

研究終了報告書

「材料開発に特化した高精度ホワイトボックス型機械学習手法の開発と、そのスピン熱電材料開発への応用」

研究期間：2017年10月～2021年3月

研究者：岩崎 悠真

1. 研究のねらい

機械学習を物理探求/材料開発に応用する場合、材料/物性を予測するだけではなく、機械学習で作成されたモデル自体を物理学/材料学で解釈することも必要になる。それは、作られたモデルが正しいかどうかを判断するためだけでなく、そこから新しい物理現象や新物質創成のヒントが得られるからである。そのため、物理探求/材料開発領域の機械学習手法は、人間がモデルの意味(予測結果の根拠)を解釈できる“ホワイトボックス型”であることが望ましい場合がある。

本研究では、上記将来像のキーテクノロジーとなる高精度ホワイトボックス型機械学習およびコンビナトリアル実験手法とハイスループット第一原理計算を組み合わせたマテリアルズ・インフォマティクスシステムを構築し、機械学習が人間(物理学者/材料学者)を強力にアシストすることで、材料開発および物性理論構築を大幅に加速することを目的とする。

さらに、本研究内で開発した手法を実際の材料開発に応用し、その有用性(成功例)を示す。適応する領域はスピンゼーベック効果や異常ネルンスト効果を用いたスピン熱電材料である。スピン熱電材料は、従来の熱電(ゼーベック効果)とは全く異なるメカニズムで熱から電気を作り出すことができ、熱電デバイスの超低コスト化、高効率化が期待されている。スピン熱電素子は、いまだ物性理論が完璧には確立していない新しい物理現象を用いていることに加えて、適用できる材料の候補が非常に多く存在することなどから、機械学習(Data-Driven)での解析に適した系である。

本研究で開発するシステムの応用先として、今回はスピン熱電材料の開発を設定しているが、本アルゴリズムの応用先はこれに限定する必要はない。機械学習のアシストによって、人間(物理学者/材料学者)が“材料の逆問題”を効率的に解き、材料開発を加速するというプロセスは、すべての材料開発に共通であるため、今後様々な材料(例えば、蓄電池材料、触媒材料、超電導材料など)への応用を実証していく計画である。

2. 研究成果

(1) 概要

コンビナトリアル実験、ハイスループット第一原理計算および高精度ホワイトボックス型機械学習を組み合わせたマテリアルズ・インフォマティクスシステムを構築した。本システムでは、まずコンビナトリアル実験およびハイスループット第一原理計算により材料のビッグデータを蓄積する。次にそれらデータを高精度ホワイトボックス型機械学習(独自開発したスパース区分線形回帰やシンボリック回帰)によりモデルを構築する。最後に、それらモデルを材料学(物理・化学)の知見から解析し、新規材料の創製につなげる。

上記システムを異常ネルンスト材料の開発に適応したところ、熱電効率の高い新規異常ネルンスト材料を複数発見および合成した。

(2) 詳細

本研究は、以下の6つの区分に分類して進められた。研究テーマ A~E は、今回のマテリアルズ・インフォマティクスシステムの構築に関わるものであり、研究テーマ F はその応用に関わるものである。それぞれの詳細を以下に記載する。

研究テーマ A 「実験ビッグデータ作成の技術基盤構築」

実験ビッグデータを効率的に収集するため、コンビナトリアル実験環境を構築した。具体的には、組成勾配薄膜を作成するコンビナトリアルスパッタシステム、組成勾配薄膜内の結晶構造情報を網羅的に取得する、コンビナトリアル XRD システム、同じく電子構造情報を網羅的に取得するコンビナトリアル XPS システムなどを構築した。

研究テーマ B 「計算ビッグデータ作成の基盤技術構築」

計算ビッグデータを効率的に収集するため、ハイスループット第一原理計算環境を構築した。ここでは、不規則材料系をシミュレートすることができるグリーン関数法の KKR-CPA 法を採用し、様々な組成に対して自動にインプットファイルを生成し実行することで、各組成網羅的に自動で計算ビッグデータを取得するシステムを構築した。

研究テーマ C 「実験/計算データ複合手法の開発」

実験データと計算データを機械学習で解析する前に、実験データと計算データの間が存在する差異を小さくする必要がある。ここでは、非負値行列分解(NMF)などを活用することで結晶構造に関する差異を小さくするアルゴリズムを考案し、その有用性を実証した

・Y. Iwasaki et al. Sci. Technol. Adv. Mater. **21**, 1 25-28 (2019)

・R. Sawada, Y. Iwasaki et al. Sci. Rep. **10**, 7903 (2020)

研究テーマ D 「高精度ホワイトボックス型機械学習手法の開発」

解釈性が高くかつ予測性能が高い機械学習手法の一つとして、新しいシンボリック回帰手法を新たに考案した。具体的には、特徴量選択を再帰的に実行することで、データから関数(式)を導出するアルゴリズムを考案/実装し、その有用性を示した。

