

スマートマテリアルズインフォマティクス を用いた材料研究手法

Materials Research Method using Smart Materials Informatics

古川 敦史*
Atsushi FURUKAWA

池田 知廣*
Tomohiro IKEDA

岡山 竜也*
Tatsuya OKAYAMA

要 旨

近年、ビックデータを用いたインフォマティクスの技術による成果が報告されているが、数千、数万以上といった大量のデータが得られる機会は多くないため、実用性に課題がある。特に材料のデータはテストピースを作ってから特性を評価する手順が必要となるため、数千、数万以上のデータ取得は現実的で無い。そこで、少ないデータ数においても予測が可能となるスマートマテリアルズインフォマティクス手法を定義し、予測が可能となるデータの数を検討した結果、数十から百データであることがわかった。その新手法を用いて触媒、磁石、熱電材料といった機能材料にて実証したところ、それぞれの目的に応じた特性を有する材料を短期間で創出し、新手法の実用性を確認できた。

ABSTRACT

The achievement of outcomes through the use of informatics techniques employing big data is today being reported. However, because of the lack of opportunities to obtain high volumes of data (upwards of several thousands or several tens of thousands of data), these techniques still present issues in terms of practical applicability. In the case of materials in particular, because it is necessary to evaluate characteristics following the creation of test pieces, obtaining upwards of several thousands or several tens of thousands of data is unrealistic. A Smart Materials Informatics method that would make it possible to make predictions based on even a limited amount of data was therefore defined. Study of the amount of data necessary for predictions showed that predictions could be made using only several tens to hundreds of data. The use of the new method in studying functional materials (catalyst, magnet, and thermoelectric materials) made it possible to identify materials possessing characteristics suited to their respective purposes in a short period of time, demonstrating the practical applicability of the method.

1. まえがき

経済のグローバル化が年々進み、自動車メーカー間の国際競争が激しさを増しているために、材料の研究開発力を強化させる必要に迫られている⁽¹⁾。材料は自動車の部品を構成するもとであり、材料の特性は自動車における各種緒元や設計に対して大きな影響を及ぼす。よって、高い性能を有する材料を新たに創出することは根源的に自動車の性能を変えるものであり、重要な意味を持つ。そのような新たな材料の創出には材料の探し方、つまり材料探索手法が主要なテーマとなる。これまでの材料探索手法においては電気陰性度やイオン半径といった簡素な因子と材料特性との相関を把握し、機能発現の原理を推定、仮説を構築し検

証するという経験則的手法が多くの新材料の創出に貢献してきた。しかしながら、触媒、磁石、熱電材料のような機能材料は結晶構造や電子といった観察が容易ではない因子の影響が複雑に絡み合っている。そのため、特性発現の原理が解明できても対応手法が容易に提案できないことなどから、機能材料の探索は、作っては測るの繰り返しになりがちであった。このような探索手法では、出発材料の手配、材料の合成、テストピースの作成および特性評価等を繰り返すこととなり、多くの費用的、時間的コストがかかり、効率的ではない。

一方、近年の計算機の進化は著しく、数十年でCPUの集積度合は約30万倍、メモリの集積度は約100万倍と桁違いの進化を遂げている。また、それらの進化に伴い、機

*四輪 R&D センター

機械学習等のソフトウェア技術も進化し、既知データの学習によって未知データを高精度で予測することが可能な機械学習の技術が進化している。そのような背景の中、材料科学と情報科学が融合したマテリアルズインフォマティクス (MI) 手法による材料特性の予測が、材料試作や特性評価を削減できるということで注目されている⁽²⁾。ただし、先述した学習データは、数百から数万以上のデータが用いられていることが一般的である。一方、自動車用の材料研究における材料探索においては、材料を作製し特性を評価して初めてデータが得られる性質上、データの数を増やすことが容易ではない。そのようなケースでは、MI 手法による予測の技術が効果的であっても、実用の機会をほとんど得ることができない。よって、いかに少ないデータの数で予測を可能とするかが重要となる。

そこで、少ないデータの数において、材料性能の予測が可能となる手法をスマートマテリアルズインフォマティクス (SMI) と定義し、予測を可能とするために最低限必要なデータの数の見極め方を検討する。

2. 予測に必要なデータ数の検討

説明変数に対する目的変数の応答が複雑化するほど精度の高い予測に必要なデータの数は一原理的に増加する。よって、予測に必要なデータの数検討には、機能材料データの素性を把握することが重要となる。

