

マテリアルキュレーション®支援システム：事例研究

吉武道子^{1,*}

1：物質・材料研究機構 電子・光機能材料研究センター

Materials Curation® Support System: case studies

Michiko Yoshitake^{1,*}

*1 Research Center for Electronic and Optical Materials, National Institute
for Materials Science, Tsukuba, Japan*

* 1-1, Namiki, Tsukuba, Ibaraki, Japan 305-0044, yoshitake.michiko@nims.go.jp

Abstract

Materials Curation® Support System, which enables users to explore relationship among various materials properties, was proposed and a software-implemented prototype has been developed. The system aims to support the human's engagement by expanding individual knowledge to wide range of materials science regardless of material categories and applications. It also helps choice of descriptors in machine learning and reasoning of machine-learned results in materials science. 15 examples of material property relations found in the system have been validated with corresponding material property values in databases, in this article.

Keywords: materials properties, inter-relationship, database of relations, examples of relationships, validity checking with property database

1. はじめに

著者らは、原理原則へ立ち戻って俯瞰的・分野横断的に眺めることで画期的な発見を指向するマテリアルキュレーション®を支援するシステムのプロトタイプを開発してきた[1-5]。一方、最近、機械学習やハイスループット合成・計測、さらには自動実験[6-8]、自

動実験を機械学習による最適化と組み合わせた自律実験[9-13]の導入が盛んになってきている。これらの手法は迅速に最適解を見つける強力なツールであるが、目的とする良好な材料が見つかった場合に、なぜその材料が良いかについての説明を機械学習は与えないので、少し前提条件が変わると再度自律実験を行う必要がある。図1には、自動・自律実験を導入した場合に、人が関与する部分とコンピュータやロボットによる自動操作部分の役割分担の模式図を示した。人が関与する部分は赤で、自動操作部は青で描かれている。マテリアルキュレーション支援システムは、人が関与する部分を個々の人の知見や経験のみに頼らず、実験・計測データが存在しない材料領域の探索指針の決定や、機械学習に用いる記述子の選定、自律実験により最適化された結果の説明などを支援するツールとして活用可能と思われ、その具体的機能について既に報告している[14]。本稿では、まずマテリアルキュレーション支援システムの概要について説明し、次に実際に本システムにより見いだされた物性間の関係性について、無機結晶化合物のデータベースや高分子のデータベースなどに格納されている物性値のデータを用いて検証した例を報告する。

2. マテリアルキュレーション支援システムの概要

マテリアルキュレーション支援システムとは、データベース化された、材料の異なる物性間に存在する様々な関係（例えば生成エンタルピーとバンドギャップとか）を検索できるシステムのことである（図2参照）。関係性のデータベースの特徴を反映し、ユーザー固有の分野における関係性を追加して検索することが容易であり、実際に企業におけるトライアル使用では、そのような追加を行ったケースもある。

物性間の関係性の具体例を図3に示した。A原子とO原子が結合してAO分子を形成する場合、その分子の生成エンタルピーは、A原子とO原子のそれぞれの電子が、分子の結合性軌道（HOMO）に入ることによる安定化エネルギー $= (\alpha + \beta) + \beta = \alpha + 2\beta$ である（図3a）。原理的には、結合性軌道の安定化と反結合性軌道（LUMO）の不安定化は等しいので、HOMO-LUMOギャップは $\alpha + 2\beta$ であり、分子の生成エンタルピーに等しい。原子が大量に集まって固体になる際は、分子形成と類似の軌道生成が起こるが軌道の数が非常に大きくHOMOやLUMOではなく連続したエネルギー準位である価電子帯と伝導帯になる。準位に幅ができる分、価電子帯と伝導帯のエネルギー差＝バンドギャップは、HOMO-LUMOギャップより小さくなるが、固体を形成するA原子とO原子の電子が価電子帯に入ってエネルギーが安定化するメカニズムは分子の場合と同じと考えられる。実際に金属酸化物の生成エンタルピーとバンドギャップの関係をプロットすると、図3bのように一見関係がなさそうに見えるが、これは価数の異なる様々な金属酸化物を酸化物一モル当たりの生成エンタルピーでプロットしているせいである。酸素原子一モル当たりに換算して金属の価数の影響を排除してプロットすると、図3cのように良い正の相関が見られ、図3aの考え方が成立していることが分かる。これにより、生成エンタルピーとHOMO-LUMOギャップ、HOMO-LUMOギャップとバンドギャップが関係づけられる。このようにして、図4aのよ

うにいくつもの物性を関係づけることができる。図 4b に示したのは熱電材料の性能指数に
関係する物性の関係性（の一部）を示したものであるが、このような関係性のデータが有
ると、トレードオフと言われる関係（青線）を避けて性能指数を向上させる手段（赤線）
があることが分かる、というような利点がある[15]。

なお、実際の支援システムにおける様々な物性間の関係性は、（図 3, 4 とは異なり）様々
な専門分野の教科書的な書籍中の記述から、自然言語処理技術を用いてコンピュータによ
り自動抽出されている[14]。支援システムの画面は図 5a や図 5b に示したようなもので、
二つの物性間の関係性の有無と関係がある場合に間にどのような物性を介して関係性が成
立しているかを表示する機能（a）と、特定の物性と関連する物性を次々に関係性を追っ
ていく機能（b）がある。（a）は、ある物性を制御しようとして材料を変えたら思いも
かけず別の物性が変わってしまったというような場合に、ある物性を **from** に別の物性を **to**
に入力することで、どうして別の物性が変わってしまったのかを理解する手がかりになる。
（b）は、ある物性が別のどの物性と関係しているかを見ていくもので、測定・計算が
困難・高コストな物性の値を、関係している別の物性の値から推定できないかなどを
検討する際の参考になる。

3. 支援システムが出力した物性間関係性の物性値データによる検証（無機化合物）

図 6a に示したのが、**hardness** と関係している物性を支援システムにより表示させた
ものである。表示された物性の内、**hardness** と同類（機械的性質）ではなくデータ
ベースに物性値が豊富に存在する物性として **thermal conductivity** を選び、NIMS
のデータベース AtomWorkAdv[16]を用いて **Vickers hardness** と **thermal conductivity**
の値のプロットを作成したのが図 6b である。大まかに正の相関が見られ、**hardness**
と **thermal conductivity** に関係があるとの教科書の記述をシステムが抽出して
いると考えられる。原理原則的に考えれば、**hardness** 硬い＝結合が強い＝結合の
振動のばね定数が大きい＝熱が良く伝わる、という理屈が考えられ、納得できる
関係性と言える。

Hardness には様々な種類が存在し、**Mohs hardness** と関係性している物性を支援
システムより表示させたものが図 7a である。表示された物性の内、同類（機械的
性質）ではなくデータベースに物性値が豊富に存在する別の物性として **heat capacity
at constant pressure** を選んで、AtomWorkAdv で二つの物性値のプロットを作成
したのが図 7b である。データ数が少ないが、負の相関がみられる。一般的に、熱を
伝えないほうが熱容量は大きくなるので、**Vickers hardness** と **thermal conductivity**
の理屈の逆が成立していると考えられる。

今度は、熱的性質 **heat capacity** と関係している物性を支援システムより表示
させてみた（図 8a）。異なる **hardness** である **Knoop hardness** との関係性が見
つかり、AtomWorkAdv の物性値データから **heat capacity at constant pressure**
と **Knoop hardness** の関係をプロ

ットしてみると図 8b のようになり、Mors hardness の場合と同様に heat capacity との間に負の相関がみられた。

次に、電子的な物性と関係する物性を見てみた。仕事関数と関係する物性を支援システムより表示させたものが図 9a である。金属の平均的な仕事関数が電気陰性度と大まかに比例することは良く知られているが (図 9b) [17], 確かに work function と electronegativity が繋がっている。

図 10a は、誘電率と関係する物性を支援システムより表示させたものである。誘電率は dielectric constant で扱われる場合と permittivity で扱われる場合があり (relative permittivity = dielectric constant), 今回は permittivity との繋がりを見ていく。良く知られているように、index of refraction n (屈折率) は relative permittivity ϵ_r (比誘電率) を用いた数式で表すことができ、実際に AtomWorkAdv の数値データにおいても相関が見られている (図 10b)。また、支援システムでは permittivity と gap energy とのつながりが表示されており、AtomWorkAdv で static permittivity と energy gap for direct transition の値をプロットすると負の相関がみられる (図 10c)。

よく知られたように、電気伝導率 (=電気抵抗率の逆数) は、バンドギャップによって決まる [18]。実際に、支援システムにおいても関係性が表示される (図 11a)。AtomWorkAdv で相関を見ると、energy gap for indirect transition と electrical resistivity との間に正の相関がみられる (図 11b)。電気伝導率に寄与する電子励起は、バンド分散関係において、光励起とは異なり直接遷移である必要は無く、間接バンドギャップと相関がみられているのは納得がいく。

支援システムにおいて refractive index と関係している物性を表示させると、図 12a のように transmittance (透過率) や energy gap が現れ、AtomWorkAdv で数値の相関を調べると、図 12b のように refractive index と transmittance の間には負の相関が見られ、refractive index と energy gap for direct transition との間にも図 12c のように負の相関が見られる。Refractive index は光の性質なので、energy gap でも直接遷移が関係するため direct transition と相関していると考えられる。

支援システムを使って Debye temperature (熱的性質) から熱と関係がなさそうな繋がりを探すと、図 13a に示すように Mohs hardness を経由して Vickers hardness や Knoop hardness との繋がりが表示される。AtomWorkAdv で物性値の相関を表示させると、図 13b に示すように Debye temperature と Vickers hardness number との間に正の相関がみられる。

4. 支援システムが出力した物性間関係性の物性値データによる検証 (高分子化合物)

図 14a に示したのは、支援システムにおいて Glass transition temperature と関係している物性を表示させたものである。melting temperature, melting point (同じ意味, 名寄せができていない) が繋がっているのがわかる。NIMS のデータベース PoLyInfo [19] を用

いて Glass transition temperature と melting temperature の数値の相関を図示すると、[図 14b](#) に示すように良い正の相関があることがわかる。

次に、支援システムにおいて melting point と関係している物性を調べると、その一つに density が表示される ([図 15a](#))。PoLyInfo において、melting temperature と density の数値の相関を見ると、[図 15b](#) のように緩やかに正の相関がみられる。上記 2 つの、Glass transition temperature—melting temperature, melting temperature—density の相関から、Glass transition temperature と density の数値には正の相関があると予想され、実際 [図 15c](#) のように、PoLyInfo において density と Glass transition temperature の値の間には大まかに正の相関がみられる。

また、支援システムにおいて関係性が表示され、無機材料のデータベースにおいて正の相関が見られた thermal conductivity と hardness (この場合、十分な数の数値データが存在したのが Vickers hardness) について ([図 6](#))、高分子材料のデータベース PoLyInfo においても [図 16](#) に見られるように、thermal conductivity と Shore hardness (Vickers hardness との換算式あり) の値の間に正の相関が見られる。

さらに、支援システムにおいて surface tension から solubility parameter, solubility, density とつながりが表示され ([図 17a](#))、相関を調べられるだけの数値データが PoLyInfo に存在する surface tension と density との間の相関を見ると、[図 17b](#) に示すように大まかに正の相関が見られる。

5. まとめ

膨大な材料探索空間を、細分化された専門分野における常識や慣習にとらわれずに効率的に探索するマテリアルキュレーション®を支援するために開発したシステムにおいて、表示される物性間の関係性の例を列挙した。これらの表示された関係性に対し、無機化合物および高分子材料の物性値が格納されたデータベースを用いて、相関を検証した。支援システムが表示する関係性に対し、データベースに物性値がある物性の数が十分ではなく、ある程度関係性の種類は限定されるが、機械的性質と熱的性質、電子的性質と光学的性質、熱的性質と密度、相転移温度と密度、表面張力と密度など、普段は相関を考えないような異分野間での相関が実際に数値データで示された。

