

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 11 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究

研究期間：2022～2023

課題番号：22K14571

研究課題名（和文）複合ネットワーク材料の学理解明に向けた構造記述子機械学習技術

研究課題名（英文）Machine Learning Techniques for Comprehensive Structural Analysis of Complex Network Materials

研究代表者

室賀 駿（Shun, Muroga）

国立研究開発法人産業技術総合研究所・材料・化学領域・主任研究員

研究者番号：20849947

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究ではカーボンナノチューブやセルロースナノファイバーに代表されるネットワーク構造が部素材特性に影響を及ぼす多階層構造の複雑な材料の研究開発を加速するデータ解析手法を開発した。走査型電子顕微鏡画像からネットワークトポロジーを数値化し、部素材特性予測の説明変数に用いることができる解釈性に優れた記述子算出手法を構築した。また熱処理に代表されるプロセス条件によりマイクロ～マクロの構造が同時に複雑な変化を示す中で、人が構造変化順序を解明する上で有用なtabular two-dimensional correlation analysis法を新たに提案しその有効性を示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

材料設計やプロセス最適化において、我々人間の勘や経験に頼ったものづくりが行われてきた。こうした中で、条件を変えた際に材料に何が起きているのかを理解した上で、次の条件に進むことが非常に重要である。本研究では解釈性に優れたネットワーク構造の記述子や、変動順序特定に適した数値指標を提案しており、材料研究で学術的に踏み込んだ解釈をする上で有効であると考えられる。また実用的にも、闇雲に条件探索を行うのではなく、今まで定量化されていなかった構造を定量的に見積もることで、研究開発指針へのフィードバックが可能であり、社会的にも意義があると考えられる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed data-driven methods to accelerate the research and development of complex materials with multi-scale structures, where network structures such as carbon nanotubes and cellulose nanofibers influence physical properties. We successfully quantified network topology descriptors from scanning electron microscope images using developed image analysis techniques, which can predict or interpret the effects of network entanglement on the physical properties of carbon nanotube films. For multi-faceted characterization of structural data, we proposed a new tabular two-dimensional correlation analysis method, demonstrating its effectiveness in elucidating the sequence of structural changes caused by process conditions such as high-temperature annealing, where micro to macro structures exhibit complex changes.

研究分野：材料科学

キーワード：ネットワーク構造 カーボンナノチューブ セルロースナノファイバー 画像解析 機械学習 二次元  
相関解析 マテリアルズ・インフォマティクス プロセス・インフォマティクス

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

本研究課題では材料中のネットワーク構造の新たな定量評価法を開発し、構造に立脚した部素材の特性解明を目指す。エレクトロニクス等の分野においてカーボンナノチューブ(CNT)やセルロースナノファイバー(CNF)といった材料のネットワーク構造を制御し、部素材の特性向上を行う研究が盛んに行われている。一方で、ネットワーク構造の複雑さに由来して、定量的な構造把握に基づいて部素材開発へフィードバックすることは困難である。そこで本研究課題においてはCNT膜をモデル材料系として、ネットワーク構造から定量的な構造記述子を算出する手法を開発し、解釈性のある機械学習法により部素材の特性に与える因子究明に取り組む。

## 2. 研究の目的

本研究課題では材料中のネットワーク構造の新たな定量評価法を開発し、構造に立脚した部素材の特性解明を目指し、勘と経験から脱却したものづくりのための指標確立することを目的としている。CNTやCNFを代表にネットワーク構造の複雑さに由来し、定量的な構造把握に基づいて部素材開発へフィードバックすることは困難な材料の研究開発の加速に繋がる技術の創出を目指す。

## 3. 研究の方法

溶媒中に分散させたCNTやCNFを濾過成膜した後に、溶媒除去・熱処理を行ったデータセットを用いて解析方法の検討を行った。ネットワークポロジー及び複数の構造パラメータの処理に関する2つの解析手法の開発に取り組んだ。ネットワークポロジーについては材料の表面構造を走査型電子顕微鏡で観察した後に、画像処理・フィルタ演算を行うことで定量的なネットワーク構造記述子を算出する手法を検討した。複数の構造パラメータの処理については、炭化炉における高温アニール処理を行ったデータセットを対象に、構造変動順序を規定できる数値指標を算出する手法を開発した。

