

CGCNN を用いた材料特性値予測モデルにおける ハイパパラメータ最適化による効果

西川 由理^{†1,2} 小澤 順^{‡1,2} 網井 圭^{§2} 藤井 幹也^{¶2}

¹ 産業技術総合研究所 ² パナソニック株式会社

1 はじめに

計算科学技術を用いて材料開発の効率化を行う「マテリアルズ・インフォマティクス」の研究が進んでいる。これまでも個々の電子の動きをシミュレーションする第一原理計算による物性予測が行われてきたが、材料の結晶構造中の原子数の3乗程度に比例して計算量が増加するため、原子数の大きい結晶への適用が困難であった。そこで近年は、多数の材料の第一原理計算の結果を集約した Materials Project[1] 等の材料データベースに対し機械学習モデルを用いた物性予測を行う試みが盛んである。中でも Xie らによる、結晶構造をグラフ表現した深層学習モデルを用いる Crystal Graph Convolutional Neural Network (CGCNN)[2] は電池材料をはじめとする無機材料の物性予測性能の高さで注目を集める。

一方、一般にハイパパラメータ探索は機械学習モデルの性能向上の鍵である。ところが Xie らは、材料の物性を表す様々な「特性値」のうち、ある一つの値に最適化したハイパパラメータの組を、他の特性値の学習時にも一律に適用している。したがって特性値毎に探索を行う効果については十分な検証がなされていない。そこで本研究では、CGCNN を用いた Materials Project の学習において、パラメータ探索ツールである Optuna[3] を特性値毎に適用し、(1) 予測誤差、(2) スクリーニング性能の2点の改善効果を報告する。

2 CGCNN におけるハイパパラメータ

CGCNN の基本構造を図1に示す。ある材料の結晶構造は、図1(a)に示すように、原子を表すノードと原子間の結合を表すエッジを持つグラフに変換され、各ノードは原子の種類を表す「原子特徴ベクトル」によって表

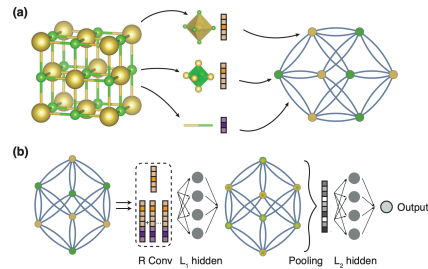


図1 CGCNN の基本構造 [2]

現される。次に、図1(b)に示すように、このグラフ構造を入力とするニューラルネットワークが構成される。具体的には、ノードごとに数層の畳み込み層と1層の第1隠れ層が形成され、その結果、各ノードが原子の局所的な特色を表す新しいグラフが生成される。プーリング後、さらに数層の第2隠れ層を経て、出力層から予測値が得られる。以上より、モデルの構造を決定するハイパパラメータは、畳み込み層、第2隠れ層、「原子特徴ベクトル長」と「隠れ層ベクトル長」となる。

3 評価

3.1 探索および評価手順

ハイパパラメータの探索範囲を表1に示す。本研究では2節で述べた学習モデル構造を決定するハイパパラメータに加え、学習率とその値を1/10にする減衰タイミングを探索した。ただし Xie らが勾配降下法の最適化アルゴリズムとしてSGDを用い1000 epochsの学習を行っているのに対し、本研究ではより収束の速いRAdamを用い、訓練回数を200 epochsとした。パラメータ探索ツールはOptuna v2.3.0を使用し、探索アルゴリズムにはTree Parzen Estimator(TPE)を適用した。また各試行が30 epochsを超えた時点で誤差が過去の試行の60%より劣る場合に現在の試行を打ち切る枝刈り手法を適用し、特性値毎に120回の探索を行った。

次に評価手順について、データセットは Materials

Effect of Hyperparameter Optimization on Crystal Graph Convolutional Neural Network for Material Property Prediction

[†] Yuri Nishikawa, AIST/Panasonic

[‡] Jun Ozawa, AIST/Panasonic

[§] Kei Amii, Panasonic

[¶] Mikiya Fujii, Panasonic

表1 ハイパラパラメータの探索範囲

| ハイパラパラメータ | 探索範囲 | Xie らの設定値 |
|----------------|------------------------|-----------|
| 畳み込み層数 | 1-5 | 4 |
| 第2隠れ層数 | 1-5 | 1 |
| 原子特徴ベクトル長 | 16, 32, 64, 128, 256 | 64 |
| 隠れ層のベクトル長 | 16, 32, 64, 128, 256 | 32 |
| 学習率 | 0.003, 0.01, 0.03, 0.1 | 0.02 |
| 学習率減衰タイミング | 50-150 | 800 |
| 最適化アルゴリズム | RAAdam | SGD |
| 学習反復 (Epoch) 数 | 200 | 1000 |