References

1. Japanese Patent #6,719,748, 19 June 2020, US patent #11,138,772 B2
2. Japanese Patent # 6,876,344, 28 April 2021, US patent #11,163,829 B2
3. Japanese Patent #7,169,685, US patent #11,449,552 B2, EP patent #3,812,923 B1
4. Japanese Patent #7,026,973, US patent #11,544,295 B2

5. Yoshitake, M.; Sato, F.; Kawano, H. Developing a Materials Curation® Support System. *J. Surf. Anal.* 2020, 27, 22–33. (in Japanese)
6. Laboratory Robotics. Available online: https://en.wikipedia.org/wiki/Laboratory_robotics (accessed on 10 January 2023).
7. Researchers Build Robot Scientist That Has Already Discovered a New Catalyst. Available online: <https://phys.org/news/2020-07-robot-scientist-catalyst.html> (accessed on 10 January 2023).
8. Burger, B.; Maffettone, P.M.; Gusev, V.V.; Aitchison, C.M.; Bai, Y.; Wang, X.; Li, X.; Alston, B.M.; Li, B.; Clowes, R.; et al. A mobile robotic chemist. *Nature* 2020, 583, 237–241.
9. Isayev, O.; Tropsha, A.; Curtarolo, S. (Eds.) *Materials Informatics: Methods, Tools, and Applications*, 1st ed.; Wiley: Weinheim, Germany, 2019.
10. Rajan, K. (Ed.) *Informatics for Materials Science and Engineering: Data-Driven Discovery for Accelerated Experimentation and Application*; Elsevier: Amsterdam, The Netherlands, 2013.
11. Lookman, T.; Alexander, F.J.; Rajan, K. (Eds.) *Information Science for Materials Discovery and Design*, 1st ed.; Springer: Berlin/Heidelberg, Germany, 2016.
12. Lopez-Bezanilla, A.; Littlewood, P.B. Growing field of materials informatics: Databases and artificial intelligence. *MRS Commun.* 2020, 10, 1–10.
13. Rajan, K. Materials Informatics: The Materials “Gene” and Big Data. *Annu. Rev. Mater. Res.* 2015, 45, 153–169.
14. Yoshitake, M.; Kawano, H. *Materials Curation® Support System: Prototype*. Published on 2023-01-19 at Jxiv, <https://doi.org/10.51094/jxiv.246> (in Japanese).
15. 吉武道子; マテリアルキュレーション: 材料情報の活用による材料探索例2; 応用物理学会秋季学術講演会 17p-A23-1, 2014.9.17.
16. 国立研究開発法人 物質・材料研究機構 AtomWork-Adv (<https://atomwork-adv.nims.go.jp/>) (2023.5.10 アクセス)
17. Yoshitake, M. *Work Function and Band Alignment of Electrode Materials*; Springer, 2021, ISSN 2197-8891 ISSN 2197-9502 (electronic), ISBN 978-4-431-56896-4 ISBN 978-4-431-56898-8 (eBook).
18. Hummel, R. E. *Electronic Properties of Materials*, 4th ed.; Springer: New York, Dordrecht Heidelberg London, 2011.
19. 国立研究開発法人 物質・材料研究機構 PoLyInfo (<https://polymer.nims.go.jp/PoLyInfo/search>) (2023.5.2 アクセス)

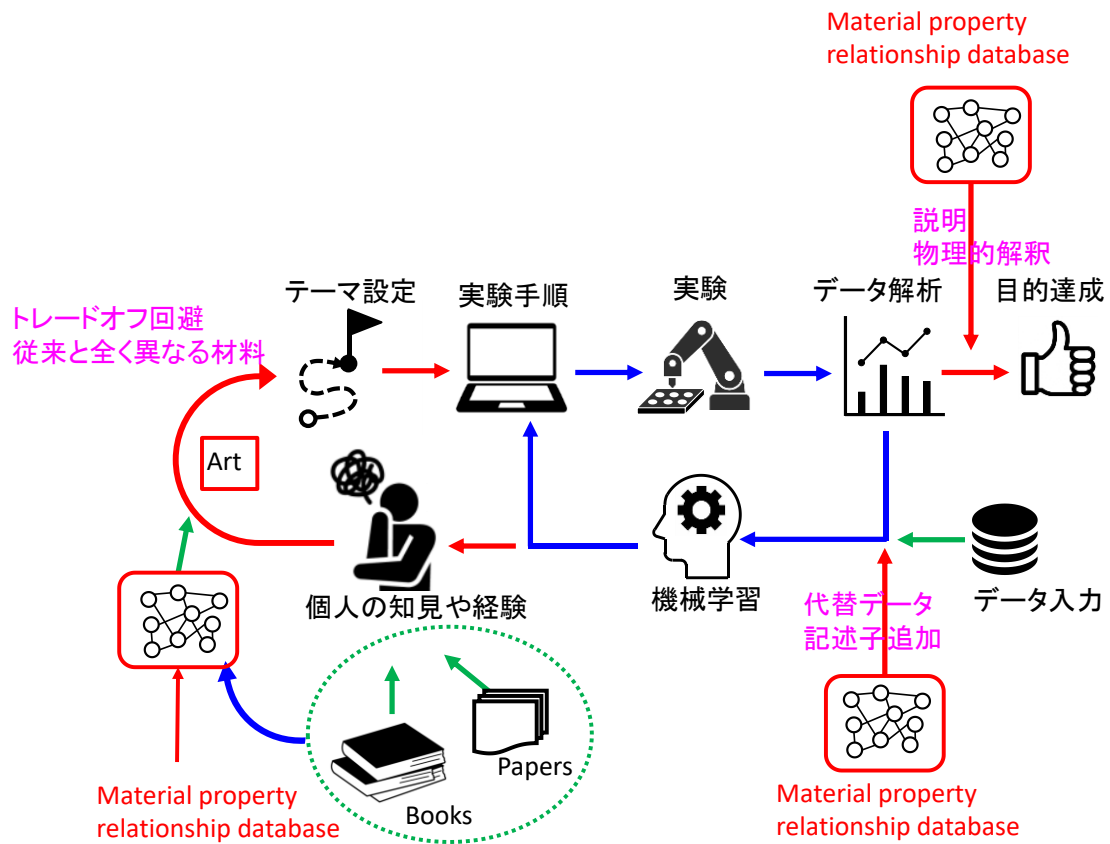


図1 自動実験と機械学習を組み合わせる自律実験を導入した場合の、コンピュータやロボットによる自動動作部分(青)と人が関与する部分(赤)の模式図とマテリアルキュレーション支援システムが寄与できる部分(ピンク)

