

AI 技術を用いた材料組成候補予測の基本的アプローチ: 2成分変化による特性改善^{*1}

Elementary approach on the prediction of next material composition using AI technology: Improvement of characteristic by changing two components

田中 大介 (新居浜高専 機械工学科) 中山 享 (新居浜高専 生物応用化学科)

Abstract Experimental validation using the AI program developed in this study found that the two components (x, y) that provide the strongest PL intensity in the $\text{Sr}_x(\text{La}_{10-x-y}\text{Eu}_y)(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{3-x/2}$ ($x = 2-6, y = 0.6-1.2$) red-emitting phosphors can be easily estimated from approximately 10 initial data points.

概要 本研究で開発した AI プログラムを使用した実験的検証を行い、赤色蛍光体 $\text{Sr}_x(\text{La}_{10-x-y}\text{Eu}_y)(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{3-x/2}$ ($x = 2-6, y = 0.6-1.2$) において、各組成成分 (x, y) とその蛍光 (PL) 強度に関する 10 個ほどのデータから、最も強い PL 強度を示す候補組成成分 (x, y) を簡単に推定できた。

1 はじめに

現在、人工知能技術を利用した材料開発が、国内外の研究機関で活発に行われており、その実用性が示されている。マテリアルズインフォマティクス (MI) は、材料科学と人工知能を組み合わせた学際的な分野であり、産業界にも広がっている。機械学習の手法、特にベイズ最適化 (BO) 法は、MI の分野で広く使用されており、BO 法は実験計画法と見なすことができる。近年、BO 法の有効性がいくつかの研究で報告されている [1, 2, 3, 4]。たとえば、桜井らは 80 億を超える候補から、優れた放射率を示す熱放射多層膜を発見した [1]。

BO 法により、電磁界シミュレーションの計算量が 1 億 6800 万パターン (必要なパターン全体の約 2%) まで削減できた。Hou らは、BO 法を利用し、アルミニウム、鉄、シリコンという汎用元素のみでできた熱電材料の発電特性を大幅に向上できる新たな組成を見つけた [2]。隅田らは、従来の AI による有機分子の自動設計された分子の構造が自然界に存在する分子などと大きく乖離していた問題点を解決し、AI が設計した有機分子から安定でありかつ所望の特性を持つ分子を自動選別することに成功した [3]。新しい AI モデルによって設計された構造は、化学的に安定しており、望ましい特性を示した。清水らは、機械学習と実験を繰り返すことができる自律的に新素材を探索するロボットシステムを開発し、二酸化チタン薄膜の電気抵抗を最小限に抑えることに成功した [4]。提案したシステムは、従来の方法に比べて 10 倍の実験効率を達成し、ロボットシステムと人間が協働する完全に自動化された自律的な研究スタイルの開発につなげた。しかしながら、まだ AI 技術は AI 研究者以外には簡単には取り組み難い技術であり、AI 技術の専門家でないと AI 手法を新しい分野に適用することは難しいと想定される。

そこで、本研究では材料科学分野の AI の専門家でなくても BO 法を利用できるように Web 上でオープンアクセスできる AI プログラムを開発する。その AI プログラムは、利用者が現時点の実験条件

^{*1} この文章は、以下の文献の日本語要約である。

Daisuke Tanaka, Susumu Nakayama, Elementary approach on the prediction of next material composition using AI technology, Studies in Science and Technology, 2021, Volume 10, Issue 1, Pages 79-84, Released July 01, 2021, Online ISSN 2187-1590, Print ISSN 2186-4942, <https://doi.org/10.11425/sst.10.79>

および対応する評価特性（強度、放射率、発熱量など）を入力すると、次に実施する最適な化学的実験条件を提供する。そして、実際の実験データから得られたシミュレーション結果に基づいて、本研究で開発した AI プログラムの有効性を示す。

2 手法と実験に用いた材料

2.1 ベイズ最適化

ベイズ最適化（BO）法はある関数を最大化するような（最適な）入力を求める際に用いられる方法である。この問題は次のように表現する事ができる。

$$\max_x f(x)$$

入力 $x \in \mathbb{R}^d$ は d 次元ベクトルであり、言い換えれば実験条件となる d 個のパラメータ（入力）をまとめたものになる。また、最適化される関数 $f(x)$ は未知の関数である。例えば、蛍光材料の開発においては、組成が x となり、その組成の材料の実験データ（蛍光強度）が $f(x)$ となる。残念ながら、 $f(x)$ を数式の形で表現（モデル化）することは困難であるため、データからこの関数を推定する。

