

令和 3 年 6 月 8 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18H03843

研究課題名（和文）第一原理計算とインフォマティクスを活用した新しい高イオン伝導性結晶の探索

研究課題名（英文）Materials informatics from first-principles calculation

研究代表者

田中 功（TANAKA, ISAO）

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：70183861

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 33,800,000円

研究成果の概要（和文）：マテリアルズインフォマティクスを用い合理的な材料探索を可能にするために、多数の合成実験を並列して実行するための技術開発、獲得したデータから全く未知の物質であってもその合成条件を予測する技術、並びに予測結果をフィードバックし逐次予測モデルを改善する技術を開拓し、一連の材料探索の流れを構築した。具体的には、約24万件を対象とした酸化物の合成条件空間のうち1000件程度を学習データとし、低ランク性を仮定したテンソル分解法を適用し、未実験の合成条件に対してその合成成否を予測する推薦システムを構築し、その予測精度の検証を行った。その結果、新しい材料探索の流れを構築することができたと考えている。

研究成果の学術的意義や社会的意義

新規材料の発見を目指して、並列合成実験により1000件規模の酸化物の合成条件データベースを作成し、テンソル分解に基づいた「推薦システム」を構築した。これまで合成研究者の勘と経験に頼ってきた試行錯誤的な物質合成に、多数のデータに基づいた機械学習手法からの合成成功条件の推薦結果を合わせることで、より効率的に新規物質の探索を行うことが可能になる。

研究成果の概要（英文）：We developed methodologies on parallel synthesis experiments, a synthesis predictor of unexperimented materials, and a feeding back model of synthesis process. They are expected to support rational materials design from the machine learning technique. We constructed a recommender system that predicts the successful or unsuccessful synthesis conditions for unexperimented compounds by applying the tensor decomposition method under the low rank assumption of the tensor. The training dataset was constructed with 1,000 of the 240,000 oxide synthesis conditions. Good prediction ability was demonstrated. These frameworks can accelerate the discovery of unknown materials.

研究分野：材料基礎科学

キーワード：新規物質探索 インフォマティクス 並列合成実験 推薦システム 合成条件予測モデル

1. 研究開始当初の背景

高イオン伝導物質は、結晶の融点よりも十分低い温度領域で同組成の液体に匹敵するイオン伝導度を示す潜在能力を有する。これは高・中温型燃料電池においては作動温度を大幅に低下させること、蓄電池においては液体電解質を固体電解質に代替できる可能性を意味している。

すでに幾つかの高イオン伝導物質が知られており、連携研究者の菅野らは実験室レベルで全固体リチウムイオン電池の開発に成功している。しかし、工業的に利用するためには、電極活物質との化学的マッチング等の様々な課題が残されており、用途に応じて物質の選択肢を持つことが重要である。

高イオン伝導物質の研究は100年近い歴史を持つが、これまでに見出された物質は、膨大な実験結果の蓄積に基づいて、あるいは偶発的に見つけられたものであり、定量的な指導原理に基づいて開発されたものではない。固体化学の教科書として名高い A.R. West の Basic Solid State Chemistry, Wiley (2014)には、高イオン伝導物質が備えるべき要件が様々な記述されているが、いずれも定性的であり具体的な材料探索の指針を与えるものではない。本研究で目指すように、研究者の経験知に依存しない材料探索が可能になれば、発見効率が飛躍的に向上するだけでなく、これまでに探索されたことのない物質群から(換言すれば経験知のないところから)高い機能を示す新材料を発見できる可能性もある。

2. 研究の目的

近年発展が著しい第一原理分子動力学(MD)計算を活用すると、実験データと比肩できる精度でイオン伝導度を評価することが可能である。代表研究者は、この手法を用いて、既知の高イオン伝導物質を解析することで多くの成果を上げてきた。しかし、第一原理 MD 計算は、現在のように計算機の演算速度が高くなった時代でも、未だ極めてコストの高い計算である。化合物を網羅したデータベースを構築して、その後スクリーニングを行うような従来法で計算探索を行うことは現実的ではない。

この『壁』を打ち破る可能性があるのが、本研究で目指すインフォマティクスを活用したアプローチである。データ科学を活用して新物質や材料機能を効率的に発現するアプローチは喧伝されているものの、実際にはデータ科学を活用しない単純スクリーニングに留まっているものが殆どである。その主たる理由として、データ科学に基づいた効率的な新物質や材料機能探索を一連の流れとして実施する方法論が未だ整備されていないことが挙げられる。本研究は、データ獲得 統計解析 検証という確固とした方法論を構築することを目的としている。