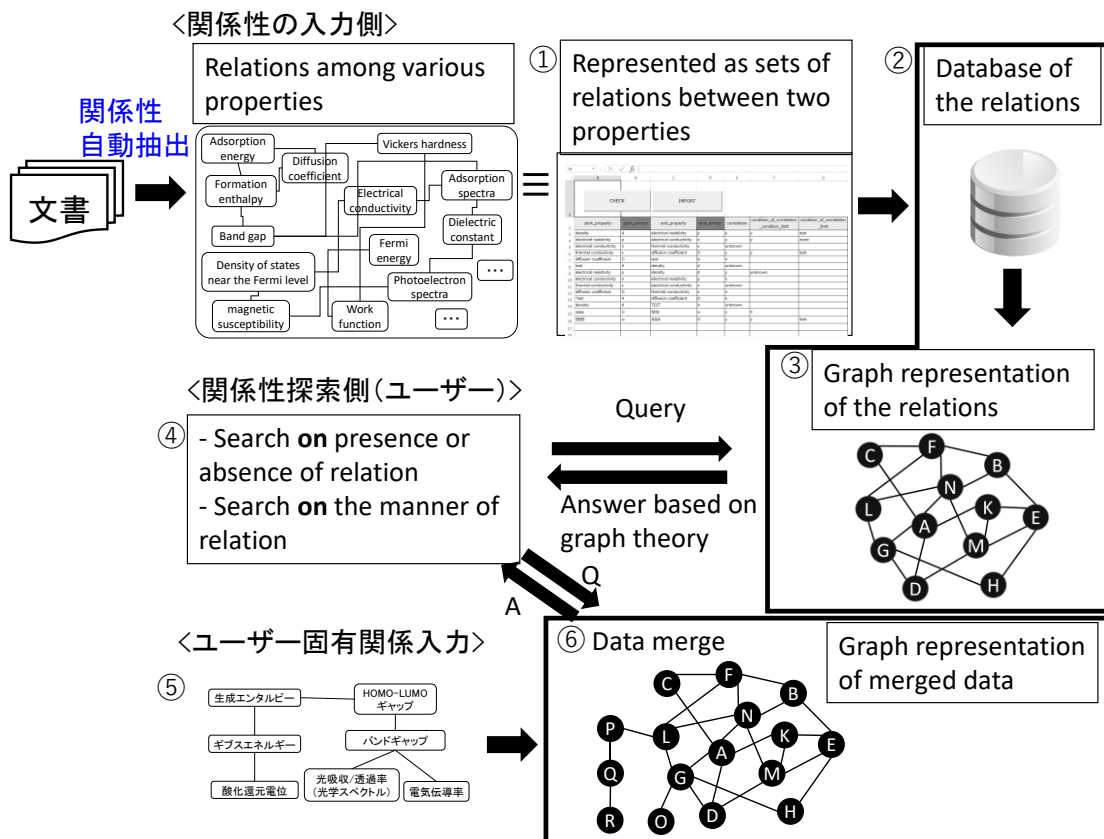


図2 物性間の関係性をデータベース化し、物性間の関係性を探索できるシステムの概要

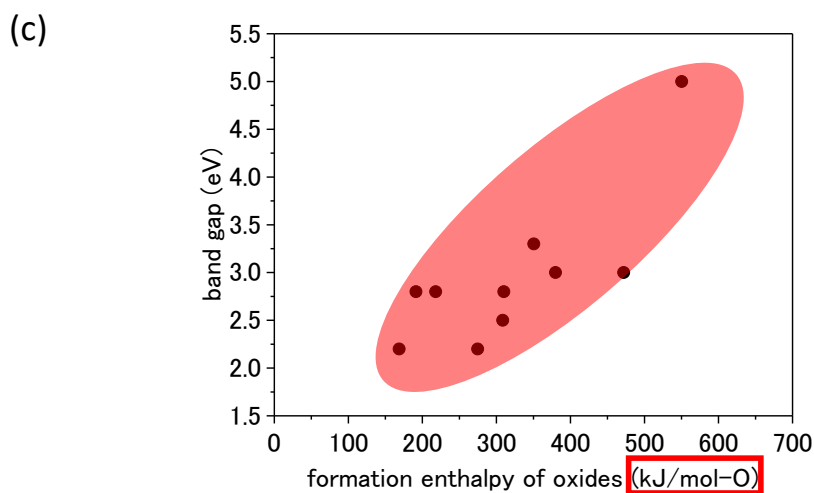
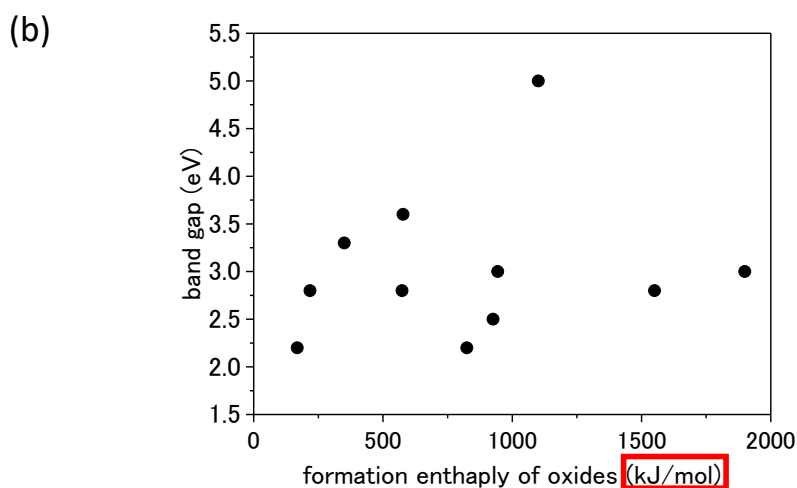
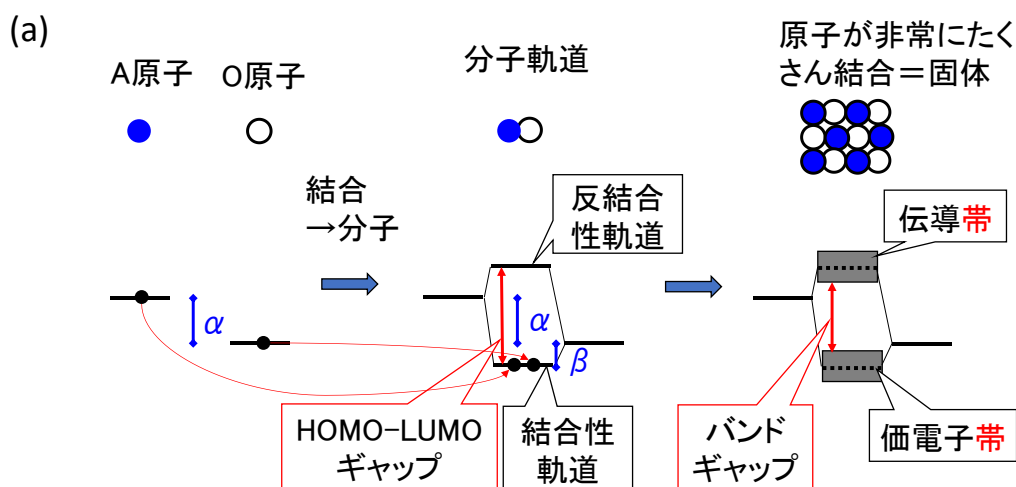
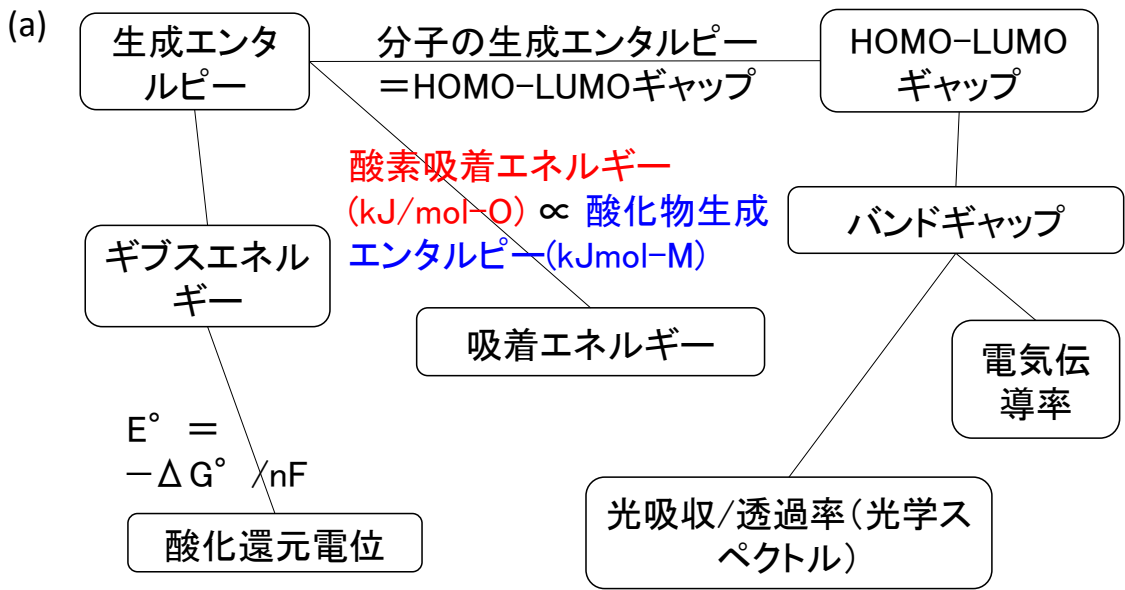


図3 物性間の関係性の例(金属酸化物の生成エンタルピーとバンドギャップ)。分子形成の結合安定化が HOMO-LUMO ギャップに等しく、バンドギャップは HOMO-LUMO ギャップと良い相関がある(a)はずである。酸化物の生成エンタルピーとバンドギャップをプロットすると一見相関が無い(b)が、生成エンタルピーを酸素1モル当たりの値として金属の価数の違いの影響を排除すると、両者に良い相関が見られる(c)。



(b)

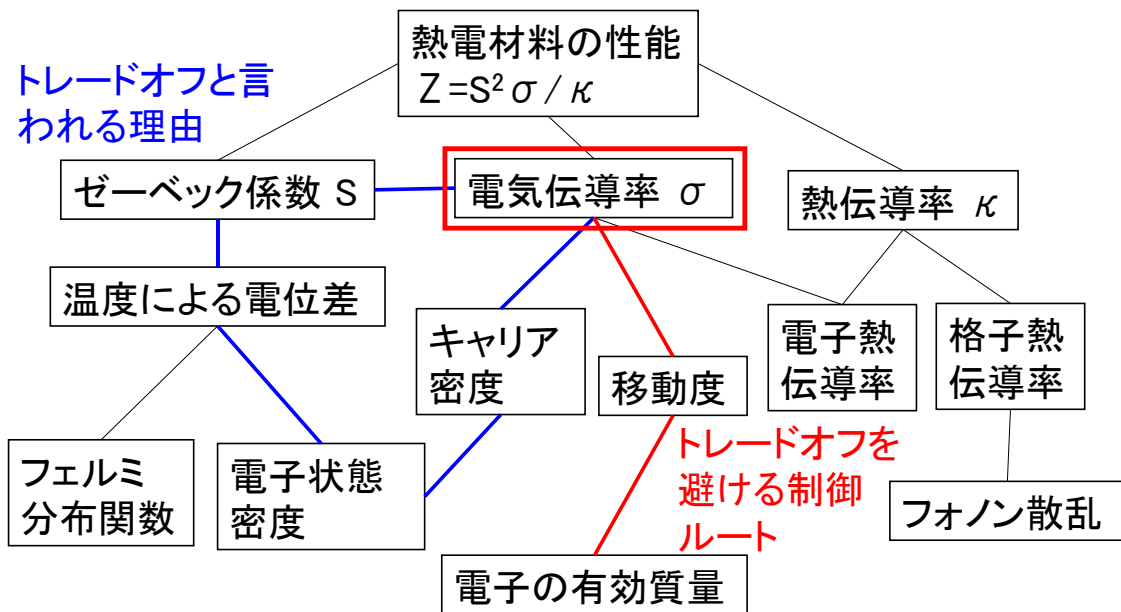
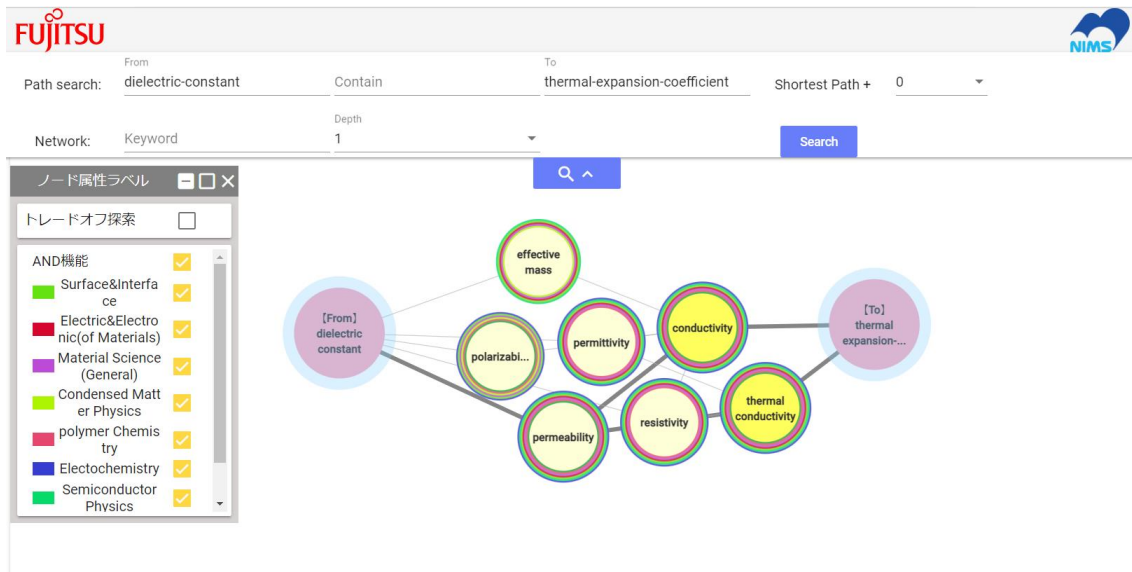


図4 (a)図3のようにしていくつかの物性を関係づけた例, (b)熱電材料の性能に関する物性の繋がり(一部)を示したもの。青線の繋がり(一部)は性能を決める物性間にトレードオフがあると言われる関係性, 赤線はトレードオフを回避する可能性を示唆する繋がり。

(a)



(b)

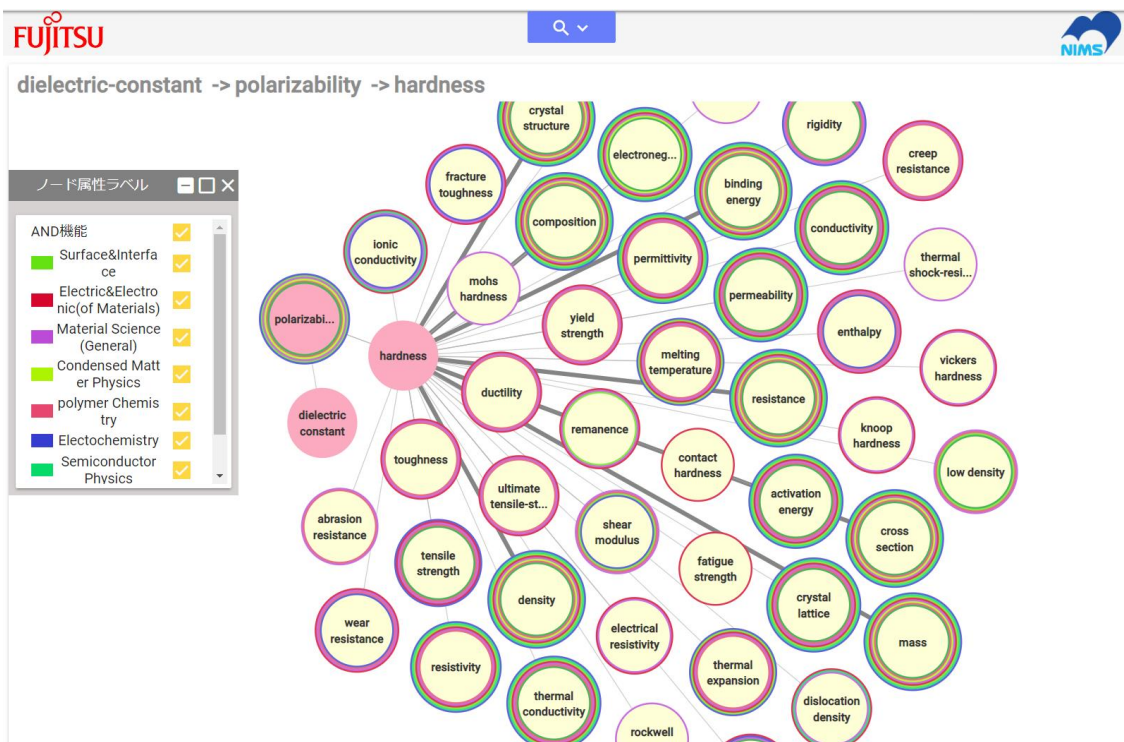


図5 支援システムにおける物性間関係性の表示画面の例。(a)二つの物性がどのような物性を介して繋がっているかを示すモード。(b)特定の物性がどの別の物性と関係しているかを次々と表示していくモード。

