

多元系ライブラリXRD・XAFS連続測定技術 およびビッグデータ高速処理技術の構築

藤本憲次郎¹・相見 晃久¹・佐藤 吉宣²・山本 信雄²・吉田 周平²・大木島 俊²

¹ 東京理科大学・² 株式会社デンソー

背景・経緯

マテリアルズインフォマティクス、Materials Genome Initiative (MGI)という言葉が最近使われるようになり、テキストマイニングなどにより得られたビッグデータ収集、計算化学や機械学習などを利用した機能予測、そして高速材料合成・評価装置の開発が進められている。東京理科大学ではFig.1に示すように実験ツールを開発し、電池材や熱電変換材の探索を進めてきた

Fig.2は、東京理科大学・藤本の研究チームが酸化物熱電変換材料探索において絞り込んだペロブスカイト型 $\text{Ca}_{0.97}\text{Bi}_{0.03}\text{MnO}_{3-\delta}$ の結晶構造と物性を明らかにするために、放射光X線回折パターン(@BL5S2)からリートベルト解析によるフィッティングを試みたものである。実験室系X線回折装置ではペロブスカイト型 $\text{CaMnO}_{3-\delta}$ に基づく回折パターンのみ観察されていたが、放射光X線回折により1%前後の CaMn_2O_4 型酸化物が第2相として観察された。

治具試作・結果

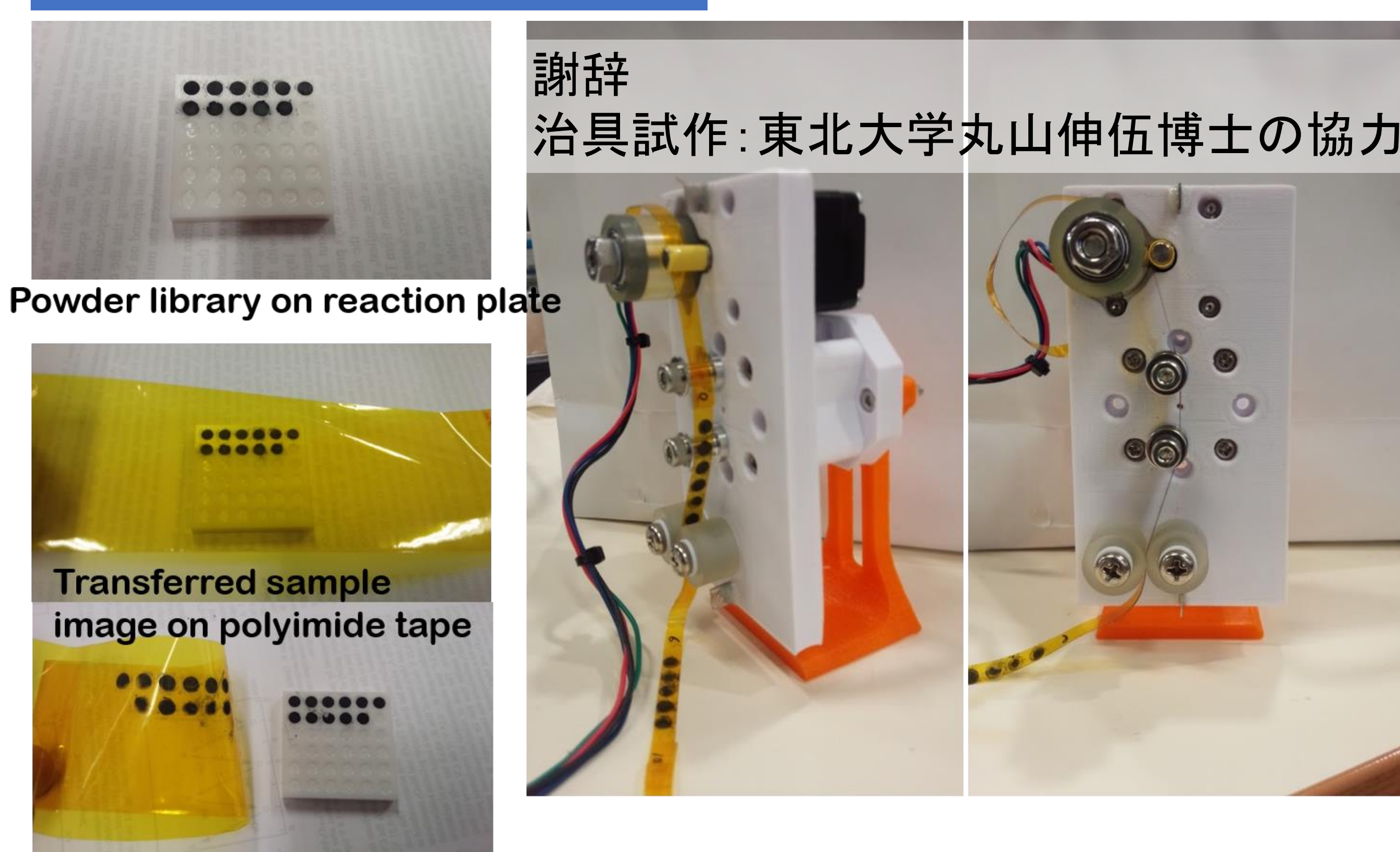


Fig.3 Fully automatic X-ray diffraction measurement tool for synchrotron radiation

