

研究終了報告書

「スパースモデリングによる物質・材料設計のための基盤技術の構築」

研究期間：2017年10月～2021年3月

研究者：五十嵐 康彦

1. 研究のねらい

本研究では、効率的な物質・材料設計のために、スパースモデリング(SpM)によるマテリアルズインフォマティクス(MI)基盤技術を構築する。具体的には、計算科学、計測科学(実験)各分野から得られる超高次元データやサンプルの少ない実験データなどから効率的に本質的な情報を抽出し、物質材料設計に資する手がかりの獲得を目指す。これらの基盤技術は材料系を問わず一般的に適用することが可能であり、これらを用いて、電池・熱電材料・触媒といったMIがターゲットとする物質・材料開発に連携研究者らと挑む。本研究では、SpMとして下記の3つの課題に取り組む。この【課題1】においてSpMによる記述子抽出の基盤技術の確立を行うとともに、【課題2】、【課題3】でそれぞれ計測科学と計算科学における課題に適用することで、計算科学、計測科学から得られるデータから効率的に本質的な情報を抽出し、物質材料設計に資する手がかりの獲得するため、SpMによるMI基盤技術の構築を目指す。

【課題1】情報科学: SpMによる記述子抽出法の確立

情報科学的観点から、記述子抽出のための基盤技術として、記述子のスパース性についても推定しつつ、近似的な全状態探索を行う枠組みを構築するとともに、実データ解析の結果をより客観的に解析するためにVMA(仮想計測解析)を行う(【課題1-1】)。さらに、【課題1-1】で開発した近似的な全状態探索法をSparse-Dynamical Mode Decomposition (SpDMD)にも適用し、時空間データからの記述子抽出法を確立する(【課題1-2】)。

【課題2】計測科学: SpMによる計測性能向上と連続スペクトルからの記述子抽出

新物質・材料において、材料組織や複雑な界面など計測結果を近似式や現象論的方程式だけでは取り扱えない系であることが多い。このようなSpMが有効と想定されるため、【課題1】のSpM手法を用いて、【課題2-1】・【課題2-2】新物質・材料設計に必要な放射光の計測法の性能向上や【課題2-3】連続スペクトルからの記述子抽出を目指す。

【課題3】計算科学: SpMによる時空間データの少数モード展開

情報科学的側面で、【課題1-2】で開発する手法を用いて、新物質・材料設計に必要な大規模数値計算データから、その背景にある本質的な物理プロセスを抽出する。

2. 研究成果

(1) 概要

まず、【課題1】情報科学: SpMによる記述子抽出法の確立においては、マテリアルズインフォマティクスの推進のために、スパースモデリング(SpM)による記述子抽出の基盤技術構築として、全状態探索法を構築した。これにより、全記述子の組み合わせに対する予測誤差の分

布が得られ、LASSO などの近似的 SpM 性能評価ができ、どの特徴量を使うとどれくらい予測精度が向上するかを逐一調べることが可能となり、特徴量を計算(実験)するコストと、求めたい機能の予測精度のバランスを考えた材料探索が可能にした[Igarashi et al., J.Phys.Soc.Jpn, 2018; Igarashi et al., J. Phys. Conf. Ser. 2018]。

本さがけ領域では、SpM による記述子抽出への展開を、計算科学、計測科学から得られるデータから効率的に本質的な情報を抽出した。具体的には、さがけ領域内融合研究として推進した。さがけ 1 期の袖山らと連携して、クラスターモデルにおける配位エネルギーの記述子抽出[Sodeyama, Igarashi et al., PCCP, 2018; Ishikawa et al., PCCP, 2019]を行ない、比較的小規模に計算できる配位エネルギーの予測を安定して行うモデルを構築した。さらに、ターゲットとなる電解液の機能を最大化するターゲット探索を、SpM による自動溶媒分子設計に展開している。さらに、研究計画時には想定しなかった、新たな連携として、さがけ 2 期の緒明らとの連携により、実験科学への SpM に展開を行った。それにより、高収率なナノシート合成[Nakada, Igarashi, Imai, Oaki., Adv. Theory Sim., 2019] やリチウム電池負極用の有機材料で世界最高水準の性能を達成[Numazawa, Igarashi, Imai, Oaki., Adv. Theory Sim., 2019]した。このように SpM 用いた物質材料設計に資する手がかりの獲得し、物質・材料設計の指針となる新たな手法を構築した。