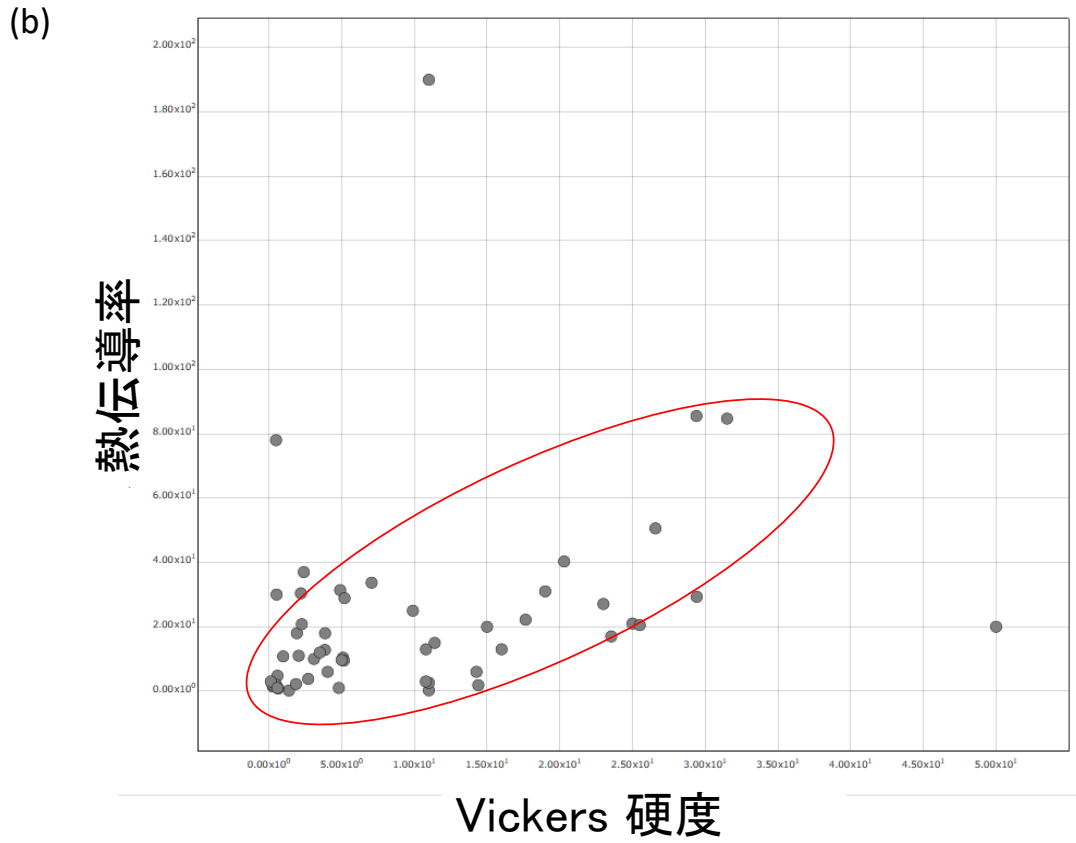


図6 (a) hardness と関係している物性を支援システムにより表示させたもの。表示された物性の内, hardness と同類(機械的性質)ではなくデータベースに物性値が豊富に存在する物性として thermal conductivity に着目。(b)着目した物性について, NIMS のデータベース AtomWorkAdv[16]によりプロットした値の相関。

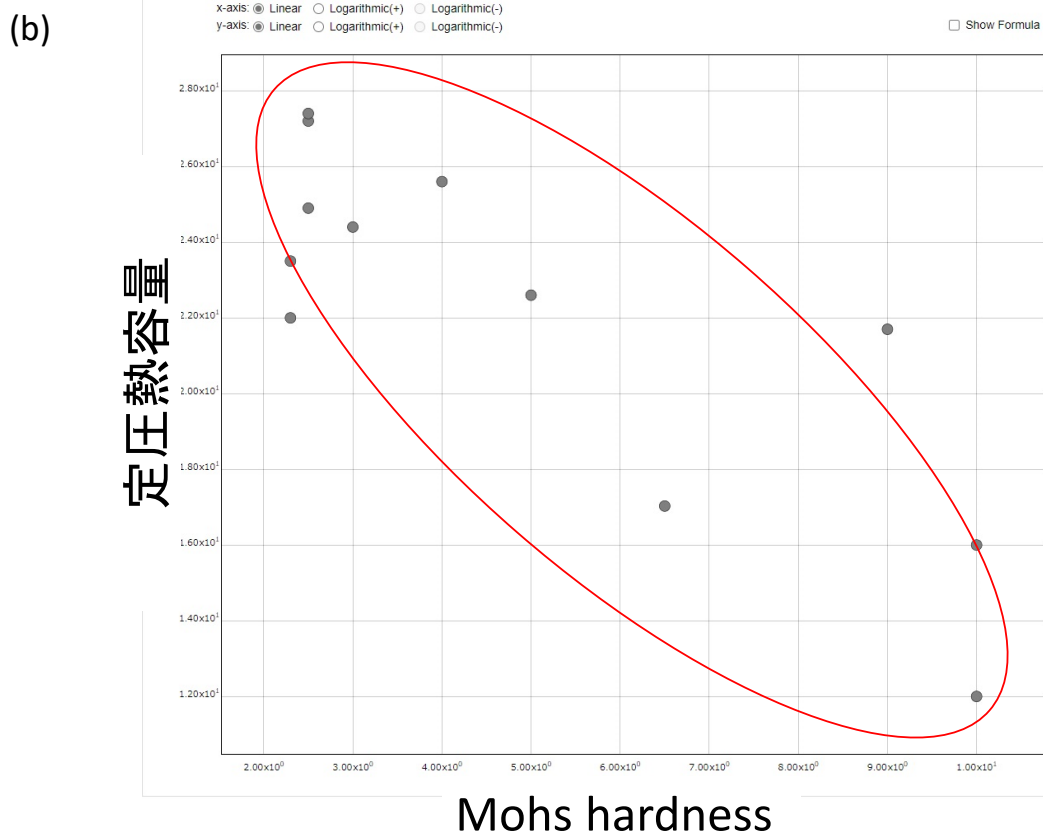
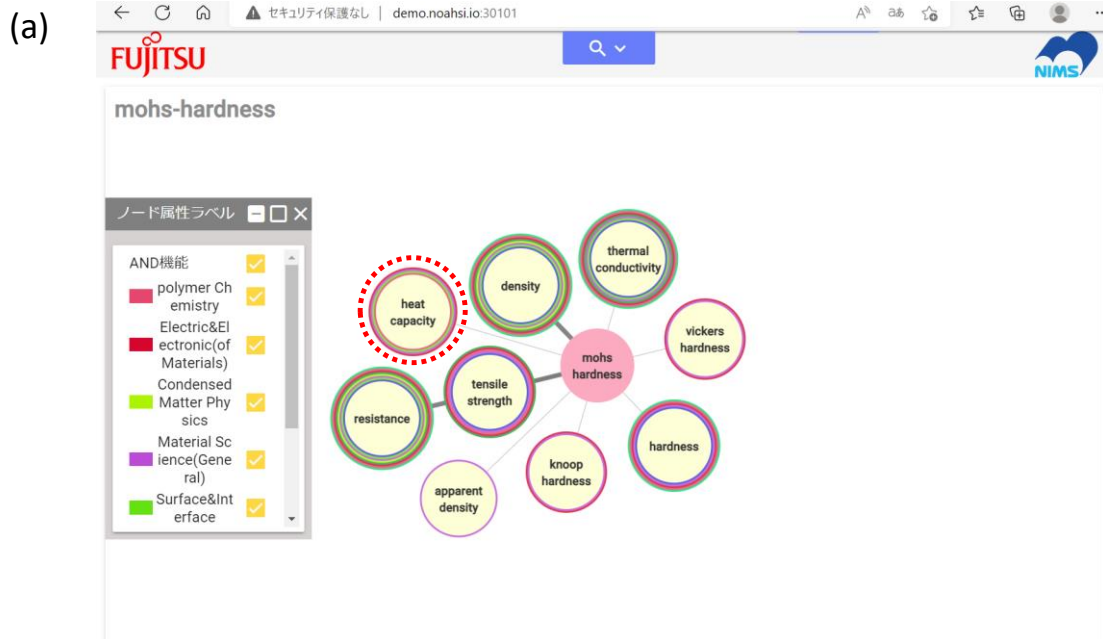
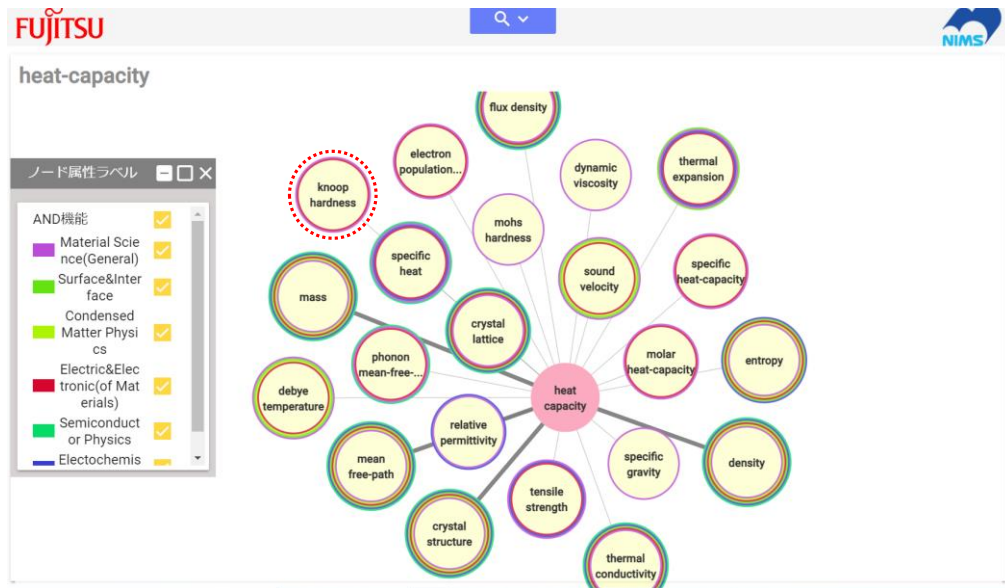


図7 (a) 多種ある hardness の内, Mohs hardness と関係性している物性を支援システムより表示させたもの。(b) 表示された物性之内, 同類(機械的性質)ではなくデータベースに物性値が豊富に存在する別の物性として heat capacity at constant pressure を選んで, AtomWorkAdv で作成した二つの物性値のプロット。

(a)



(b)