↓ XRDだけでなく
XAFSの測定も可能か？

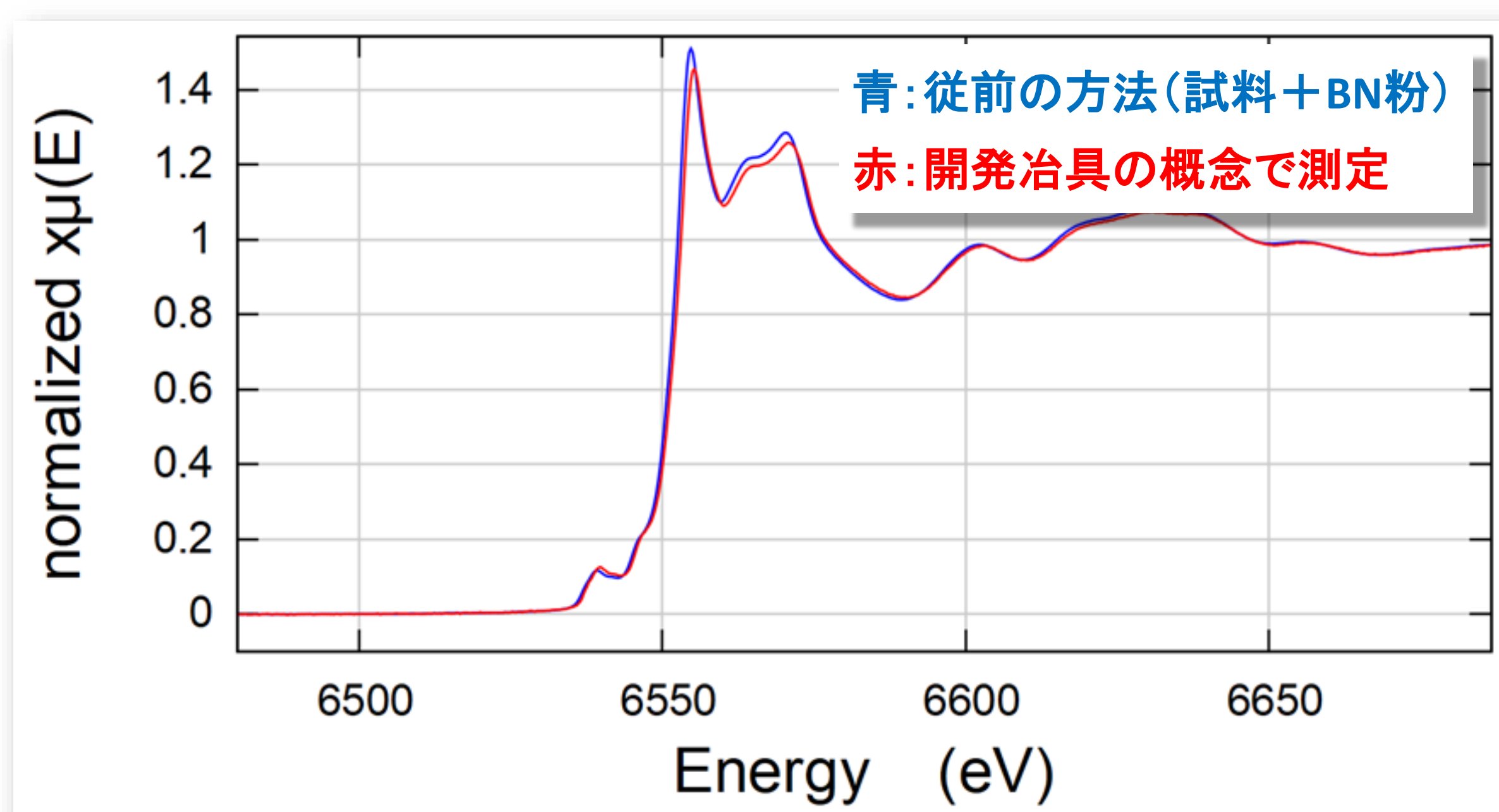


Fig.5 XAFS spectrum of $\text{Ca}_{0.97}\text{Bi}_{0.03}\text{MnO}_{3-\delta}$ (@ BL5S1)