ここで、説明変数 x_1 , x_2 に対する、ある機能材料の性能 P の応答局面の例を Fig. 1 に示す。

Fig. 1 で示される非線形の応答曲面において、説明変数 x_1 が小さいときは L1 の曲線のように、 P に対して x_2 の増加は正の効果となっているが、 x_1 が大きいときは L2 の曲線のように、 P に対して x_2 の増加は負の効果となっていることがわかる。このように説明変数に対して目的変数が非線形的に応答するような系においては、経験的な手法によって材料探索の指針を立てることは容易ではない。さらに、説明変数の数がさらに増えると、その難易度は高くなる。よって、SMI 手法を活用した材料探索のケーススタ

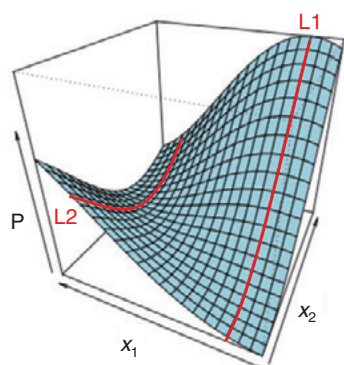


Fig. 1 Example of response surface

ディには比較的非線形性の強い、触媒、磁石、熱電の機能材料を選定した。従って、予測に必要なデータの数を検討するためには、これらの機能材料が有する非線形性に対応した検討用データを用いることが重要となる。

2.1. データ数に対する予測誤差の関係性

SMI 手法の実用性を検討する上で、一定量のデータの数が必要となる。その検討用のデータを取得するために、実際に材料を作製し、特性を評価することは現実的ではない。よって、多くのデータを入手するため、任意の説明変数から目的変数を算出できる数式を用い、その数式から得られる人工データを SMI 手法の実用性の検討に用いた。予測モデルにはデータに応じて比較的自由に回帰式を生成することが可能なノンパラメトリックな機械学習法を選定した。選定した機械学習のハイパパラメータは少ないデータの数においても予測精度が高くなるようなチューニングを施した。さらに、予測精度向上のため、説明変数の直交性を確保するために主成分分析を用いたデータの事前処理を実施した。また、機械学習の内部で用いられる関数は非線形に対応できる関数を選定した。

予測モデルの予測精度の指標として、少ないデータの数でも学習データ以外の予測精度が求められるように内部バリデーションを用いた。その内部バリデーションとして一点除外交差検定 (Leave-one-out cross-validation: LOOCV) を採用した。さらに、データの数と予測誤差の関係性を把握するため、上記人工データ作成用の数式により、五つの説明変数と目的変数からなる 6 次元のデータセットを作成した。そのデータセットを用い、各々のデータ数に対して、重複を許さないランダムサンプリング手法であるジャックナイフサンプリング法を選定し、複数回繰り返したときの LOOCV の平均値を算出した。なお、ジャックナイフサンプリングの数は計算時間と精度を考慮し、100 回を採用した。結果を Fig. 2 に示す。

Fig. 2 によると、データ数が多くなるほど LOOCV が小

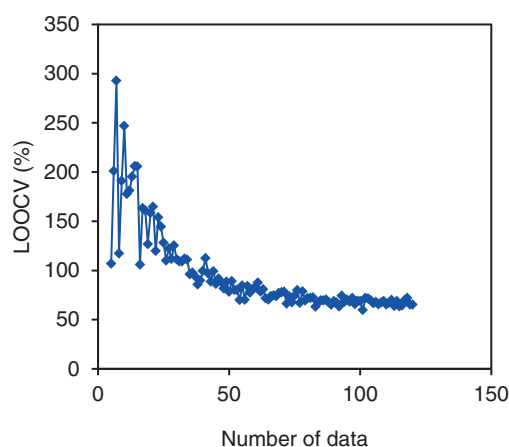


Fig. 2 Relationship between number of data and LOOCV

さくなる傾向が確認できる。これはデータ数が増加するほど、情報量が増加し、予測モデルの精度が向上しているためと考えられる。データ数が50より増えるとLOOCVは減少しにくくなり、低下幅が収束する。これはモデルの表現力が限界を迎えており、LOOCVに対して、データの数を増やす効果が小さくなっているためと考えられる。また、Fig. 2に示したデータ数に対するLOOCVの関係性を以後LOOCVプロファイルとする。