さらに【課題 2】計測科学への展開として、SpM を用い、事前知識を必要とせずに測定データのみから原子周辺の構造と原子の構造ゆらぎを解析できる手法を世界で初めて開発した[Akai et al., J. Phys. Soc. Jpn, 2018; Setoyama et al., J. Phys Soc. Jpn, 2020]。これにより物質の構造の推定が可能となり、電池の高機能化や長寿命化などに貢献することが期待される。また、超高速分光により測定された計測データに対して Dynamical Mode Decomposition によってモードを作成し、SpM により重要なモードを抽出した。これにより物質の固有振動モードの物性情報を、計測ノイズの推定しつつ効率的に抽出した[Sakata et al., STAM, 2020]。ただし、【課題 3】に掲げた、時空間データの少数モード展開については、初期的なフーリエ解析によるスペクトル構造と同様のモード抽出は達成したが、現在、反応系における MD データの解析は検討中である。

(2) 詳細

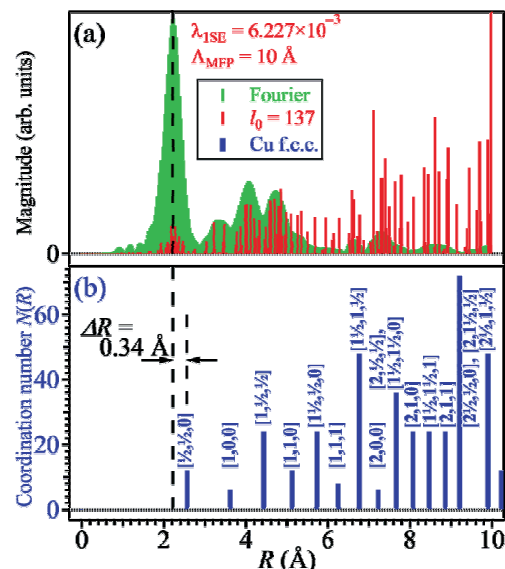
【課題 1】情報科学: SpM による記述子抽出法の確立について述べる。「設計」の対象になる物質・材料の「機能」を説明する少数であると仮定して効率的にデータ解析するスパースモデリング(SpM)をマテリアルズ・インフォマティクスに展開する。その単純な記述子選択方法は、その変数を使うか使わないかの全状態を網羅的に探索し、変数選択を行うことである。本研究課題ではこの全状態探索とともに、この近似手法を評価する枠組みとして AES 法¹⁾を構築した[Igarashi et al., 2018]。AES 法は、全状態探索を交換モンテカルロ法(REMC 法)とマルチヒストグラム法を組み合わせることによって近似的に行う手法である。これによって、それぞれの基底の組み合わせに対する性能評価値の頻度分布(DOS:密度分布)が得られるので、LASSO などの近似的 SpM による記述子の性能評価につながった。さらに、各記述子の評価方法として、交差検証による予測誤差ではなく、物理モデルの潜在構造抽出に適したベイズ自由エネルギー(≒ベイズ情報量基準)による記述子選択を行った [Igarashi et al., J.Phys.Soc.Jpn,

2018; Igarashi et al., J. Phys. Conf. Ser. 2018]。この全状態探索は、入力データセットのみの変更を行う枠組みのため、分類や回帰それぞれで柔軟に SpM が可能であり、実データ解析や拘束条件に応じて解析が可能となった。これによって、当初計画時には予定していなかった多様な共同研究を実現した。具体的には、特定の変数を介さない回帰の予測性能を評価することで計算コスト削減しつつ、電池材料の機能予測や多機能最適化などに拡張・応用されている。こうした点が評価され、全状態探索による SpM は物材機構、トヨタ自動車や複数の大手化学、鉄鋼メーカーで適用が進んでいる。また慶応大学緒明准教授との共同研究は、日本経済新聞など各種メディアで報道され、マテリアルズ・インフォマティクスによるナノシートの高効率な実材料開発やリチウム電池負極用の有機材料で世界最高水準の性能を達成。さらに、核融合炉における安定状態の予測と制御のために SpM を適用した成果が、プラズマ・インフォマティクスの先例として国内外に注目を浴びており、横型連携促進と新しい学際的領域への展開を積極的に推し進めている。

【課題 2】では計測科学への SpM の展開を行った。その対象としては幅広く行われているスペクトル分解と、放射光データや超高速分光である。

まず、スパースモデリングを用いた高速なベイズ的スペクトル分解アルゴリズムの開発に取り組んだ。スペクトル分解の問題は、「基底探索」と「回帰」の問題に分離できると考えられる。基底探索では、実現し得る基底の全ての組み合わせについて探索することが理想である。しかし基底の候補数 N に対して、組み合わせ探索の計算量は指数的に増大してしまう。そこで我々は今年度、有効な基底セットの空間だけを効率的に探索する LARS-OLS 法を拡張し、【課題 1】でも用いたベイズ自由エネルギーによる記述子選択を行い、高速かつ安定したスペクトル分解法の開発を行った[Mototake, Igarashi et al., 2018]。

