

CRDS-FY2018-WR-11

科学技術未来戦略ワークショップ報告書
「多様な安定相からの高機能材料の創製」

2018年12月16日(日)開催



国立研究開発法人科学技術振興機構 研究開発戦略センター
Center for Research and Development Strategy, Japan Science and Technology Agency

2. (話題提供 1) 新たな機能を有する材料の検討、設計方法

2.1 高機能特性相を高効率に探索する方法の開拓：「新しい物質観」の創造に向けて

一杉 太郎（東京工業大学）

ここではマテリアルインフォマティクス、さらに、AI とロボット技術を融合させて新物質開発をするという話をしたいと思う。重要なことはそれらを通じて「新しい物質観」を構築することだ。それを果たすために、研究の進め方自体にパラダイムシフトを起こさねばならないと認識している。

物質研究の大きな流れから考えていく。重要なポイントは物質を探索する範囲、つまり、探索空間が急拡大し、その中から「有用な高機能特定相をいかに効率的に探すか」という点だ。

探索空間が拡大している要因とその結果として以下のことが考えられる。

1. 実験装置の性能が向上し、制御可能な物質合成パラメータが増えた。そのため、様々な実験条件下で物質合成することが可能となり、探索空間が拡大した。それとともに、実験条件最適化に要するコスト（時間・人件費）が増大している。
2. 物質研究者は今後、より多くの元素やより複雑な構造を有する物質を扱う必要がある。一例として、全固体 Li 電池に向けた固体電解質開発を考えると、現在、東工大・菅野先生らが発見された最高の Li イオン伝導度を有する固体電解質は 5 つの元素を含み、その組成も非常に精密に調整されている。もはや、単純な元素組成や構造の物質では現代社会が要求する性能・機能を満足することが難しい。
3. マテリアルズインフォマティクスが進歩し、多数の準安定物質が有望であると提案されている。しかし、その提案された物質のうち、実際に合成されるのはほんの一部である。

以上から大量の物質を高速に合成し、スクリーニングする必要がある。その合成された物質の大部分が準安定物質であり、その中に有用な物質が多数含まれているだろう。この有用な準安定物質を高機能特定相とここでは呼び、それをいかに効率的に探すかを以下で考えていく。

上記 1-3 を順番に説明していく。

まず 1 の物質合成パラメータが増加したことによる効果を考える。相図を考えるとわかりやすく、「beyond 相図」という考え方が重要である。

図 2-1-1 の左側に三元相図を示す。三角相図に温度や酸素分圧など、もう 1 つパラメータを入れたら三角柱になる。さらにもう 1 つパラメータを追加したら三次元の図で表現することができず、人間の頭で理解することは難しくなってしまう。さらに、実験装置とセンサ技術が発達し、物質合成において精密調整できるパラメータが増大したため、これまで以上に精緻なものづくりが可能となった。すると、多次元パラメータ空間内で考えなけ

ればならず、最適化も極めて難しくなっている。このようにもはや研究者の頭では想像できない相図、つまり多次元パラメータ空間の中で物質探索をどう行うのが課題である。

さらに、2で示したように材料や物質研究の大きな方向性として、化合物が含む元素数は増える方向である。元素数が増えた上、小数点以下二桁まで組成比を調整しなければならず、1で述べたことと合わせると、その探索すべき物質数は爆発的に増大するのは想像に難くない。まさに beyond 相図である。社会の要請に応えるため調べるべき物質の数はどんどん増えていき、高速に物質合成条件を最適化していかなければならない。

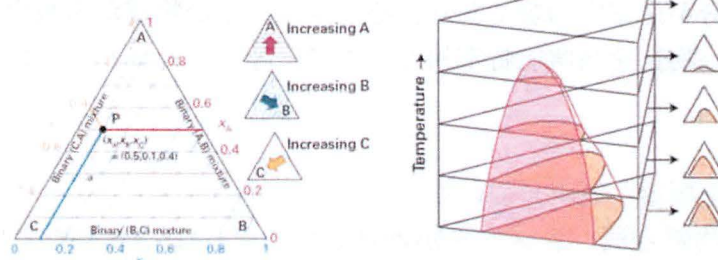
この膨大な探索空間の中、効率的に物質探索するための手法の一つが3で述べたマテリアルズインフォマティクスである。相図には描かれない多くの準安定構造が計算から予測されるようになってきている。しかし、「有用」とするためには、実使用環境下における安定性も予測しなければならない。

