

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：14603

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20537

研究課題名(和文)異種材料データの統合による未知材料創出

研究課題名(英文)Materials discovery through integration of heterogeneous material data

研究代表者

藤井 幹也(Fujii, Mikiya)

奈良先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授

研究者番号：20582688

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：所望の物性値を示す材料の新規探索は重要な興味の一つである。このために、我々はGAN(Generative Adversarial Network)を用いて所望の物性値を示す組成式の生成モデルを構築した。このGANでは指定物性値に応じて、生成分布が正しく変化していくことがわかった。そして、CSPML(Crystal Structure Prediction with Machine Learning)法を用いることで生成された組成式の結晶構造の予測もできた。さらに、物質変数とプロセス変数の統合を目指し、高分子重合反応の生成物予測に取り組み、ベイズ最適化によるプロセス変数の最適化も実証した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、材料開発において機械学習・深層学習の新たな活用方法を生み出すものである。従来の材料開発においては、物質の合成・解析の結果を研究者が考察し、次のさらなる候補を提案することを繰り返すループにより新材料を創出してきた。本研究では、材料候補の提案が機械学習・深層学習に可能であることを示すものである。さらに、材料の合成においては種々の合成プロセスパラメータの最適化が必要であるが、本研究ではこのプロセスパラメータの最適化も機械学習による可能であることを示した。これらは、材料開発の自動化という新しい技術につながる重要なものである。

研究成果の概要(英文)：The search for new materials that exhibit desired physical properties is one of important interests. For this purpose, we have constructed a generative model of compositional formulas exhibiting desired physical properties using a Generative Adversarial Network (GAN). The GAN showed that the distribution of the compositional formulas varied correctly with the specified physical properties, and the CSPML (Crystal Structure Prediction with Machine Learning) method was also used to predict the crystal structure of the generated compositional formulas. Furthermore, we have worked on the product prediction of polymer polymerization reactions, aiming at the integration of material and process variables, and demonstrated that the process variables can be optimized by Bayesian optimization.

研究分野：理論化学、計算化学、マテリアルズ・インフォマティクス

キーワード：生成モデル 無機結晶材料 コポリマー合成

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

近年、材料科学と情報科学が融合する領域として「マテリアルズ・インフォマティクス」が急速に発展してきている。この分野は、情報科学の手法を用いて材料の性質と構造を理解し、予測し、最適化することに重点を置いている。第一原理計算による結果を収録した大規模なデータベースも公開されるものが増え、これらデータベースと高度な機械学習アルゴリズムの活用により、マテリアルズ・インフォマティクスは材料設計と製造の新たなパラダイムを生み出す可能性が期待されている。

マテリアルズ・インフォマティクスとして多くの研究成果が報告されているが、その多くが物質の組成式や構造から、物質の性質を予測するものが中心である。当初は、組成式からの物性予測を行うものが多かったが、その後、分子構造や結晶構造をグラフ表現し、グラフニューラルネットワークにより物性を予測するものが提案され、予測精度の向上が実現された。特に、無機結晶構造の周期性を表現するグラフ表現が提案され、形成エネルギーの予測精度が約10倍向上することがわかると、物性予測の中心はグラフニューラルネットワークを用いるものとなった。

一方で、材料を合成するにあたり、大きい課題も残されていた。大きい課題の例を挙げると、(1)所望の物性をもつ材料を提案すること、(2)材料合成におけるプロセスまで含めた予測モデルを構築すること、が挙げられる。本研究ではこれらの課題に対して研究を行った。

2. 研究の目的

本研究では、マテリアルズ・インフォマティクスの残された課題として、(1)所望の物性をもつ材料を提案すること、(2)材料合成におけるプロセスまで含めた予測モデル構築、を目標に研究をおこなった。(1)に対しては、無機結晶材料の形成エネルギーに対して、所望の物性を示す材料組成を生成し、その生成分布を考察することを目的とした。(2)については、ポリマー材料に対して、プロセス変数を含めた予測モデルを構築することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究の目的のひとつめの(1)については、Generative Adversarial Network (GAN) [ref1]を用いて、図1のようなネットワークアーキテクチャを構成したものを採用した。学習データについてはMaterials projectから入手した約50000データの組成と形成エネルギーのデータを用いた。特に、本研究では生成された組成式の分布を学習モデルと比較することで、その生成モデルの確からしさを検討し、さらに、物性予測 AI の精度を確認することで、生成された材料が所望の物性を保持していることを確認した。(2)については、フロー合成法によってコポリマーを生成し、その生成されたポリマーにおけるモノマー比率の予測モデルを、分子物性および温度や重合時間といったプロセス変数から予測することとした。特に、フロー合成においては、送液ポンプをデジタル制御することで、モノマーの仕込み比率や重合時間を精密制御することを可能にすることにし、効率的にデータ生成を可能として、オリジナルのデータセットを構築し、学習データとした。

