

AI 技術による新規酸化物の発見

—未発見物質の合成条件もピンポイントで予測—

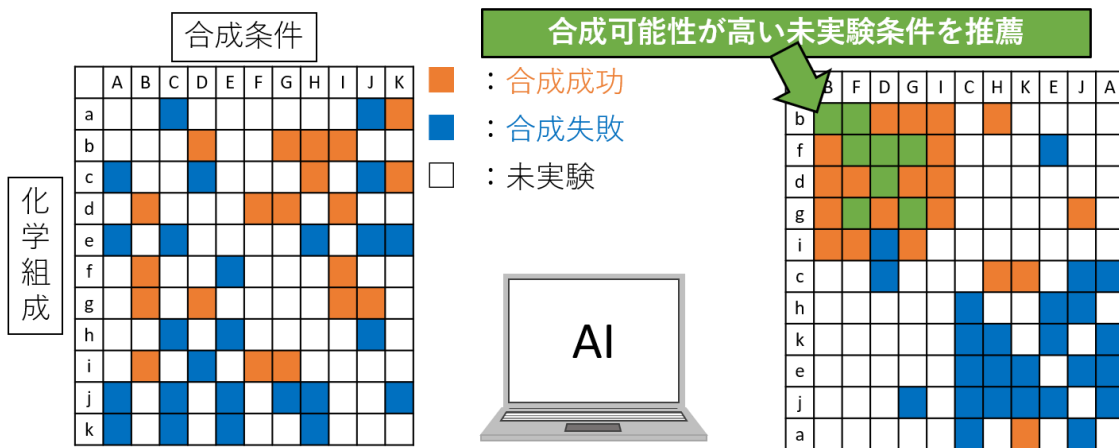
概要

京都大学大学院工学研究科 材料工学専攻の林博之 助教、田中功 同教授らの研究チームは、チームが開発した合成条件推薦システム(注 1)と 1,500 件規模の並列合成実験(注 2)データに基づいて、数万件の未実験条件における合成可能性を評価し、上位 300 件の検証実験により 2 つの新規酸化物を発見しました。

計算材料学や人工知能(AI)(注 3)を活用した新規物質の予測研究は加速的に進んでいます。しかし、その合成には合成研究者による勘と経験に基づく多くの試行錯誤的な実験が必要であり、物質探索のボトルネックとなっていました。

本研究で開発した手法により、約 6 万通りの合成条件から、誰も発見していない新規物質であってもその合成条件を的確に予測することが可能であり、実際に 2 つの新規物質の合成に成功しました。マテリアルズ・インフォマティクス(注 4)分野に突破口をもたらすと期待されます。

本研究成果は、2021 年 9 月 27 日(米国東部時間)に国際科学誌「Journal of the American Ceramic Society」のオンライン版に掲載されました。



AIが化学組成と合成条件の関係を整理して
 合成可能性の高い未知物質を推薦

図：本研究のイメージ図。

1. 背景

近年の計算機能力の向上や AI 技術の進歩により、合成が期待される新規物質の探索研究が活発化しています。特に、量子力学に基づく第一原理計算(注 5)結果のデータベースを基にして、多くの未知物質の熱力学的安定性や特性の予測が行われています。しかし、提案された候補物質であってもその合成が困難な場合も多いのが実情です。物質の合成成否は、用いる原料やその混合比と混合方法などの前駆体調整手法から、反応時の雰囲気ガスや保持温度など多岐にわたるパラメータの複雑な相関により決まります。理論計算によるエネルギー論的な議論だけではこれら合成条件に関する情報は限定的にしか得られないため、これまで新規物質の合成には合成研究者の勘と経験に基づく多くの試行錯誤の実験が必要でした。

一方、ごく近年になり、合成実験データを基に物質の合成条件を予測する研究が行われています。AI 技術を活用したこれらの手法は、合成実験データの取得方法で二つに大別できます。一つは、過去に蓄積されてきた多数の文献から自然言語処理技術で合成条件に関する情報を抽出する方法です。もう一つは、実際に研究室の環境下で行った合成結果を用いる方法です。研究チームでは、後者の手法で獲得したデータを、低ランク性(注 6)を仮定したテンソル分解手法(注 7)と組み合わせることで物質ごとに最適な合成条件を推薦するシステムの開発を行いました。合成条件の予測には、合成に成功した条件だけでなく、合成に失敗した条件も考慮することが重要であり、成功条件のみにバイアスがかかった前者の方法だけでは不十分なのです。一方で、研究チームの既存の手法であっても、これまで誰も合成したことのない新規物質の合成には成功していませんでした。