計算から提案された物質のうち、たとえば、「大気中における安定性、高温多湿条件での安定性」まで計算で予測して、さらに絞り込むことは現在では難しい。それができるようになれば、物質の絞り込みが進み、少数のターゲットとなる物質を合成することに集中できる。しかし、計算量が極めて大きいため、それは当分実現しそうにない。

したがって、マテリアルズインフォマティクスの本質は、「データベースを活用した物質予測」から、「予測された候補物質から本当に有用な物質の絞り込み」という点に重点が移ってきたと感じている。つまり、膨大な数の準安定構造から「有用な特定機能相」を絞り込む技術・サイエンスの開拓である。ポストマテリアルズインフォマティクスと言って良いだろう。

我々が手にした物質・材料は全体のほんの一部 Beyond相図、More than 相図

アトキンス 物理化学より



三元相図に一つの要素を加えると三角柱
さらに元素数、他の要素を加えると？
→ 想像が不可能 → **巨大な探索空間**

図 2-1-1 相図

2 以上で述べてきたように、非常に広い探索空間の中でいち早く新物質を探索するにはどうすればよいか、という問題意識がある。これから絨毯爆撃で良いのかという点で大きな不安も感じている。どのようにしたら物質開発の羅針盤 = 新しい物質観が得られるのか、ということが発想の原点だ。それを最優先に考えたい。

有用な物質の絞り込みの次に考えるべきことは二つある。

- A. その物質を合成する手法を着実に示すこと。つまり、物質作製プロセスに対する理解。プロセスインフォマティクスと言っても良い（この言葉の定義ははまだ曖昧である）。
- B. その物質が材料としてデバイスに活用されたとき、その材料が他の材料とどう相互作用するのかを正確に掴むこと。たとえば、高い Li イオン伝導材料（固体電解質）を開発しただけでは全固体電池は実現しない。固体電解質は別の物質と必ず一緒に用いられ、その別物質との界面を通じて何が起き、デバイス全体にどうインパクトを及ぼすのかを正確に理解することが重要である。将来、デバイスインフォマティクスという言葉が生まれるかもしれない）。

ここでは、Aのみを述べる。合成ルートをも考えた戦略的なものづくりのためには、物質合成プロセスをしっかりと理解することが重要である。山頂 (= 新物質) を目指す際に、登山ルートを考えないと山頂にたどりつけないのは当たり前のことである。

アンモニア合成を例にして簡単に述べる (図 2-1-2)。N₂ と H₂ から NH₃ を合成する場合、今までの教科書通りの考え方だと、ギブズエネルギーから反応が自発的に進むということが判断できる。つまり反応式の左辺と右辺（最終プロダクト）だけを見ていれば、その途中のプロセスはある意味ブラックボックスになっていた。乱暴な言い方だが。

プロセスの精密制御がますます重要となっているということを強調したい。例えば N₂ と H₂O の反応を考えると、ギブズエネルギー差 ΔG が正になって、この反応は自発的には起きないと教科書で学ぶ。したがって、従来の考え方では、この反応プロセスを試さない。しかし、研究段階では、この反応式でも試す価値はある。プロセスの最中に H₂O が分解して H₂ と 1/2 O₂ になれば、 ΔG が負になって反応が進むと考えられる。つまり、プロセスの中で起きていることが正確に理解できると、ただ単に反応式のみを見ていただけでは一見不可能と思われる反応でも、実は反応を起こすことができる。これは手品でもなんでもなく、反応式に明記されていないエネルギーを外部から供給しているから起きているだけである。以上のように、プロセスを正確に理解することが、新たな物質合成ルート、そして新準安定構造探索とその合成に不可欠である。

マテリアルズインフォマティクスも似た流れで理解できる。最終プロダクト (= 物質) に至るプロセスの提案までには現状はいたっていない。これからは当然、その最終プロダクトを合成プロセスをも考えなければならない。そのために、合成プロセスも完全に理解したい。そこで、現在の最新の技術を合成においても目一杯取り入れる。in situ やオペランド測定が重要であり、合成装置内に様々なセンサや計測装置を組み込み、そこから出てくる膨大なデータをも解析していくことが重要となる。