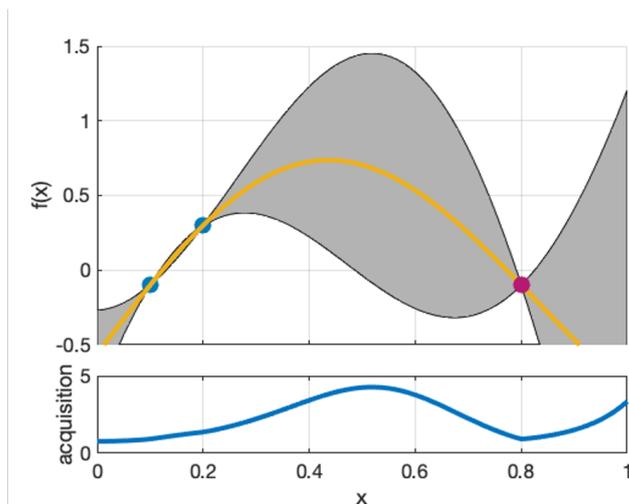


図1 ベイズ最適化の例

我々は、この関数 $f(x)$ をガウス過程回帰モデルでモデル化する。この手法は、ある入力 x に対する出力の不確実性を予測することが可能である。図1の上段に示すのは、1次元入力 x に対するガウス過程回帰モデルの例である。実験データ $(x_k, f(x_k))$ として、塗りつぶされた円で図中に示されている $(0.1, -0.1), (0.2, 0.3), (0.8, -0.1)$ を用いている。実線は各 x において予測された平均値（これを $f(x)$ の値とみなすことができる）であり、灰色で塗りつぶされた領域が各 x における分散（すなわち予測の不確実性）を示している。現在、 $x = 0.5$ や $x > 0.8$ の範囲では実験データが存在しないため、その範囲の分散（不確実性）が大きくなっていることがわかる。ここで、我々が解きたい問題はこの関数を最大化する最適な入力を求めることであることに注意されたい。そのため、探索 (exploration) と活用 (exploitation) が実験の中で必要になってくる。実験の初めの段階ではモデル化する ($f(x)$ の概形をつかむ) のに必要な入力点のデータを得、実験が進むにつれ予測平均が大きくなるような入力点のデータ

を得ることが必要になってくる。このことは、探索と活用にはトレードオフが存在することを意味している。このトレードオフを取り扱うため、Acquisition Function と呼ばれる関数を用いて次のデータを得るべき入力点 x を決定する。この Acquisition Function は図 1 の下段に示している。この関数はモデル $f(x)$ の予測平均と分散から計算され、 $x = 0.5$ で最大値をとることがわかる。このようにベイズ最適化は、得られた実験結果のガウス過程回帰モデルを用いたモデル化と、Acquisition Function を用いた次に取得するべきデータ点の設計とを繰り返す手法である。Acquisition Function としてはよく Expected Improvement (EI, 予測平均と分散から計算される) が用いられる。本研究では、2 つもしくはそれ以上のデータ探索点を得るために、改良した EI を用いた (探索点同士の距離の近さにより罰則が加わるような EI を設計した)。ベイズ最適化に関する詳細は、文献 [5]などを参照されたい。

2.2 実験手順

本研究では、赤色蛍光体 $\text{Sr}_x(\text{La}_{10-x-y}\text{Eu}_y)(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{3-x/2}$ ($x = 2\sim 6$, $y = 0.6\sim 1.2$) について実際の実験データを用いて、2 つの組成成分 x と y を変えるシステムプログラムにより数値シミュレーションを行った。蛍光体の作製方法と評価方法は、以下である。SCO₃、La₂O₃、Eu₂O₃ の各粉末原料を遊星ボールミルにて湿式混合した。100°C にて乾燥した後、100 MPa で円盤形状に一軸成形し、空气中 1500°C で 2 時間焼結した。得られた $\text{Sr}_x(\text{La}_{10-x-y}\text{Eu}_y)(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{3-x/2}$ 焼結体をジルコニア乳鉢で解砕し、各種測定用粉末とした。X 線回折データは X 線回折装置 (MiniFlex II、株式会社リガク) を用いて CuK α 1 線で、蛍光スペクトルは蛍光分光光度計 (FP-6500、日本分光株式会社) を用いて励起波長 395 nm で測定した。最も強い蛍光スペクトルピークは、614nm 付近で観察された。