3. 研究の方法

本研究では新規材料の発見のため『推薦システム』という手法を合成実験に適用し、統計解析を前提としたデータ獲得を多数の多数の合成・解析実験によって実施し、適切な候補材料を絞り込んだ。これらの一連の流れを達成するために、以下に述べる方法で研究を進めた。

推薦システムとは、Amazon 社など電子商取引サイトにおいて、購入や閲覧履歴をもとに、顧客が興味を持つ確率が高いと判断される商品を提案するシステムであり、最近のデータ科学の成果の粋が集められている。これを材料科学の問題に適用して萌芽的な成果を上げたのは、本研究のメンバーが最初である。

候補材料が既知物質である場合には、合成方法も既知であるために合成の際に特別な配慮は必要ない。それに対して、未知物質の場合には合成手法の新規開拓が必要になる。人類の長い歴史の中で未だ合成報告のない物質は、適切な合成手法を見つけるのが容易でなく、系統的な多数の実験が必要になると予想される。単純スクリーニングのために系統的に多数の実験データを得る技法は、一般にコンビナトリアル実験と呼ばれる。個別実験に比べて多数のデータを一度に獲得するため効率的であるように喧伝されるが、真に効率が高まるのは、対象とする物質の範囲が狭く、同一の合成条件での比較が可能な場合に限定される。多様な無機物質を対象にした物質探索では、効率的なコンビナトリアル実験の条件を決めるために、網羅的実験を繰り返す必要がある。

本研究では、合成条件に対して推薦システムを導入した。幾つかの合成手法のもと多数の条件で並列実験を行い、合成の成功データと失敗データを蓄積し、データを統計学習の結果に基づいて逐次的に増やすことで効率的に合成可能物質の探索を行うことが可能である。

並列実験には、リチウム系、ナトリウム系ともに酸化物の合成方法として一般的な固相反応法、ゾルゲル法、錯体重合法、共沈法を利用し、合成条件や出発原料を系統的に変化させた。合成した試料の粉末 X 線回折測定は、試料自動交換機能を備えた粉末 X 線回折装置により連続的に評価を行った。そのプロファイルを既知の粉末 X 線回折プロファイルデータベースである ICDD-PDF と自動で照合するスクリプトを作成し、目的とする物質の回折ビ

ークの有無でスコア付けを行った。対象としたのは二種類の陽イオンと酸化物イオンから構成される三元系酸化物で、23種類の原料から陽イオン種が異なるように2種類選択して23種類の比で混合し、5種類の焼成温度で系統的に実験を行った。探索対象となる合成条件はこれらと4つの合成手法の組み合わせで約24万通りあり、そのうち約1600件の実験を行った。

このようにして収集した実験結果を、用いた原料2種とその混合比、および合成手法と焼成温度の5軸を有する5階のテンソルデータとし、低ランク性の仮定を用いたテンソル分解法の一つである Tucker 分解を適用し、未実験条件の合成可能性を予測した。

4. 研究成果

予測精度の評価のために行った交差検証において、標準化した予測スコアに対し合成成功割合をプロットしたものを図1に示す。スコアが顕著に高い(低い)部分では合成に成功(失敗)していることがわかる。このことは、推薦システムによって予測された上位の合成条件を試行していくことで、合成成功条件を効率的に探索できることを示している。また、今回用いたデータ数は全探索範囲である24万件のたった0.6%に過ぎないが、予測結果を逐次実験してフィードバックすることで推薦システムの予測精度は改善していくことが期待できる。もう一つの予測能力の検証として、学習データに全く含まれていない既知組成の合成条件を仮想的に未知組成の合成条件とし、予測上位の合成条件を有する組成を実際に合成し、その結果と予測スコアを比較した(図2)。この検証方法においても、予測スコアが高い場合は合成に成功していることがわかる。

本研究により、並列合成実験により獲得した多数の合成条件データから機械学習手法の一つである推薦システムを用いて、学習に用いていない未知物質であっても効率的にその合成成功条件を予測可能であることが示された。また、本手法は合成成否だけでなく測定した物性値を対象に応用することも可能であり、所望の物性を持つ物質の探索にも適用できる可能性がある。