4. 研究成果

(1)については、まず、GANによる生成された組成式が示す形成エネルギーの分布を解析した。図2にその結果を示す。図2(a)には学習データの分布を示し、カラープロットとして形成エネルギーの値を示している。そして、所望の形成エネルギーとして -3.0 eV/atom として生成した時の分布を図2(b)に示した。この(a)および(b)の比較から本研究でもちいたGANによって、所望の物性値をもつ分布を正しく生成していることがわかる。次にGANが所望の物性値を示すこ

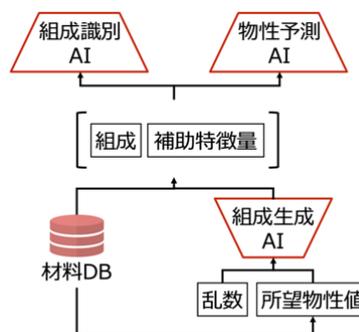


図1. Generative Adversarial Network による所望の物性値を満たす組成式を生成するアーキテクチャ

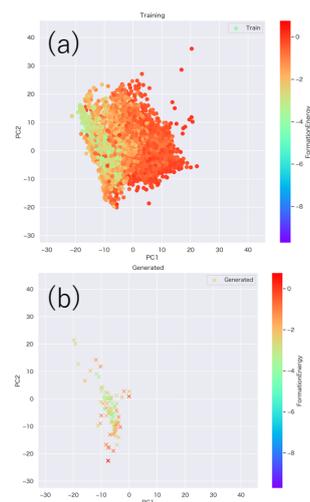


図2. (a)GANへの学習データの分布、(b)GANによる所望の物性値を満たす組成式の生成分布。(a)、(b)共にカラープロットは形成エネルギーの大きさを示す。生成された分布(b)が学習データの分布の所望の物性値付近に存在していることがわかる。

とを担保する機構である物性予測 AI の性能評価の結果を図 3 に示した。この予測精度は RMSE: 0.19 eV/atom であり、決定係数 R^2 は 0.97 となり十分な精度で形成エネルギーが予測できていることがわかった。図 2 より、生成された材料は材料空間においては内挿領域に存在しているため、この物性予測 AI にて十分な精度で物性値が予測できている図 3 の結果と合わせることで、正しく材料生成が実施できたことが確認できた。この結果を中心に [1] に成果発表をおこなった。にさらに、今後は CSPML 法 [ref2] を用いることで、生成した組成の結晶構造を推定することを実現する。

(2) については、フロー合成装置を用いて MMA をベースにした 5 種類のバイナリーコポリマーを様々なプロセス条件でラジカル重合し [2]、得られた実験結果を機械学習により解析した。モノマーの内挿領域予測または外挿領域予測を表現するため、2 通りの train-test split を行い、それぞれのデータセットに対して 3 種類の回帰手法 (NuSVR, RF, and PLS) を用いて、モノマー転化率およびポリマー中のモノマー組成比の予測モデルを構築した。Double Cross Validation により内挿領域を表現した場合、コポリマー合成時のプロセス変数 (Features A) およびモノマーを特徴付けるいずれかの特徴量 (Features B から D) を説明変数とすることで、いずれの回帰手法を用いても高い予測精度を示した。Molecular Extrapolation Validation により外挿領域を表現した場合、プロセス変数に理論計算値 (Features D) を説明変数に追加した条件のみ予測精度が向上した (図 4)。また、モノマー転化率の予測値を用いて計算したポリマー中のモノマー組成比のほとんどは、モノマー転化率の実測値を用いた場合と同等以上の予測精度を示した。以上のように、実験条件と量子化学計算値を組み合わせることで、モノマー転化率およびポリマー中のモノマー組成比の外挿領域を含めた予測を行うことができ、外挿領域の高予測精度化には新規モノマー (外挿領域) の分子軌道エネルギー情報が必要であることを見出した [3]。今回提案されたモデルを用いることで、新規モノマーを用いたポリマー開発の加速が期待される。

【引用文献】

[ref1] Y. Sawada, K. Morikawa and M. Fujii, "Conditional Generative Adversarial Networks for Inorganic Chemical Compositions", *Chem. Lett.* **50**, 623-626 (2021)

[ref2] M. Kusaba, C. Liu, R. Yoshida, "Crystal structure prediction with machine learning-based element substitution", *Computational Materials Science* **211** (2022) 111496

【国際論文発表】

[1] M. Fujii, "Significance of materials informatics and the development of new materials", *JSAP Review*, **Vol. 2022**, Article ID: 220416, 220416-1 - 220416-5 (2022)

[2(査読有)] A. Wakiuchi, S. Takasuka, S. Asano, R. Hashizume, A. Nag, M. Hatanaka, T. Miyao, Y. Ohnishi, T. Matsubara, T. Ando, T. Sugawara, M. Fujii, and H. Ajiro "Composition Regulation by Flow Copolymerization of Methyl Methacrylate and Glycidyl Methacrylate with Free Radical Method" *Macromol. Mater. Eng.* **Vol. 2022**, 2200626 (2022).