一方、LOOCVプロファイルはデータの数に対して反比例することが数学的に知られている。しかし、Fig. 2のLOOCVプロファイルは基本的には反比例となっているものの、データ数が少ない初期にLOOCVが乱高下しており、その領域における挙動は理論的に説明がつかない。よって、妥当なSMI手法の活用のためには、この乱高下の要因を明らかにすることが重要であると考えた。

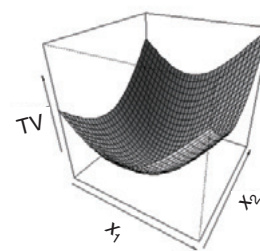
2.2. 最低限必要となるデータ数の検討

妥当なSMI手法の活用のため、LOOCVが乱高下する要因の解明を検討した。まず、データの少ない領域における予測モデルの挙動を視覚的に把握するため、2.1.節で用いた人工データ作成用の数式の次元数を少なくし、二つの説明変数(x_1 , x_2)に対する目的変数(Target variable: TV)となる3次元の人工データセットを作成した。その人工データセットは説明変数(x_1 , x_2)の最大、最小値の長さをそれぞれ等間隔に100に刻み、 x_1 , x_2 の全組み合わせとなる10000点の格子点に対するTVを算出し、10000点のデータセットとした。その3次元の応答曲面を描写した結果をFig. 3に示す。

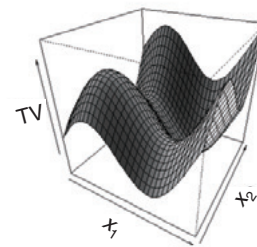
Fig. 3に示した応答曲面は、人工データを生成する式による理論的な曲面であり、機械学習による予測モデルの誤差が0のとき、Fig. 3に示される応答曲面が算出される。

次に、 x_1 , x_2 の最大、最小値の長さをそれぞれ等間隔となるように三、四、五、六つで刻み、それぞれの全組み合わせが9、16、25、36点における説明変数と目的変数からなる人工データを学習し、それぞれの予測モデルを作成した。作成した予測モデルに10000データの説明変数を入力

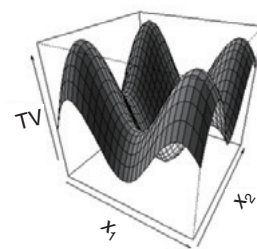
し、各モデルにおける目的変数の予測値を算出した。その応答曲面をFig. 4 (a), (b), (c), (d)に示す。データの数が増加するにつれ、予測の曲面がFig. 3に示す理論曲面に近付いていることがわかる。特に、データ数が少ない領域では応答曲面がデータの数増加に伴い大きく変化している。この領域では、学習データ数が少ないため、予測モデルは全体の形状を表現できておらず、わずかなデータ点の増加によって、応答曲面が大きく変化しているためと考えられる。よって、このように予測される応答曲面の形状が大きく変化する領域では、LOOCV値が低く算出されたとしても、偶然である可能性が高く、値の信頼性は劣るため、LOOCVの値を採用すべきでないと考えられる。



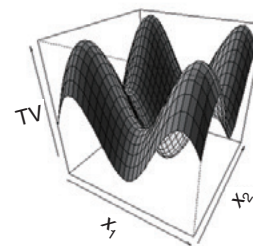
(a) Predicted surface: 9 training data



(b) Predicted surface: 16 training data



(c) Predicted surface: 25 training data



(d) Predicted surface: 36 training data

Fig. 4 Predicted surfaces for different numbers of training data

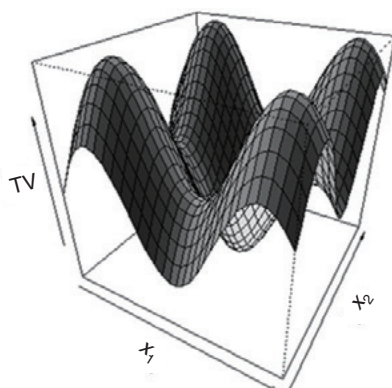


Fig. 3 Theoretical surface

この結果、量産サポート材料を用いたときより、担持されたPd粒子の比表面積を大きくできるサポート材Ⅰ、Ⅱ、Ⅲ、Ⅳの4種を創出することができた。さらに、Pd粒子の比表面積が最も大きかったサポート材Ⅰを用い、Pd担持触媒を作成し、エージング処理をおこない、モデルガスにて浄化特性を評価した。結果をFig. 7に示す。

