

機械学習で新しい超伝導物質を探索する -21世紀版マティアス則の構築-

本学大学院工学研究院の松本 要（まつもと かなめ）教授と堀出 朋哉（ほりで ともや）准教授は、最新の物質データベースと機械学習を用いて、任意の多元系物質の超伝導臨界温度 T_c を予測する手法開発に世界ではじめて成功しました。

ポイント

- ・機械学習を用いて、任意の3元系物質群の T_c 分布を網羅的に調べる手法を世界ではじめて開発
- ・データセットに含まれていない鉄系超伝導体の T_c も正確に予測
- ・ T_c が 30 K を超える、あたらしい多くの超伝導候補物質群を発見

今回の予測手法の開発にあたり、超伝導体の T_c を理論的に予測することは現在でも大変難しい問題ですが、機械学習で既知のデータを学習することで、未知物質の T_c を容易に予測することが可能となりました。例えば周期表から 80 種類程度の元素を 3 種類選択するとその組み合わせの数は約 8 万、さらにそれぞれの組み合わせに関して、異なる組成を数 100 個程度選ぶとその組み合わせの数は 1000 万のオーダーになります。しかし、今回開発した手法は任意の元素の組み合わせに対して T_c を瞬時に予測することができるため、膨大な 3 元系物質探索空間を網羅的に調べ T_c の最大値を予測することを可能とします。

今後、学術的な観点から、これまで探索されていない元素の組み合わせ領域を調べることで、 T_c の高い超伝導物質群を発見していくこと、さらには今回の手法を、他の機能性物質の探索にも応用展開していくことが期待されます。

この研究成果は、応用物理学会の学術誌「アプライド・フィジックス・エクスプレス (APEX)」において、2019年6月28日付けで出版されています。（オンライン版は6月12日に公開）

また本論文はアプライド・フィジックス・エクスプレスの 2019 年度のスポットライト論文にも選ばれています。（<https://doi.org/10.7567/1882-0786/ab2922>）

【お問い合わせ】

九州工業大学総務課広報企画係（用正）

電話：093-884-3007 Mail：sou-kouhou@jimu.kyutech.ac.jp

【研究内容に関するお問い合わせ】

九州工業大学 大学院工学研究院 物質工学研究系 教授 松本 要

電話：093-884-3366 Mail：matsu@post.matsc.kyutech.ac.jp

【背景】

材料・物質開発は、開発者の経験・直感に依存する度合いが大きく、その開発には長い時間とコストが必要です。加えて材料そのものも多様化・複雑化するにつれその物性や機能の理解も困難になってきています。そのためより効率的・網羅的な方法であると同時に、物性・機能の理解のヒントも与えてくれる新しい材料開発手法が必要となっています。第一原理計算^{*1}、物質データベース、および人工知能技術を活用するマテリアルズインフォマティクス^{*2} (Materials Informatics) はこれらの要請に応えるものです。

超伝導臨界温度^{*3}T_cが高い新物質を理論的に予測し、材料開発につなげていくことは現在でも極めて難しいことですが、この課題を追及することは材料科学の発展においては大変重要です。物質の臨界温度 T_c を予測する手法に関しては、古くから様々な理論的研究があり、有名なバーディーン・クーパー・シュリーファーによる BCS 理論^{*4}に基づいて、超伝導物質の T_c を予測するマクミランの式などが知られています。特にこの式は、最近、ランタン水素化物^{*5}が超高压下において室温にせまる T_c を持つという予測に用いられ、実験遂行における大きな動機を与えました。その後、実際に超高压実験も行われ、2019 年に 170 万気圧において T_c=250 K (-23°C) を実現するという快挙につながりました。しかしマクミランの式の適用はフォノン機構超伝導体^{*6}に限定され、また、大規模計算によって物質の結晶構造と電子-フォノン結合定数を決定する必要があります。そのため、複雑な未知の高 T_c 物質群の網羅的な探索に用いることは現時点では困難です。

一方、初期の超伝導物質探索においてマティアス則^{*7}が活躍しました。マティアス則とは遷移金属およびその合金の T_c がある特定の物質パラメータの組み合わせにおいて極大になるという経験則で、多くの超伝導物質の発見につながりました。ところが最近、計算機パワーの進展に伴い、まったく新しい経験的な T_c 予測法が生み出されつつあります。つまり、最新の超伝導データベースと人工知能技術の一種である機械学習^{*8}パッケージを用いて、計算機に既知物質の T_c 実験値とその元素の組み合わせを学習させ、得られた学習ルールを未知物質の元素の組み合わせに適用して T_c を予測する新手法です。これは 21 世紀版のマティアス則とよばれるようなもので、本論文はこの新しい超伝導物質探索手法の第一報です。

