

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 5 月 10 日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14401

研究課題名（和文）自動第一原理計算と多変数ベイズ最適化を用いた無機材料探索システムの構築

研究課題名（英文）Construction of material exploration system using automatic first-principles calculation and multi-objective Bayesian optimization

研究代表者

高橋 亮 (Takahashi, Akira)

東京工業大学・科学技術創成研究院・助教

研究者番号：80822311

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）：物性値が一定の範囲内に収まるような物質探索を機械学習により自律的に行う手法を開発した。研究室内のデータベースで性能テストを行った結果、極端な範囲を指定しない限り、ベイズ最適化よりも本手法の性能が優れていることを示した。また本手法は複数の物性値を考慮して探索する場合にも適用可能である。（STAM: Methodsに2022年4月に出版）

さらにハイスループット計算技術を組み合わせることで、自律的に材料探索を行うシステムを開発した。high-k 誘電体探索を想定したテストを行い、ランダムな計算を行うよりも約5倍速く目標物質を同定できることを示した。この成果については現在論文を投稿中である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

データ科学や機械学習を材料科学に応用する研究は本研究課題採択前から広く流行しており、また第一原理計算による大規模データベースが公開され機械学習の様々な手法がテストされていた。一方で未知の物質探索に関する研究は意外に珍しく、革新的な材料の開発はまだ行われていなかった。

原因として（1）複数の物性値を同時に考慮する手法が一般的でないこと（2）ハイスループット計算の技術が複雑であること、の2点が考えられる。本研究では新しく手法を開発することにより（1）を、実際に自律探索システムを作ることで（2）を解決した。本手法は様々な物質群・物性値に適用可能であり、半導体・誘電体に限らず応用されることが期待される。

研究成果の概要（英文）：We have developed an autonomous materials screening method, aimed to materials whose properties fall within a desirable range, utilizing machine learning. Test of the performance of this method using a database in our laboratory indicates that this method performs better than Bayesian optimization, which is widely used, unless target range is extreme. Additionally, this method can be applied when searching for materials that satisfy multiple material property criteria simultaneously. This was published in Science and Technology of Advanced Materials: Methods in April 2022.

Furthermore, we developed a system for autonomous materials screening by combining this method with high-throughput computing technology. Test of this system assuming a search for high-k dielectric materials indicates that the system identify target materials at five times the speed of random high-throughput computing. We submitted a paper on these findings.

研究分野：材料科学

キーワード：第一原理計算 機械学習 ハイスループット計算

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、実験や計算の結果を収集した材料データベースが世界各国で公開されており、機械学習を用いてデータを俯瞰的に解析するマテリアルズインフォマティクス(MI)が流行している。更に最近では、既存データベースの枠組みを超えた新材料探索への期待も高まっており、その手法としてベイズ最適化が注目されている。だが、ベイズ最適化による有望な無機材料の発見例は未だごく少数である。材料探索には用途に応じて安定性や種々の電気・光学特性など複数の因子を考慮する必要があるが、多数の物質を対象にした物性値の系統的な第一原理計算には煩雑な手順を要することと、複数の物性値を同時かつ適切なバランスで考慮した最適化手法が確立されていないことがボトルネックとなっている。

2. 研究の目的

本研究では、本研究代表者が開発を進めてきた自動第一原理計算プログラムと機械学習モデルにより多数の無機物質の物性値を効率よく評価・予測し、多変数を考慮した適切な探索手法を用いることで無機材料の自動探索システムを開発する。更に、得られた膨大なデータから特性決定因子を抽出し、無機材料の俯瞰的理解及び設計指針構築へと展開する。

