

令和 3 年 6 月 21 日現在

機関番号：32660

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2020

課題番号：19K22117

研究課題名（和文）機械学習を用いた二次電池電極表面におけるバタフライ効果の逆解析

研究課題名（英文）Inverse analysis of the butterfly effect in dendrite precipitates using machine learning

研究代表者

小嗣 真人（Kotsugi, Masato）

東京理科大学・基礎工学部材料工学科・准教授

研究者番号：60397990

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では近年注目を集めている位相幾何学的概念「パーシステントホモロジー」を活用し、デンドライト析出物やスピノーダル金属組織の画像データのみから、物性パラメータを自動的に推定する手法を開発した。まずフェーズフィールド法を用いてデンドライト析出物およびスピノーダル金属組織の画像データを生成した。次にパーシステントホモロジーを用いて微細組織の形状を特徴抽出した。その後、主成分分析を用いて次元削減し、データの変化を低次元空間で可視化した。その結果、金属組織形成における発展時間、異方性パラメータ、勾配エネルギー係数、全エネルギー等の様々な物性パラメータを推定可能なことが示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

パーシステントホモロジーと呼ばれる位相幾何学の概念と教師無し機械学習を組み合わせ、デンドライト組織などの複雑な金属組織から、自動的に物性パラメータ（発展時間、異方性パラメータ、勾配エネルギー係数、全エネルギー）を逆解析するための枠組みを新しく開発した。

研究成果の概要（英文）：We developed an automated analysis method for predicting physical property parameters from image data of dendrite precipitates and spinodal decomposition using the topological concept of "persistent homology." First, image data of dendrite precipitates and spinodal decomposition were generated using the phase-field method. Next, persistent homology was used to extract the features of the shape of microstructures. Then, principal component analysis was used for dimensionality reduction, and the changes in the data were visualized in low-dimensional space. The results suggest that it is possible to estimate various physical property parameters such as development time, anisotropy parameter, gradient energy coefficient, and total energy in metallographic formation.

研究分野：顕微分光解析、マテリアルズインフォマティクス

キーワード：パーシステントホモロジー 機械学習 金属組織

### 1. 研究開始当初の背景

電気自動車市場の急速な拡大を背景に、長寿命かつ安全な二次電池の実現は社会的、産業的に重要課題である。二次電池の劣化原因の一例として電極表面のデンドライト組織の析出があり、逆側の電極とつながりショートを起こすことが危惧されている。劣化を抑えるためにはデンドライト析出相などの組織成長を抑制する必要がある、電極表面の析出の原因を明らかにすることが重要となる。しかし電極表面のデンドライト組織は複雑な形状を示し、形成プロセスが長期間にわたるため、実験的には形成された組織を事後観察するしか手がなく、電極の劣化の原因究明を行うことが困難であった。また本問題は非線形統計力学の重要な問題を含んでおり、解析が進んでいないのが現状である。

そこで本研究では、近年開発された位相幾何学の新概念「パーシステントホモロジー(PH)」を活用した組織解析手法を開発した。PHは数学のトポロジーの概念を拡張して離散データを取り扱えるようにしたものであり、構造データにおける形状、ゆらぎ、連結性を定量的に記述できる手法である。2002年にEdelsbrunnerらによって発表された本概念は、現在も数学的な発展をしながら、生命科学、ネットワーク、材料科学など諸科学への応用が急速に進展している[1]。PHを微細組織に適用すると、パーシステンス図(PD)と呼ばれる特徴量を抽出でき、微細組織の定量化が行える。またPHは機械学習と組み合わせが可能であり、諸物性との対応関係を構築することができる。さらに物性の寄与因子を元の画像データに遡って可視化できる[2, 3]。本研究ではデンドライト組織形成の代表例である純金属の凝固過程を対象に、組織形状に内在する特徴の抽出を行い、また機械学習の利用によってミクロな微細構造とマクロな物性パラメータの対応関係を構築した。なお開発では、デンドライト組織に加えて、スピノーダル金属組織の2種類の金属組織をフェーズフィールド法で作成し、機械学習モデルの作製を行った。