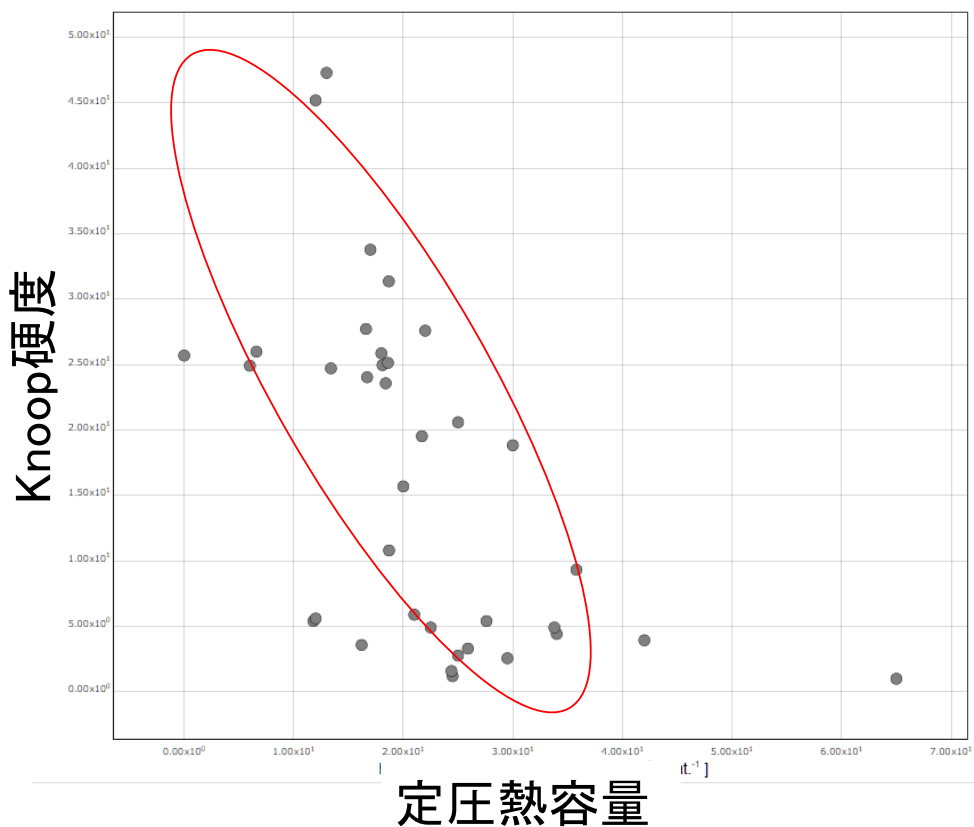


図8 (a) heat capacity(熱的性質)と関係している物性を支援システムより表示した例。図7の Mohs hardness とは異なる hardness である Knoop hardness との関係性が見つかった。(b) AtomWorkAdv の物性値データからプロットした heat capacity at constant pressure と Knoop hardness の関係。

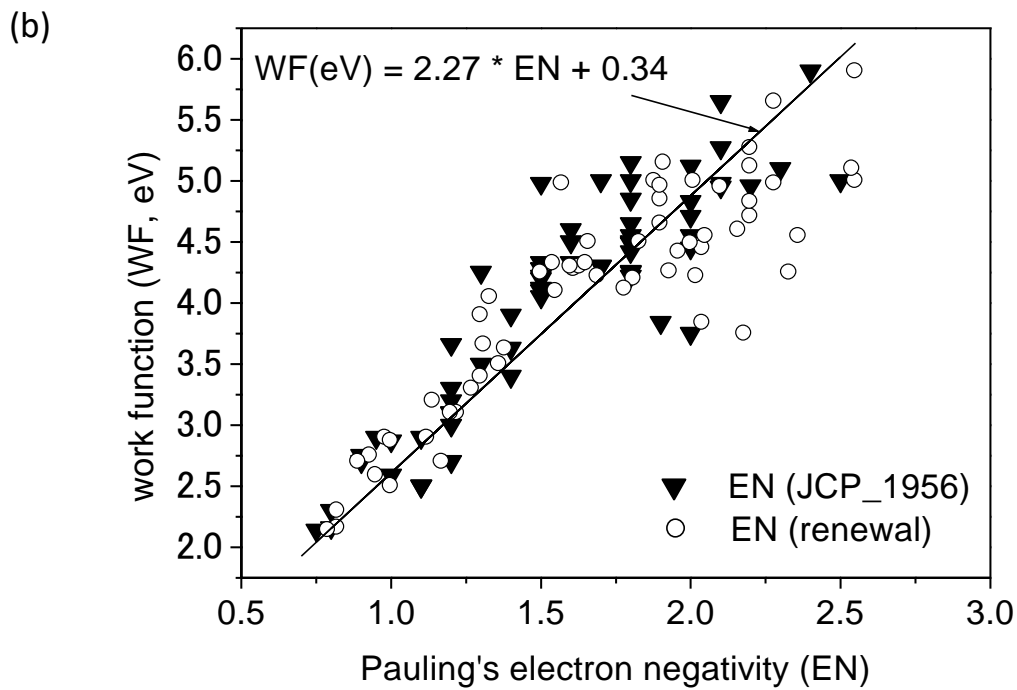
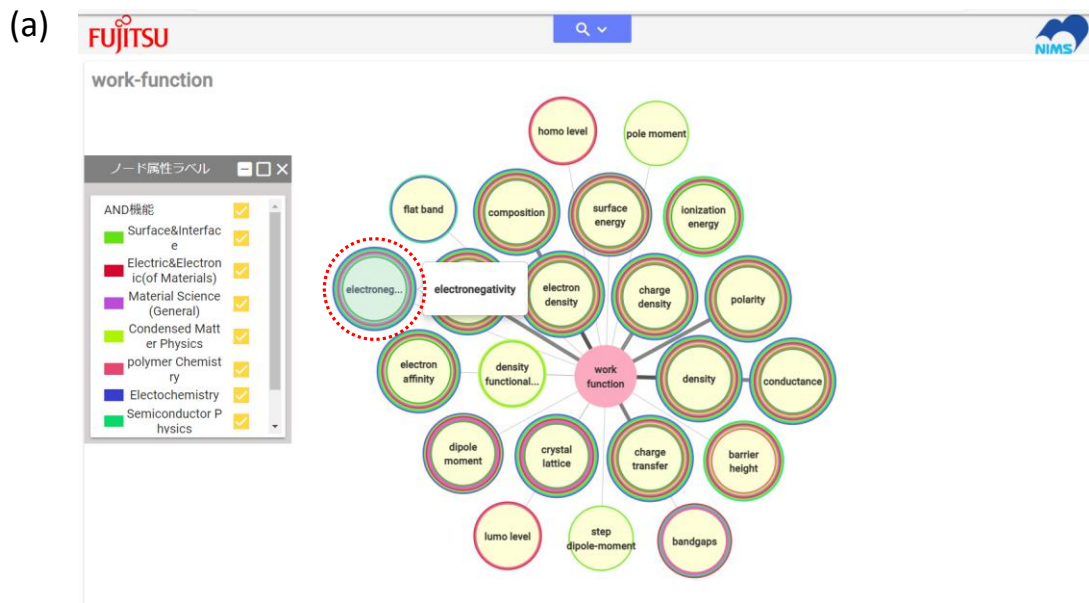
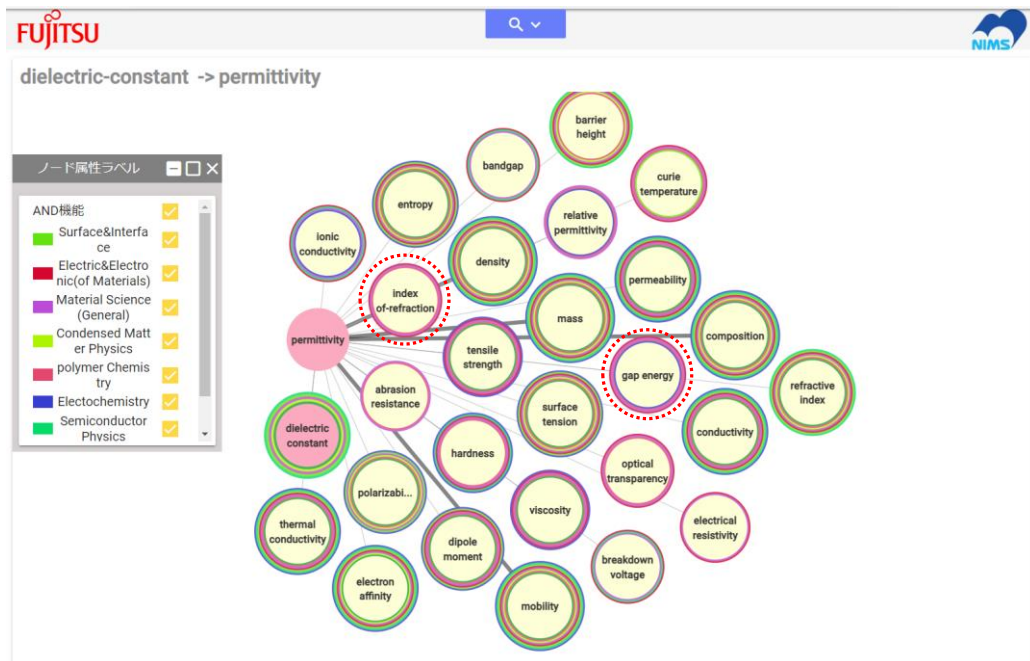
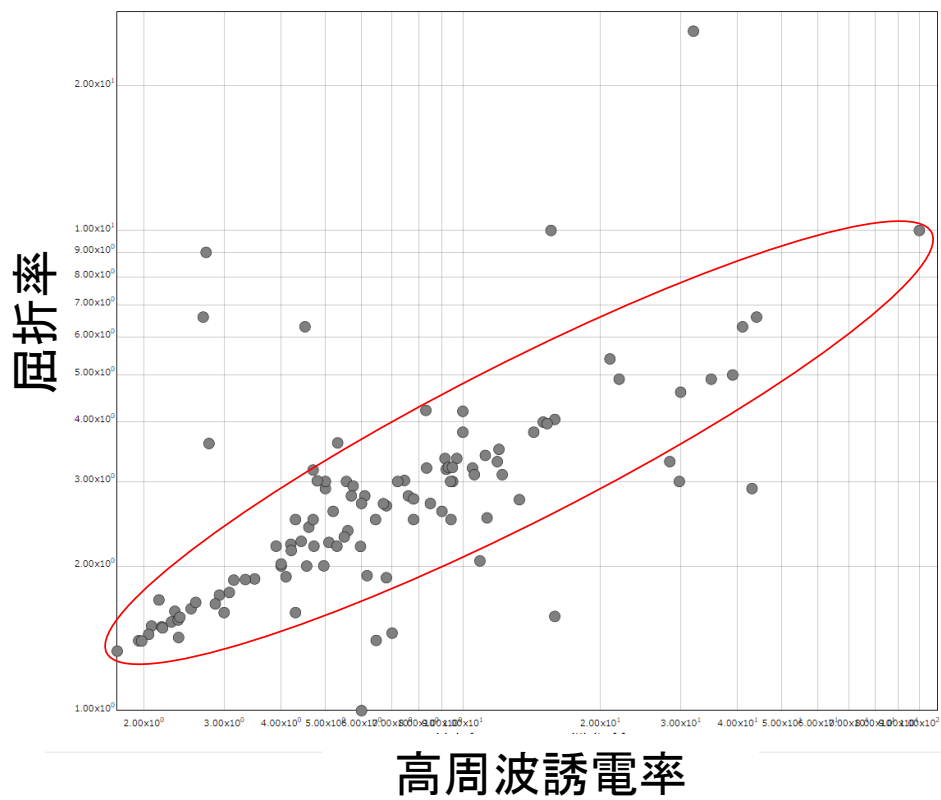