## 4. 研究成果

### (1) ネットワークポロジーを定量化する画像解析・記述子算出手法

ネットワーク構造を定量化し、材料作製条件の違いによる変化を定量的に見積もることや、説明変数として部素材特性予測に用いることのできる指標の構築を行った。図1に本研究における解析の流れを示す。観察で得られた画像を動的しきい処理を用いた二値化を行い、材料の存在する領域とそれ以外に分割した。ここからさらにネットワーク構造の特徴を捉えるために、erosion処理を元にしてネットワーク構造の骨格検出を行い、ネットワーク構造における絡み合いの特徴を抽出しやすい状態に変換した。ここでネットワーク特有の問題として絡み合いを伴うため、絡み合いが多いかどうか、粗密に偏りがあるかどうか部素材特性やその均質性に影響を及ぼすことが挙げられる。そこで骨格画像からフィルタ処理により近傍関係の特徴を抽出し、ネットワークが分岐するピクセルを特定し、空間内の密度や、最近傍分岐点間距離などの算出を可能にした。実際に異なるCNT膜に対して構築した手法によりネットワーク記述子を画像から算出し、表面電気抵抗や比表面積といった部素材特性との機械学習を行った結果を図2に示す。この結果からCNT膜の記述子が導電率に対しては絡み合いの密度絡み合い点間の距離の寄与が大きいのに対し、比表面積に対しては空隙サイズやネットワークの曲率の寄与が大きくなって