3. 研究の方法

材料スクリーニング手法の開発

まず、従来材料探索でよく使われてきたベイズ最適化は主に最大値・最小値を見つけるためのアルゴリズムであったが、申請者は研究期間中、第一原理計算による材料スクリーニングは必ずしも極端な値を持つデータを少数発見することが目的ではなく、比較的穏やかな条件を満たすような物質を多数取得して次の解析や実験に繋げていくことが重要であると考えた。そこで申請者は、過去の計算材料科学以外の分野の研究を参考にし、物性値が所望の範囲に収まる確率を元に探索する新たな材料スクリーニング手法を開発した(図1左)。この探索手法は、複数の物性についてそれぞれ同時に条件を満たすような物質探索においても確率の積を用いることで適用できるため、当初の目的である「複数の物性値を同時かつ適切なバランスで考慮」という条件も満たしている。

ハイスループット計算技術を用いた自律材料探索システム

上述した材料スクリーニング手法及び近年横浜市立大学の寺山らにより開発された Boundless objective-free exploration(BLOX)法とハイスループット計算技術とを組み合わせ、コンピュータクラスターやスーパーコンピュータ等を用いて自律的に材料探索を行うシステムを開発した(図2左)。

4. 研究成果

材料スクリーニング手法の開発

手法の性能を評価するために、第一原理計算による 2018 物質の窒化物・ニクタイトの形成エネルギー・バンドギャップのデータを用い、それぞれの物質が所望の範囲に収まるような物質を効率的に選出できるかどうかテストを行った。結果として、対象物性が1つの場合でも従来のベイズ最適化よりも良い性能を示し(図1右上)、更に2物性に関わる条件を同時に満たすような材料探索も効率化できることが分かった(図1右下)。

ハイスループット計算技術を用いた自律材料探索システム

システムの性能を評価するために、ハイブリッド汎関数・密度汎関数摂動理論を用いたバンドギャップ・誘電率計算のためのワークフローを構築し、4099 物質の酸化物・カルコゲナイドの結晶構造に対してシステムを適用した。結果として、特異な誘電率・バンドギャップを持つような物質や広いバンドギャップと大きい誘電率を両立するような物質探索が大きく効率化できることが分かった(図2右)。

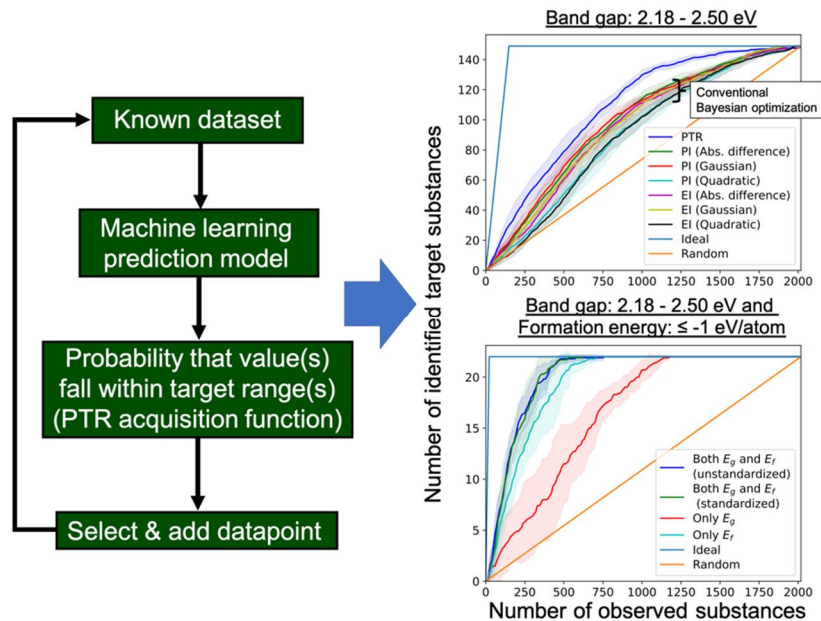


図 1 (左) 本研究で開発された材料スクリーニング手法の概略図、(右) 2018 種類の窒化物・ニクタイトのデータで手法の性能テストを行った結果。Sci. Technol. Adv. Mater.: Methods 55-66 (2022) より転載。

