

半導体バンドギャップのアンサンブル学習

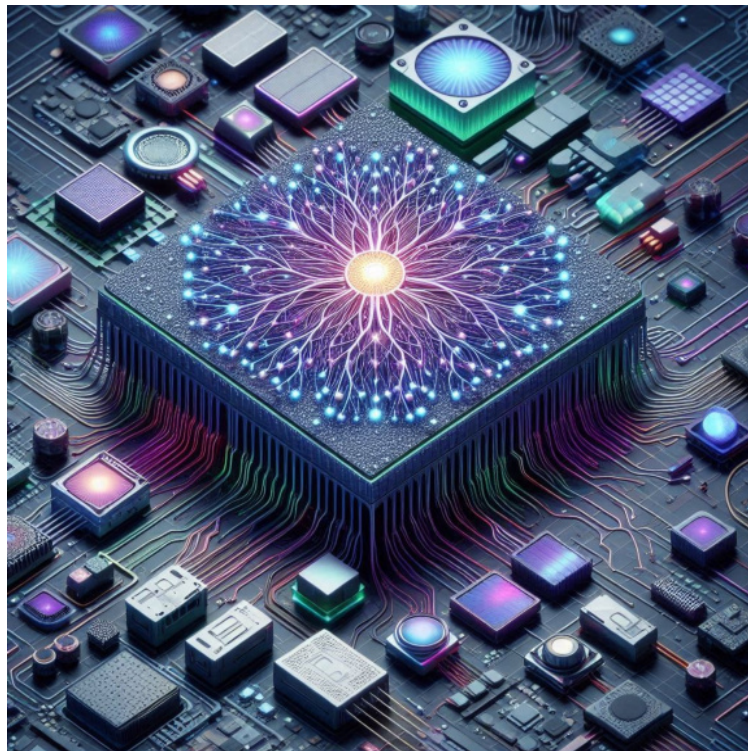
—世界最高の予測精度を達成—

概要

半導体のバンドギャップ^{*1}は、電子・光デバイスの性質を決定付ける重要な物性値です。デバイスの新規開発や性能向上には未知の半導体材料のバンドギャップの予測が有効ですが、これまでの計算法ではその精度や計算コストが課題とされています。

京都大学大学院工学研究科 田辺克明 教授、増田太一 同学部生（研究当時）の研究グループは、既知の材料の実測値をもとに機械学習法によって未知の材料の物性値を予測するデータ駆動型のアプローチに立脚し、従来は個別に検討されていたニューラルネットワーク^{*2}を組み合わせたアンサンブル学習^{*3}モデルを提案しました。開発したモデルは、化合物の組成のみからの予測を可能とし、無機半導体材料のバンドギャップについて、既存の機械学習モデルの中で最高となる予測精度を達成しました。今回の結果は、ニューラルネットワークのアンサンブル学習の活用により次世代半導体材料として有望な化学組成を効率的に探索できる可能性を示唆しており、今後の新規半導体材料の開拓に向け、高速かつ高精度な予測をもたらす有用な手法となることが期待されます。

本成果は、2024年9月9日（現地時刻）に米国の国際学術誌「*Computational Materials Science*」にオンライン掲載されました。



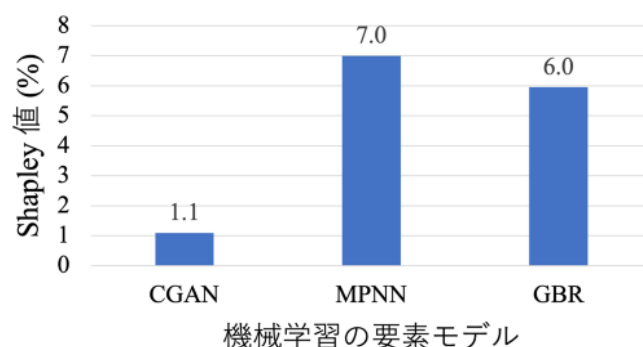
ニューラルネットワークによる半導体材料開発のイメージ

1. 背景

電子機器や光デバイスは半導体材料から作られます。それらの性能の向上のために、新規半導体材料の探索・開発が日々行われています。半導体の性質を決める最も重要なパラメータがバンドギャップです。そのため、未知の半導体材料のバンドギャップを予測することは重要です。半導体材料について、元素の組成や原子の配列の構造（結晶構造）からバンドギャップの値を計算する従来の代表的な方法として、密度汎関数理論^{*4}に基づく第一原理計算^{*5}などがありますが、計算コストが高いこと、結晶構造を知り、指定する必要があること（そのため構造が未知のものには適用できない）、基本的に絶対零度の温度における物性予測であるため、実用に則した常温周辺での精度に難があること、といった問題点がありました。そこで近年、既存の材料の実測値を網羅的に収集し、それをもとに機械学習法によって未知の材料の物性値を予測するデータ駆動型のアプローチが盛んに検討されています。