【研究成果の概要】

本研究においては、データベースと機械学習を用いて、3 元系物質探索空間における T_c 分布を網羅的に調べる手法を開発しました。その結果、希ガス元素を除く周期表の第 1 周期の水素から第 6 周期のビスマスまでの 78 元素の組み合わせからなる $\alpha_a\beta_b\gamma_c$ 3 元系物質群 (組み合わせ数 ${}_{78}C_3 = 76,076$ 個) に対して T_c 予測を実施し、任意の 3 元系物質とその組成に依存した T_c 分布図を作成することに成功しました。データベースに基づく機械学習では、大規模計算を必要とせず、比較的容易に組成と T_c との関係性を明らかにできるので、効率的な実験的検証が可能になると期待できます。

一般に、機械学習は統計手法を大量データに適用し、データ間に存在する有用な規則や分類を抽出する方法です。例えば、超伝導体の T_c を機能 F とする場合、膨大な材料データの探索空間から、訓練セットとして既知の F とそれに付随した構成元素の特徴や組成に関する情報を x_1, x_2, \dots, x_n という n 個の記述子^{*9}として選択し、計算機に $F = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$ の関係を学習させます。今回は

種々の物質データベースから、原子番号、原子量、価電子数、周期、族、ファンデアワールス半径、共有結合半径、ポーリング電気陰性度、電子親和力、第一イオン化エネルギー、融点、各種軌道電子数、等々の情報を取得し、これらを用いて 53 個の記述子を作成しています。その結果を探索空間の他の元素と組成の組み合わせに適用して T_c を予測することで、最適な T_c を持つ物質群を選び出すことができます。本研究では、物質材料研究機構 (NIMS) によって長年にわたって収集されてきた超伝導材料データベース^{*10}SuperCon を基本とし、既知物質群と T_c の関係について調べました。特に

今回は 3 元系物質に着目し、超伝導物質データ群として AlB_2 、シェブレル、 A15 (Cr_3Si)、スピネル、 NaCl (B1)、スクッテルダイト型の金属・化合物系超伝導体 2000 個程度を SuperCon から選択し、これに元素型超伝導の T_c を加えて、3 元系物質の構成元素、組成の組み合わせ、および T_c 実験値とのデータセットを収集しました。なお、今回は 3 元系に着目したため銅酸化物超伝導体^{*11}や鉄系超伝導体^{*12}はデータセットから省いています。そのためデータセット中の最高の T_c は MgB_2 超伝導体^{*13}の 38.6 K です。

図 1 にこうして得られた予測手法に基づく T_c 予測値と T_c 実験値との相関関係を示します。予測精度を表す R^2 決定係

数^{*14}は訓練データにおいて平均で 98%、テストデータでは 92%に達し、実用的にも十分な高い精度が得られていることが分かります。例として、図 2 には本予測手法によって得られた Mg-B-Ti 系における T_c 分布図を示します。絶対零度における相平衡状態図も併記しました。高い T_c の領域は MgB_2 に対応する $\text{Mg} : \text{B} = 1 : 2$ 組成近傍に集中しており、その最大値は 38 K となって実験結果を正しく反映しています。図 3 には、鉄系超伝導体の発見以降に見いだされた Fe-Te-Se 系における T_c 分布図と状態図を記しました。状態図と比較すると、高 T_c の領域は FeTe と FeSe をつなぐ線上に存在し、予測 T_c の最大値は ~ 14 K です。この結果はこれまでに報告されている $\text{FeTe}_{1-x}\text{Se}_x$ の T_c の x 依存性の実験結果を正確に再現していることが分かっています。ここで特筆すべきは、今回のデータセットにおいては、鉄系超伝導体に関するデータを一切含んでいないにもかかわらず、正確