3 実験・最適化結果 (AI による最適組成予測の検証)

$\text{Sr}_x(\text{La}_{10-x-y}\text{Eu}_y)(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{3-x/2}$ ($x = 2\sim 6$, $y = 0.6\sim 1.2$) のすべての XRD パターンは、ICDD No.28-1237 カード ($\text{Sr}_2\text{Nd}_8(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ 、六方晶系、空間群 P63m) のデータとよく一致した。その結果、すべてのサンプルがオキシアパタイト構造からなる単一相である。 $x = 2\sim 6$ は「アパタイト組成」と呼ばれる。 $\text{Sr}_{4.5}(\text{La}_{4.4}\text{Eu}_{1.1})(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{0.75}$ の励起 (蛍光波長 $\lambda_{\text{em}} = 618$ nm) スペクトルおよび蛍光 (励起波長 $\lambda_{\text{ex}} = 395$ nm) スペクトルを、図 2 に示す。395 nm で励起した $\text{Sr}_x(\text{La}_{10-x-y}\text{Eu}_y)(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{3-x/2}$ ($x = 2\sim 6$, $y = 0.6\sim 1.2$) の蛍光波長 614 nm 付近の蛍光 (PL) 強度を、図 3 にまとめた。図 3 の PL 強度の 9 つの下線付き黒太字の値は、AI プログラムへの初期入力データである。 x は 2.0~6.0 の範囲で 0.5 間隔、 y は 0.4~1.4 の範囲で 0.1 間隔、候補組成成分 (x, y) は 1 つとして、計算を行った。

先に報告した論文 [6] でのデータ、 $(x, y) = (2.0, 0.8), (3.0, 0.8), (4.0, 0.8), (5.0, 0.8), (6.0, 0.8)$ を入力したが、候補組成成分 (x, y) は得られなかった。そこで、実験のデータとして、 $(x, y) = (3.0, 0.6), (3.0, 1.2), (3.0, 1.4), (4.0, 1.0)$ を順次追加した結果、候補組成成分 ($x, y) = (3.0, 1.0)$ が得られた。続いて、候補組成成分 ($x, y) = (3.0, 1.0), (4.5, 1.1), (5.0, 1.1), (4.5, 1.1)$ が得られ、5 番目の候補組成成分は、最高 PL 強度 1.72 の組成 ($x, y) = (4.5, 1.1)$ と同じで、その後も繰り返し同じ候補を示したので、AI 演算処理を終了した。その結果を、図 4 にまとめた。

候補組成成分 (x, y) は 2 つ $\{(x_1, y_1), (x_2, y_2)\}$ として計算を行った。候補組成成分とし

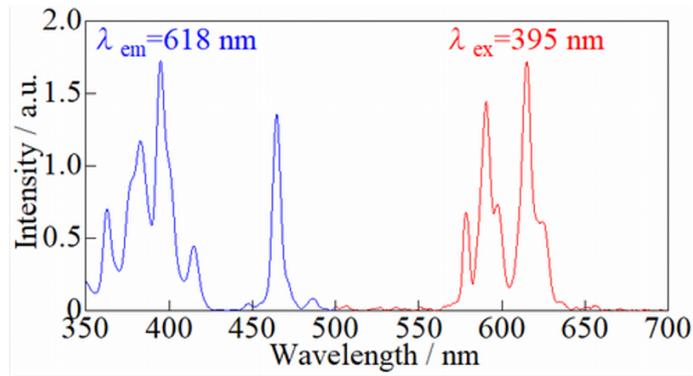


図 2 $\text{Sr}_{4.5}(\text{La}_{4.4}\text{Eu}_{1.1})(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{0.75}$ の励起スペクトルおよび蛍光スペクトル。挿入写真は 365nm-UV 照射下の赤色発光。

1.4		<u>0.39</u>							
1.3					1.21				
1.2		<u>1.36</u>		1.36	1.65	1.42			
1.1			1.41	(1)1.47 (2)1.47	(1)1.72 (2)1.72	(1)1.49 (2)1.49	1.39		
1.0		(1)1.39 (2)1.39		<u>1.65</u> (2)1.65	1.67	1.63		1.21	
0.9			(2)1.40	(2)1.48	1.50				
0.8	<u>1.22</u>	<u>1.38</u> (2)1.38		<u>1.21</u>		<u>1.18</u>		<u>0.75</u>	
0.7									
0.6		<u>1.04</u>							
0.5									
0.4									
	2.0	2.5	3.0	3.5	4.0	4.5	5.0	5.5	
	x								

