

「理論・実験・計算科学とデータ科学が連携・融合した先進的マテリアル
ズインフォマティクスのための基盤技術の構築」

2016年度採択研究者

2018年度 実績報告書

JALEM Randy

物質・材料研究機構ナノ材料科学環境拠点
研究員

材料シミュレーションとインフォマティクスを用いたデータ駆動型リチウムイオン導電性
セラミックスの探索

§ 1. 研究成果の概要

1. はじめに

本研究で提案する解決策は、DFT 計算に加えてベイズ最適化 (BO) を適用することである (DFT+BO)。これは、機械学習による予測とその不確実性情報の両方を効果的に利用することを目的としており、優れたイオン伝導を示す可能性の高い候補化合物に計算リソースを効果的に割り当てることができる。DFT+BO のアプローチを検証するために、A、M、X、および Z をイオン置換させるようなタボライト型 $AMXO_4Z$ 化合物の組成空間をスクリーニングした。タボライト型構造はイオン伝導性が高い既知材料があることから選択した。なお、DFT 計算ではイオン伝導度ではなくイオンの移動エネルギー (E_b) を評価とした。 E_b が低いほどイオン伝導性は高くなる。また組成 A は Li, Na が該当し、それぞれがキャリアイオンになると想定している。

2. BO 駆動 DFT - E_b 探索のワークフロー

図 1 は、 $AMXO_4Z$ タボライト材料群から Li または Na イオンの移動エネルギー E_b が最小となる材料を効率的に抽出するための DFT+BO (DFT 計算に加えてベイズ最適化 (BO) を適用することである) 探索について、概略的なワークフローを示したものである。まず、化合物の探索空間は A、M、X と Z サイトでの様々なイオンの置換によって定義される (計 318 組成)。次に、探索空間中からランダムに選択された 5 組成について DFT 計算により E_b を評価する (DFT- E_b)。得られた 5 つのデータを用いてガウス過程 (GP) による予測値とその分散の評価を行い、この評価値を BO に適用することで、未計算組成における獲得関数 $a(x)$ を得る。この獲得関数が最大となるものを、次にサンプリングすべき組成 x_t とし、DFT- E_b を新たに評価する。このシーケンスを繰り返すことで、ランダムサンプリングよりも効率的に E_b が最小となる材料を発見することができる。

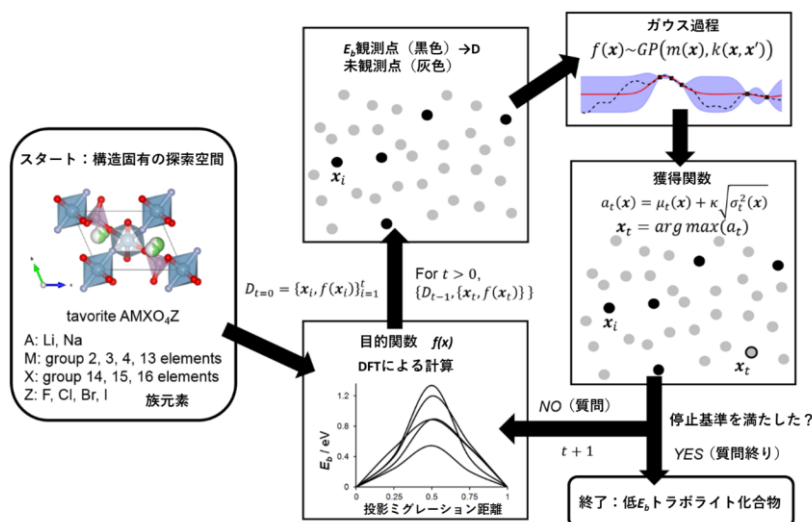


図 1. BO 駆動 DFT- E_b 探索の概略的なワークフロー

3. BO モデルの性能評価

本研究では、通常(ordinary)の BO (oBO) に加えて、記述子をカテゴリー別に束ねることで次元を減らした additive BO (aBO)の二つの手法について検討した。図 2 は、A=Na データセットで、ランダム、oBO、aBO のステップで材料探索をした場合の結果を示している。ただし、A=Na データセットにおける BO では A=Li データ設定における最適化過程を継承するような転移学習を行っている。具体的には、BO の A=Li データセットで用いたハイパーパラメータのみ (Li-hp) またはハイパラメータと事後の GP (Li-GP) を対象として転移学習を行った。この 5 種の試行モデルのうち、ランダム探索に比べて Li-GP aBO は $t > 20$ で優れた探索能力を示している。以上の結果は、転移学習の有効性を実証しており、Li イオン導電体材料探索のノウハウを類似の Na イオン導電体材料探索に応用させることが可能であることを実証している。さらに、図 2b) には、最適な Na-タボライト化合物を見出す確率比 x_* が示されている。 $t = 50$ の評価ステップ (すなわち、探索空間全体の $\sim 30\%$ を評価した状況) で、Li-GP aBO および Li-GP oBO はそれぞれ $\sim 90\%$ および $\sim 80\%$ の確率で最適材料 x_* を見つけることができる。