表2 7つの特性値の予測性能比較

| 特性値 | (1) 予測誤差 (MAE) ↓ | | (2) スクリーニング性能 [%] ↑ | |
|------------------|------------------|--------------|---------------------|--------|
| | Xie ら | Optuna | Xie ら | Optuna |
| formation energy | 0.052 | 0.049 | 99.28 | 99.28 |
| final energy | 0.087 | 0.085 | 95.69 | 96.06 |
| fermi energy | 0.363 | 0.340 | 98.92 | 98.56 |
| band gap | 0.415 | 0.366 | 98.78 | 97.56 |
| bulk moduli | 0.050 | 0.050 | 100.0 | 100.0 |
| shear moduli | 0.077 | 0.079 | 100.0 | 100.0 |
| poisson ratio | 0.031 | 0.030 | - | - |

Project^{*1}を用い、Xie らと同様に、表2に示す7つの特性値に着目した。全データの2割をテストデータとして取り置き、残りを探索を行う度にランダムに学習データ: 検証データ=8:2の比率で分割した。探索においては、この検証データにおける予測誤差 (MAE: Mean Average Error)^{*2}を最小化する設定とした。なお Xie らは、特性値のうち形成エネルギー (formation energy) に最適化したハイパラパラメータ (表1の3列目) を他の特性値の学習にも適用して得た学習済モデルを公開している [4]。しかし学習に用いられた結晶データの ID 番号が不明であることから本稿では公開済モデルを用いず、共通の学習およびテスト方法により Xie らと Optuna のハイパラパラメータによる予測性能を比較した。以後、各々を「Xie モデル」「Optuna モデル」と記載する。

また、深層学習を用いた予測モデルの用途として、実験や第一原理計算の候補となる材料のスクリーニングが挙げられる。このため本研究ではスクリーニング性能も評価し、具体的には「予測モデルが各特性値の上位 $N\%$ の性能を持つと予測した材料のうち、実際の上位 $N\%$ の材料が何パーセント含まれるか」と定義した。formation energy, final energy, fermi energy は値が小さいほど、band gap, bulk moduli, shear moduli は値が大きいほど優れるとし、 $N = 3$ の場合を評価した。

3.2 探索の効果

Xie モデルと Optuna モデルの予測性能比較を表2に示す。表の値は、他方に対し (1) は 0.01 以上, (2) は 1% 以上の優位性が見られる場合を太字とした。

^{*1} データ取得日は 2020 年 12 月 24 日。

^{*2} 単位は formation energy と final energy が eV/atom, fermi energy と band gap が eV, bulk moduli と shear moduli が $\log_{10}(\text{GPa})$ である。

まず (1) 予測誤差 (MAE) は、検証データの MAE を最小化する探索により、Optuna モデルが全ての特性値で Xie モデルと同程度以上の結果となり、fermi energy, band gap では改善傾向が見られた。与えられた材料の構造に対し特性値を簡易的に算出する用途においては、ハイパラパラメータ探索の一定の効果が確認された。

一方、Optuna モデルの (2) スクリーニング性能を見ると、MAE が改善したにもかかわらず、Xie モデルに対し性能が低下するケースがあり、特に band gap は約 1.2% 下がる結果となった。このことから、MAE に対するハイパラパラメータ探索が、必ずしもスクリーニングの観点では効果的でないことが示された。一因として、本研究の学習および探索にて各特性値の意味 (例えば形成エネルギーであれば値が低いほど物質として安定など) を考慮せず、一律に予測値と正解値の差に基づく MAE を最小化する設定としたことが考えられる。今後は材料科学における知見を加えて学習や探索を行うなどのスクリーニング性能向上手法を検討したい。

4 おわりに

本研究では CGCNN を用いた材料特性値予測モデルの特性値毎のハイパラパラメータ探索による、予測性能の改善効果を評価した。検証データの予測誤差を最小化するハイパラパラメータ最適化により、一部の特性値でテストデータの予測誤差の改善傾向が見られた。一方スクリーニングの観点では、少なくとも今回の探索手法ではその性能向上に寄与しないことを確かめた。材料開発は、既に所有するデータの範囲外にあるデータの中から優れた特性を持つ新材料を探す行為である。今後は材料知見を用い、新材料の候補となるスクリーニング性能向上に向けた予測モデルの学習手法を検討したい。

参考文献

- [1] Jain, A. et al.: Commentary: The Materials Project: A materials genome approach to accelerating materials innovation, *APL Materials*, Vol. 1, No. 1, p. 011002 (2013).
- [2] Xie, T. and Grossman, J. C.: Crystal Graph Convolutional Neural Networks for an Accurate and Interpretable Prediction of Material Properties, *Phys. Rev. Lett.*, Vol. 120, p. 145301 (2018).
- [3] Akiba, T. et al.: Optuna: A Next-Generation Hyperparameter Optimization Framework, *In Proc. of SIGKDD*, p. 2623–2631 (2019).
- [4] Github: <https://github.com/txie-93/cgcnn>.