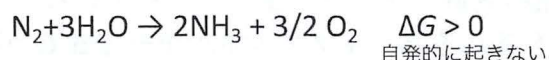
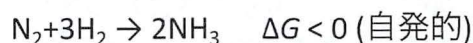
これにより、合成というブラックボックスが、「透明化」することであろう。同じ合成手法でも、実験装置Aではできるが、Bではできないということがよくある。その場合、我々は「装置が違うから仕方ない」と諦めているのが実情だ。しかし、合成装置内にセンサを張り巡らせば、どの条件では物質合成でき、どの合成条件では合成できないということも情報としてわかる。もちろん、スパッタ装置での成膜を例にすると、真空装置内のガスの流れもシミュレーションできるようになれば、なお良い。そして、質量分析計も備えて、真空環境内にどのような残留ガスが存在するのかも把握しなければならない。プラズマの光を分光して常に状態を把握することも重要である。従来は捨てていたデータも有効利用できる時代である。使える情報はすべて処理して有効活用したい。

以上に加えて、プロセス全体をシミュレーションできるようになるのが理想である。基板近傍での化学反応をしっかりと量子化学計算から明らかにし、マクロなガスの流れから基板近傍のミクロな反応までシミュレーションできるようになれば、飛躍的にプロセスの理解は進むであろう。

情報処理技術は猛烈なスピードで進歩している。今後も予想以上に進歩すると思う。そのような発展を貪欲になるべく早く材料研究に取り込んで、新しい研究の進め方をしたい。

IoT×プロセス技術×数理学(AI)×ロボット技術

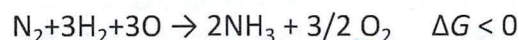
- 従来の物質科学: 熱力学



- 現在の物質科学: **プロダクトだけに注目**

- これからの物質科学:

物質合成過程に**各種センサー**を張り巡らせ、
合成プロセスを理解 → インフォマティクスへ



副産物に着目

図 2-1-2 物質作製プロセス

以上、シミュレーションについて述べてきたが、物質研究開発において、物質についての手触り感覚、つまり、物質観、直感は極めて重要である。研究者の腕の見せ所である。したがって、考えるべきことは、その感覚をいかにはやく身に付けるかということだ。

そのためにも「実験室の産業革命」を我々は起こしたいと考えている。研究の進め方自体を変える。その際、何から何までコンピュータの計算で行うのは効率が悪い。研究者の

物質観をも融合したハイブリッドマテリアルズインフォマティクスこそが重要である。それにより、計算時間も短縮でき、より効率的な物質開発が可能になるだろう。

そのようにするには、今、何をすれば良いのか。現在、マテリアルズインフォマティクスで物質の予測まではできる。その予測された物質を実際にどのようにして短期間で合成するか。そこに人工知能とロボットを使って、短時間に多量の物質を合成する。最適化に要する時間を短縮するということである。

誤解を恐れずに言うと、今までの実験室は家内制手工業だったといって良いだろう。これからはデータ生産工場の時代になると予測している。どんどんデータが出てくる時代である。今までは1個、2個の物質を頑張って合成し、その少数例からのみ物質観を作っていた。これから10、20、30個とデータ生産工場が試料を作り、多量の物質を俯瞰して物質観を作ることが可能になる。従来と全く異なる物質観が生まれ、新しい学理が生まれると期待している。従来の研究の進め方とはパラダイムが違う。

さらに種々の物質を横串で考えなければいけない。先ほど「俯瞰的」と述べたが、それはある物性に着目し、様々な物質を比較・検討して包括的に考えるという意味であった。横串というのは一つの物質に着目し、その多様な物性同士の相関をしっかりと考えるという意味である。

今までは一つの物質を合成すると、自分が興味ある物性だけ評価して、その後試料を廃棄していた。しかし、それでは非常にもったいない。その物質には別の研究者が探し求めている物性が眠っているかもしれない。しかし、物性評価するためには人的、金銭的、時間的コストがかかるので、その物性評価は行っていなかった。したがって、一つ物質を合成したら、その物性を徹底的に調べ、かつ、物性間の相関も調べることが重要である。そうすれば、物質に対する理解は飛躍的に深まるだろう。