いることがわかる。このように提案法によるネットワーク構造から記述子算出を行うことで、材料作製条件による変化や部素材特性への寄与の評価が可能になった。

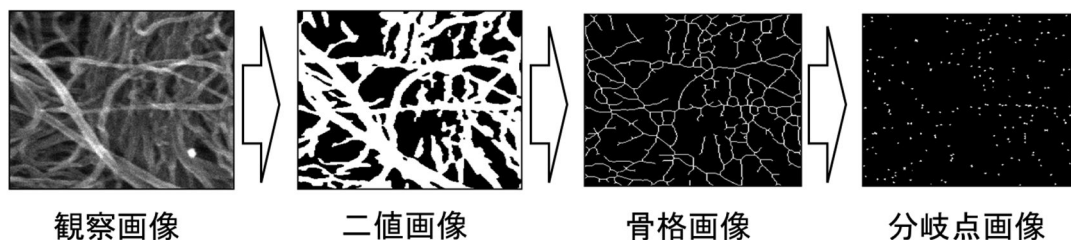


図1 ネットワーク構造記述子算出の流れ

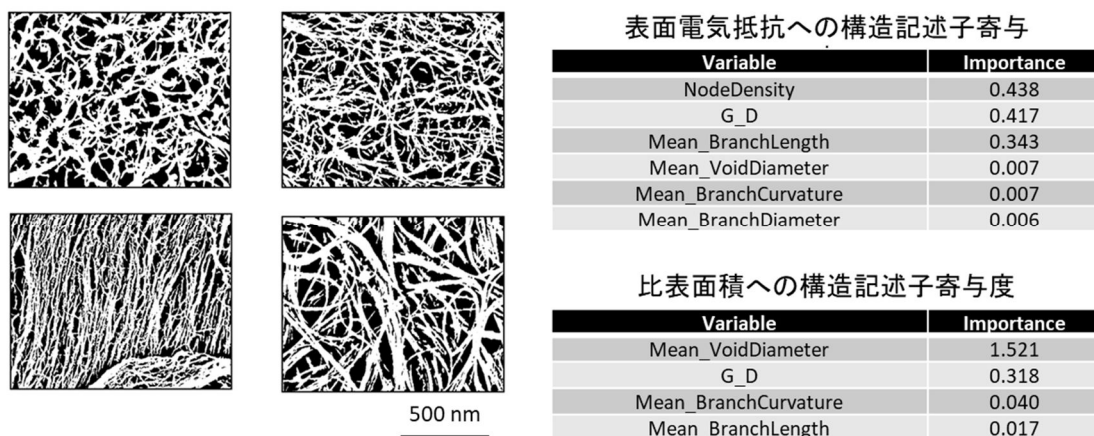


図2 ネットワーク構造記述子とCNT膜の表面電気抵抗及び比表面積への寄与の定量化

(2) 多角的な分析データへ適用可能な tabular two-dimensional correlation analysis 法  
 CNT膜の高温アニール処理のデータセットを対象に、多角的な構造の分析データから構造変化を導く解析手法について検討を行った。CNTのような複雑な材料は原子スケールから、チューブ間やチューブが束ねられたバンドル、バンドル間の距離や間隙、アモルファスカーボンといった異なる構造因子が部素材特性に影響する。そのため、材料作製条件を変えた際に異なる構造因子が同時に変化すると、何が顕著に部素材特性に影響しているかを定量的に評価することが困難である。加えて材料内に生じた原料を理解する上で、寄与を見積もるだけでなく、何がどういふ順序で変化したから、部素材特性に影響した、といった順序関係を元に考察を深めることが求められる。そこで分光分野で用いられてきた二次元相関解析の発想を転換して拡張し、かつ階層的クラスタリングと組み合わせた新たな tabular two-dimensional correlation analysis 法を提案した(図3)。これにより異なる多数の分析手法から得られた構造パラメータであっても、同調して変化するものを近接に配置させつつ、ずれて変化する構造パラメータを位相遅れの絶対値からどれぐらい後に変化しているかを可視化・定量化することが可能になった。実際にアニール温度の異なる条件でCNT膜を処理した構造パラメータを図4に示す。ここでは分光、熱分析、X線散乱などを用いてミクロからマクロにかけての構造パラメータを比較しているが、アニール温度に対する依存性が大きく異なっていることがわかる。こうした変化に対して提案法を適用した結果であるヒートマップを図5に示す。例えば空隙サイズに相当する構造パラメータが500における質量減少に対して正の位相遅れを持っていることから、先に質量減少が生じてから空隙サイズの変化が生じたことが導かれる。このような対応関係を構造パラメータのペアご

とに行うことで導かれるアニール中に生じた構造変化が図 6 である。低温側と高温側で変化している構造が大きく異なっており、アモルファスカーボン由来のものが比較的低温側で変化しているのに対し、グラファイト化などは高温側で遅れて生じていることがわかる。こうした解析は一例で、多様な多角的分析データに本提案法は適用可能であり、人間による材料変化の考察の一助に用いることができる。上記のように本研究を通じて多階層で複雑な構造変化を示すネットワーク構造に纏わるデータから、人が現象を理解し考察の一助として研究開発へとフィードバックする上で有用な知見をもたらす解析手法の開発に成功した。