### 2. 研究の目的

本研究の基本的なワークフロー(図1)は、フェーズフィールド法による金属組織の生成を行ってデータセットを作成する。次にPHを用いて組織画像からの特徴抽出を行う。最後に教師無し機械学習を用いて特徴量と物性パラメータとの対応関係を構築する、というものである。画像情報のみから物性パラメータを推定することが期待できるため、様々な顕微解析において有用と考えられる。また物性変化に寄与する因子を、元の画像に遡って可視化することも可能である。このことから、故障や劣化原因の検査にも有用と考えられる。つまりミクロ組織とマクロ物性との双方向解析が期待される。本研究では解析手法の基本原則を構築するため、画像データのみからの物性パラメータの推定を行った。

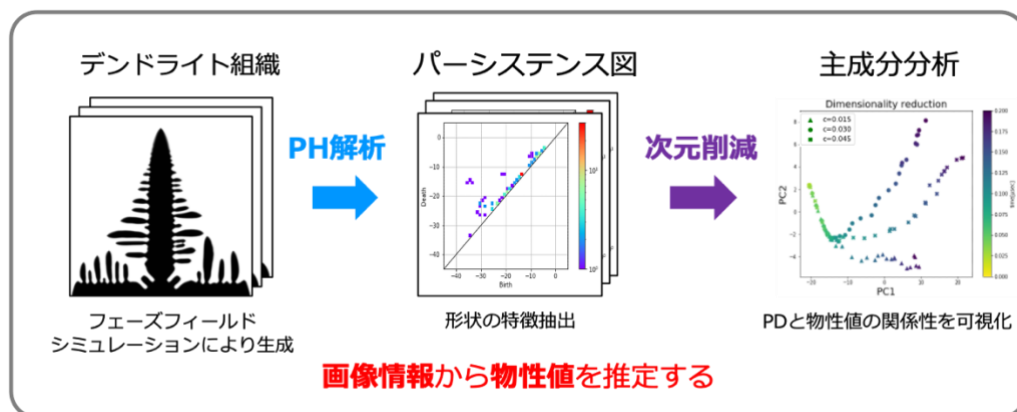


図1: 本研究のワークフロー

### 3. 研究の方法

フェーズフィールド法は連続体模型に基づいて金属材料の微細組織の形成過程を現象論的にシミュレートできる計算手法である[4]。フェーズフィールド法では系の全自由エネルギーを最小化させるように、非線形発展方程式に基づいて組織形成過程を計算する。現在、金属組織を中心に、デンドライト成長、相分離、規則-不規則変態、マルテンサイト変態など、様々な系で利用が広がっている。デンドライト成長とスピノーダル分解はフェーズフィールド法が最も得意とする系であり、本開発の基盤構築に向けて金属組織データの生成に利用した。本研究では、デンドライト組織形成の発展方程式として次式を用いた。

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = -M_{\phi} \left( \frac{\delta G}{\delta \phi} + \xi \right)$$

またスピノーダル金属組織の形成には、微視的弾性論に基づく以下の発展方程式を用いた。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla^2 \mu^{sys}$$

$\phi$  はフェーズフィールド変数、 $M_0$  は界面易動度、 $\xi$  はエネルギー障壁、 $G$  は全エネルギー、 $c$  は濃度場、 $\mu^{sys}$  は拡散ポテンシャル場である。デンドライト組織では、過冷却状態の凝固により生じる純 Ni を対象に、種々の異方性パラメータ  $c$  を設定し、微細組織を計算した。またスピノーダル金属組織では、Pd-Al や Rh-Fe 系合金を模して、種々のエネルギー勾配係数を設定した。

次にパーシステントホモロジーによる特徴抽出の手順について説明する。まず離散データの各点に半径  $r$  の球を置き、その半径を少しずつ伸ばしながら構造を膨らませて、「穴」が生成 (birth) する半径と消滅 (death) した半径を記録する。birth を横軸、death を縦軸として点 (generator) を 2 次元平面にプロットすることで、パーシステンスダイアグラムを作成する。PD はデータの構造情報をうまく縮約しており、物質構造データの重要度を決める指標として利用可能である。実験では、二値化された画像データを対象に、白黒境界からのマンハッタン距離を尺度にしてフィルトレーションを行い、PD の作成を行った。ストライプ構造は対角線上にジェネレータが生成され、くびれた構造はライフタイムが増加することから対角線から離れた位置にジェネレータが生成される。なお解析ソフトとして HomCloud を使用した。なお出力されたパーシステンス図の変化をムービーとして確認し、時間発展に応じて連続的にパーシステンス図が変化していることも確認している。