次に、電池、電子デバイスなどの機能性部材の新機能発現や性能向上を実現するには、それらを構成する物質の構造とその変化を原子レベルで解明する必要がある。そこで原子スケールでこのマイクロ構造を解析できる「広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS: Extended X-Ray Absorption Fine Structure)」測定法が汎用的に使用されている。本研究では、物質を構成する原子がその化学構造や結合状態を反映して規則的に点在 (配位) し、そのため着目する原子から隣接原子までの距離が離散的、言い換えればまばら (スパース) である事実に着目した。そこで、EXAFS 振動スペクトルの解析に適切な基底関数を用いることでこうした課題が解決可能であると考え、SpM を適用した。その結果、従来法では必要とされたマイクロ構造の事前知識を必要とせず、測定データのみから、観測対象とする原子近傍 10 Å (1 nm) 程度までのマイクロ構造と、近接原子の構造ゆらぎや可動性を推定することを可能にした[Akai et al., J. Phys. Soc. Jpn, 2018; Setoyama et al., J. Phys. Soc. Jpn, 2020]。この方法は、新規解析法として新規機能性材料や、熱電材料、



二次電池の固体電解質材料等の物質の構造解明に応用され、電池の高機能化や長寿命化などに貢献することが期待される。実際に、現在、この研究をきっかけに民間企業との共同研究や実材料開発の構造特定に展開している。

最後に、近年のレーザー技術の進歩によって、パルス幅がフェムト秒オーダーの超短光パルスを、様々な物性とそのダイナミクス(時間変化)の計測に利用できるようになった。光パルスのパルス幅で決まる時間分解能で、超高速の物性変化を捉えることが出来る。この CP 信号から従来フーリエ変換が用いられてきたが、CP 信号は減衰振動である上、実験データには必ず実験的アーティファクトが重畳するため、フーリエ変換スペクトル形状が周波数空間上で大きく広がってしまいピーク構造を捉え難く、初期位相の情報も失われる。そこで CP の物理的性質に基づく減衰振動信号を解析可能である Sparsity-promoting Dynamic Mode Decomposition(SpDMD) による解析を深化させ、実験ノイズ推定しつつ、モード選択を行う枠組みを提案した。

3. 今後の展開

本課題の提案した SpM による MI の基盤技術では、計算科学、計測科学それぞれに対するインフォマティクス促進を行った。この際、本研究課題では記述子の候補はドメインの研究者から提示する形であったが、今後は記述子の候補(基底)の探索とその最適化を行うことが課題となる。そのターゲットの一つが、本研究において遂行中の【課題 3】計算科学:SpM による時空間データの少数モード展開であり、これにより新物質・材料設計に必要な大規模数値計算データから、その背景にある本質的な物理プロセスを抽出することが重要になる。

また、今後は物質・材料設計にとって不可欠な計算科学、情報科学、計測科学の相互連携の促進が重要になると考えられる。例えば、計算科学でボトルネックとなっている重要な少数モードの抽出により、これまで研究者の直感によって計算科学の高次元データから重要メカニズムを自動抽出することができる。これにより新たなメカニズム解明に繋がるとともに、探索すべき材料候補の特定や計測の実験計画の効率化ができる。また X 線吸収分光法への SpM 適用によって、電池などの材料候補となる物質の複合体から、複雑なメカニズムを生み出す必要かつ十分なシンプルなモデル化が促進でき、計算科学へのフィードバックが可能になる。情報科学・計測科学の融合による新規材料開発を加速度的に前進できる。

4. 自己評価

本研究では、全状態探索法やベイズ推論による事前知識を適切に導入した最適化(情報量基準)によって、MI においてよく用いられる LASSO による記述子抽出で問題となる、解析結果の不安定性を回避し、抽出した記述子の信頼性が向上させた。これにより、ナノシートの高効率な実材料開発やリチウム電池負極用の有機材料で世界最高水準の性能を達成するなど少数サンプルの実験・計算データからの情報抽出を可能にした。

さらに、当初計画していた研究だけでなく、そこで得られた基盤技術を用いて、実材料の解析へと展開しており、本研究の目的であるスパースモデリングによる MI 基盤技術の構築と効率的な物質・材料設計への展開は達成したと考えている。