図9 (a) work function(仕事関数)と関係する物性を支援システムより表示させたもの。work functionと electronegativity(電気陰性度)が繋がっている。(b) 金属の平均的な仕事関数が電気陰性度と比例することは良く知られており、確かに work functionと electronegativity の数値にはよい相関がある[17]。

(a)



(b)



(c)

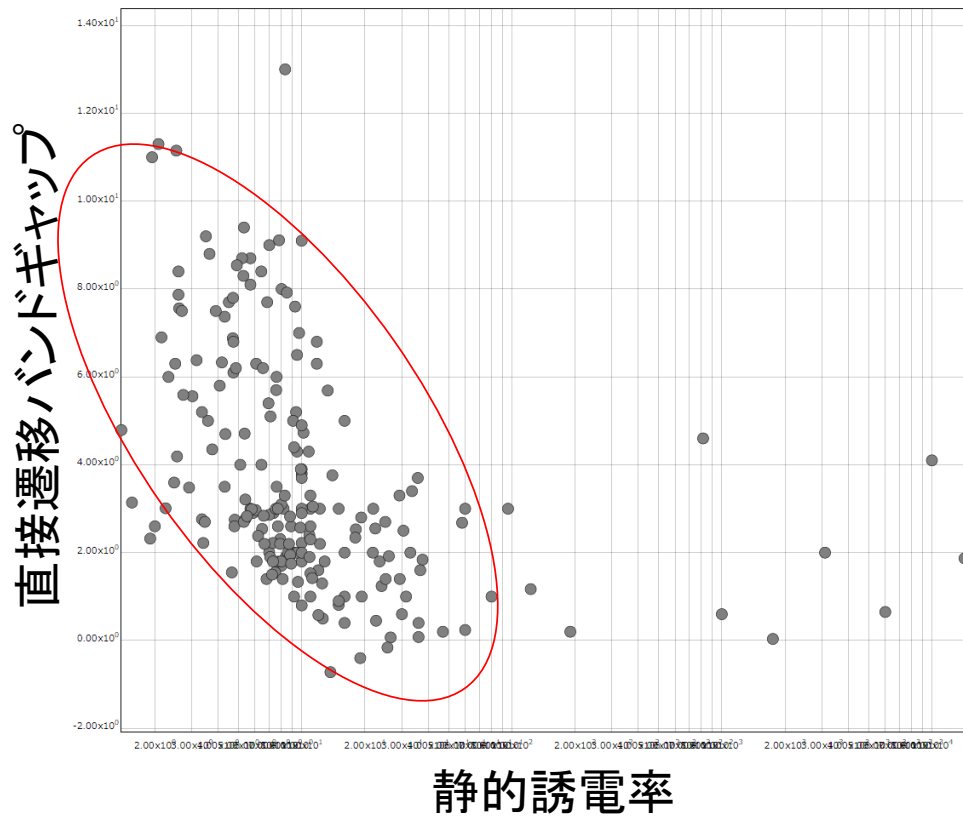
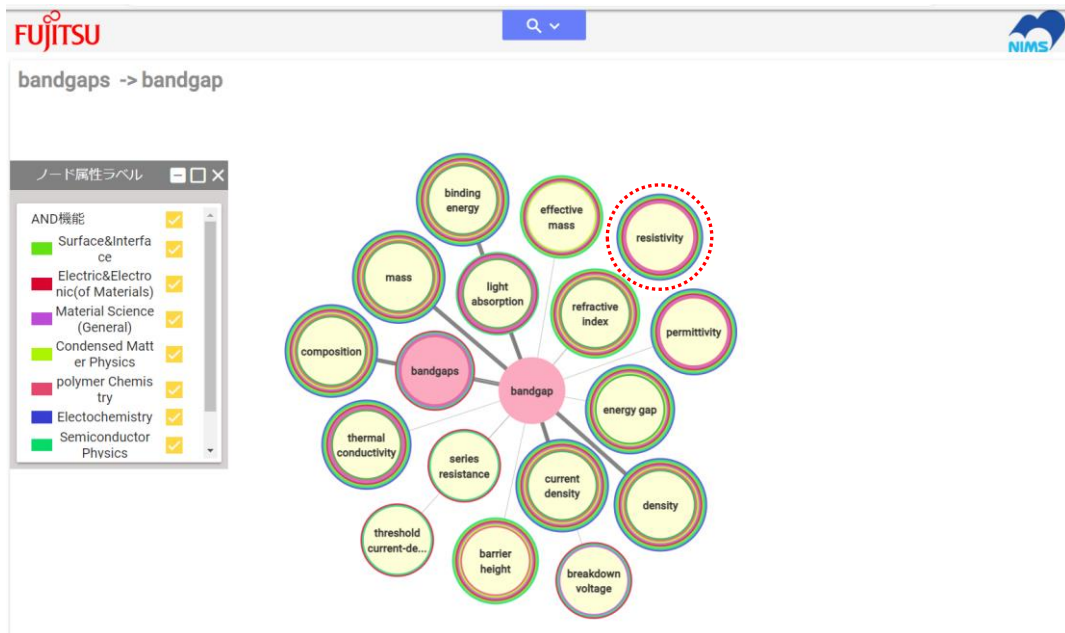


図10 (a) permittivity(誘電率)と関係する物性を支援システムより表示させたもの。(b) 良く知られているように, index of refraction(屈折率)は誘電率を用いて数式で表すことができ, AtomWorkAdv の数値データにおいても高周波誘電率(電子由来:光の周波数に相当)と屈折率の間には相関が見られる。(c) 支援システムで表示された energy gap との繋がりについて, AtomWorkAdv の数値データより static permittivity(静的誘電率)と energy gap for direct transition(直接遷移バンドギャップ)の間に相関が見られる。

(a)



(b)

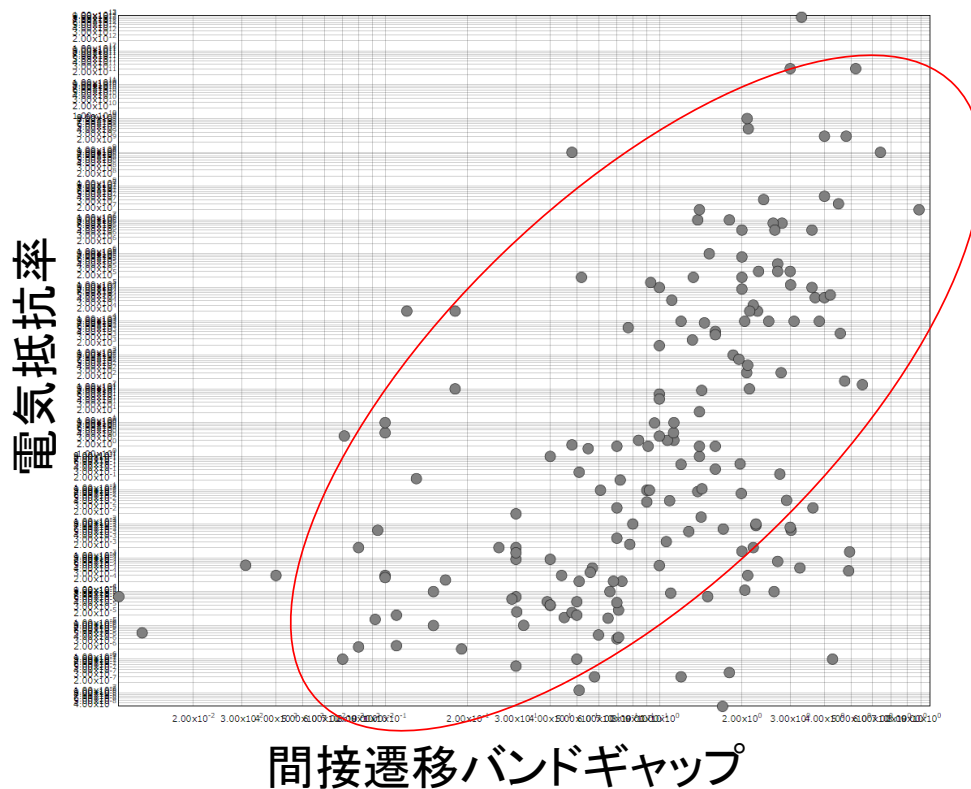
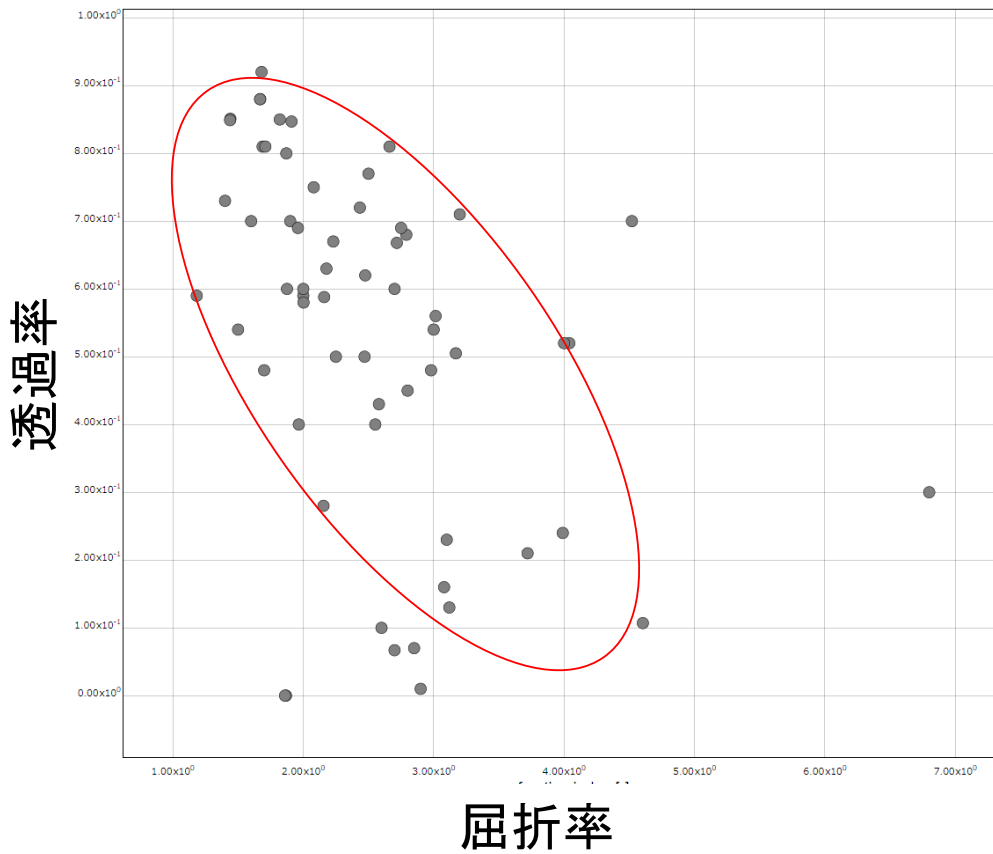


図11 electrical conductivity(電気伝導率)は electrical resistivity(電気抵抗率)の逆数で, bandgap(バンドギャップ)によって決まる。実際に, 支援システムにおいても関係性が表示される(a)。AtomWorkAdv より, energy gap for indirect transition(間接遷移バンドギャップ)と electrical resistivity との間に正の相関が見られる(b)。

(a)



(b)



(c)