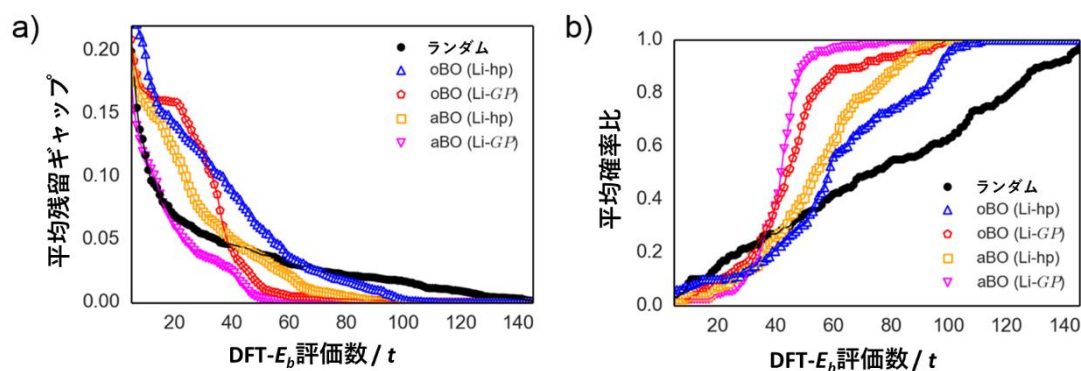


図 2. a-b) Na データセットを用いた加算的 BO (aBO)、通常 BO (oBO)、およびランダム探索 (50 回の試行の平均) の性能比較。BO には 2 つの転移設定が使用され、すなわち、BO の Li データセットから転移されたハイパーパラメータのみ (Li-hp) と転移されたハイパーパラメータと事後の GP (Li-GP) の両方が使われた。

図 2 で結果を示したように、最適な化合物 x_* の探索 (1 位のみ) のデータを探す) だけではなく、閾値を満たす化合物を明示的に検索するように、BO 駆動の材料探索の目標を変更することができる。これを実証するために、Li-GP 転移モデル設定を使用し、 $E_b < 0.3$ eV の基準を設定した (この閾値は、既知のリチウムイオン導電体 (酸化物) の中で最もイオン伝導性に優れるペロブスカイト型 $\text{Li}_{0.34}\text{La}_{0.51}\text{TiO}_{2.94}$ 固体電解質の実験で得られた活性化エネルギー 0.3 eV に対応する)。A=Na のデータセットで上記アルゴリズムの性能評価を行った結果を図 3 に示す。縦軸は、Na データセットから見出された所望する化合物 ($E_b < 0.3$ eV) の平均数(1000 回試行)を表す。 $t < 50$ (探索空間全体の約 30% の評価) の時点で、oBO およびランダム探索に対して aBO は条件を満たす材料の発見効率が 2 倍になった。なお、本データセットの場合、17 材料が $E_b < 0.3$ eV の基準を満たしている。

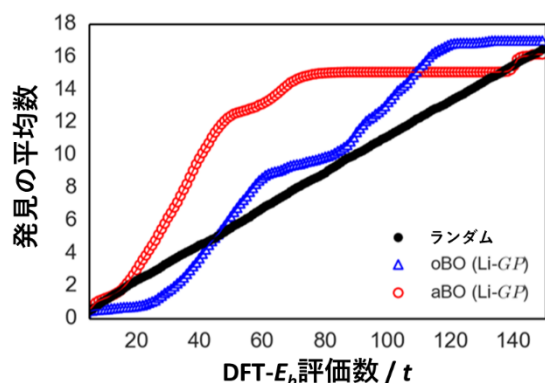


図 3. 発見された $E_b < 0.3$ eV を有する Na-タボライト化合物の平均数と DFT 評価の数。

5. 結論

タボライト構造を有する Li および Na イオン伝導体の BO 駆動 DFT ベースのスクリーニングを、イオンマイグレーションエネルギー (E_b) を探索基準として用いて示した。BO 探索法は、一般的にランダム探索よりも効率的であることが判明した。具体的には、以下の2点にまとめられる。

- i) Na データセットを使用した場合、additive BO は、約 30% の探索空間範囲を評価することで最適な化合物を約 90% 確率で発見できる。
- ii) 同じ Na データセットで、 $E_b < 0.3$ eV の探索基準を用いて additive BO を適用した場合、探索空間の約 30% を観測することで条件に合致する材料の 70% を発見することができる。これは、普通の BO やランダム探索の所望の材料探索効率の 2 倍であった。

§ 2. 研究実施体制

①研究者: JALEM Randy (物質・材料研究機構ナノ材料科学環境拠点 研究員)

②研究項目

- ・全個体電池
- ・計算科学
- ・機械学習