

深層学習を用いたスーパーコンジット電気絶縁材料の創成

嶋川 肇

東京大学 大学院工学系研究科

1. はじめに

人工知能 (AI) や機械学習 (ML) の手法を取り入れたデータ駆動型の材料開発手法として、マテリアルズ・インフォマティクス (MI: Materials Informatics) が注目を集めている[1, 2]。物性予測と構造探索により得られた新規材料を実際に合成して性能評価まで行った例として、従来材料と比べて熱伝導率が約 80% 高いポリマー材料[3]の開発や、実験データの不完全性を考慮したスピンドル駆動型熱電材料[4]の開発などがある。

電力分野に目を向けると、再生可能エネルギー電源の大量導入が進められ、電力機器には今まで以上の環境適応、コンパクト化、耐候性向上などが求められている。要求が多様化・過酷化する一方、高分子絶縁材料の電気絶縁性と熱伝導性や、絶縁ガスの絶縁性と環境負荷のように、トレードオフの関係にあるため両立が困難な特性も多い。過酷化する複合要件のトレードオフの中で所望の機能を担保するには、大規模な組合せ最適化・新規材料の探索を視野に入れた、経験則に頼らない材料開発手法の構築が不可欠である。また、誘電絶縁材料を扱う電力分野は、放電・絶縁破壊を始めとする高電界現象や、誘電絶縁材料の構造自体の複雑さにより、理論ベースの演繹的な理解が難しい分野だと言える。以上のことから、誘電絶縁材料の創出に MI を活用することは大変意義深い試みと言える。

本研究では、MI 技術を活用した誘電絶縁材料の物性予測および構造探索を行う。特に本稿では、深層学習を用いたコンジット型電気絶縁ポリマー材料の創成に向けて、プロセス条件を加味したコンジット型ポリマー材料の熱物性・電気物性の予測、および絶縁ガス材料を題材とした深層学習による分子構造生成と大規模スクリーニング手法の検討を行ったので報告する。

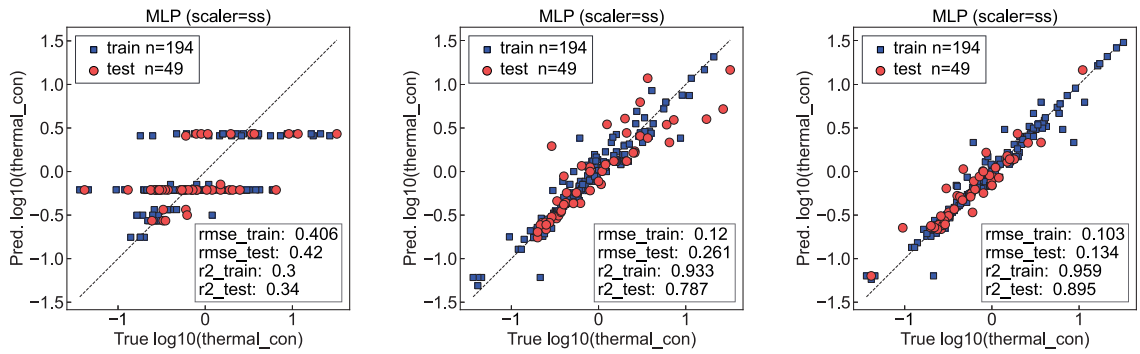
2. コンジット型ポリマー材料の熱・電気物性予測

2.1 背景

ポリマー材料の MI 技術はポリマーインフォマティクスと呼ばれ、いま急速に発展が進んでいる。PoLyInfo [5] や Polymer Genome [6] といったデータベースの構築を発端とし、13,000 種類以上のポリマーの 36 種類の物性データをもとに、複数の物性を同時に予測するマルチタスクの深層学習モデル[7]や、コンジット材料のフィラー分散画像をもとに物性予測を行う畳み込みニューラルネットワーク (CNN) モデル [8] などが報告されている。また、コンジット型を含めたポリマー材料の合成条件や各物性の測定条件といったプロセス条件を適切に抽出することが今後最も重要な点だと考えられている。今回はコンジット型ポリマー材料の電気物性および熱物性を予測するなかで、それらの物性予測における特徴量の重要性を検討した。