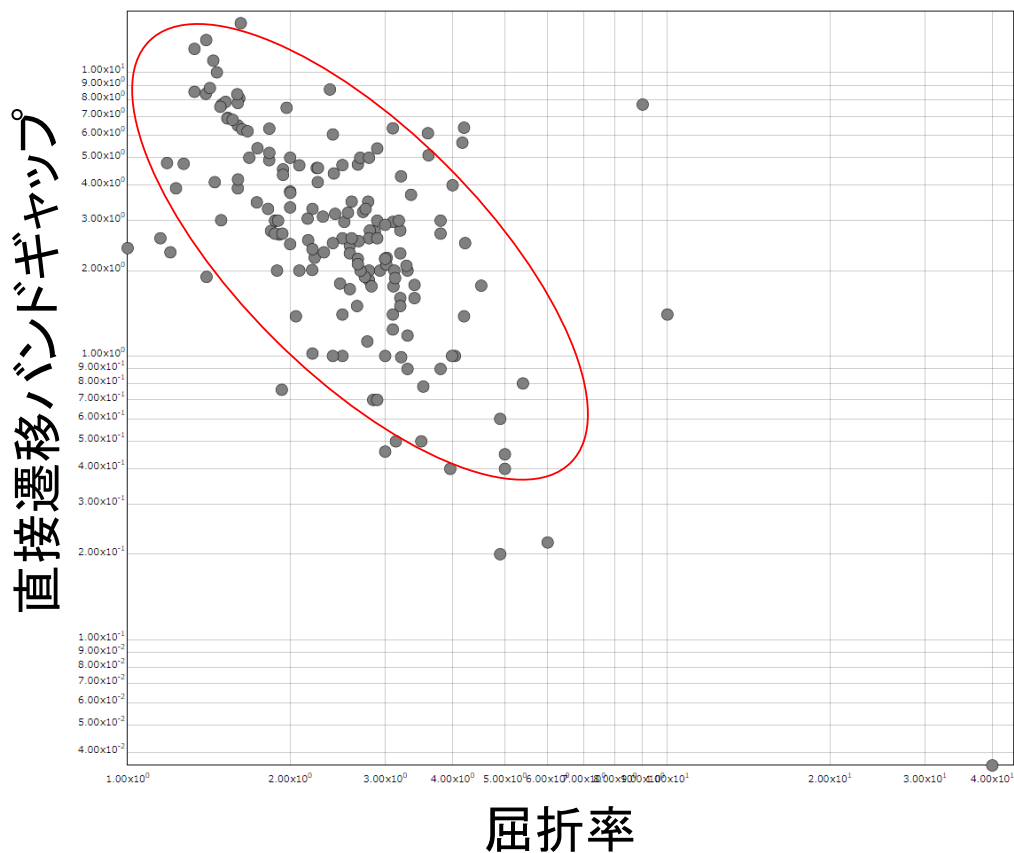


図12 図 10(a)で見たように, refractive index (=index of refraction, 屈折率) は permittivity(誘電率)を用いて数式で表すことができる。(a) refractive index からさらに関係している物性を支援システムで表示した画面。transmittance や energy gap が現れる。(b) AtomWorkAdv より refractive index と transmittance の数値をプロットしたもの。(c) AtomWorkAdv より refractive index と energy gap for direct transition の数値をプロットしたもの。

(a)



(b)

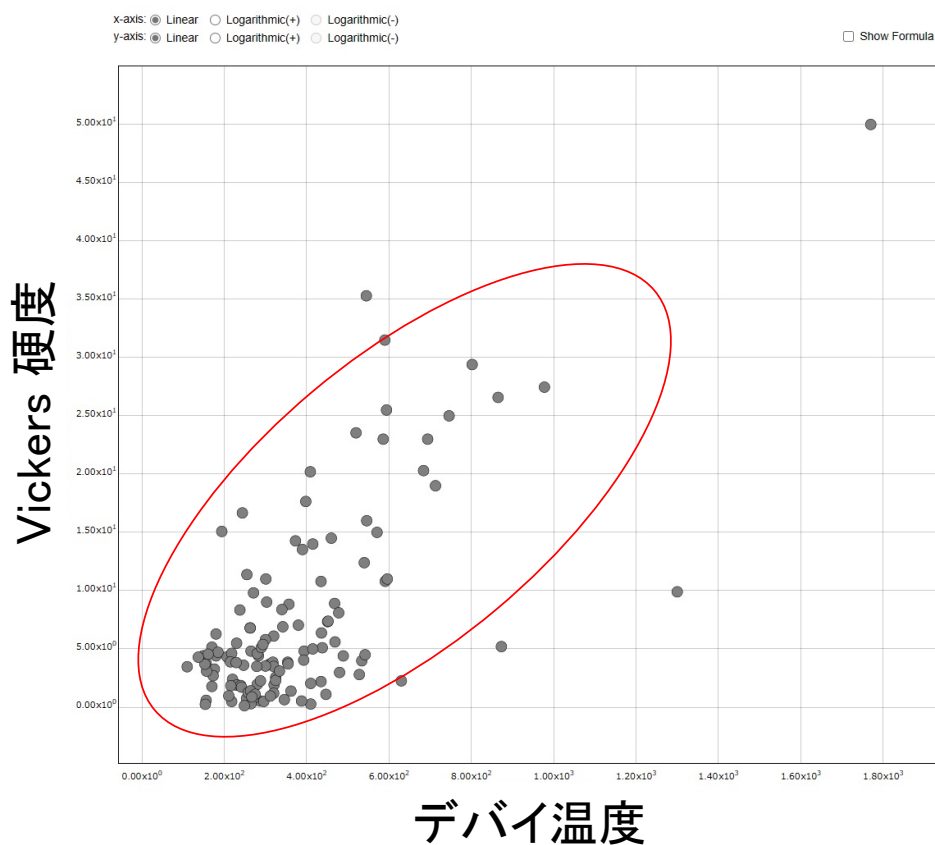
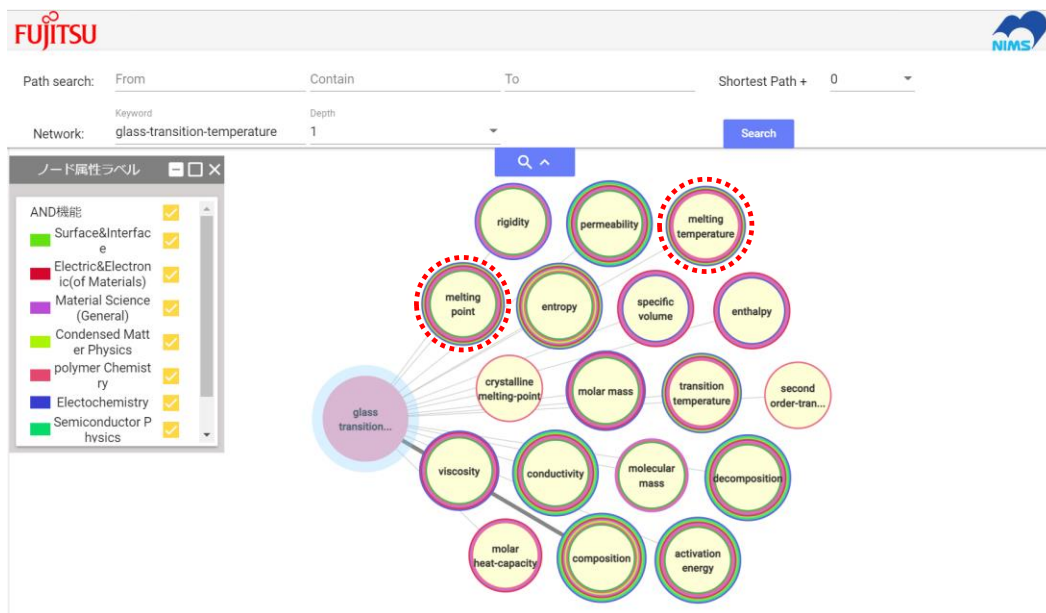


図13 (a) Debye temperature(熱的性質)から熱と関係がなさそうな繋がりを支援システムを使って探した結果の例。Mohs hardness を経由して Vickers hardness や Knoop hardness との繋がりが表示された。(b) AtomWorkAdv より、Debye temperature と Vickers hardness number との間の物性値の相関をプロットしたものの。

(a)



(b)

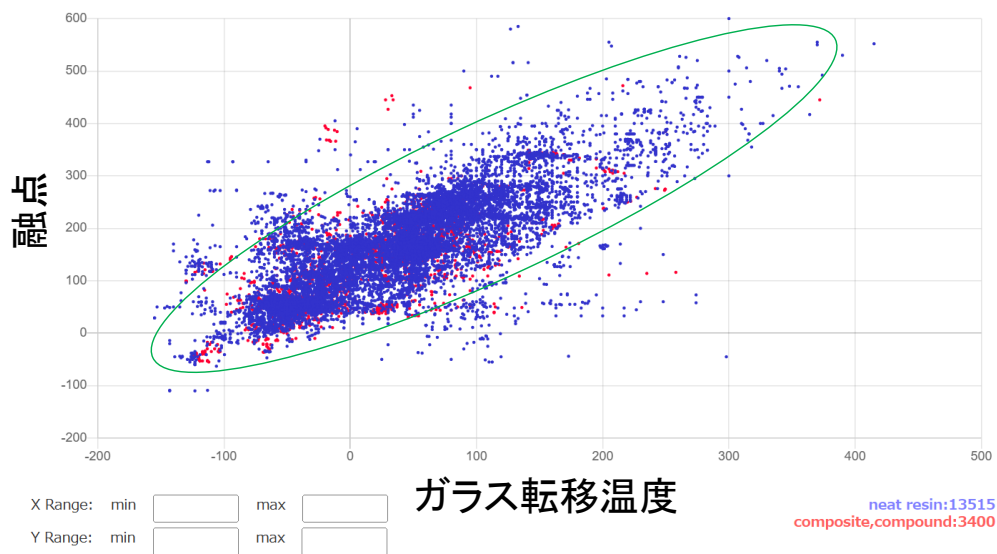
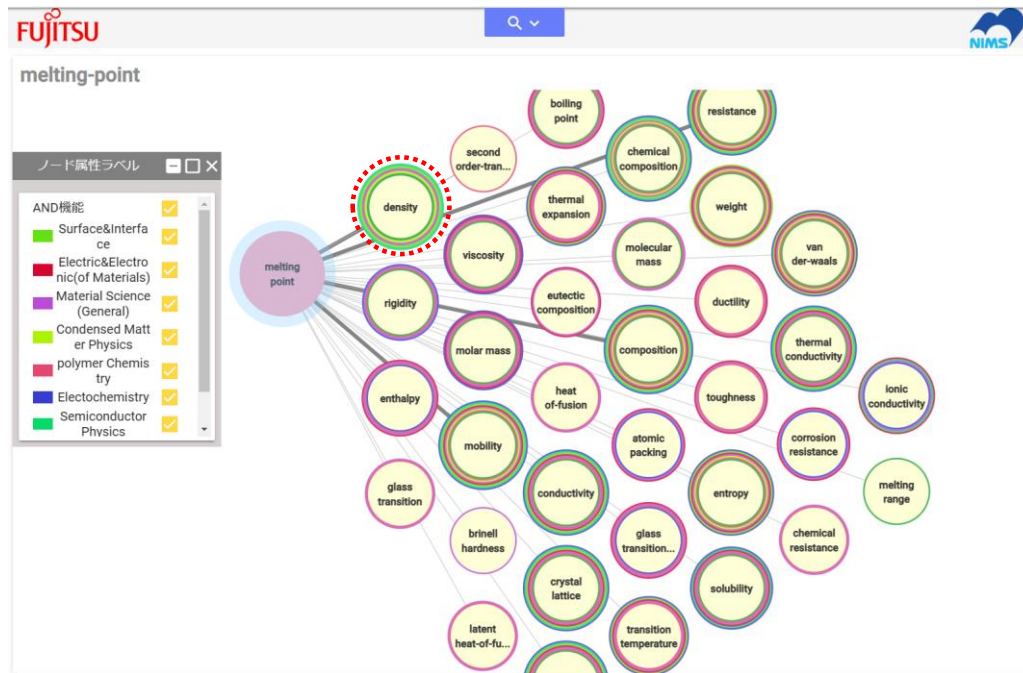
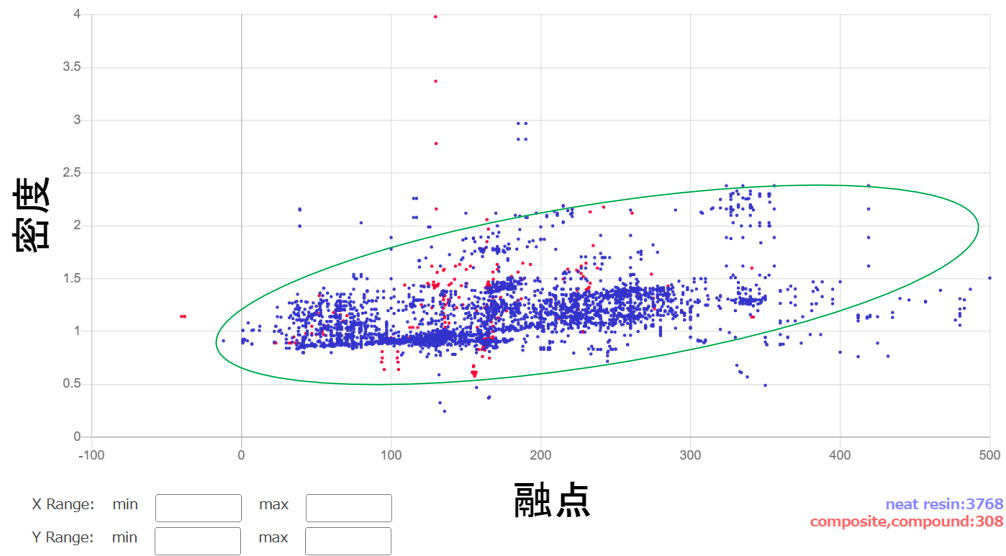


