を駆使した大規模データ処理による磁区構造解析手法の開発、実用材料の磁区構造観察、汎用ロボットアームによる試料調整の自動化、ハイスループット実験のための計測インフォマティクスによる計測効率化を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で開発した磁気光学Kerr効果顕微鏡FORC測定システムと大規模データ処理による磁区構造解析手法を用いることで、試料振動型磁束計などによるバルク磁化測定よりも詳細な磁気特性の情報を得ることができる。また汎用ロボットアームによる実験自動化を拡張すると、試料調整のみならず測定の自動化も含めてハイスループット化することができる。将来的にはこのようなロボットによる実験自動化を「どの試料どのような条件・順番で測定すべきか？」という問いに答えるマテリアルズ・インフォマティクスや計測インフォマティクスと組み合わせることによって大量の実験データを効率的に取得することができるようになる。

研究成果の概要（英文）：We have developed a method to simultaneously measure magnetic domains and local magnetization curves of magnetic materials, and by integrating these measurements and data analysis with machine learning, we have built a platform for the development of novel magnetic materials. The detailed analysis of local magnetization curves enables us to identify unique material phases and microstructures that contribute to the magnetization reversal process and an origin of coercivity. We developed a magneto-optical Kerr effect microscope FORC (first-order reversal curves) measurement system and a method for magnetic domain analysis by large-scale data processing using information science. We observed the magnetic domains of practical materials using the system. We also developed automated sample preparation system using a general-purpose robot arm. We have also conducted the improvement of an experimental efficiency with a measurement informatics for high-throughput experiments.

研究分野：応用物理学

キーワード：磁気光学Kerr効果 磁区構造 磁化曲線 磁性材料 機械学習 マテリアルズ・インフォマティクス 計測インフォマティクス ロボット実験

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

永久磁石材料、磁気記録材料、スピントロニクス材料などの磁性材料は現代社会において最も重要な材料のひとつである。磁性材料の特性向上・高機能化は高エネルギー効率化、記録密度向上、デバイスの高速化などに資する。そのためには材料の機能発現機構を微視的な観点から理解することが必要である。最近、永久磁石材料の重要な特性の一つである保磁力の発現機構を調べるために First-order reversal curves (FORC) 測定が用いられている[1]。磁化-磁場(M-H)曲線における FORC 測定は、ヒステリシス上で反転磁場を少しずつ増大させながら磁化曲線を大量に測定し、ミクロな保磁力の分布を得る実験手法である。この手法は岩石学・古地磁気学の分野ではマグネタイトなどの磁性鉱物の粒径分布の解析に用いられている[2]。

FORC 曲線は $\rho(H, H_r) = -(1/2) \partial^2 M(H, H_r) / \partial H \partial H_r$ の関係によって、FORC 図に変換することができる。FORC 図 ρ は磁化 M (磁場 H と反転磁場 H_r の関数) の二階微分として与えられる。FORC 図の横軸は保磁力、縦軸は相互作用場である。従来の単純な M-H 曲線の測定からは得られない情報を取得可能であり、機能発現の微視的な機構を理解するために有用な手法であると考えられる。しかしながら本手法にはいくつかの問題点がある。まず FORC はその概念や結果の意味が大変わかりづらいため、実際の磁区の変化と FORC 図にどのような対応関係があるのかを明らかにする必要がある。また当初の FORC の適用対象である岩石のように比較的磁化の小さな粒子が希薄に分布している系では、それらの磁氣的相互作用を考えることで FORC 図が理解されてきたが、永久磁石のように磁化の大きな粒子が非常に密に存在し、互いに強い磁氣的相互作用を及ぼし合っている系について同様の解釈で良いのかは自明ではない。