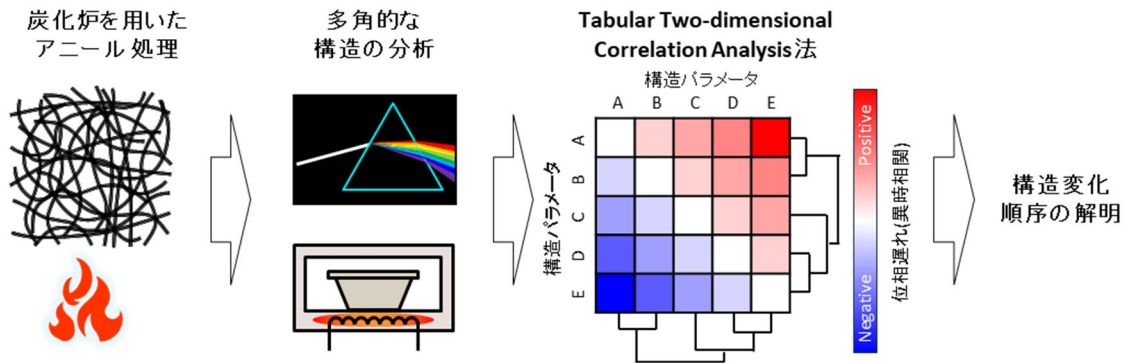


図 3 提案する tabular two-dimensional correlation analysis 法の概略図

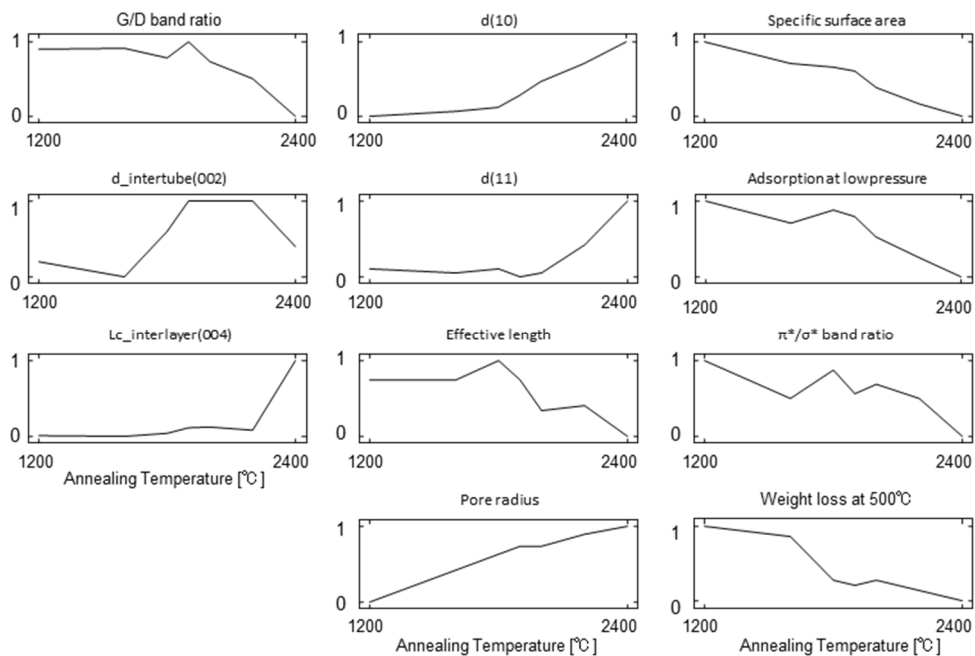


図 4 CNT 膜の高温アニール処理データセットにおける構造パラメータの変化

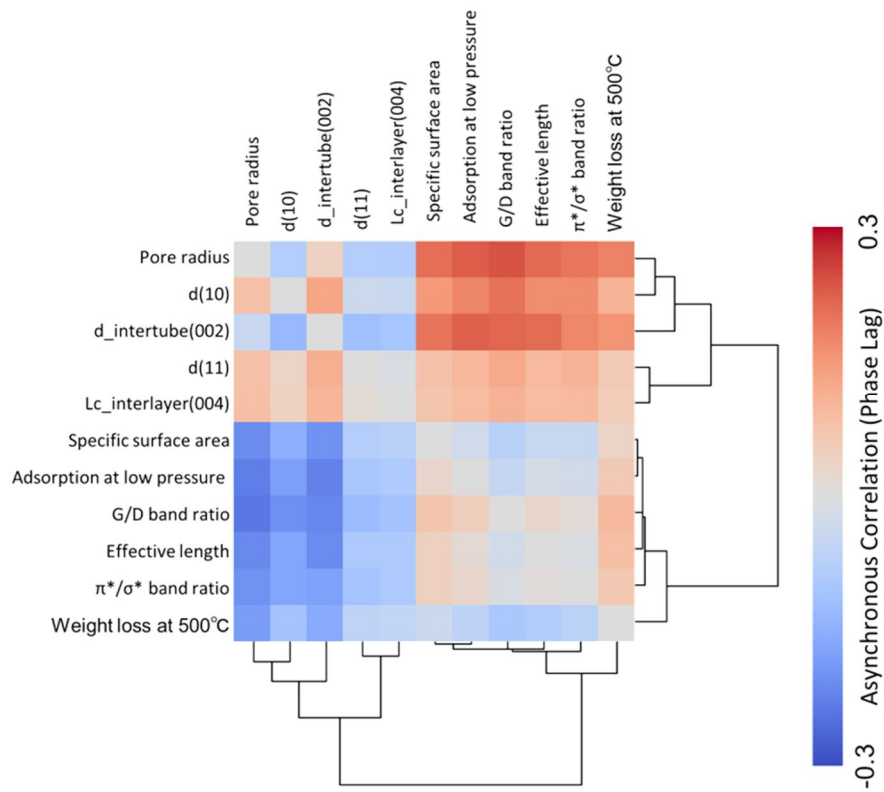


図5 提案法で得られた構造パラメータ同士の類似性と位相遅れの可視化

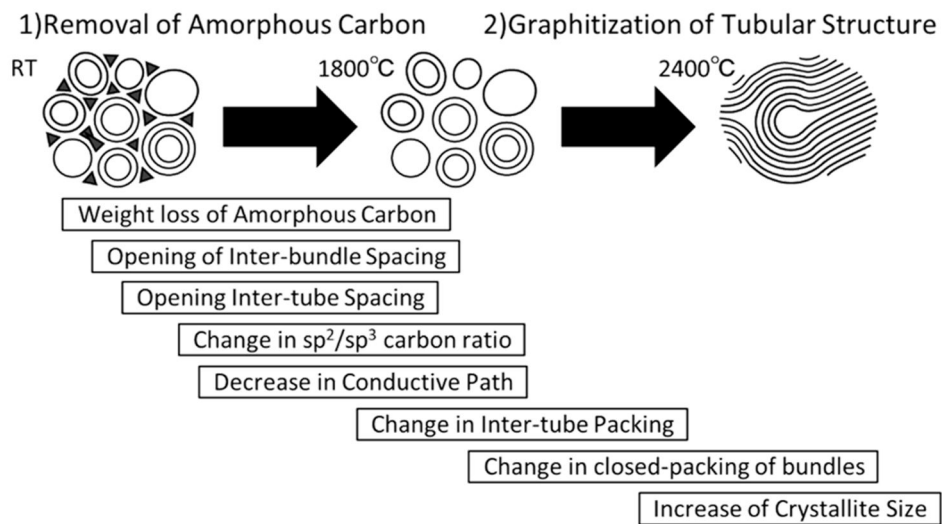


図6 解析によって導かれたアニール処理中に生じる構造変化順序

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Muroga Shun, Yamazaki Satoshi, Michishio Koji, Nakajima Hideaki, Morimoto Takahiro, Oshima Nagayasu, Kobashi Kazufumi, Okazaki Toshiya	4. 巻 -
2. 論文標題 Tabular Two-Dimensional Correlation Analysis for Multifaceted Characterization Data	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Applied Spectroscopy	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1177/00037028241228865	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 4件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 室賀 駿、山崎 悟志、満汐 孝治、中島 秀朗、森本 崇宏、大島 永康、小橋 和文、岡崎 俊也
2. 発表標題 Two-dimensional Correlation Analysis of Micro and Macroscopic Structure Evolution in Annealed Carbon Nanotubes
3. 学会等名 The 12th International Symposium on Two-dimensional Correlation Spectroscopy (2DCOS-12) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 室賀 駿、山崎 悟志、藤井 香里、満汐 孝治、中島 秀朗、森本 崇宏、大島 永康、小橋 和文、岡崎 俊也
2. 発表標題 多角的分析データからカーボンナノチューブの構造変化に迫るインフォマティクス
3. 学会等名 第71回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 室賀 駿
2. 発表標題 What Role Does Data Science Play in Carbon Nanotube Technologies?
3. 学会等名 The 66th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium (招待講演)
4. 発表年 2024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
--	---------------------------	-----------------------	----

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