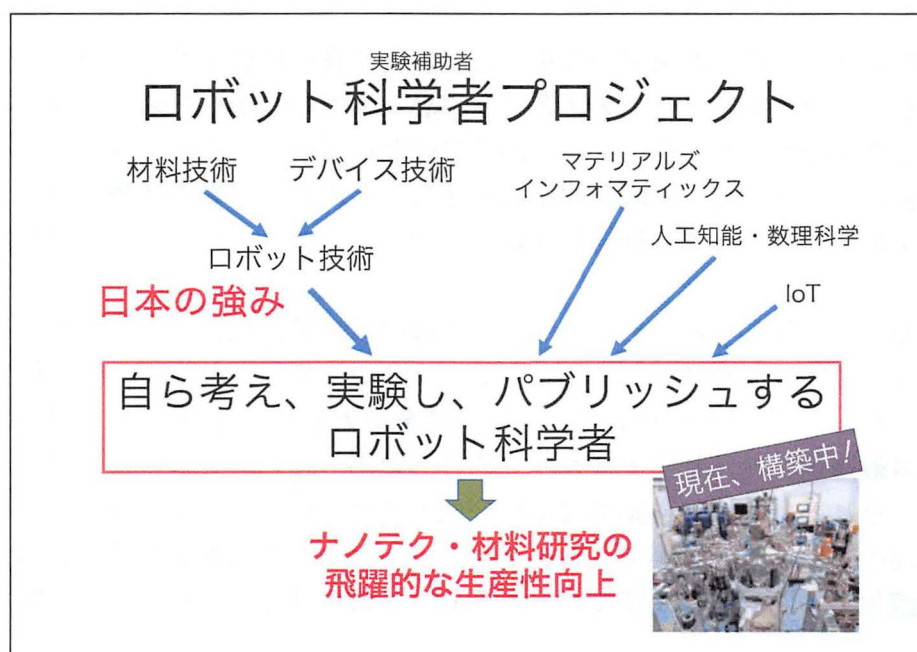


図 2-1-3 実験室の産業革命

それを実現する仕掛けをマテリアルズドックと呼んでいる。これは人間ドックと同じ考え方だ。人間ドックにいくと、人が様々な検査装置のところに行き、検査を受ける。すると思ってもいなかった病気が見つかる。それと同じように、物質も流れ作業で物性を調べていく。そして、未評価だった物性を調べ、有用な機能を探索する。さらに、物性間の相関を調べる。ロボットと自動計測システムを使えばこれは実現可能である。

実際に我々が構築し、提案している考え方を図 2-1-3 に示す。「自ら考え、実験し、パブリッシュする」ロボット科学者 (Artificial Scientist) である。日本はロボットが非常に強く、安価に導入可能である。この日本の強みを活用する。そして、マテリアルズインフォマティクス、数理科学を入れて、みずから考えて実験して、かつパブリッシュするロボット科学者である。

今までの材料科学の進め方を考える。ある物質を合成したいと思ったら、とりあえず人間が操作しやすい、そして理解しやすい実験パラメータを選び出す。例えば薄膜作製では基板温度と酸素分圧だ。そして、それらの具体値を決め実際に薄膜作製し、薄膜物性を評価する。その結果を基にさらに別の基板温度と酸素分圧で成膜し、同じことを行う。すると、こちらの条件の方が良さそうだ、ということがわかり、実際に合成するという手順を繰り返しつつ、成膜条件最適化を進める。さらに三つ目の実験パラメーター、たとえば、スパッタ電源に印加する電圧を検討する場合、この実験パラメーターは、先ほどの二つのパラメータで得た最適条件周辺からちょろちょろと変えてみて条件最適化をする。しかし、これでは「最適化したつもり」になっているだけになってしまう。

実際には、制御可能な実験条件は多数あり、スパッタでは、原料組成、スパッタ電圧、全圧、酸素分圧など最低でも 5、6 個はある。その 5、6 次元空間の中で最適化しなければならない。しかし、人間の頭の中で想像できないから、まずは変数を 2 個にして実験を行う。5 次元空間のどこかにもっと良い物性を示すところがあるのに、それを見つけれない。

このように、従来の条件から離れたところに良い物質が眠っており、それを運がよく発見することをセレンディピティという。思ってもいなかった条件で何か特別なことが起きていることを察知し、それをきっかけに研究を発展させるということである。我々研究者は実験コストを考えて実験条件を絞り込む。その際、過去の経験、知見、固定観念、思い込みが足かせになって、材料を探索するチャンスを失っているのではないだろうか。