2. 研究の目的

本研究では上記の問題点を解決するとともに、機械学習による局所 FORC 図の解析によって材料の機能発現に関わる特異な相や微細構造の特定を行う手法を確立することを目的とする。本研究において、これまで永久磁石材料では M-H 空間と保磁力-相互作用場空間のみで語られてきた FORC について、磁気光学 Kerr 効果顕微鏡による磁区の実空間観察を通じてアプローチし、さらに解析に情報科学手法を応用する。磁場印加下での磁区観察例は多数報告されているが、磁場のデータ点数は少なく、FORC 測定のように数 1,000~10,000 点というデータ点数での測定は皆無である。このような測定では実験データ量が膨大になるため、従来型の磁区像を一枚一枚見ていくという解析手法では到底処理することができない。そこで本研究では情報科学手法を駆使して膨大なデータを効率的に解析するための手法を開発する。さらに本研究の独創的な点は、情報科学手法を用いて測定を最適化することにある。従来型の FORC 測定では磁場を細かく掃引して膨大なデータ点数を測定する必要があるが、ベイズ推論に基づいて測定を最適化し、短時間で同等の解析結果を得るための手法を開発する。具体的な目的は次の通りである。(1) Kerr 効果顕微鏡 FORC 及び磁気光学 Kerr 効果 FORC 測定システムを構築するとともに、情報科学を用いた解析手法を開発する。(2) 磁気光学 Kerr 効果顕微鏡による磁区観察と FORC を組み合わせた測定を行い、実空間での磁区変化と FORC 図を関連付けて、FORC 図の物理的意味を明らかにする。(3) 磁化・磁氣的相互作用の様々に異なるモデル系の解析を行い、磁氣的相互作用の強い系での FORC 図の理論的枠組みを確立する。(4) 機械学習を用いた局所 FORC 図の解析によって、材料の機能発現に関わる特異な相や微細構造の特定を行う手法を確立する。

3. 研究の方法

(1) FORC 測定のベイズ最適化の検討

永久磁石材料の FORC 測定には非常に時間がかかる(数 10 時間程度)という問題がある。その理由は、岩石の場合は 100 mT にも満たない掃引磁場が、永久磁石材料の場合は数 T にも及ぶことにある。これを解決するには磁場掃引速度を速くする、計測点数を減らすなど測定条件を最適化する必要がある。そこで情報科学手法の一種であるベイズ推論に基づいて、少ないデータ点数で従来型の測定と同等の解析結果を得ることが可能な最適化を検討する[3]。

(2) 試料振動型磁束計を用いたバルク平均 FORC 測定

参照データを取得するため、標準的な手法である試料振動型磁束計(VSM)を用いた Nd₂Fe₁₄B 焼結磁石の FORC 測定を行う。この測定は(1)で検討した条件で行い、FORC 測定のベイズ最適化を実証する。

(3) 磁気光学 Kerr 効果顕微鏡 FORC 測定システムの構築と測定

実空間での磁区の変化と FORC の関係を調べるため、磁場中での観察が可能な磁気光学 Kerr 効果顕微鏡システムを構築する。構築したシステムを用いて Nd₂Fe₁₄B 焼結磁石の Kerr 効果顕微鏡 FORC を測定する。測定はベイズ最適条件で行うが、顕微鏡画像は 1 枚で数 100MB 単位の容量があるため、1 回の測定で数 100GB~数 TB 程度のデータ容量となることが予想される。測定用コンピュータへのデータ保管が困難な場合には、研究所に設置された高速アクセス可能なデータベース[4]に随時保管する仕組みを作るなどの対応をする。

(4) 情報科学を駆使した大規模データ処理による局所 FORC 解析手法の開発

(3)で取得した大規模データの解析手法を開発する。磁場に対する磁区像の変化を解析することで局所領域の FORC を抽出することが可能である。原理的には 1 ピクセル単位で FORC 曲線・FORC 図を抽出可能である。解析によって得られた局所 FORC 図と(2)で取得したバルク平均 FORC 図の関係を調べる。サポートベクターマシンなどの機械学習手法を用いて局所 FORC 図を分類し、磁化反転過程や保磁力発現機構に寄与する特異な物質相や微細構造の特定を試みる。