図 3 $\text{Sr}_x(\text{La}_{10-x-y}\text{Eu}_y)(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{3-x/2}$ の組成成分 (x, y) に対する 395 nm で励起した時の 614nm 付近の蛍光 (PL) 強度。下線付き太字の値は、AI プログラムへの初期入力データを示す。(1) の値は候補組成成分を 1 つとした場合のデータ、(2) の値は候補組成成分を 2 つとした場合のデータを示す。イタリック体の値は、その他のデータを示す。

て $\{(x_1, y_1), (x_2, y_2)\} = \{(3.0, 1.0), (3.5, 0.9)\}, \{(4.5, 1.1), (3.0, 0.8)\}, \{(5.0, 1.1), (3.5, 0.9)\}, \{(4.5, 1.1), (3.5, 0.9)\}, \{(4.5, 1.1), (4.0, 1.0)\}$ が得られた。連続して繰り返し同じ候補組成成分 $(x, y) = (4.5, 1.1)$ を示したため、AI 計算は終了した。その結果を、図 5 にまとめた。追加の実験を、組成成分 $(x, y) = (4.5, 1.1)$ 付近にて 10 つの組成成分に対して行ったが、 $(x, y) = (4.5, 1.1)$ での PL 強度を超えるものは得られなかった。以上の結果から、初期データ 9 個から次の候補を求め、その実験データを加えてながら、計算を 5 回程度繰り返すことで、最も PL 強度の高い組成成分が得られることが示せた。

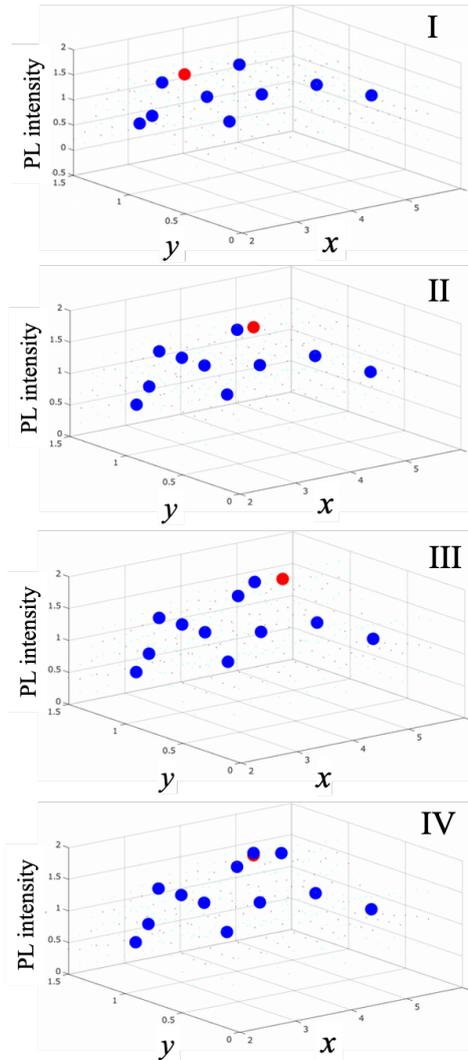


図4 候補組成成分を1つにした場合のAI計算処理結果. $(x, y) = (2.0, 0.8), (3.0, 0.8), (4.0, 0.8), (5.0, 0.8), (6.0, 0.8), (3.0, 0.6), (3.0, 1.2), (3.0, 1.4), (4.0, 1.0)$ の9つの組成成分が、AIプログラムへの初期入力データである。図I~IVの▲点は最新の候補組成成分 (x, y) とそのPL強度を表し、図Iでは $(x, y) = (3.0, 1.0)$ 、図IIでは $(x, y) = (4.5, 1.1)$ 、図IIIでは $(x, y) = (5.0, 1.1)$ 、図IVでは $(x, y) = 4.5, 1.1$ となる。各図の●点は、最初の入力データおよび直前図の▲点である。