この状況を打破するために、今、我々はベイズ最適化とロボットを活用した自動合成システムを構築している。このシステムに対し、「求める物性値を最大化しなさい」と指令する。たとえば、「リチウムイオン伝導度を最大化しなさい」という指令を出す。すると、ベイズ最適化と呼ばれるアルゴリズムにしたがってコンピュータは物質合成条件の指示を出す。それに基づいて自動的に薄膜合成とイオン伝導測定を行う。これによって成膜条件と物性のデータセットができる。それをコンピュータに報告すると、次の成膜条件をベイズ最適化で予測して教えてくれる。そして、このサイクルをぐるぐる回す。(図 2-1-4)

今までの研究でも、実験の一部分だけを自動化した例はいくらでもあった。しかし、今

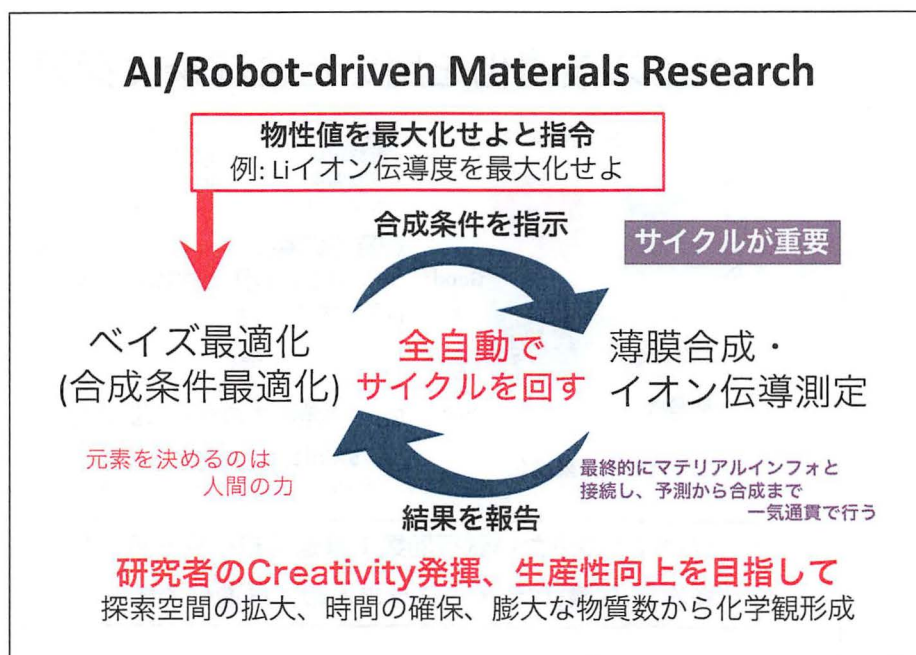


図 2-1-4 全自動サイクル

回は人間に頼ることなく自動で先ほどのサイクルが回る。そこに質的な転換がある。つまり、コンピュータにすべて判断させて、24 時間 365 日、実験し続けることも可能だ。これでどんどんデータと物質が出てくる。すると研究者も学生は大変だ。膨大な試料とデータを処理し、解釈して「新しい物質観を創造」しなければならないのだから。

このようなシステムを研究室で実際に開発しており、この 2019 年春に完全に全自動でサイクルする予定である。動作は単純で奇をてらうところはない。成膜条件を与えると薄膜が自動で成膜する技術はすでに世の中にある。また試料を搬送するロボットは半導体用の技術をそのまま使っており、信頼性が高く安価である。自動計測システムはオリジナルであるが、ベイズ最適化と組み合わせてシステムとして構築しただけである。

実際にどのぐらい効果があるか検討してみよう (図 2-1-5)。振りたい合成パラメータが 5 つあって、それぞれ 4 つの条件で試料を合成したら、45 回、つまり 1,024 回実験しなければ、最適条件を決定することができない。ここで上手にベイズ最適化を使うと、数理的には 15 回で最適化できると導かれる。したがって、学生さんが卒業まで 15 回程度しか実験できないとしよう。従来の方法を選ぶのか、それとも、このような新しい進め方を選ぶのか、答えは明らかである。

前述したマテリアルズドックの考え方も実現可能である。現在、成膜したら自動的に多数の物性測定が可能になるように設計している。電気抵抗、光学特性、ゼーベック係数、... 人間ドックのように多くの項目をどんどん測定していく。ロボットを使う利点は、均質なデータが得られ、「使えるデータ」になることである。製膜条件と物性のデータセットができ、これらを解析することにより、物性と物性の思わぬ相関の発見につながるだろう。もちろん、自動計測システムは求める物性に応じて一つ一つ作製することが必要である。