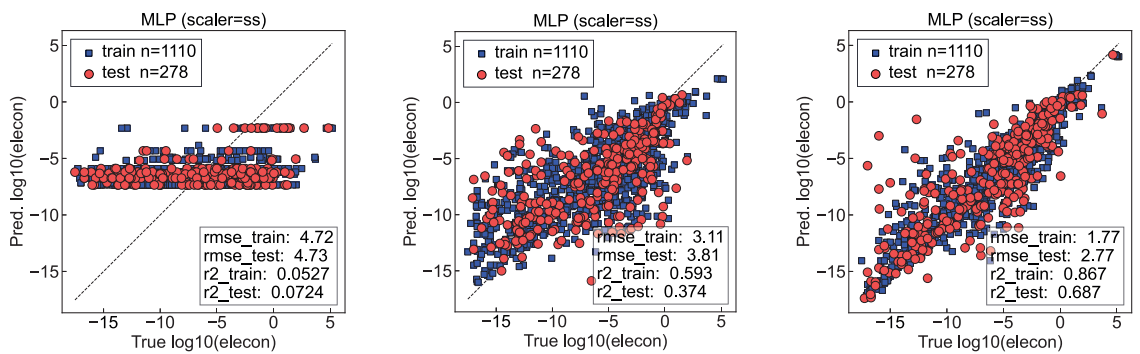
2.2 手法

予測対象はポリマー14種とフィラー10種からなるコンジット材料の熱伝導率と電気伝導率である。複合条件を入力情報とする機械学習の予測結果をもとに特徴量の重要性を評価した。データセットは PoLyInfo や POLYMER HANDBOOK などに掲載される熱伝導率 233点と電気伝導率 1388点の実験結果から成り、材料種だけでなくフィラーの体積充填率 (vol%) や測定温度、サンプル厚み、その他のプロセス条件を含む。ポリマー情報は DFT 計算により得られる電子数 N_e 、垂直イオン化エネルギー E_{iv} 、垂直電子親和力 E_{av} 、ギブス自由エネルギー G で与え、フィラー情報はそれぞれのフィラー種および [導電材料、半導電材料、炭素材料] のラベルを One-Hot 入力で与えた。また、プロセス条



(a) ポリマー情報のみを入力 (b) ポリマー情報&フィラー情報 (c) ポリマー情報&フィラー情報 & プロセス情報

図1 熱伝導率の真値と予測値のプロットおよび train と test の予測精度



(a) ポリマー情報のみを入力 (b) ポリマー情報&フィラー情報 (c) ポリマー情報&フィラー情報 & プロセス情報

図2 電気伝導率の真値と予測値のプロットおよび train と test の予測精度

件として体積充填率と測定温度、サンプル厚みは数値で与え、その他の情報は Bag-of-words により単語ごとの出現頻度を抽出して与えた。学習モデルには多層パーセプトロン (MLP) を使用した。特徴量の重要度評価では、部分的最小二乗回帰 (PLS) による重要度分析と、MLP 学習において追加型特徴量選択および削除型特徴量選択を実施した。

2.3 結果

熱伝導率および電気伝導率の予測結果を図1、図2にそれぞれ示す。左から順に、ポリマー情報、フィラー情報および [vol%・測定温度・サンプル厚み]、プロセス条件を追加して学習した場合の真値と予測値の関係である。予測精度をテストデータの決定係数 R^2_{test} で評価すると、特徴量の追加ごとに精度の向上が見取れる。予測精度が大きく上昇した点に着目すると、熱

伝導率はフィラー情報を追加したときであり、電気伝導率ではプロセス情報を追加したときであった。

各特徴量の重要度を PLS 回帰を用いて評価した結果、熱伝導率では vol%とフィラー種の重要度が高くなった一方、電気伝導率は PLS 回帰での予測精度が不十分であった。そこで MLP での特徴量選択により電気伝導率の特徴量重要度を評価した結果、ポリマー材料の導電性や使用特性を表すワード、サンプル形状、重合条件のワードを追加した場合に予測精度が向上することが分かった。

3. 深層学習による電気絶縁ガスの構造生成

MI 技術を活用した材料設計では、物性予測だけでなく既存データにはない分子構造の生成および探索が必要になる。本研究ではコンポジット

ポリマー材料の創成に向けた先行検討として、より構造が単純な電気絶縁ガスについて深層学習を用いた分子構造生成を行ってきた。

従来広く使用されてきた電気絶縁ガスの SF_6 は地球温暖化係数 (GWP) が CO_2 のおよそ 23、500 倍であり、環境負荷の高さが問題視されている[9]。そこで本研究では MI を用いて SF_6 を代替する環境適合型の電気絶縁ガスの開発に向けて、分子構造のみから絶縁破壊強度、GWP、沸点を同時に予測する機械学習モデルを構築した。さらに深層学習を用いて既存データにはない分子構造を生成し、学習済みの物性予測モデルを用いて絶縁破壊強度、GWP、沸点の予測値を求めることで、高絶縁かつ低 GWP となる電気絶縁ガスを探索した。