(5) モデル系への局所 FORC 解析の応用

モデル系として強磁性ドットが規則的に配列した試料を準備し、局所 FORC 解析を適用する。これらの試料は強磁性ドットの組成やドット間の距離を変えることで磁化と磁氣的相互作用を様々に変えることができる。磁化・磁氣的相互作用の弱い系(岩石)から強い系(永久磁石)の局所 FORC 解析から FORC 図の理論的枠組みを検討する。

(6) 磁気光学 Kerr 効果 FORC 測定システムの構築

磁気光学 Kerr 効果顕微鏡 FORC は表面敏感な測定手法であるため、同様に表面敏感な磁気光学 Kerr 効果(MOKE)FORC 測定システムを構築する。局所情報が得られる Kerr 効果顕微鏡に対して、MOKE では試料表面でのレーザー光のスポット径程度の領域の平均情報を得ることができる。VSM 用電磁石にレーザー光源、偏光子、試料ホルダー、検光子、検出器を組み込んだコンパクトな光学定盤を設置する[5]。ごく小さな Kerr 回転角を高精度・高速に検出するため光弾性変調器

を用いた測定システムとする。

(7) マイクロ磁気シミュレーションを用いた FORC 解析

最近開発された大規模マイクロ磁気シミュレータ[6]を用いて、Nd₂Fe₁₄B 焼結磁石の FORC のシミュレーションを行う。バルク成分と表面成分を分離して抽出し、VSM、磁気光学 Kerr 効果顕微鏡、MOKE 実験で得た FORC 図と比較する。

4. 研究成果

(1) 磁気光学 Kerr 効果顕微鏡 FORC (First-order reversal curves) 測定システムの構築

実空間での磁区構造の変化と FORC の関係を調べるため、磁場中での観察が可能な磁気光学 Kerr 効果顕微鏡システムを構築する。磁気光学 Kerr 効果顕微鏡による FORC 測定を効率的に実施するためのベイズ最適化などについて検討した。また磁気光学 Kerr 顕微鏡の試料ステージに搭載可能な小型電磁石の試作と動作試験を行なった。電磁石コイルの設計を工夫し、2 台の直流電源を用いることで、安価に正負の磁場掃引が可能なシステムを構築することができた。さらに磁気光学 Kerr 効果 FORC 測定システムの信号処理系と制御ソフトウェアの開発を行なった。

(2) 情報科学を駆使した大規模データ処理による磁区解析手法の開発

磁気光学 Kerr 効果顕微鏡画像を解析するためのコンピュータプログラムを作成した。本解析プログラムは Sliding FFT (Fast Fourier transform, 高速フーリエ変換) と主成分分析 (Principal component analysis, PCA) と呼ばれる方法に基づくものであり、これを用いることで磁気光学 Kerr 効果顕微鏡画像のもつ特徴量を効率的に抽出することが可能となる。

(3) 実用材料の磁区構造観察

将来的にこれらの測定システムの測定対象となる実用材料のテスト測定を行った。永久磁石材料候補物質 Ce-Co-Cu の磁気光学 Kerr 効果顕微鏡測定を行い、適切な表面研磨条件を見出すとともに、磁区像の観察に成功した。試料の化学組成、熱処理の有無によって異なる磁区像が得られることがわかった。

また希土類鉄ガーネットの磁区構造の磁場による変化を観察した。このデータセットを解析することで、試料の異なる箇所での局所的な磁化曲線を大量かつ短時間に評価することが可能であることを示した。

(4) 汎用ロボットアームによる試料調整の自動化

磁気光学 Kerr 効果顕微鏡による磁区観察のための試料調整では、試料表面を高精度に研磨する必要がある。研磨には実験者の経験やコツが要求され時間がかかるため、ハイスループットに磁区構造観察を行うためのボトルネックとなっている。そこで汎用ロボットアームを用いた研磨作業の自動化を試みた。手動研磨器と汎用ロボットアームを組み合わせることで市販の Nd-Fe-B 磁石の表面を研磨したところ、実験者が手動で研磨した試料と同等の磁区構造を観察することができた。