[3(査読有)] S. Takasuka, S. Oikawa, T. Yoshimura, S. Ito, Y. Harashima, T. Takayama, S. Asano, A. Kurosawa, T. Sugawara, M. Hatanaka, T. Miyao, T. Matsubara, Y. Ohnishi H. Ajiro a and M. Fujii, "Extrapolation performance Improvement by quantum chemical calculations for machine learning-based predictions of flow-synthesized binary copolymers" *Digital Discovery*, (2023) Advance Article.

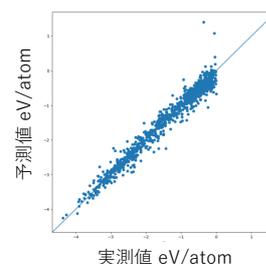


図 3. GAN の所望の物性値を担保する物性予測 AI の性能評価図。予測が十分な精度で実測値と一致していることがわかる。

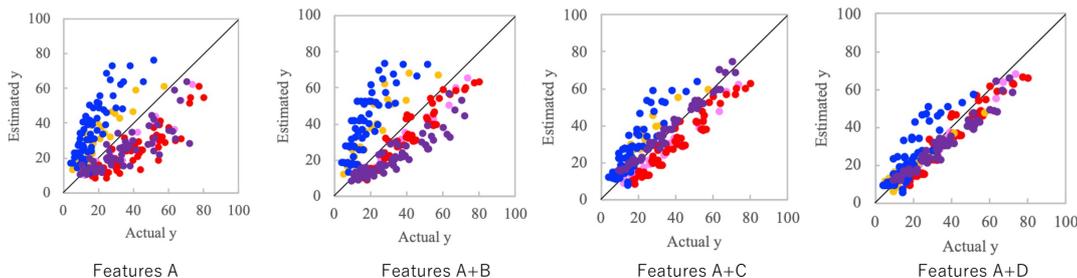


図 4. モノマー転化率の予測値の精度検証。プロセス変数 (Features A) および量子化学計算の結果 (Features D) をあわせることで精度が向上していることがわかる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2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 Shogo Takasuka, Shunto Oikawa, Takayoshi Yoshimura, Sho Ito, Yosuke Harashima, Tomoaki Takayama, Shigehito Asano, Akira Kurosawa, Tetsunori Sugawara, Miho Hatanaka, Tomoyuki Miyao, Takamitsu Matsubara, Yu-ya Ohnishi, Hiroharu Ajiro and Mikiya Fujii	4. 巻 -
2. 論文標題 Extrapolation performance improvement by quantum chemical calculations for machine-learning-based predictions of flow-synthesized binary copolymers	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Digital Discovery	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） 10.1039/D2DD00144F	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 -

1. 著者名 Mikiya Fujii	4. 巻 2022
2. 論文標題 Significance of materials informatics and the development of new materials	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 JSAP Review	6. 最初と最後の頁 220416-1 - 5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11470/jsaprev.220416	査読の有無 無
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8件（うち招待講演 3件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 藤井幹也
2. 発表標題 マテリアルズ・インフォマティクスによる新材料設計
3. 学会等名 日本コンピュータ化学会 2021年秋季年会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 藤井幹也
2. 発表標題 材料開発における機械学習・深層学習
3. 学会等名 情報論的学習理論と機械学習研究会 (IBISML48) (招待講演) (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 加納 史宮、原嶋 庸介、吉野 隼矢、山口 友一、工藤 昭彦、藤井 幹也
2. 発表標題 機械学習による水分解光触媒の水素発生量及び酸素発生量の予測
3. 学会等名 第24回理論化学討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤井幹也
2. 発表標題 マテリアルズ・インフォマティクスから プロセス・インフォマティクスへ
3. 学会等名 日本化学会第103春季年会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 高須賀 聖五、及川 駿登、吉村 誠慶、伊藤 翔、原嶋 庸介、高山 大鑑、浅野 重人、黒澤 哲、菅原 哲徳、畑中 美穂、宮尾 知幸、松原 崇充、大西 裕也、網代 広治、藤井 幹也
2. 発表標題 フロー合成したコポリマーに対する機械学習予測の量子化学計算による外挿性向上
3. 学会等名 日本化学会第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 伊藤 翔、高須賀 聖五、及川 駿登、原嶋 庸介、高山 大鑑、Aniruddha Nag、脇内 新樹、菅原 哲徳、畑中 美穂、宮尾 知幸、松原 崇充、大西 裕也、網代 広治、藤井 幹也
2. 発表標題 ラジカル重合反応におけるフロー合成プロセスのベイズ最適化
3. 学会等名 日本化学会第103春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Mikiya Fujii
2. 発表標題 Quantum chemistry calculations improve machine-learning-based predictions of flow-synthesized binary copolymers
3. 学会等名 9th French-Japanese Workshop on Computational Methods in Chemistry (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 藤井幹也
2. 発表標題 フロー合成法による重合反応精密制御に向けた プロセス・インフォマティクス
3. 学会等名 Nanotech展2023
4. 発表年 2023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