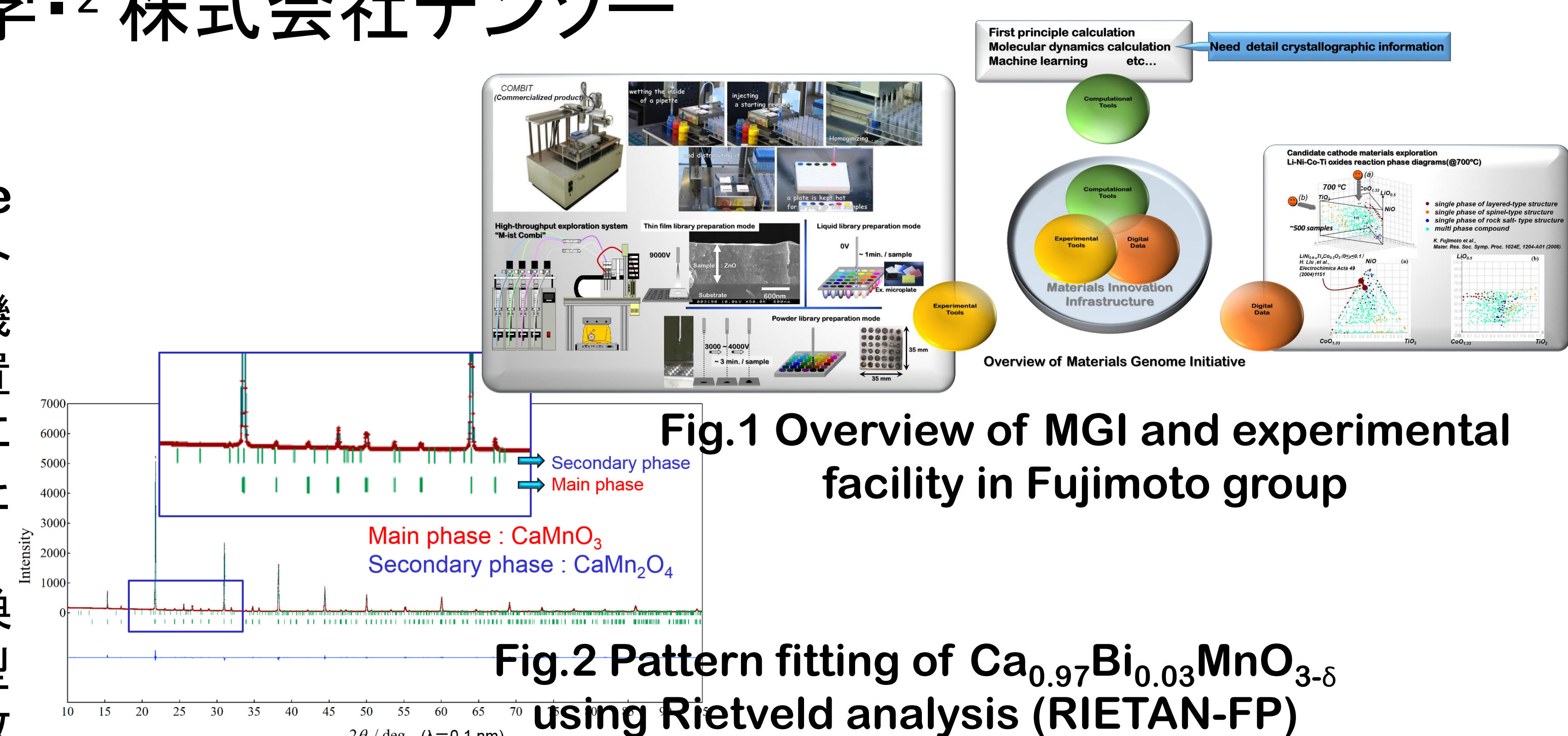


Fig.1 Overview of MGI and experimental facility in Fujimoto group

Fig.2 Pattern fitting of $\text{Ca}_{0.97}\text{Bi}_{0.03}\text{MnO}_{3-\delta}$ using Rietveld analysis (RIETAN-FP)

物性によっては、不純物が構造と物性の相関の不成立をもたらすため、今後は放射光における詳細かつ膨大なデータ収集とデータ解析技術の構築が必須となるはずである。粉体試料は、Fig.4中上に示すキャピラリー(ex. 内径0.2 mmφ)へ充填、溶封したのち、専用治具へセット、試料毎に、キャピラリーのセンタリング操作が必須である。試料充填やセンタリング操作に要する時間を短縮化するには、既存の方法に代わる新しい治具の開発が必要であると考えた。