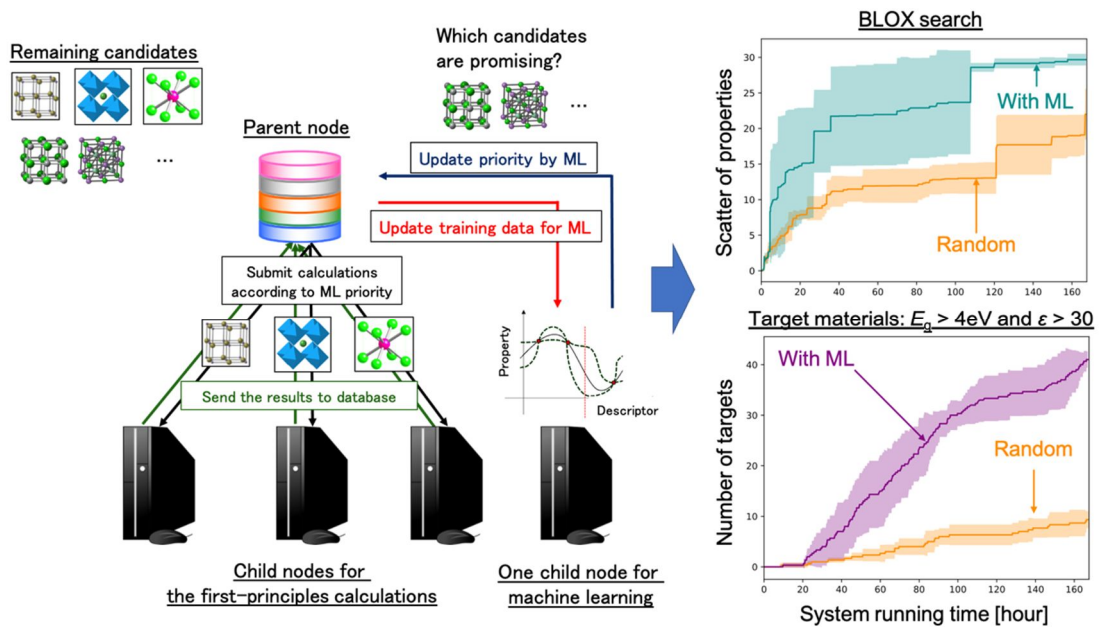


図 2 (左) 本研究で開発された自律探索システムの概略図、(右) ハイブリッド汎関数と密度汎関数摂動理論による酸化物・カルコゲナイドのバンドギャップ・誘電率計算に基づいた材料探索テストの結果。

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 Takahashi Akira, Kumagai Yu, Aoki Hirotaka, Tamura Ryo, Oba Fumiyasu	4. 巻 2
2. 論文標題 Adaptive sampling methods via machine learning for materials screening	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	6. 最初と最後の頁 55 ~ 66
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/27660400.2022.2039573	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5件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高橋亮
2. 発表標題 第一原理計算と機械学習による自動材料スクリーニングシステムの開発
3. 学会等名 日本MRS年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 高橋亮, 熊谷悠, 大場史康
2. 発表標題 機械学習を用いた自律的計算材料スクリーニングシステムの開発
3. 学会等名 金属学会2023年春期大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高橋亮, 青木宏賢, 熊谷悠, 大場史康
2. 発表標題 計算材料データベースと機械学習を用いた緑色発光半導体の効率的探索手法の開発
3. 学会等名 日本金属学会2021年春期(第168回)講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋亮, 熊谷悠, 青木宏賢, 大場史康
2. 発表標題 ハイスループットスクリーニングのためのadaptive sampling手法の開発
3. 学会等名 第31回日本MRS年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 高橋亮
2. 発表標題 半導体・誘電体材料を対象とした計算材料データベースの開発と応用
3. 学会等名 第3回『多結晶材料情報学応用技術研究会』（招待講演）
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