Fig. 7に示されるように、探索されたサポート材を用いた触媒は量産サポート材を用いた触媒よりも、CO, HC, NOxのいずれにおいても、浄化特性に優れることがわかった。これはエージング後においても、担持されたPd粒子が小さく分散し、Pd粒子の比表面積が大きく保持されたためと考えられる。そこで、Pdを担持したサポート材ⅠのScanning electron microscope (SEM) 分析を実施した。結果をFig. 8に示す。

サポート材Ⅰに担持されたPd粒子は数nm程度であった。また、上記粒子はエネルギー分散型X線分光法により、Pd元素であることを確認した。よって、エージング後においても比表面積の高いPd粒子が担持された触媒材料を創出しており、Pd粒子の比表面積を予測したSMI手法は妥当であることが示された。以上の結果より、サポート材Ⅰを選定し、量産材を用いた触媒より優れたPd担持触媒を創出することができた。

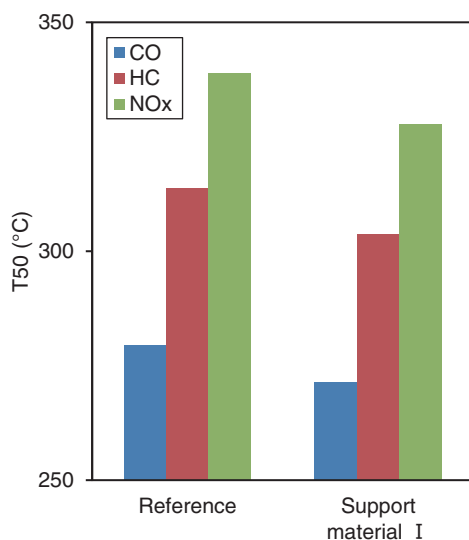


Fig. 7 Temperature for 50% conversion of individual gases

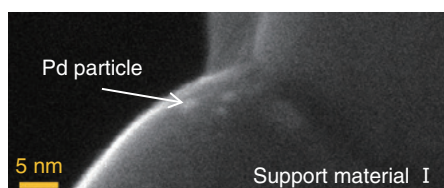


Fig. 8 SEM image of support material- I-with Pd particle

3.2. 磁石材料

近年、自動車の電動化が拡大するに従って、駆動モータ用の磁石の特性向上が求められている。自動車の使用環境における磁石には高温環境下での保磁力の維持が必要であり、そのためには微細組織を得ることが重要となる⁽⁴⁾。熱間加工磁石では、低温と高温の二段階で加工することにより、組織を微細かつ均質化できることが過去の検討により明らかとなっている⁽⁵⁾。そこで、Fig. 9に示す加工プロセスのパラメータに対しSMI手法を活用し、高磁気特性を有する磁石材料を探索した。

また、上記SMI手法を活用した際の手順をFig. 10に示す。

ここでは、第一プロセスの温度(T1)、圧縮量(AP1)、圧縮速度(VP1)、第二プロセスの温度(T2)、圧縮量(AP2)を説明変数とし、それらの説明変数を変化させて作成した磁石の磁束密度Brと保磁力iHcの積を目的変数として、28種類の学習データを得た。これらの28種類のデータにおけるLOOCVプロファイルを算出し、LOOCVの乱高下の収束を確認し、LOOCVが信頼できる領域に到達していることを確認した。それら28種類の学習データを非線形に対応した機械学習法を用いて学習し、予測モデルを作成した。

上記予測モデルに各説明変数を適宜10刻みしたときの総当たりの組み合わせ10万通りの仮想的な説明変数を予測モデルに代入し、10万通りの目的変数を予測させた。最も磁気特性が高く算出された予測結果をTable 2に示す。