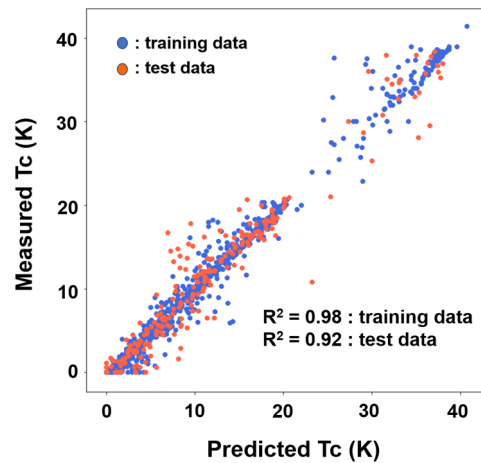


図 1 機械学習による T_c の予測値と実験値の比較

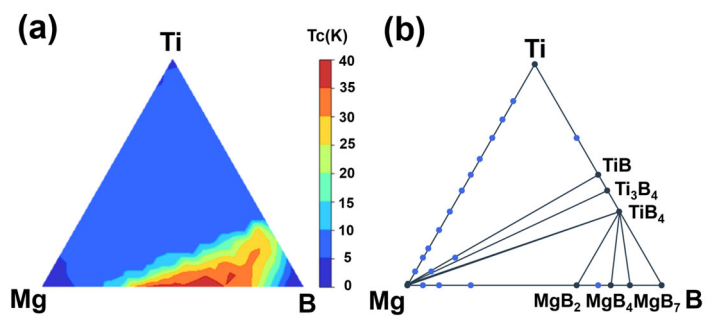


図 2 機械学習による Mg-B-Ti 3 元系の T_c 分布予測図

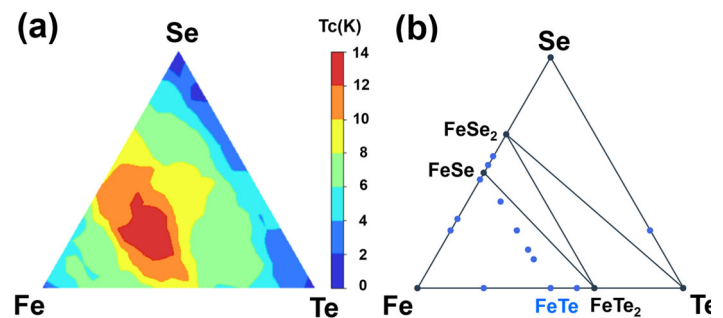


図 3 機械学習による Fe-Te-Se 3 元系の T_c 分布予測図

に Fe-Te-Se 系の T_c 分布を予測できた点です。これは本予測手法が、未知の物質系においてもうまく機能しうることを示す重要な結果です。

【今後の展開】

本研究においては各種の材料データベースと機械学習を用いて 3 元系物質の超伝導臨界温度 T_c の予測手法を世界で初めて確立しました。この手法を用いて予測した Mg-B-Ti 系や Fe-Te-Se 系の T_c 分布図は実験値とよい対応を示しており、特に鉄系超伝導体のデータはデータセットに含まれていないにもかかわらず、正しく T_c を予測できたことは本予測手法の有効性を示しています。すでにこの方法を使って 30 K を超える T_c を有する新超伝導物質候補が多数見つかっています。今後は、より高い T_c を有する銅酸化物高温超伝導体および鉄系超伝導体のデータを加えて新たなデータセットを構築して機械学習を実施し、物質探索空間を 4 元系および 5 元系へと広げていくことで従来の T_c を超える新物質候補を見出すことを進めていきます。さらに、実験的検証用として、高いスループットで候補物質を合成・評価する新手法の構築にも着手する予定です。

【用語】

- *1 第一原理計算：計算対象となる物質系を構成する元素の原子番号と系の構造を入力パラメータとし、実験結果を参照しないで系の電子状態を求める最新の計算手法
- *2 マテリアルズインフォマティクス：コンピュータによる情報科学の手法を材料科学に取り入れた学問分野
- *3 超伝導臨界温度：特定の物質を低温に冷却したときに、電気抵抗が急激にゼロになる現象を超伝導とよび、そのときの境目の温度を臨界温度 T_c とよぶ
- *4 BCS 理論：1957 年に米国、イリノイ大学のジョン・バーディーン、レオン・クーパー、ジョン・ロバート・シュリーファアの三人によって提唱された超伝導の基礎理論
- *5 ランタン水素化物：ドイツのマックス・プランク研究所の科学者らによって、2019 年に超高压下および -23°C で超伝導状態になることが確認された新超伝導物質
- *6 フォノン機構超伝導体：結晶中の格子振動と電子との相互作用を媒介として超伝導を示す物質群で、BCS 理論によって記述される
- *7 マティアス則：遷移金属およびその合金の T_c がある特定の物質パラメータの組み合わせにおいて極大になるという経験則
- *8 機械学習：人間が持つ学習にあたる仕組みをコンピュータで実現する技術・手法の総称で、人工知能技術の一種である
- *9 記述子：物質や材料のデータを機械学習する際に、それらの物質や材料を特徴づけるものとして選択される重要なパラメータ群
- *10 超伝導材料データベース：例えば、物質材料研究機構において、長年にわたって収集されてきたデータベースとして SuperCon (<https://supercon.nims.go.jp>) がある
- *11 銅酸化物超伝導体：1986 年にベドノルツとミュラーによって見出された高 T_c の物質群で、最大の T_c は水銀系で常圧下において 133 K である
- *12 鉄系超伝導体：2008 年、東工大の細野らによって発見された磁性元素である鉄を含む物質群

で、最大の T_c は常圧下において 55 K である

*13 MgB_2 超伝導体：市販もされありふれた材料として埋もれていたが、2001 年、青学大の秋光らによって $T_c = 39$ K の物質として発見された

*14 R^2 決定係数：機械学習モデルによる予測値が実際の値とどの程度一致しているかを表現する評価指標で、1.0 であれば 100%一致することを意味する

【論文】

論文誌名：Applied Physics Express

タイトル：An acceleration search method of higher T_c superconductors by a machine learning algorithm

著者：Kaname Matsumoto and Tomoya Horide

所属：Department of Materials Science and Engineering, Kyushu Institute of Technology, Tobata-ku, Kitakyushu 804-8550, Japan