最後に機械学習について説明する。一連のパーシステンス図は高次元のデータであるため、次元削減と呼ばれる機械学習によって低次元に縮約する必要がある。次元削減では主成分分析 (PCA) と呼ばれる手法を行った。PCA は機械学習の中でも代表的な次元削減手法であり、高次元データを少ない説明変数で低次元空間に写像するものである。データの変化を最も良く説明する基底ベクトルを第一主成分として定め、二番目にデータの変化を説明する規定でなおかつ第一主成分に直交する基底を第二主成分として定める。これを繰り返すことでデータの変化を低次元で表現する。主成分得点 (固有値) によってデータ全体の性質を把握することが可能である。解析ではベクトル化された PD に PCA を適用することで、8256 次元から 2 次元へ次元削減を行い、データの構造を可視化した。

#### 4. 研究成果

図 2 にフェーズフィールド法で生成されたデンドライト組織の画像と、PH 解析で得られた PD を示す。なお例として 0.2  $\mu\text{sec}$  時のデータを示す。異方性パラメータの違いに応じて、微細組織が異なることが目視で確認できる。また PD の分布も  $c$  の違いに応じて差異があることが分かる。このことから PD では形の特徴を抽出できており、 $c$  の差異を議論するための有用な特徴量であることが示唆される。

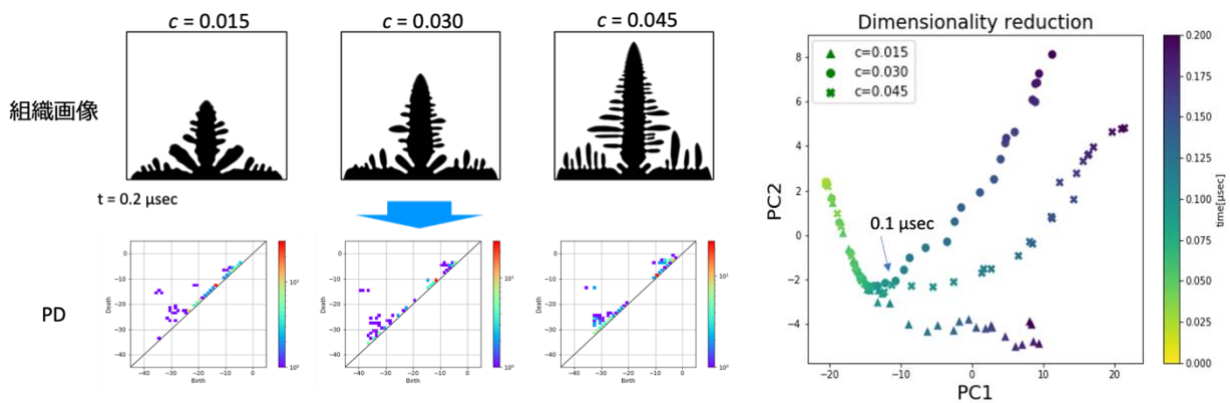


図 2 : デンドライト組織の PH 解析と次元削減結果

また主成分分析による次元削減結果を合わせて示す。時間発展によりデータ点の位置が連続的に変化していることが確認できる。0.1  $\mu\text{sec}$  以降では異方性パラメータの違いに応じてデータ点が明確に分離できていることが分かる。この領域では形状や物性パラメータなどを明確に情報分離可能なことが示唆される。第一主成分は時間と正の相関があることも明らかとなった。PCA の結果を通じて、微細組織と種々の物性パラメータの相関関係を可視化することができた。なお第二主成分までの累積寄与率は 94.4% であり、PD の情報をほとんど損なうことなく特徴量抽出できていることがわかった。従って、PH 解析はデンドライト組織の特徴抽出に有効であり、PCA