以上、質的な転換としては、データ生産工場の時代に入っているということである。学理を構築するのに、昔は試料数を 1 個、2 個で考えていた時代から、10 個、100 個、1,000 個、そういうところから新しい学理を構築しようということである。

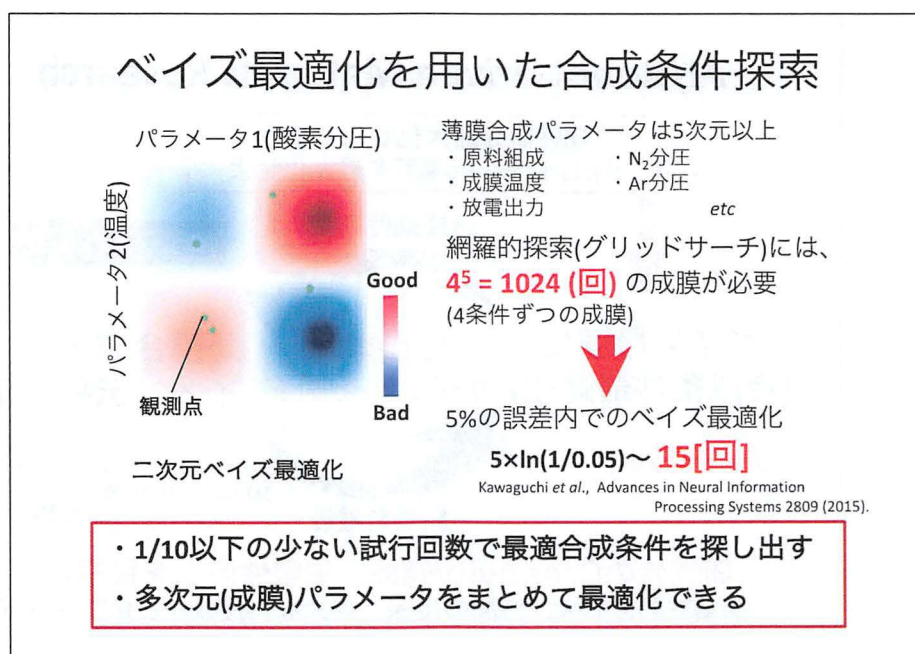


図 2-1-5 ベイズ最適化

そして我々人間が自ら架してきた制約条件から解き放ち、新しい物質を作る。そして、そこからまたアイデアを得るというのがポイントである。

さらに、ここから出てきた物質から我々が着想を得て、またそれを使う。このような取り組みから「インスパイアされる」ということが重要なポイントである。

諸外国の状況を紹介する。2018年11月、ユニバーシティ・オブ・ブリティッシュコロンビアではロボットケミストをつくってエネルギー材料を高速に見出すために8億円を投資すると発表している。

そのほかに世界のプレーヤーとして有名なグループは二つあり、マンチェスター大学とグラスゴー大学が進んでいる。これらは、有機材料かバイオ分野である。

無機材料研究にAIやロボットを導入するアプローチをするのは、私が知る限り、世界では例が少なく、無機材料でこのようなアプローチは、我々が一番進んでいるかもしれない。日本で取り組むことがチャンスだと思っている。日本が世界的に強いロボット技術や、センサ、半導体の技術をうまく活かせるということから、日本が真っ先に取り組むべきで、非常にチャンスだと思っている。

最後にまとめる。実験や研究の進め方自体を転換してゲームチェンジすることが肝要と考えている。物質探索空間の拡大があり、数多くの準安定相から有用な高機能相をいち早く見出さねばならない。準安定相を安定化して実用可能な高機能相とする技術の開発も急務である。また、本日は触れなかったが、昨今の、研究に割ける時間の減少、働き方に対する考え方の変化により、今までの学理のつくり方では競争力は保てないと懸念している。大量の物質を俯瞰的に見るという新しい物質観のつくり方が重要だと考えている。

【質疑応答】

Q：材料を作るときに、人間の目でわかる二つのパラメーターぐらいだったらわかるが、パラメータ数が増えてくるとローカルミニマムに落ちやすくなる可能性がある。ここから抜け出す方法論は何かあるか。情報科学だとメトロポリス法みたいに一回、温度を上げてひっくり返してとかという。