4 まとめ

本研究では、実際の実験結果を用いた2成分系の数値シミュレーションを実施した。実験結果より、提案法により得られた実験設定（組成）の実験データを追加することにより、いくつかの実験データから望ましい特性が得られることが確認された。本実験で用いたAIプログラムについては、<https://www.daisuket.net/bo/index.html> にて様々な分野の研究者に利用してフィードバックが得られるよう公開する。プログラムはWebアプリケーションの形にまとめており、Webブラウザ上でインストール不要で利用可能である（スクリーンショットを図6に示す）。タブレット上でも利用可能である。今後の展望として、3成分かそれ以上の系に対するアプリケーションの公開や、他の目的での利用可能性の検証が挙げられる。

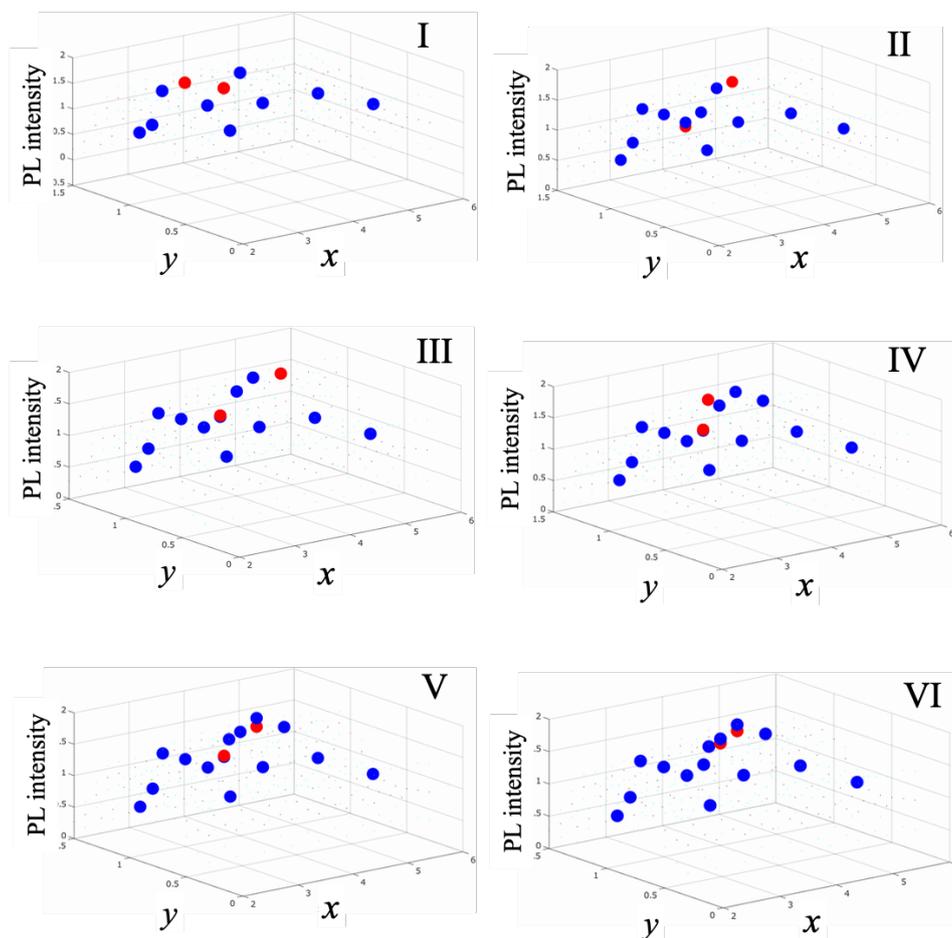


図5 候補組成成分を2つにした場合のAI計算処理結果. $(x, y) = (2.0, 0.8), (3.0, 0.8), (4.0, 0.8), (5.0, 0.8), (6.0, 0.8), (3.0, 0.6), (3.0, 1.2), (3.0, 1.4), (4.0, 1.0)$ の9つの組成成分が、AIプログラムへの初期入力データである。図I~IVの▲点は最新の候補組成成分 (x, y) とそのPL強度を表し、図Iでは $\{(x_1, y_1), (x_2, y_2)\} = \{(3.0, 1.0), (3.5, 0.9)\}$ 、図IIでは $\{(x_1, y_1), (x_2, y_2)\} = \{(4.5, 1.1), (3.0, 0.8)\}$ 、図IIIでは $\{(x_1, y_1), (x_2, y_2)\} = \{(5.0, 1.1), (3.5, 0.9)\}$ 、図IVでは $\{(x_1, y_1), (x_2, y_2)\} = \{(4.0, 1.1), (3.5, 0.9)\}$ 、図Vでは $\{(x_1, y_1), (x_2, y_2)\} = \{(4.5, 1.1), (3.5, 0.9)\}$ および図VIでは $\{(x_1, y_1), (x_2, y_2)\} = \{(4.5, 1.1), (3.5, 0.9)\}$ となる。各図の●点は、最初の入力データおよび直前図の▲点である。