との組み合わせによって物性値の推定が行えることが示された。

続いて、スピノーダル金属組織の解析結果について述べる。解析手順は前項と同じく、フェーズフィールド法による画像生成と PH 解析と PCA 解析を組み合わせである。ただしカラーマップが全エネルギーとなっている点に留意されたい。図 3 にスピノーダル金属組織の画像を示す。エネルギー勾配係数  $\kappa$  が  $3.0 \times 10^{-14}$  で、経過時間を  $0 \sim 16000 \mu\text{sec}$  まで連続的に組織形成過程を生成した。時間の経過に伴って、濃度差が明確となり濃度ゆらぎの幅も増大していることが確認できる。このことから相分離が起こっていることが目視で確認できる。これらのデータを PH 解析した結果、PD も時間発展に伴って連続的に変化していることが分かる。デンドライト組織と同様に PD によって形状の特徴抽出が行えていることが示唆される。

最後にスピノーダル組織における PCA 解析の結果を示す。ベクトル化された PD に PCA を適用することで、約 40 億次元から 2 次元平面へ次元削減を行いデータの構造を可視化している。本図でもデータ点が連続的に変化しており、微細組織の経時変化を捉えられていることがわかる。エネルギー勾配係数に応じてデータ点が明確に分離されていることも確認できる。自由エネルギーについても、データ点は連続的に変化していることが確認できた。なお、第 2 主成分までの累積寄与率は 97% であり、PD の情報をほとんど損なうことなく特徴量抽出できていることがわかった。これらの結果より、スピノーダル分解の画像情報のみを用いて、発展時間、勾配エネルギー係数、自由エネルギーが推定できることが明らかとなった。特に、自由エネルギーは系の安定性を特徴付ける基本的な物性パラメータであり、非平衡現象の理解を行う上で有用と考えられる。

本研究では、パーシステントホモロジー解析を用いて、デンドライト組織およびスピノーダル分解における、金属組織と物性パラメータの関係接続を行った。その結果、PH 解析は金属組織の特徴抽出に有用であり、PCA との組み合わせによって発展時間、異方性パラメータ、勾配エネルギー係数、全エネルギー等の様々な物性パラメータを推定可能なことが示唆された。

#### 参考文献

- [1] Edelsbrunner, H. et al. *Discrete and Computational Geometry*, 28, (2002), 511–533.
- [2] I. Obayashi et al. *J. Appl. Comp. Topo.* 1, (2018), 421-449
- [3] T. Yamada et al. *表面と真空*, 62, (2019), 253-160.
- [4] 小山敏幸 フェーズフィールド法入門, 丸善出版 (2013)