本研究では、擬二元系酸化物を探索対象として、合成条件推薦システムによる新規物質探索が有効に働くかを検証しました。擬二元系酸化物は歴史的に多くの研究者が探索しており、既知物質の中でも最も発見数が多い物質群のため、現在においても未発見な物質の合成条件はシビアなものと予想されます。研究チームは、未知組成の擬二元系酸化物を対象に無作為に設定した 600 の合成条件を実際に行いましたが、新規物質を発見することはできませんでした。一方、これらの失敗データに既知物質の合成実験データを加えた 1,500 件規模のデータを合成条件推薦システムで学習し、予測上位 300 件の合成条件で実際に合成を行ったところ、2 つの新規物質の発見に至りました。

2. 研究手法・成果

まず研究チームは、錯体重合法(注 8)による並列合成実験システムを構築しました。一般に新規物質を合成する際には、合成方法、原料、焼成温度など様々な合成条件を、研究者が勘と経験に基づいて一つ一つ試行しますが、研究チームでは多数の合成データを入手するために実験装置や手順の工夫を行いました。対象としたのは 2 種類の陽イオンと酸化物イオンから構成される擬二元系酸化物です。33 種類の原料を用い、そのさまざまな配合比に対して、5 種類の焼成温度で焼成を行いました。合成した試料中の結晶相の同定は、試料自動交換機を備えた粉末 X 線回折装置で連続的に評価し、目的の組成を持った物質ができたかどうかで「成功」と「失敗」データに分類しました。対象とする合成条件のうち、未知の擬二元系酸化物を目的とした合成条件は約 6 万件ありますが、擬二元系酸化物においてどの程度新規物質の発見が困難であるかを調べるために、研究チームは無作為に選んだ 600 条件で実際に合成実験を行いました。結果的に、得られた試料の結晶相はすべて既知物質で説明され、新規物質の合成には至りませんでした。これまでの合成研究では、これら失敗データは公開されることなく研究者のノートにのみ存在し、広く活用されることはありませんでした。一方で、研究チームが開発した合成条件推薦システムはこれらの失敗データも新規物質の合成条件予測に活用することができます。これらの失敗データに加え、研究チームは既知物質に対する 942 件の合成実験を行い、計 1,542 件の

合成結果を有する合成データベースを作成しました。

作成したデータベースと合成条件推薦システムにより、まだ実験を行っていない物質に対する合成条件の合成可能性スコアを予測しました。そして、その上位 300 件の合成実験を行い、推薦システムの予測能力を検証しました。図 1 上部に示すのは、上位 300 件の合成可能性スコアのヒストグラムで、オレンジは目的組成の合成に成功した条件、青が失敗した条件を示しています。図 1 下部は、ヒストグラムの各ビンにおける成功条件の割合を合成可能性スコアに対して示したもので、スコアが高いほど合成成功条件の割合が高いことがわかります。このように、合成条件推薦システムにより予測した合成可能性スコアに基づいて上位から実験を行うことで、効率よく物質合成が行えることがわかります。また、今回研究チームは 300 件の検証実験の中で 2 つの新規物質の発見に成功しました。図 2 の左は $\text{La}_4\text{V}_2\text{O}_{11}$ を目標とした合成条件における粉末 X 線回折プロファイルの温度依存性を示したものです。括弧で示した合成可能性スコアが高いほうが新規物質の $\text{La}_4\text{V}_2\text{O}_{11}$ の回折ピークがより強く現れています。結晶構造解析の結果、 $\text{La}_4\text{V}_2\text{O}_{11}$ は図 2 の右に示すような部分占有な酸化物イオンサイトを持つ結晶構造であることがわかりました。今回発見したもう一つの新規物質である $\text{La}_7\text{Sb}_3\text{O}_{18}$ でも同様の結果が得られており、これまで誰も合成したことのない新規物質であっても合成条件推薦システムにより最適な合成条件を予測できていることを示しています。

3. 波及効果、今後の予定

本研究は、実験結果のデータベースに基づいて AI で効率的に新規物質の合成条件を予測するためのシステム開発について一定の成功を収めました。マテリアルズ・インフォマティクスに基づいた新物質の開発に突破口をもたらすと期待されます。

マテリアルズ・インフォマティクス分野は世界的に研究者の参入が多く、年々飛躍的に前進しています。無機合成研究においても、合成ロボットと AI を活用した自律的合成実験の研究も始まっています。本研究で構築したデータベースは、まだ 1,500 件規模の小さなものですが、自動実験により容易に拡張することができ、予測精度のさらなる向上が期待できます。新規物質の合成だけでなく、最適な特性値を持つ物質の探索にも開発した手法を適用することで応用分野が広がると期待されます。

4. 研究プロジェクトについて

本成果は、以下の事業・研究領域・研究課題によって得られました。

1. 戦略的創造研究推進事業 個人型研究（さきがけ） 研究領域：「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」（研究総括：常行 真司 東京大学 大学院理学系研究科 教授）