本研究では、五十嵐が情報科学の基盤技術を構築し、その基盤技術を用いてさきがけ内外の領域連携しながら共同研究を推進しており、効率的な研究実施体制であった。また、本

研究の予算は MI において必要な計算機を中心に研究費として拠出した。増額支援していただいた研究費によって、最終年度に研究代表者の五十嵐が独立した研究室運営をするための計算機環境を整えることができた。

本研究によって構築された基盤技術によって、MI における記述子抽出の信頼性向上や放射光による計測性能向上につながり、今後実材料データへの展開を推進することで、リチウムイオン電池、触媒や電熱材料といった MI における主要ターゲットにおける、計測科学・計算科学とデータ科学の融合による革新的な新規材料創出が期待される。

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:14件

1. Yasuhiko Igarashi, Hikaru Takenaka, Yoshinori Nakanishi-Ohno, Makoto Uemura, Shiro Ikeda, and Masato Okada. Exhaustive Search for Sparse Variable Selection in Linear Regression *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 87, 044802, 2018.

「設計」の対象になる物質・材料の「機能」を説明する少数であると仮定して効率的にデータ解析するスパースモデリングをマテリアルズ・インフォマティクスに展開する。その単純な記述子選択方法は、その変数を使うか使わないかの全状態を網羅的に探索し、変数選択を行うことである。本論文ではこの全状態探索による記述子抽出を行うとともに、この近似手法を評価する枠組みをも構築した。

2. Gentoku Nakada, Yasuhiko Igarashi, Hiroaki Imai and Yuya Oaki, *Materials-Informatics-Assisted High-Yield Synthesis of 2D Nanomaterials through Exfoliation, Advanced Theory and Simulation*, Vol. 2, No.4, 1800180, 2019.

本研究で実験科学とデータサイエンスの融合によるマテリアルズ・インフォマティクスは、ナノ材料の高効率合成に展開した初めての研究となっている。この手法により、電池、触媒、センサーなどの多様な応用での研究開発を加速すると同時に、実験科学者もマテリアルズ・インフォマティクスを積極的に活用することで実験をより高効率に進められることを示した。

3. Ichiro Akai, Kazunori Iwamitsu, Yasuhiko Igarashi, Masato Okada, Hiroyuki Setoyama, Toshihiro Okajima, Yasuharu Hirai, "Sparse Modeling of an Extended X-Ray Absorption Fine-Structure Spectrum Based on a Single-Scattering Formalism", *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 87, no. 7, pp. 074003-1—074003-7, 2018.

原子スケールでこのマイクロ構造を解析できる「広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS: Extended X-Ray Absorption Fine Structure)」測定法が汎用的に使用されている。本研究では、物質を構成する原子のスパース性に着目し、EXAFS 振動スペクトルの解析に導入した。それにより、従来法では必要とされたマイクロ構造の事前知識を必要とせず、測定データのみから、観測対象とする原子近傍 10 Å (1 nm) 程度までのマイクロ構造と、近接原子の構造ゆらぎや可動性を推定することを可能にした。

(2) 特許出願

研究期間累積件数:0件

(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)

報道

- AIと「勘」で素材材料探索 2019/9/19付 日経産業新聞
- 材料開発にAI革命 金属など「職人技」より効率的 2019/2/17付 日本経済新聞 朝刊
- マテリアルズ・インフォマティクスを用いた有機電極材料の開発について 2021/1/25付 日本経済新聞 朝刊

プレスリリース

- 世界初、測定データだけで物質のマイクロ構造と構造ゆらぎを推定 ～電池、電子デバイスなどの材料研究に新解析法～, 熊本大学・九州シンクロトロン光研究センター, JST, 東京大学

招待講演

- Yasuhiko Igarashi, Hiroyuki Setoyama, Toshihiro Okajima, Ichiro Akai, Masato Okada, Bayesian basis selection and reliability inference for extended X-ray absorption fine structures (EXAFS), *14th International Conference on the Structure of Non-Crystalline Materials (NCM14)*, Nichii, PortIsland, Kobe, November 6th, 2019.
- Yasuhiko Igarashi, T., Miyoshi, Y., Hiwatari, R., Isayama, A., Matsunaga, G., Oyama, N., Ogawa, Y and Okada, M., Sparse modeling for a data-driven approach in Plasma Physics, *3rd Asia-Pacific Conference on Plasma Physics (AAPPS-DPP2019)*, Crowne Plaza Hefei, Hefei, China, November 4th, 2019.
- 五十嵐康彦, スパースモデリングの基礎とマテリアルズインフォマティクスへの展開, Materials Research Meeting (MRM) 2019 チュートリアル, Yokohama Symposia, 横浜, 2019年12月10日.