

## 機械学習によるスペクトル解析の高度化

(阪府大院工<sup>1</sup>) ○池野 豪一<sup>1</sup>

New Spectral Analysis Scheme by using Machine Learning (<sup>1</sup>*Graduate School of Engineering, Osaka Prefecture University*) ○Hidekazu Ikeno<sup>1</sup>

X線吸収分光法(X-ray absorption spectroscopy; XAS)は内殻電子がX線と相互作用し非占有軌道へと励起する過程を観測する分光法であり、物質中の特定の元素周辺の局所環境を反映したスペクトルが得られる。さらに、近年は実験装置・測定技術の発達により、短時間で大量のスペクトルデータを得られるようになりつつある。例えば、時間分解 XAFS を用いることにより、ピコ秒スケールやナノ秒スケールで生じる化学反応過程を追跡しながら XAS を測定することが可能となっている。

最先端の測定で得られた多数のスペクトルデータから局所原子配列、局所電子状態といった有益な情報を抽出するためには理論計算が必要不可欠である。現在、最も信頼性の高い解析手法として第一原理計算を用いた理論指紋照合法が挙げられる [1,2]。この方法では、候補となる原子配列を列挙し、第一原理計算から求めた理論スペクトルと実験スペクトルを指紋照合することで局所環境を明らかにする。一方で、第一原理計算から理論スペクトルを計算するには、内殻空孔と励起電子間の相互作用を適切に取り扱う必要があり、基底状態における電子状態計算と比べて計算コストは大幅に増大する。また、一部のスペクトルではエキシトン効果や空間的に局在して d 電子、f 電子間の強相関をあらわに取り扱う必要があり、解析には量子論に対する専門的知識が必要となる。また、個々の計算コストは大きく、一つのスペクトルの計算に数日を要する場合もある。この手法を最先端の測定法により得られた多数のスペクトル全てに対して第一原理計算を適用するには膨大な時間を要することとなり、現実的な時間で解析を行うことは困難である。したがって、第一原理計算の精度を保ちつつ、より短時間でスペクトル形状を予測することができる新しい理論的手法の開発が望まれる。

本研究では、機械学習を用いて XAS スペクトルの予測モデルの構築を試みた。学習データとしては第一原理計算で得られた理論スペクトルを用い、原子構造から得られる構造記述子を入力として機械学習モデルを構築する。この回帰モデルを用いることで、第一原理計算を実行することなく特定のスペクトル形状にする原子構造の候補をスクリーニングすることができることから、解析に要する時間を大幅に短縮することが可能となると期待される。

機械学習に用いるデータベースには、XAS および結晶構造データは電子状態計算データベースである Materials Project から収集した[3]。このデータベースには多重散乱理論に基づく FEFF コードを用いて計算された XAS の理論スペクトルが収録されている。本研究では、配位構造のバリエーションが豊富な酸素を含む二元系、三元系、四元系の化合物 22420 個を対象として O-K 端 XAS の理論スペクトルデータを収集した。収集した約 12 万のスペクトルデータのうち、80%を予測モデル構築のためのト

レーニングデータ、20%構築した予測モデルの精度を検証するためのテストデータ20%として機械学習を行った。機械学習モデルには、全結合の多層ニューラルネットワークを用いた (Fig. 1)。説明変数には、結晶構造から得られる情報を元に作成した。結晶構造情報は原子座標を用いて記述できるが、構成原子数がデータによって異なるため、原子座標を機械学習の入力として直接使用できない。本研究では化学組成、原子の特徴量、動径分布関数、Coulomb Matrix、Orbital Fixed Matrix の5種類の説明変数を入力として用いた。また、目的変数には、O-K 端スペクトルを等間隔のエネルギーメッシュで離散化した値を直接用いた。学習のパラメータやアルゴリズムを最適化することで、85%の確率でスペクトル形状の概形を再現することができる予測モデルの作成に成功している。さらに、前述した5種類の説明変数を与える影響を調べたところ、動径分布関数が最も大きく影響を与えることが分かった。これは、XAS が局所原子配列を反映しているという物理的な起源と整合性がとれる結果である。これらの結果は、電子状態計算を経由せず、原子構造の情報のみから XAS スペクトルの特徴を捉えた予測結果を与える機械学習モデルの構築が可能であることを示している。

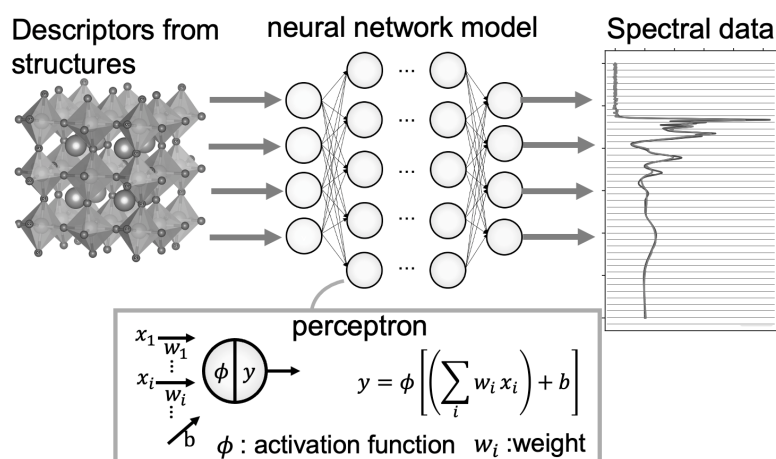


Fig. 1 Schematic drawing of the neural network model for XAS.

- 1) H. Ikeno, T. Mizoguchi, and I. Tanaka, Phys. Rev. B **2011**, 83, 115107.
- 2) H. Ikeno and T. Mizoguchi, Micron **2017**, 66, 205.
- 3) K. Mathew et al., Scientific Data **2018**, 5, 180151.
- 4) M. Rupp et al., Phys. Rev. Lett. **2012**, 108, 058301.
- 5) T.L. Pham et al., Sci. Technol. Adv. Mater. **2017**, 18, 756.