・Paper in preparation

研究テーマ E 「ベイズ最適化と第一原理計算による自律材料探索システムの構築」

上記の高精度ホワイトボックス型機械学習から得られた情報をもとに、自律的に材料を散策する手法を構築した。具体的には組成最適に特化させた木探索型のベイズ最適化と第一原理計算(KKR-CPA)を組み合わせたシステムを構築した。実際に本手法を磁性合金探索に応用し、その有用性を示した

・R. Sawada, Y. Iwasaki et al. Phys. Rev. Materials **2**, 103802 (2018)

・Y. Iwasaki et al. Communications Materials. in press

研究テーマ F 「スピン熱電材料開発への応用」

上記研究テーマ A~E に記載の技術から構成されるマテリアルズ・インフォマティクスのシステムを用いて、熱電変換効率の高いスピン熱電材料(異常ネルンスト材料)の開発を行った。その結果、複数の新規異常ネルンスト材料の発見/合成に成功した。

・Y. Iwasaki et al. npj Comput. Mater. **5**, 103 (2019)

・Y. Iwasaki et al. Sci. Rep. 9, 2751 (2019)

3. 今後の展開

本研究で開発したシステムは、スピン熱電材料(異常ネルンスト材料)の開発だけでなく、他の材料開発への展開が容易である。今後、本システムを用いて、蓄電池材料、触媒材料、超電導材料開発などの開発を手掛ける予定である。

4. 自己評価

本プロジェクト期間内に、高精度ホワイトボックス型機械学習とコンビナトリアル実験とハイスループット第一原理計算を組み合わせたマテリアルズ・インフォマティクスのシステムを構築することができた。さらに、スピン熱電材料(異常ネルンスト材料)の開発に応用し、実際に新規材料の発見/合成に成功したことで、本システムの有用性は十分に示すことができたと考えている。

本システムの応用先はスピン熱電材料(異常ネルンスト材料)だけでなく、蓄電池材料、超電導材料、触媒材料など様々な材料開発に利用することが可能であり、研究で得られた成果およびシステムの科学技術及び社会・経済への波及効果は非常に高いと考えている。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 6件

1. Y. Iwasaki, R. Sawada, V. Stanev, M. Ishida, A. Kirihara, Y. Omori, H. Someya, I. Takeuchi, E. Saitoh, S. Yorozu. Identification of advanced spin-driven thermoelectric materials via interpretable machine learning. npj Comput. Mater. 5, 103 (2019)

コンビナトリアル実験とハイスループット計算と解釈可能な機械学習を組み合わせた材料開発システムで、新規スピン熱電材料を発見/合成した。

2. Y. Iwasaki, I. Takeuchi, V. Stanev, A. G. Kusne, M. Ishida, A. Kirihara, K. Ihara, R. Sawada, K. Terashima, H. Someya, K. Uchida, E. Saitoh, S. Yorozu. Machine-learning guided discovery of a new thermoelectric material. Sci. Rep. 9, 2751 (2019)

コンビナトリアル実験と複数の機械学習を組み合わせた材料開発システムで、新規スピン熱電材料を発見/合成した。

3. Y. Iwasaki, R. Sawada, E. Saitoh and M. Ishida. Machine learning autonomous identification of magnetic alloys beyond the Slater-Pauling limit. Communications Materials. in press

第一原理計算とベイズ最適化を組み合わせた材料開発システムで、新規磁性合金を発見/合成した。

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 3件(特許公開前のもも含む)

1	発 明 者	岩崎悠真, 石田真彦, 桐原明宏, 寺島浩一, 染谷浩子, 澤田亮人
	発 明 の 名 称	関係性探索システム、情報処理装置、方法およびプログラム
	出 願 人	日本電気株式会社
	出 願 日	2018/6/3

出願番号	PCT/JP2018/008612
概要	関係性探索システムは、取得方法が異なる2種類のデータ群である第1種データ群および第2種データ群を含むデータ集合を記憶する記憶手段と、第1種データ群に属する第1データと、第2種データ群に属するデータであって第1データと対応する第2データとの間に生じる取得方法の違いによる乖離を小さくするように、第1データまたは第2データを補正もしくは再構成するデータ適応手段と、補正または再構成後のデータを含むデータ集合を用いて、機械学習を行う学習手段とを備える

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

- (招待講演) 岩崎悠真, AI とハイスループット実験の融合によるスピン熱電材料開発, MaDIS シンポジウム (2018)
- (招待講演) 岩崎悠真, 自律/自動材料探索システムによる超高磁化合金の発見と合成, 応用物理学会秋季学術講演(2020)
- (招待講演) Y. Iwasaki, Material Development by Integrated Approach of Combinatorial Experiments, High-Throughput ab-initio calculation and Explainable AI (XAI). 10th International Workshop on Combinatorial Materials Science and Technology (2018)
- (著作物, 単著) 岩崎悠真, マテリアルズ・インフォマティクス 材料開発のための機械学習超入門. 日刊工業新聞社 (2019)
- (プレスリリース) 「開発者が解釈可能なマテリアルズ・インフォマティクス」で特性向上の主要因を抽出する手法を開発 (2019)