図14 (a) 支援システムにおいて Glass transition temperature と関係している物性を表示させたもの。melting temperature, melting point(同じ意味:名寄せができていない)が繋がっている。(b) データベース PoLyInfo[18]を用いて Glass transition temperature と melting temperature の数値の相関をプロットしたもの。

(a)



(b)



(c)

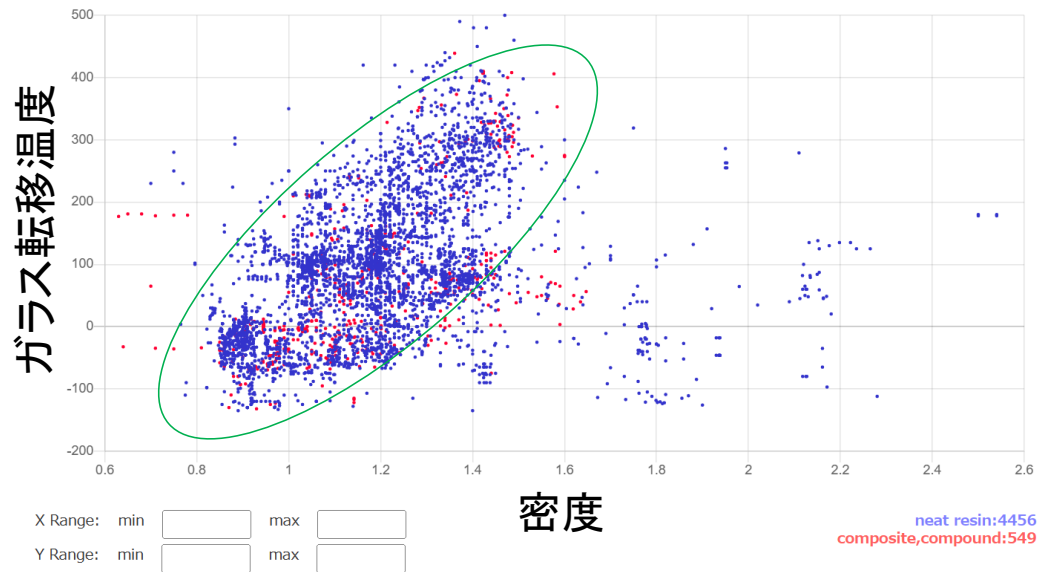


図15 (a) 支援システムにおいて表示される melting point と関係している物性。(b) 表示された物性の一つ density と melting temperature の値の相関を PoLyInfo においてプロットしたもの。(c) 図 14(b) と上の density と melting temperature の相関から予想される, density と Glass transition temperature の数値の相関を PoLyInfo においてプロットしたもの。

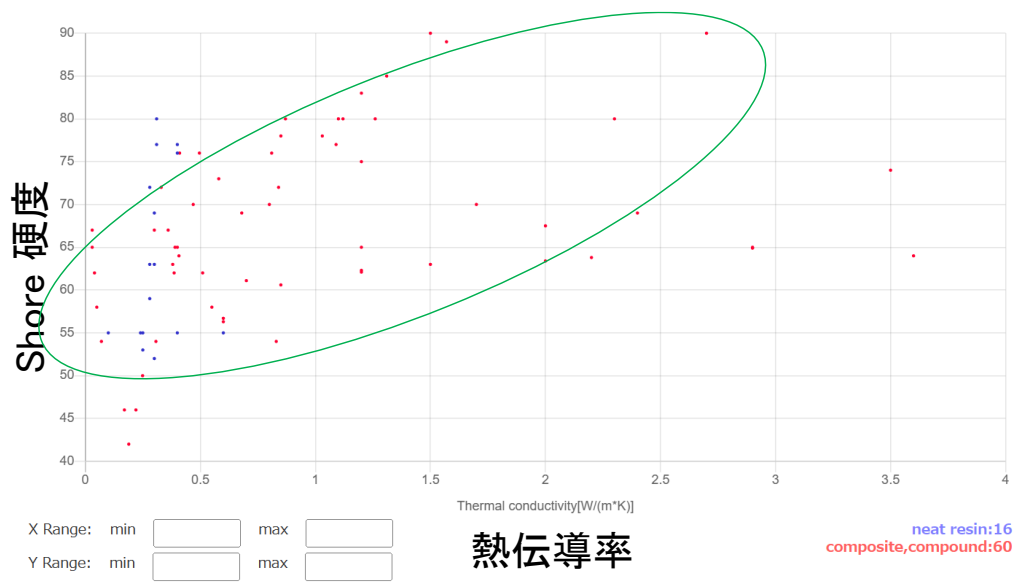


図16 支援システムにおいて関係性が表示され、無機材料のデータベースにおいて相関が見られた(図6)thermal conductivityとhardnessについて、高分子材料のデータベース PoLyInfo において相関をプロットした図。

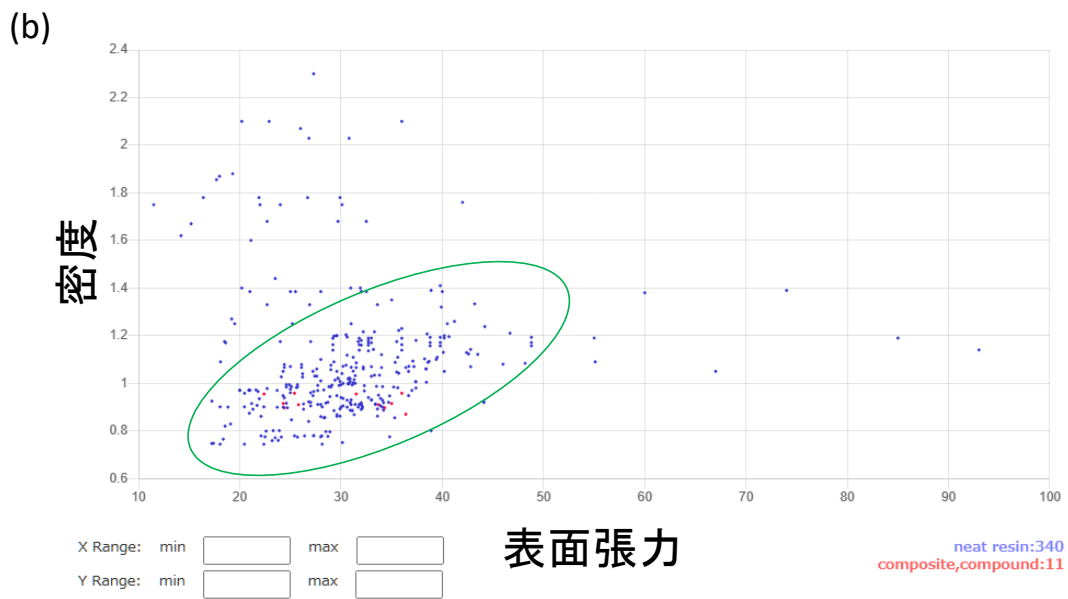
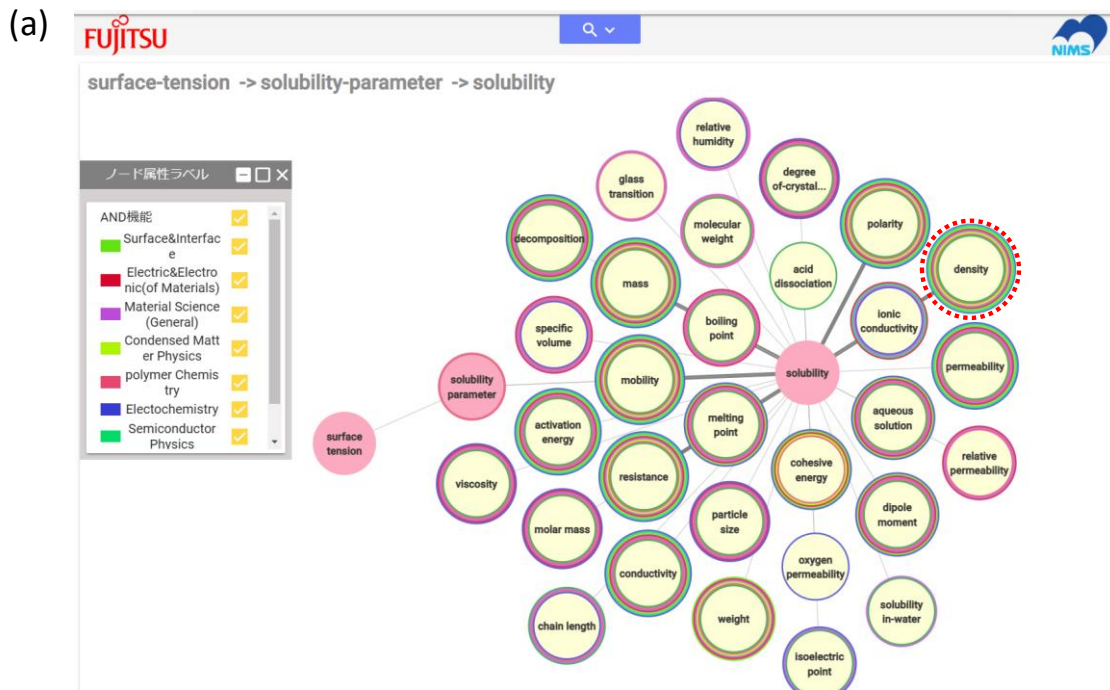


図17 (a) 支援システムにおける surface tension から solubility parameter, solubility, density へのつながり表示。(b) PoLyInfo に数値があって相関を調べられる surface tension と density との間の数値データのプロット