さらに、Table 2に示したプロセス条件にて磁石を作

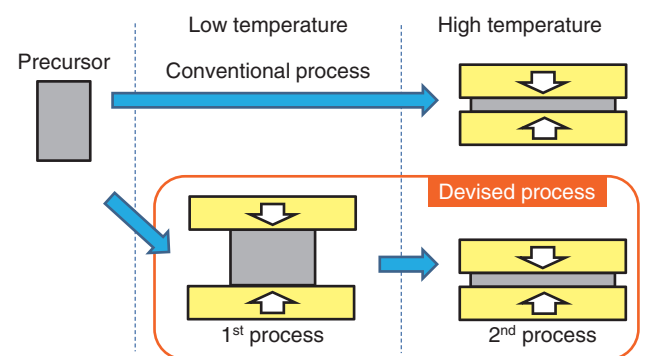


Fig. 9 Schematic image of hot deformation process

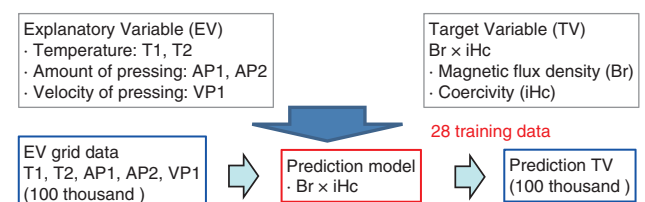


Fig. 10 Prediction procedure for magnet material

Table 2 Prediction result yielding highest level of magnet performance

TV (Br × iHc)	T1 (°C)	AP1 (%)	VP1 (-)	T2 (°C)	AP2 (%)
252	494	27.8	2.0E-05	700	20

成し、磁気特性を評価した。過去の結果と共に Fig. 11 に示す。

Fig. 11 において、Base は熱間加工プロセスによる磁石研究がスタートしたときの材料である。それから約2年間の研究で得られた磁石材料が Y である。Y が得られた時点で、異なる熱間加工条件に対する磁石の性能が 28 データ得られていた。その 28 データを下に予測モデルを作成し、Table 2 に示した最適条件を予測した。なお、この予測の計算に要した時間は5分程度である。その後、Table 2 に示す条件にて磁石を作成したところ磁石材料 Y より優れた磁石材料 X を得ることができた。

このように SMI 手法により、少ないデータ数で予測モデルを作成することができ、短い時間で磁石材料の最適製造条件を提示することができた。

3.3. 熱電材料

自動車におけるガソリンの化学的エネルギーの半分以上は熱エネルギーとして排出されている。熱電材料は高温部分と低温部分の間に素子として挟むことにより、静的に熱エネルギーを電気エネルギーに変換して回収できる材料として期待されている⁽⁶⁾。熱電材料による熱エネルギー回収効率は理論的に温度差が大きいほど高くなるが、一方で材料の耐熱性が課題となる。そこで、熱電材の元素組成を変化させることによる耐熱性向上を検討した。検討した熱電材料であるスキテルダイト型の結晶構造を Fig. 12 に示す。

Fig. 12 に示す熱電材料は、ランタン (La)、鉄 (Fe)、コバルト (Co)、アンチモン (Sb) の元素から構成される。これらの構成元素およびキャリア濃度によって熱電材料の熱電特性 η や耐熱温度が変化することが知られている。

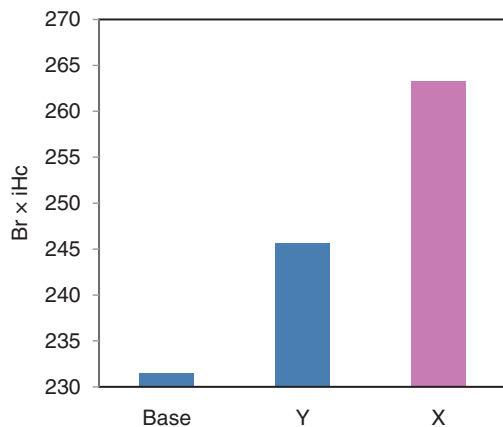


Fig. 11 Results of evaluation of magnet performance together with past data

そこで、上記元素組成を用いて予測モデルを作成し、熱電特性を維持しながら、耐熱性を有する熱電材料を探索した。その手順を Fig. 13 に示す。

ここでは、熱電材料における La, Fe, Co, Sb 量とキャリア濃度を説明変数とし、熱電特性 η と耐熱温度を目的変数とした。説明変数の元素組成やキャリア濃度を適宜変化させたときの熱電特性 η および耐熱温度を測定し、19 種類の学習データを得た。また、このときの LOOCV プロファイルを算出し、LOOCV が信頼できる領域であることを確認した。得られた学習データより、熱電特性 η と耐熱温度の二つの予測モデルを作成した。作成した二つの予測モデルに対して、各説明変数を適宜 10 刻みし、総当たりで組み合わせた 10 万通りのグリッドデータを予測モデルに入力し、10 万通りの目的変数を予測させ、パレート図を作成した。結果を Fig. 14 に示す。