2. 研究手法・成果

本研究では、未知の材料においては原子の構造が不明であることから、元素の組成のみからの半導体バンドギャップの予測を試み、従来は個別に検討されていたニューラルネットワークを組み合わせたアンサンブル学習モデルを提案しました。結果として、勾配ブースティング回帰（gradient boosting regression, GBR）^{*6}、条件付き敵対的生成ネットワーク（conditional generative adversarial network, CGAN）^{*7}やメッセージパッシングニューラルネットワーク（message passing neural network, MPNN）^{*8}を組み合わせることにより、単一サポートベクター回帰（support vector regression, SVR）^{*9}モデル比で12%、従来の最良モデル比で5.7%精度が向上しました。このようにして今回開発したモデルは、実測値に対して平均絶対誤差0.348 eVを示し、無機半導体材料のバンドギャップについての既存の機械学習モデルの中で最高となる予測精度を達成しました。さらに、個々のモデルによる予測値をバイアスと分散の観点から分析し、各モデルの特徴を明らかにしました。また、Shapley値^{*10}、バイアス、分散をもとに各ベースモデルがアンサンブル予測に与える影響を検討したところ、CGANとMPNNの組み込みが予測精度の向上に大きく寄与していることが分かりました。しかしながら、CGANとMPNNを追加すると、アンサンブル予測値の分散が減少する一方で、バイアスは増加してしまうことも示されました。したがって、新規半導体材料のバンドギャップを予測するアンサンブル学習モデルを開発する際には、予測精度の向上だけでなく、バイアスと分散のバランスも考慮した解析を行うことが重要であると言えます。また、今回開発したアンサンブル学習モデルの計算負荷は軽く、一般的なノートPCでも数時間内に行うことができました。このため、高速に高精度な予測を可能とする手法であると言えます。



図：単一 SVR 比の向上率に基づく Shapley 値を用いた各モデルの寄与度の分析

3. 波及効果、今後の予定

本研究にて開発したバンドギャップの機械学習モデルは、今後の新規半導体材料の開拓に向けた、高速かつ高精度な予測を可能とする有用なツールとなることが期待されます。ニューラルネットワークのアンサンブル学習の活用により次世代半導体材料として有望な化学組成を効率的に探索できる可能性が示唆されるとともに、バンドギャップの予測精度をさらに向上させる新たなアンサンブル学習モデルの開発に有効な種々の知見が得られました。今後、本モデルを用い、各種電子・光デバイス応用に有望な新規半導体材料のスクリーニングと提案を進めていきます。一方で、一般に機械学習モデルは精度の高いものほどその内部機構が不透明になり、その場限りでの計算や予測には力を発揮しても、汎用性や拡張性に乏しいというジレンマがあります。そこで、いわゆる"説明可能なAI" (explainable artificial intelligence, XAI) ^{*11}の技術を活用することで、材料の諸物性とバンドギャップとの相関を系統的に解釈する取り組みも進めており、こちらの成果についても近々発表の予定です。

4. 研究プロジェクトについて

本研究は、日本学術振興会 科学研究費補助金 基盤研究(C) 23K03942 の支援を受けて行われました。

<用語解説>

※1 **バンドギャップ**: 禁制帯 (幅) と呼ばれ、半導体材料中に電流が流れ始める電圧値の目安となる物性値。この性質により半導体は電子の存在や流れを制御することができ、演算や通信を行っている。また、光の観点からは、半導体から発せられる光のエネルギーや、吸収される光のエネルギーの下限に相当する。

※2 **ニューラルネットワーク**: 人の脳内の神経回路網を数式で模倣した機械学習モデル。

※3 **アンサンブル学習**: 複数の機械学習モデルを組み合わせて、単一のモデルでは得られない、より高い予測性能を達成する技術。基本的な考え方は、「複数のモデルを組み合わせることで、各モデルの弱点を補い、全体としてより強力な予測モデルを構築する」というもの。

※4 **密度汎関数理論**: 材料中における原子の集合体のエネルギーなどの物性を電子の密度から計算する手法。電子密度を変化させて系のエネルギーを計算し、最小となった状態を材料の安定な構造およびそのエネルギーとして求める。

※5 **第一原理計算**: 物質の電子の状態を求めるために、実測値など経験的に得られた値を使わずに、量子力学の原理のみに基づいて行う計算。

※6 **勾配ブースティング回帰 (gradient boosting regression, GBR)**: 直列的なアンサンブル学習、つまり、前段のモデルが予測を間違えた部分に重点を置いて次のモデルが学習していく、といったことを繰り返して予測精度を高めていくという、ブースティング手法を用いた回帰モデルの一つ。特に誤差を修正する際に、変数の勾配 (偏微分) を利用して、勾配が大きき方向に、勾配の大きさに応じて坂を下るように移動し、その結果として最小値を求めるという勾配降下法を用いるもの。

※7 **条件付き敵対的生成ネットワーク (conditional generative adversarial network, CGAN)**: 本物のデータに似た偽物のデータの生成と本物のデータとの区別との間での競争により学習を行うというアルゴリズムにおいて、偽物のデータの生成に際して条件が加えられているもの。

※8 **メッセージパッシングニューラルネットワーク (message passing neural network, MPNN)**: 機械学習法の一つで、分子やネットワークのようなグラフ状の構造を持つデータにおける各ノード (頂点) にメッセ

ージと呼ばれる関数を送信し、それを受信して更新するプロセスを繰り返すことで、グラフ全体のモデルを学習するもの。

※9 **サポートベクター回帰 (support vector regression, SVR)** : 異なるクラスの各データ点との距離が最大になるような境界線を求めることでパターン分類を行うという手法を利用して連続値を予測するような回帰モデル。広く用いられており、最も基礎的な機械学習モデルの一つとされる。

※10 **Shepley 値** : 予測値に対する特徴量の寄与度を計算する手法で、ある特徴量の有無による学習モデルの予測値の差分を求め、その特徴量の寄与度ととらえるというもの。

※11 **説明可能な AI (explainable artificial intelligence, XAI)** : 理論的根拠を人間であるユーザーに説明することができ、システムの長所と短所を特徴づけ、どのように動作するのかを理解するための機能を備える AI システム。

<論文タイトルと著者>

タイトル : Neural network ensembles for band gap prediction (バンドギャップ予測のためのニューラルネットワークアンサンブル)

著 者 : Taichi Masuda and Katsuaki Tanabe

掲 載 誌 : *Computational Materials Science* DOI : doi.org/10.1016/j.commatsci.2024.113327