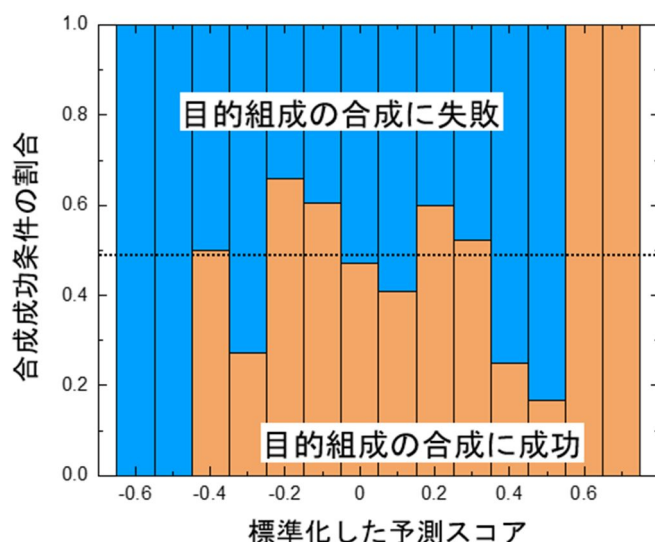


図1 交差検証における合成成功割合の標準化予測スコア依存性。水平点線は学習データにおける合成成功条件の割合を示す。

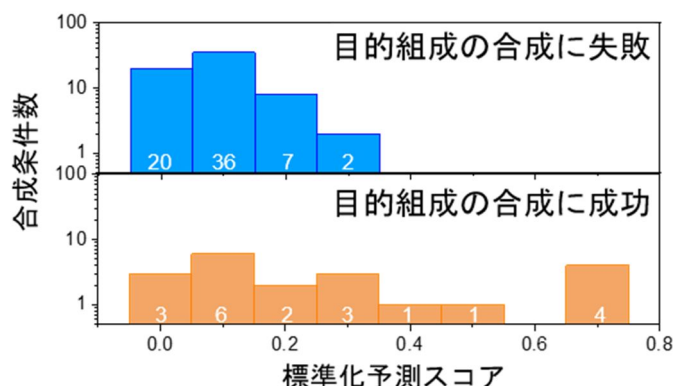


図2 推薦システムによる予測に基づき、上位の合成条件を有する17の既知組成に対し、5種の焼成温度で行った計85の合成実験における合成成功条件および合成失敗条件の件数の標準化予測スコア依存性。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3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 Lee, Joohwi, Ikeda, Yuji and Isao Tanaka	4. 巻 125(5)
2. 論文標題 Solution effect on improved structural compatibility of NiTi-based alloys by systematic first-principles calculations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 JOURNAL OF APPLIED PHYSICS	6. 最初と最後の頁 55106
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/1.5051630	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 -

1. 著者名 Takayuki Nishiyama, Atsuto Seko, and Isao Tanaka	4. 巻 4
2. 論文標題 Application of machine learning potentials to predict grain boundary properties in fcc elemental metals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Phys. Rev. Materials	6. 最初と最後の頁 123607-1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.4.123607	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 -

1. 著者名 Ushio Matsumoto, Takafumi Ogawa, Satoshi Kitaoka, Hiroki Moriwake, and Isao Tanaka	4. 巻 124(37)
2. 論文標題 First-Principles Study on the Stability of Weberite-Type, Pyrochlore, and Defect-Fluorite Structures of A ₂₃ B ₂₄ O ₇ (A = Lu ³⁺ -La ³⁺ , B = Zr ⁴⁺ , Hf ⁴⁺ , Sn ⁴⁺ , and Ti ⁴⁺)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. C	6. 最初と最後の頁 20555-20562
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpcc.0c05443	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5件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Isao Tanaka
2. 発表標題 Data driven discovery of new materials 2
3. 学会等名 1st Workshop on Materials Informatics in Xi'an (MIX) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Isao Tanaka
2. 発表標題 Data Driven Discovery of Novel Mateials
3. 学会等名 Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications(CMCEE) Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 溝上慧祐、田中功
2. 発表標題 第一原理フォノン計算を用いた Mg {10-12} 双晶界面の解析
3. 学会等名 日本金属学会 2021年春季第168回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 須賀隆裕、林博之、田中功
2. 発表標題 スラリーを用いた並列固相反応合成における溶媒の検討
3. 学会等名 日本金属学会 2021年春季第168回講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 西山隆之、世古敦人、田中功
2. 発表標題 機械学習ポテンシャルを用いた結晶粒界構造の探索
3. 学会等名 日本金属学会 2021年春季第168回講演大会
4. 発表年 2021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
---------	---------