予測結果の中から熱電特性 η が一定以上で、耐熱性が高くなるプロットを二つ選定し、選定した元素組成および

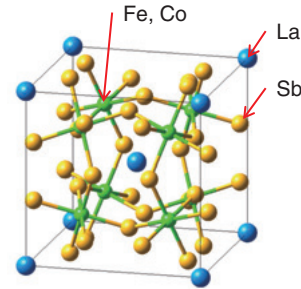


Fig. 12 Illustration of Skutterudite crystal structure

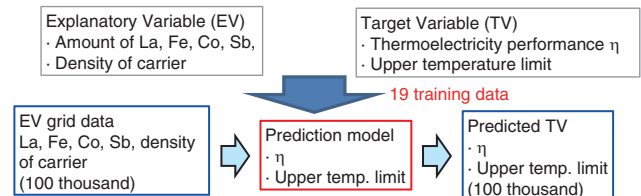
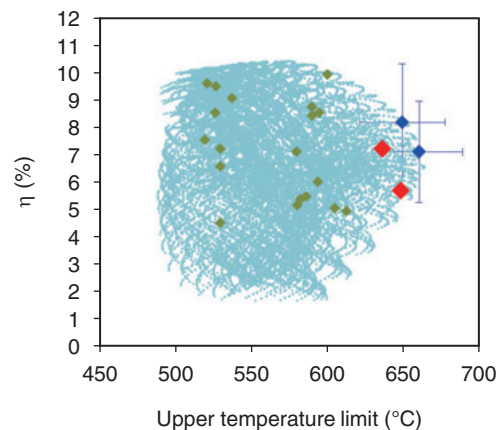


Fig. 13 Prediction procedure for thermoelectric material


 Fig. 14 Pareto diagram of η and upper temperature limit

キャリア濃度となる条件にて熱電材料を作製し、熱電特性 η と耐熱温度を測定した。結果、熱電特性 η と耐熱温度はエラーバーの範囲内で一致しており、従来材料と比較して高い耐熱温度を有する熱電材料を創出することができた。

このように、本検討における熱電特性 η と耐熱温度のようなトレードオフの関係にある特性値に対して SMI 手法を用いることにより、ニーズに応じた材料をピンポイントで創出できることが示された。

4. まとめ

SMI 手法を材料データに適用するに当たり、データ数に対する LOOCV の挙動を把握したところ、予測が有効に機能するデータの数に数十から百データであることがわかったため、材料探索に活用することが可能であることが確認できた。また SMI 手法を活用した結果、触媒、磁石、熱電材料の材料において、高特性化や耐熱性向上等、ねらい通りの新材料を短時間で創出することができた。

なお、予測の対象を機能材料に絞ったが、目的変数と目的変数を十分説明できる説明変数からなる学習データがあれば、未実施の実験結果を予測することは可能であるため、適用範囲は機能材料に限られるものではない。

参考文献

- (1) Materials Genome Initiative for Global Competitiveness, Executive Office of the President National Science and Technology Council Washington, D.C. 20502, p. 4-16, June 24, (2011)
- (2) Nanotechnology/Materials Unit, Center for Research and Development Strategy, Japan Science and Technology Agency, 195p., CRDS-FY2013-WR-03
- (3) 猪瀬昇志, 岡山達也: 触媒表層の貴金属高濃度化と薄層化, Honda R&D Technical Review, Vol. 17, No. 2, p. 129-135
- (4) 清水晴彦, 加藤龍太郎, 中澤義行, 服部篤, 日置敬子, 及川貴司: 駆動モータ用重希土類フリー熱間加工磁石, Honda R&D Technical Review, Vol. 28, No. 2, p. 85-89
- (5) Mouri, T., Kumano, M., Yasuda, H. Y., Nagase, T., Kato, R., Nakazawa, Y., Shimizu, H.: Effect of two-stage deformation on magnetic properties of hot-deformed Nd-Fe-B permanent magnets, Scripta Materialia, Vol. 78-79, p. 37-40, (2014)
- (6) 森正芳, 山上武, 織田信之, 服部真, 原口友秀, 空澤光将: 熱電素子を利用した車両用廃熱回収技術と燃費改善, Honda R&D Technical Review, Honda R&D Technical Review, Vol. 21, No. 2, p. 68-73

■ 著 者 ■



古川 敦史



池田 知廣



岡山 竜也