研究課題名：「高効率な新物質発見のための合成手法推薦システムの構築」

研究者：林 博之（京都大学 大学院工学研究科 材料工学専攻 助教）

2. 日本学術振興会による科学研究費助成事業 基盤研究(B)

研究課題名：「ロボット協働合成実験と合成条件推薦システムによる新規酸化物の効率的な探索手法開発」

研究課題番号： 20H02423

研究代表者：林 博之（京都大学 大学院工学研究科 材料工学専攻 助教）

3. 日本学術振興会による科学研究費助成事業 挑戦的研究(萌芽)

研究課題名：「結晶構造データベースと第一原理計算を用いた未知酸化物の網羅的探索」

研究課題番号： 19K22057

研究代表者：林 博之（京都大学 大学院工学研究科 材料工学専攻 助教）

4. 日本学術振興会による科学研究費助成事業 挑戦的研究(萌芽)

研究課題名：「データ科学に基づく新奇な無機化合物探索の実践」

研究課題番号： 19K22054

研究代表者：田中 功（京都大学 大学院工学研究科 材料工学専攻 教授）

5. 日本学術振興会による科学研究費助成事業 基盤研究(A)

研究課題名：「広大な化学組成空間からの新しい高イオン伝導体の創出と指導原理の獲得」

研究課題番号： 21H04621

研究代表者：田中 功（京都大学 大学院工学研究科 材料工学専攻 教授）

<用語解説>

(注 1) 合成条件推薦システム

研究チームが開発した合成実験データに基づいて未実験物質の合成条件を予測するシステム。推薦システムとは、ネットショップなどで、購買者の購入履歴データを活用して「おすすめ」を提示するために広く使われている人工知能システム。

(注 2) 並列合成実験

研究者が一つ一つ行っていた合成実験を並列して多数同時に行えるように手順や装置を改良した合成実験のプロセス。

(注 3) 人工知能 (AI)

予測や解析など知的作業を人間に代わって計算機に行わせる技術。1950 年代以降、研究が進められてきたが、最近では第 3 次 AI ブームと呼ばれ、研究熱が高まっている。

(注 4) マテリアルズ・インフォマティクス

材料データに AI 技術を適用し、材料科学の諸問題の解決に役立てる技術。新材料の発見から工業化に至る一連の開発プロセスが大幅に効率化できると期待されている。

(注 5) 第一原理計算

量子力学の基本原則に基づいて物質の構造、安定性、物理的性質や挙動を計算する方法。実験値などの先験的情報を必要とせず、理論計算で予測できる。計算機と計算技術の進歩により、2000 年以降急速に材料科学への具体的な適用が進んだ。

(注 6) 低ランク性の仮定

与えられたテンソル／行列を小さなテンソル／行列と因子行列に分解しても、抽出したい情報に漏れが少ないと仮定すること。「おすすめ」を提示する推薦システムに使われている。

(注 7) テンソル分解法

ここ取り扱うテンソルは多次元配列元のデータのことを意味する。テンソルを1つのテンソルと複数の行列のモード積で表現するもので、いくつかのアルゴリズムが知られている。推薦システムその他、特徴抽出などに利用されている。

(注 8) 錯体重合法

金属イオン水溶液にカルボン酸とグリコールを添加し、加熱してエステル重合させたゲルを大気中で仮焼・本焼して酸化物を得る手法。

<研究者のコメント>

未知の物質や、望みの物性を有する物質の探索は合成研究の醍醐味であり、試行錯誤というプロセスも含めて合成研究者にとって大変楽しい分野だと思っています。AI が教えてくれることは人間にとって意外なこともあり、「なぜこの作り方でこの物質ができるのか？」という合成化学の理解を深化させるきっかけにもなります。データを逐次追加していった時の推薦システムの成長も今後の楽しみです。

<論文タイトルと著者>

タイトル：Synthesis-condition recommender system discovers novel inorganic oxides (合成条件推薦システムによる新規酸化物の発見)