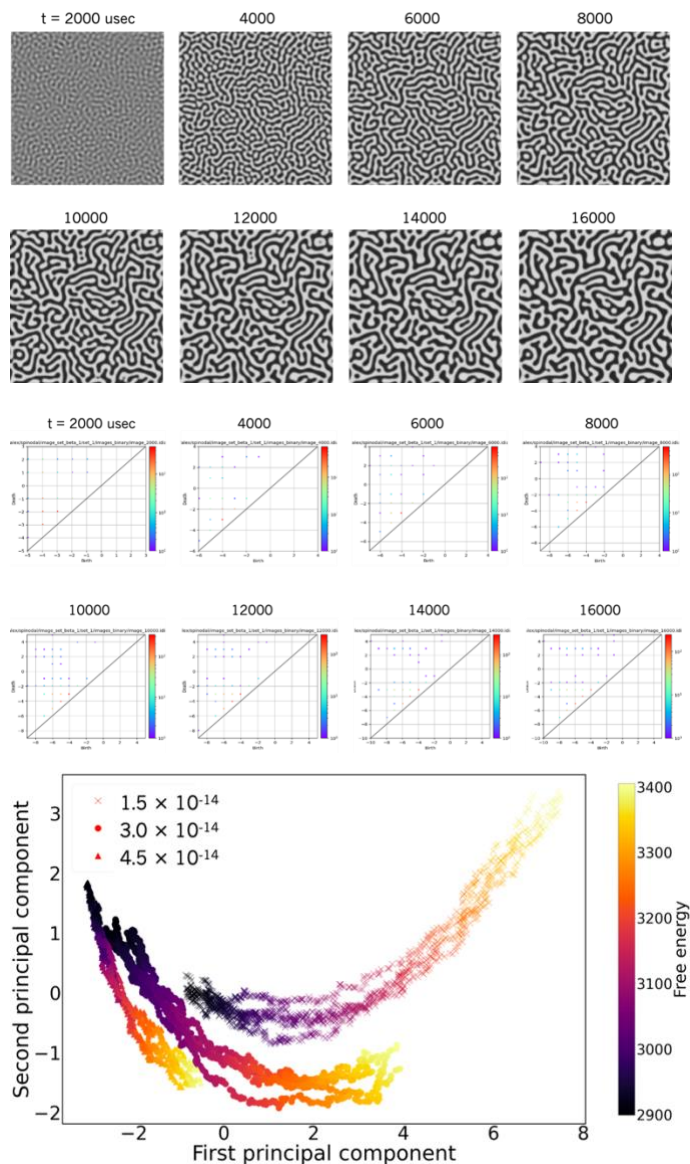


図 3 : スピノーダル分解における金属組織と PD と次元削減結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 YAMADA T., SUZUKI Y., MITSUMATA C., ONO K., UENO T., OBAYASHI I., HIRAOKA Y., KOTSUGI M.	4. 巻 62
2. 論文標題 Visualization of Topological Defect in Labyrinth Magnetic Domain by Using Persistent Homology	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Vacuum and Surface Science	6. 最初と最後の頁 153 ~ 160
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1380/vss.62.153	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 5件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Alexandre Lira Foggiatto, Hiroataka Aoki, Sotaro Kunii, MasatoKotsugi
2. 発表標題 Visualization of free energy landscape in spinodal decomposition using persistent homology combined with unsupervised machine learning
3. 学会等名 日本応用物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 國井創太郎, Alexandre Lira Foggiatto, 木村恵太, 三俣千春, 小嗣真人
2. 発表標題 パーシステントホモロジーを用いた軟磁性材料の保磁力解析
3. 学会等名 日本応用物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 仙井遼平, Alexandre Lira Foggiatto, 小嗣真人
2. 発表標題 強磁性形状記憶合金の金属・磁区構造シミュレーションとトポロジカルデータ解析
3. 学会等名 日本応用物理学会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 寺嶋悠貴, 山田拓洋, 大林一平, 赤木和人, 平岡裕章, 小嗣真人
2. 発表標題 位相的データ解析によるネオジム磁石の磁区構造からの特徴量抽出
3. 学会等名 日本磁気学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 青木 宏賢, 沖 直人, 山田拓洋, 大林一平, 赤木和人, 平岡裕章, 小嗣真人
2. 発表標題 パーシステントホモロジーを用いたスピノーダル分解における特徴抽出
3. 学会等名 日本応用物理学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Kotsugi, T. Yamada, Y. Suzuki, C. Mitsumata, K. Ono, T. Ueno, I. Obayashi, K. Akagi, Y. Hiraoka
2. 発表標題 Topological data analysis of microscopic image data
3. 学会等名 12th International Symposium on Atomic Level Characterizations for New Materials and Devices '19 (ALC19) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Kotsugi, T. Yamada, Y. Suzuki, C. Mitsumata, K. Ono, T. Ueno, I. Obayashi, K. Akagi, Y. Hiraoka
2. 発表標題 Topological data analysis of the magnetic domain for the automated visualization of the origin of coercivity
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (MRM2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Kotsugi, T. Yamada, Y. Suzuki, C. Mitsumata, K. Ono, T. Ueno, I. Obayashi, K. Akagi, Y. Hiraoka
2. 発表標題 Automated visualization of the origin of the coercivity by using persistent homology
3. 学会等名 Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials (MMM2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Kotsugi
2. 発表標題 Topological data analysis of magnetic domain structure for the interpretation of microscopic image data
3. 学会等名 IMR+MAX IV 2020 international workshop (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 M. Kotsugi
2. 発表標題 機械学習を用いた磁区構造からの情報抽出：擬自由エネルギーによる多様な安定相の探索
3. 学会等名 日本応用物理学会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 M. Kotsugi
2. 発表標題 データサイエンスによる大規模計測データからの知識抽出
3. 学会等名 日本科学機器協会講演会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Kotsugi
2. 発表標題 トポロジカルデータ解析による磁区構造からの特徴抽出
3. 学会等名 日本磁気学会223回研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究分担者	橋爪 洋一郎 (Hashizume Yoichiro)  (50711610)	東京理科大学・理学部第一部応用物理学科・講師  (32660)	

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
---------	---------