分子生成モデルは Grisoni らの SMILES 生成モデル [10] を利用した。RNN (Recurrent Neural Network) ベースで大量の分子データセットから SMILES 文字列の規則性を学習するモデルである。SMILES の中央付近の文字から左右双方向に学習を進める Bidirectional モデルであり、RNN の学習時に初期入力の情報欠落を抑制する効果がある。生成の場合はランダムに与えた一文字目から学習済みの規則性にしたがって SMILES 文字列が生成される。ランダムな原子や結合が選択されることで、学習用データに無い新たな分子構造を生成することができる。今回はガス分子の探索を行うため、学習に用いる沸点の低い分子の生成を行った。分子量の小さな分子を多数用意するため、PubChem に掲載されるおよそ 500 万分子のなかで任意の最大共通部分構造を抽出し、分子量が 200 以下の 16 万分子を生成した。ただし、16 万分子のほとんどは H, C, N, O のみで構成される。そこでガス分子の探索領域を拡大するために F, Cl を含む分子の生成を行った。具体的には、生成済みの 16 万分子から無作為に分子を選択し、分子中の H を F または Cl で無作為に置換することで新たに 30 万分子を生成した。ガス分子の探索ではこの 2 つのデータセットを別々に使用し、構成原子の違いによる物性の違いを評価した。

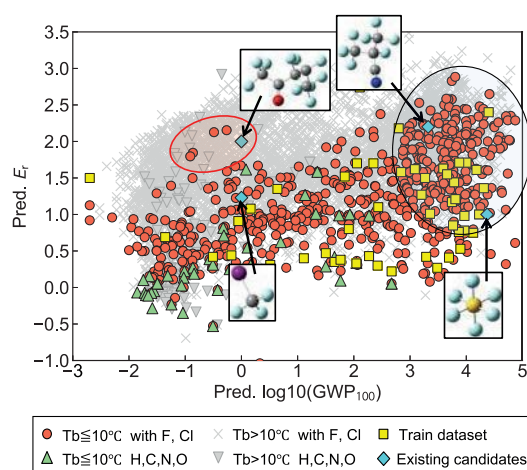


図 3. 生成分子の絶縁破壊電界と GWP の予測結果および既存分子の実験値のプロット

生成した分子のうち沸点が 10°C 以下のものについて、GWP を横軸、絶縁破壊電界を縦軸とした散布図を図 3 に示す。赤点と緑点が生成分子であり、黄色点と水色点が既存分子である。右上の領域は GWP が高いため、環境適合性が悪い分子である一方、左上の領域に高絶縁性かつ低 GWP である分子が得られた。獲得分子は左上の既存候補 $\text{C}_3\text{F}_{10}\text{O}$ と近い分子構造をしていたが、 $\text{C}_3\text{F}_{10}\text{O}$ では沸点が 27°C と高いことが弱点となっていたのに対し、生成分子は沸点が低く、既存候補の弱点を克服する物性が得られた。以上のように、本手法によって、既存分子の弱点を克服し得る環境適合型の電気絶縁ガス候補が得られた。

4. おわりに

コンポジットポリマー材料の熱伝導率と電気伝導率の予測を行い、特徴量の重要度を評価した。熱伝導率ではフィラーの体積充填率が大きな影響を与える一方、電気伝導率ではフィラー情報のみでは十分な予測精度が得られず、プロセス条件を入力することが有効だと示された。 SF_6 代替ガスの探索では、分子構造のみから沸点、絶縁破壊電界、GWP を予測するモデルを構築し、高絶縁かつ低 GWP のガス分子を探索した。分子生成モデルと物性予測モデルを組み合わせることでガス分子の探索を行ったところ、沸点 0°C 以下かつ GWP

が 1 以下で SF₆ の 2 倍の絶縁破壊強度をもつ分子構造が複数得られた。

参考文献

- (1) A. S. Alshehri, R. Gani, and F. You, *Comput. Chem. Eng.*, **141**, 107005 (2020)
- (2) K. Choudhary, et al., *npj Computational Materials*, **8**, 1, 1–26 (2022)
- (3) S. Wu, et al., *npj Computational Materials*, **5**, 1, 1–11 (2019)
- (4) Y. Iwasaki, et al., *npj Computational Materials*, **5**, 1, 1–6 (2019)
- (5) Polymer Database: PoLyInfo:
<https://polymer.nims.go.jp/PoLyInfo/cgi-bin/p-search.cgi>
- (6) Polymer Genome:
<https://www.polymergenome.org/>
- (7) C. Kuenneth et al., 2021, *Patterns* 2, 100238 (2021)
- (8) Y. Wang, et al., *Mol. Syst. Des. Eng.*, **5**, 5, 962–975 (2020)
- (9) S. Tian, et al., *AIP Adv.*, **10**, 5, 050702 (2020)
- (10) F. Grisoni, et al., *J. Chem. Inf. Model.*, **60**, 3, 1175–1183 (2020)