(5) ハイスループット実験のための計測インフォマティクスによる計測効率化

ハイスループット実験に向けて、計測インフォマティクスの観点から適応型実験デザイン法に

よるスペクトル測定の効率化に関する研究を行なった。機械学習手法の一種であるガウス過程回帰を応用し、能動学習による最適計測点の決定によってスペクトルをこれまでよりも効率的に測定することが可能になった。事前知識の導入や自動停止基準の検討などを行った。

<引用文献>

- [1] 井波暢人, 上野哲朗, 塚原宙, 橋本愛, 斉藤耕太郎, 小野寛太, “First-Order-Reversal-Curve 測定による Nd-Fe-B 磁石の特性評価”, 第 38 回日本磁気学会学術講演会概要集, 3aC-9 (2014).
- [2] A. R. Muxworthy and A. P. Roberts, “First-order reversal curve (FORC) diagrams”, in “Encyclopedia of Geomagnetism and Paleomagnetism”, pp. 266-272, Springer (2007).
- [3] C. E. Rasmussen and C. K. I. Williams, “Gaussian Processes for Machine Learning”, MIT Press (2006).
- [4] 浅原彰規, 森田秀和, 林秀樹, 海野英一郎, 小野寛太, 情報処理学会研究報告 情報基礎とアクセス技術 2016-IFAT-123, 1 (2016).
- [5] J. Prempfer, D. Sander, and J. Kirschner, Rev. Sci. Instrum. **83**, 073904 (2012).
- [6] H. Tsukahara, K. Iwano, C. Mitsumata, T. Ishikawa, and K. Ono, Comput. Phys. Commun. **207**, 217 (2016).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 上野哲朗
2. 発表標題 機械学習によるXMCDスペクトル計測の効率化
3. 学会等名 SPRUCナノスピントロニクス研究会 2020年度第1回研究会「ナノスピントロニクス研究と放射光利用」（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 上野哲朗
2. 発表標題 適応型実験デザイン法によるX線スペクトル測定 of 効率化
3. 学会等名 第44回日本磁気学会学術講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 上野哲朗
2. 発表標題 適応型実験デザインによる物質計測の効率化
3. 学会等名 統計数理研究所 共同研究集会「諸科学における大規模データと統計数理モデリング」2020-ISMCRP-5005 - 「冬」オンライン会合シリーズ- （招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tetsuro Ueno
2. 発表標題 Laboratory automation for magnetic materials study: Sample preparation with general-purpose robot arm
3. 学会等名 4th QST International Symposium (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tetsuro Ueno, Hideitsu Hino, Kanta Ono
2. 発表標題 Machine-Learning Assisted X-Ray Spectroscopy for High-Throughput Characterization of Magnetic Materials
3. 学会等名 Intermag 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 伊藤聡, 田村亮, 津田宏治, 犬丸啓, 折井靖光, 戸田浩樹, 廣瀬修一, 小林正和, 金子弘昌, 田中譲, 藤間淳, 上野哲朗, 小野寛太, 藤本憲次郎, 他	4. 発行年 2021年
2. 出版社 株式会社エヌ・ティー・エス	5. 総ページ数 322
3. 書名 マテリアルズ・インフォマティクス開発事例最前線	

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>研究者Webページ https://sites.google.com/view/tetsuroueno</p> <p>研究機関Webページ https://www.qst.go.jp/site/kansai/</p> <p>researchmap https://researchmap.jp/tetsuroueno/</p>

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	小野 寛太 (ONO Kanta)		

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	日野 英逸 (HINO Hideitsu)		
研究協力者	三俣 千春 (MITSUMATA Chiharu)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関