

パーシステンス図による電池素材性能の特徴量探索

竹内 博志 (滋賀大学) *

共同研究者：山崎 久嗣 (トヨタ自動車)・菊池 夏希 (トヨタ自動車)
高柳 昌芳 (滋賀大学)・江崎 剛史 (滋賀大学)

電池素材の探索

自動車産業では環境保全や排ガス規制に対応するため、バッテリーを利用して電気モーターで駆動するバッテリー電気自動車やハイブリッド車の開発が年々加速している。現在自動車に搭載されるバッテリーは液体電解質を用いたリチウムイオン電池（以降、液体リチウム電池）が主流であり、これはリチウムイオン伝導性が高い（＝バッテリーとしての性能が高い）ためである。一方で液体リチウム電池には短所があり、例えば電解液が揮発したり、液漏れを起こしたりする可能性があるなどの課題がある。そこで現在注目されているのが、電解質に液体ではなく固体の素材を採用する全固体電池である [1]。すべての素材を固体とすることで揮発性や液漏れの問題をクリアできるが、従来はリチウムイオン伝導性が液体リチウム電池よりも低い素材しか知られておらず、LGPSをはじめとした高性能な固体素材が発見され始めたのは 2011 年頃からである [2, 3]。

固体素材には何らかの結晶を用いる。結晶構造を取得する有用な手段である結晶構造データベースには、毎年数万件以上のペースで結晶構造が登録されており、誰でも自由にアクセスすることが出来る [4, 5]。その一方で、材料特性も登録されているデータベースの登録数は比較的少数に留まっているため、多くの結晶構造に対しては材料特性を得ることができない。材料特性を知るためには、実験を行う、または長時間かかるコンピュータシミュレーションを実行する必要がある、きわめて高い時間的、金銭的コストが必要になる。

本研究プロジェクトでは、機械学習を活用するマテリアルズ・インフォマティクス手法を用いて、有用な材料特性を示すことが期待される候補物質を効率的に探索する手法の構築を目標としている。講演者の竹内はトポロジカルデータ解析を用いて、結晶データの幾何的な配置構造のみから、リチウムイオン伝導性を予

測する手法の開発に取り組んでいる。

トポロジカルデータ解析とパーシステンス図

トポロジカルデータ解析は 2000 年代初頭から発展を始めた比較的新しいデータ解析手法であり、データの持つ幾何的な特徴（トポロジー）を記述することができる [6, 7]。データの幾何的な特徴量を記述する代表的な手法がパーシステンス図であり、1 枚の平面図でデータに潜在する円周状の穴（もしくは球面状の空洞）の種類や数を表現することができる。

機械学習に特徴量として用いるには、このパーシステンス図を何らかの方法でベクトル化する必要がある。本研究で用いるベクトル化の手法は、データの幾何スケールを 1 パラメータで動かした場合の穴の数の変化を表す Betti 曲線を採用した。他にもよく知られた有力なベクトル化の手段として、パーシステンス図を 2 次元ヒストグラムとしてベクトル化する方法もあるが、後述の機械学習プロセスでは実計算上の問題が生じたので、その試行についても紹介したい。

機械学習による予測と特徴量探索

機械学習を行う際、どの機械学習モデルを採用するかを決める必要がある。例えば説明変数の分布に制限があったり、説明変数が多数であるなど、データに関する知見や特徴があれば、それに応じたモデルを選択する。しかし、常にそのような知見が得られるとは限らない。そのような場合に有用となるのが自動機械学習 (Automated Machine Learning, AutoML)、つまり機械学習プロセスを自動化する方法である。AutoML では様々なモデルを並行して扱うことができ、パラメータの最適化を行いながら精度を高め、最終的にどのモデルの性能が良かったかを比較することができる。ここでは Python の AutoML ライブラリである PyCaret [8] を用いた。結論としては、モデルとして LightGBM を用いた場合に R^2 値が高い傾向が見られ、従来手法による予測結果と同等もしくはそれ以上の予測結果が得られた。

* e-mail: hiroshi-takeuchi@biwako.shiga-u.ac.jp

では、実際にどのような幾何的特徴が素材性能に寄与したのだろうか？ LightGBM などの決定木ベースのモデルでは、特徴量の寄与度を表す SHAP (SHapley Additive exPlanations) [9] を用いて、穴の種類の順位付けをすることができる。その結果、リチウムの成す層状構造が高性能素材において顕著に現れることがわかった。

参考文献

- [1] 「出光とトヨタ、バッテリー EV 用全固体電池の量産実現に向けた協業を開始」出光興産株式会社, トヨタ自動車株式会社 (2023 年 10 月 12 日) <https://global.toyota/jp/newsroom/corporate/39898897.html> 2023 年 11 月 1 日閲覧.
- [2] Kamaya, N., Homma, K., Yamakawa, Y. et al. “A lithium superionic conductor” *Nature Mater* 10, pp. 682–686 (2011). <https://doi.org/10.1038/nmat3066>
- [3] 菅野了次「イオン導電体創出から固体電池構築へ」*応用物理*, 2021, 90 巻, 1 号, pp. 6–23. https://doi.org/10.11470/oubutsu.90.1_6
- [4] Gražulis, S., Daškevič A., Merkys A., et al. “Crystallography Open Database (COD): an open-access collection of crystal structures and platform for world-wide collaboration” *Nucleic Acids Res. England*. 40 (Database issue): D420-7 (2012). <https://doi.org/10.1093/nar/gkr900>
- [5] Crystallography Open Database. <https://www.crystallography.net/cod/>
- [6] Herbert Edelsbrunner, John L. Harer 「計算トポロジー入門」共立出版 (2023). <https://www.kyoritsu-pub.co.jp/book/b10032973.html>
- [7] 池祐一, E.G. エスカラ, 大林一平, 鍛冶静雄「位相的データ解析から構造発見へ - パーシステントホモロジーを中心に」サイエンス社 (2023). <https://www.saiensu.co.jp/search/?isbn=978-4-7819-1580-7&y=2023>
- [8] Ali, M. “PyCaret: An open source, low-code machine learning library in Python” (2020). <https://www.pycaret.org>
- [9] Lundberg, S.M., Lee, S. “A unified approach to interpreting model predictions”. *Advances in Neural Information Processing Systems* (2017). <https://dl.acm.org/doi/10.5555/3295222.3295230>