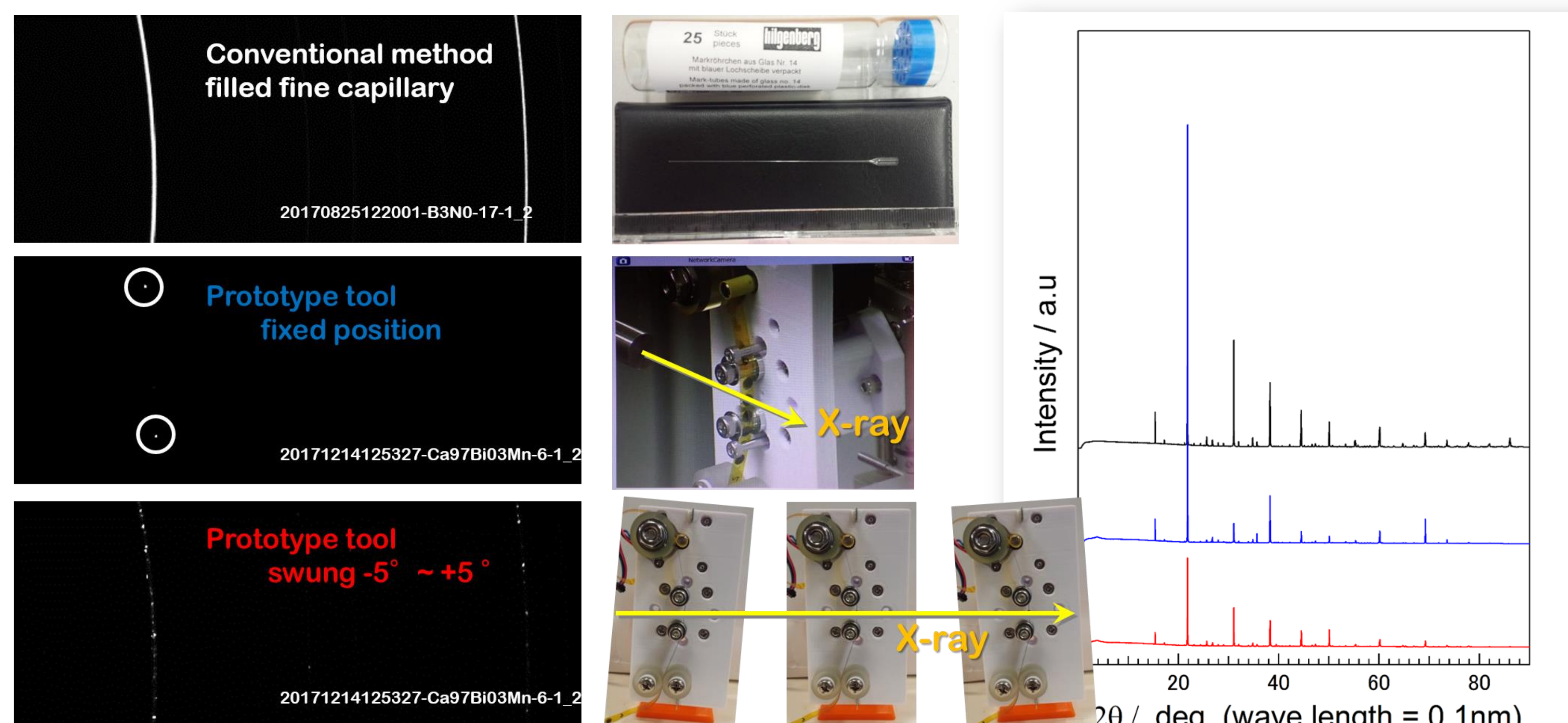


Fig.4 Diffraction image and powder X-ray diffraction patterns of $\text{Ca}_{0.97}\text{Bi}_{0.03}\text{MnO}_{3-\delta}$ (@ BL5S2)

構造精密化
自動化への挑戦

通常のリートベルト解析(手動)
通常1~3時間
試作プログラム(自動解析)
5分~32分

Akihisa Aimi, Kenjiro Fujimoto

Development of high-throughput and automated crystal structural refinement method using the Rietveld analysis
日本セラミックス協会 第56回セラミックス基礎科学討論会1B10

↓ 多元系におけるデータ収集・機械学習への挑戦(今後)

期待される効果・社会的インパクト

今回開発した治具は、放射光施設を用いたX線回折およびXAFS測定において、限られたシフトタイムでの取り扱い試料数を飛躍的に増大(センタリングに要する時間が不要)させるだけでなく、試料の準備や運搬方法についても大幅に簡略(キャピラリーへの充填が不要)できると期待している。今後は並行して開発したリートベルト自動解析ソフトと併せて駆使して、データ収集と得られるビッグデータからの機械学習(材料探索・予測)に取り組みたい。