著者：Hiroyuki Hayashi, Keita Kouzai, Yuta Morimitsu, and Isao Tanaka

掲載誌：Journal of the American Ceramic Society DOI：10.1111/jace.18113

< 参考図表 >

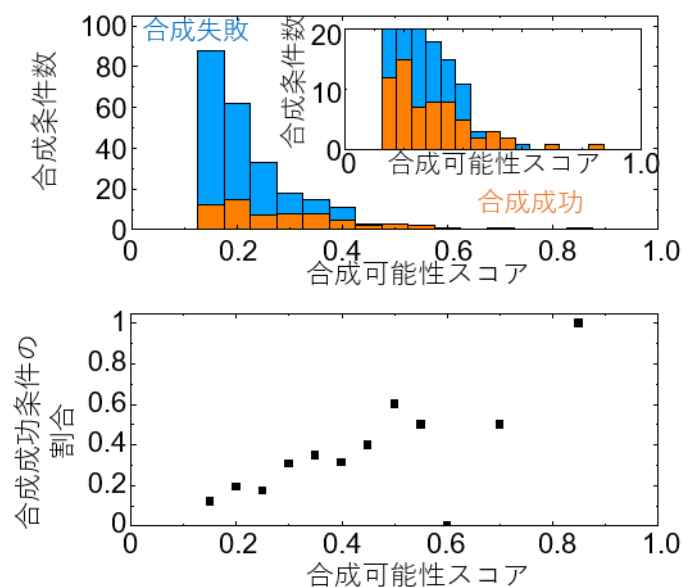


図1 (上)合成条件推薦システムで予測した上位 300 件の未実験物質の合成条件における合成可能性スコアのヒストグラム。オレンジが実際に合成に成功した条件で、青が失敗した条件を示す。ヒストグラムのビン幅は 0.05 である。(下)ヒストグラムの各ビンにおける合成成功条件の割合の合成可能性スコア依存性。合成可能性スコアが高いほど合成成功の割合が高いことがわかる。

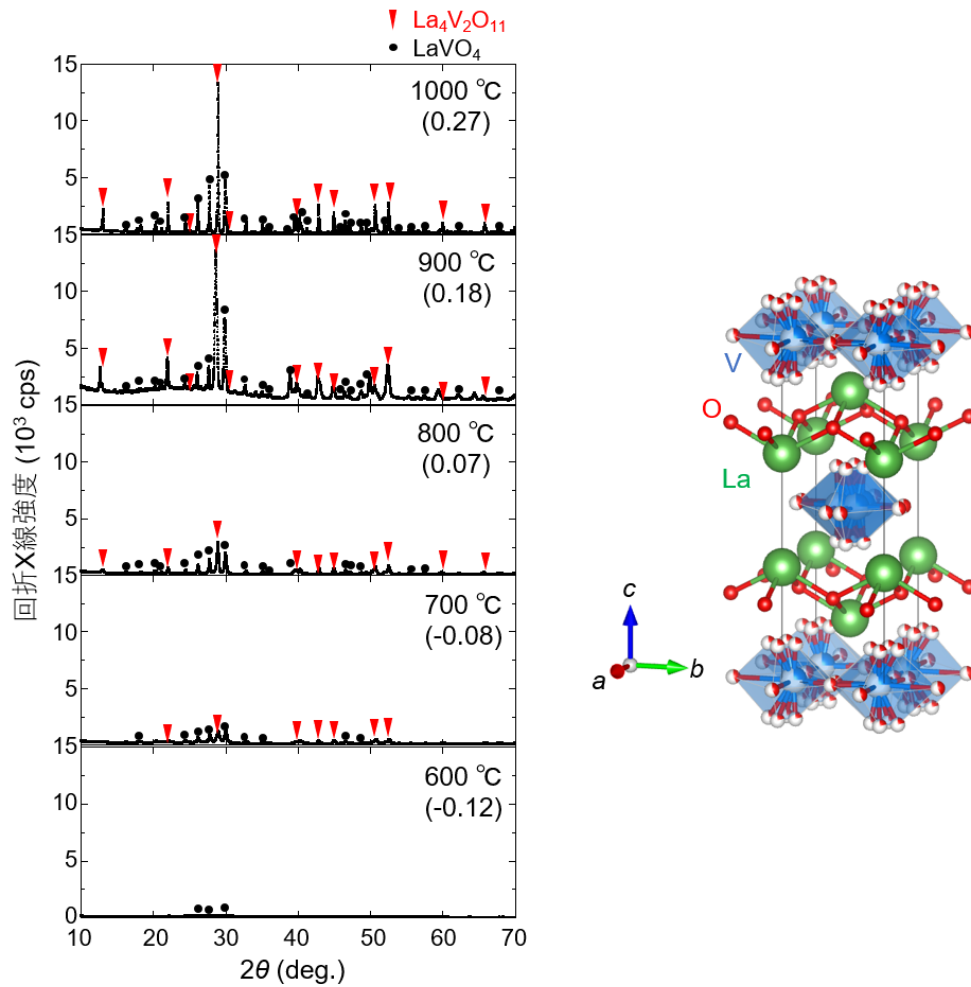


図2 (左)今回発見した $\text{La}_4\text{V}_2\text{O}_{11}$ を目標とした合成条件における粉末X線回折プロファイルの温度依存性。括弧で示した合成可能性スコアが高いほど、新規物質 $\text{La}_4\text{V}_2\text{O}_{11}$ の回折ピークが強く現れていることがわかる。(右)新規物質 $\text{La}_4\text{V}_2\text{O}_{11}$ の結晶構造。バナジウム(V)に配位する酸化物イオンサイトが部分占有になっている結晶構造であることがわかった。