参考文献

- [1] A. Sakurai, K. Yada, T. Simomura, S. Ju, M. Kashiwagi, H. Okada, T. Nagao, K. Tsuda, and J. Shiomi, Ultranarrow-band wavelength-selective thermal emission with aperiodic multilayered metamaterials designed by Bayesian optimization, *ACS Central Science* 5 (2019) 319 – 326. <https://doi.org/10.1021/acscentsci.8b00802>
- [2] Z. Hou, Y. Takagiwa, Y. Shinohara, Y. Xu, K. Tsuda, Machine-Learning-Assisted Development and Theoretical Consideration for the $\text{Al}_2\text{Fe}_3\text{Si}_3$ Thermoelectric Material, *ACS Applied Materials & Interfaces* 11 (2019) 11545-11554. <https://doi.org/10.1021/acsami.9b02381>
- [3] M. Sumita, X. Yang, S. Ishihara, R. Tamura, K. Tsuda, Hunting for organic molecules with artificial intelligence: Molecules optimized for desired excitation energies, *ACS Central Science* 4 (2018) 1126 –

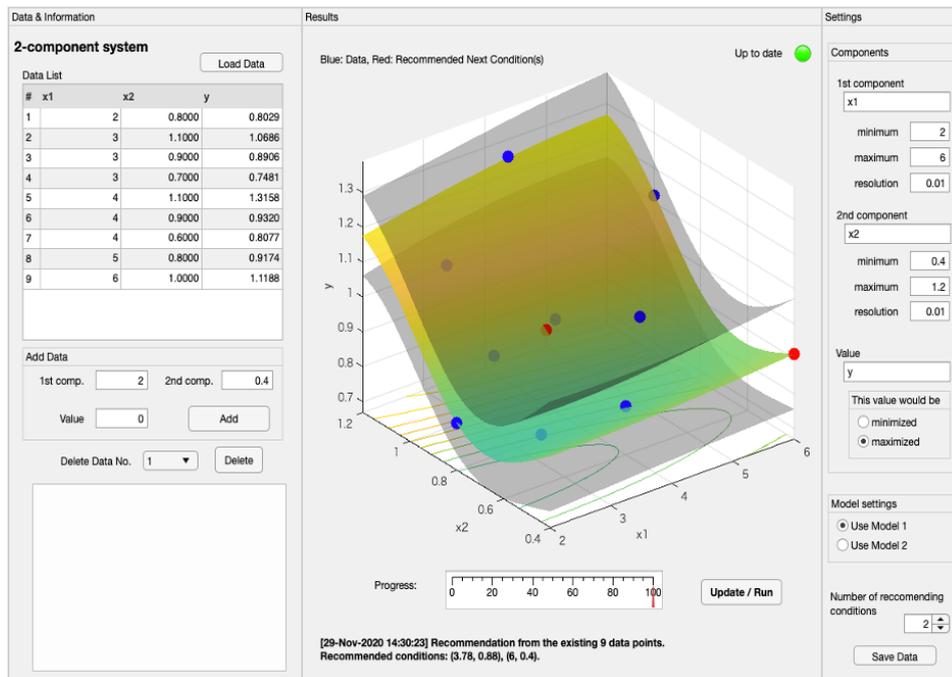


図6 開発したアプリケーションのスクリーンショット

1133. <https://doi.org/10.1021/acscentsci.8b00213>

[4] R. Shimizu, S. Kobayashi, Y. Watanabe, Y. Ando, T. Hitosugi, Autonomous materials synthesis by machine learning and robotics, *APL Materials* 8 (2020) 111110. <https://doi.org/10.1063/5.0020370>

[5] P. I. Frazier, A Tutorial on Bayesian Optimization, arXiv:1807.02811 (2018).

[6] S. Nakayama, Red-light emission characteristics of $\text{Sr}_x(\text{La}_{9.2-x}\text{Eu}_{0.8})(\text{SiO}_4)_6\text{O}_{3-x/2}$ ($x = 2-6$) oxyapatite phosphors, *Optik* 182 (2019) 944-948. <https://doi.org/10.1016/j.ijleo.2019.01.117>