A：ローカルミニマムがあったとしても、ベイズ最適化で抜けられる場合も当然ある。すごいミニマムに完全にはまってしまった場合は当然困る。そこが難しいところ。もちろん情報科学のテクニックを最大限活用してその状況から脱する。そうするとどうしても試行回数が増えるが、それも全部自動化して、抜け出すために必要なコストを減らす。また、その結果自体もデータになるので無駄にはならない。

そして、ローカルミニマムに落ち込んでいるのかを見抜くことこそ研究者の出番だろう。それは従来の実験方法でも同じことである。この場合、研究者が別の条件で合成するように指示を出し、ミニマムから抜け出す。そしてこんなところにもミニマムがあるの！と、インスパイアされる、ということも本来の使い方なのかもしれない。

Q：今の最適なものを探したら、ほかのところの宝があるかもしれない。では、今ののようにリチウムイオン伝導度を最適にしろというサイクルを回したときに、どうやって良い磁性体が見つかるのか。全く違う分野は、どうやってそのサイクルから出てくるのかというときと、ものすごい発光材料が出てくる可能性があるのかというときに、全部、ブラックボックスに入ったら、一体、そこにどういう相関があったのかを知るすべがなくなるのではないか。リチウムイオン伝導度を探すと言いながらも、光もはかる、伝導もはかり、磁性もはかるという、要するに枝葉をどんどん増やしていかないと、ということ。無時限の拡大が必要にならないか。

A：まず、研究の進め方と考え方を整理したい。最初に学理を作り、学理から予想される物質を狙いにいく方法と、最初に物質を発見してメカニズムを解明する過程で学理を構築する方法の二つだ。この両面から答えたい。前者の場合は、リチウムイオン伝導体の学理がまずあり、そこから磁性体との相関を学理から予測する。候補材料があれば、このシステムでいち早く最適化できる。

しかし、材料科学の発展の多くは後者に近いのではないか。物質が先にあって、そこから後づけで学理ができてきたのでは。その場合、例えば、リチウムイオンを最大化にせよと実験する中で、膨大な数の物質が出てくる。すると、その度に磁性も測定するマテリアルズドックの考え方が重要になる。その過程でイオン伝導と磁性のデータセットができてきて、その中から何となく相関が見えてきたら、そこから予測されるものを攻めると思う。一つの物質を多面的に評価することが重要で、それをいかにコストを少なくして実行するかが重要である。

Q：インプットとプロダクト、インプットとアウトプットの話でされているが、例えばプロセス中に触媒を入れたり、中間生成体をつくって、それから最終プロダクトにいくという、そういう別の経路を最適化しようとする、今の発想だとどういうふうにするという経路を変えるなどの発想が出てくるのか。

A：今回はプロセスインフォマティクスまで到達していないので、いまだ研究者の能力に

負っている。例えば、触媒はこのようなものが良いだろうと研究者が判断し、その元素を原料としてセットしなければならない。研究者の能力が問われるところである。計算科学から触媒まで予測することができれば非常に良いが、いまだ確立していないと認識している。人間の知恵と人工知能を組み合わせることが物質開発に重要である。

Q：これからはロボットを使っていかなければいけないということに同意する。一方で人間の経験は非常に大きくて、この路線でやっていたが、何か間違っている、間違っているが、何か引っかかるな、というところからセレンディピティが結構生まれてくると思う。そのように考えると、ベースメントで今、構築されている学理を最初に入れておかないと、全てに関する膨大なデータを抽出しながらこのサイクルを回していかないと行けなくなる。その路線では間違っているが、違うところに発展できる、というところになかなかいかないのではないか。

A：そのとおりで、「我々の知恵」を入れないと、余りに膨大な探索空間になってしまい、ロボットでも探索できなくなる。したがって、研究者の知恵・知見を入れる必要がある。例えば、チタンが四価のチタン酸化物を合成するときに、強い還元雰囲気で行うことは我々の感覚ではあり得ない。その場合、少し酸素分圧が大きい条件で合成することをまず考える。そのような感覚を重視して探索範囲を絞り込むのは重要である。もちろん、その知恵というのは思い込みと紙一重であるので、セレンディピティーは失われる可能性はある。したがって、アルゴリズムの中で重みづけをする。要するに、より多い酸素分圧のほうが有利だ、という情報を入れておく。そのように、知恵・知見をアルゴリズムに入れておく。化学や材料、物質を知っている人が人工知能を使いこなすようにしていくべき。知恵と人工知能の両方を組み合わせしていく。それこそが、ハイブリッドマテリアルズインフォマティクスである。