

特集論文

機械学習による材料・プロセス設計技術の深化とエポキシ系接着材料への適用

Advancements in Material and Process Design through Machine Learning: Application to Epoxy-Based Adhesive Materials

安藤圭理*

Keisuke Ando

加茂芳幸†

Yoshiyuki Kamo

坂東龍司*

Kyuji Bando

村上浩章*

Hiroaki Murakami

和田敏裕*

Toshihiro Wada

*先端技術総合研究所

†同研究所(博士(工学))

要 旨

電気機器の高性能化や高信頼化、環境負荷低減を支える材料技術の開発では、原料の化学組成や製造プロセスなどの設計パラメーターを調整する必要がある。しかし、設計パラメーターの変更によって材料の微細な構造や状態が劇的に変化するため、望ましい構造や状態を持つ所望の材料の開発には試行錯誤に膨大な時間を要する。

そこで、既知の実験データを用いた機械学習によって有望な設計パラメーター範囲を推定した上で、予測の不確実性が高く、かつ実験データの少ない条件を次の実験点に選定することで、有望な設計パラメーター範囲を効率良く明確化する手法を開発した。さらに、この手法をエポキシ系接着材料の開発に適用し、所望の材料が得られる原料組成比の明確化に必要な実験回数を従来比約80%削減した。この技術は新規材料の開発だけでなく、既存材料や製造プロセスなどの改善といった様々な用途への適用が期待できる。

1. まえがき

材料技術は、幅広い産業課題・社会課題を解決に導く可能性のある分野横断的な基盤技術である⁽¹⁾。近年はマテリアルズインフォマティクス(MI)を取り入れた材料技術の研究開発が国内外の産官学で盛んに取り組まれている⁽¹⁾⁽²⁾。三菱電機では、家電から宇宙までのあらゆる環境で価値を提供する電気機器製品を製造しており、高性能化や高信頼化、環境負荷の低減など、電気機器の更なる高付加価値化を実現する材料開発が求められている。材料開発では、候補になる材料を創出した上で、さらに機器で実用できるように原料の化学組成や製造プロセスなどの設計パラメーターを調整する必要があるが、わずかな条件の違いが材料の微細な構造や状態に劇的な変化をもたらす。そのため、当初から所望の材料が得られる有望な設計パラメーターの範囲を把握できれば、効率的で革新的な開発が期待できる。

今回、新規エポキシ系接着材料に使用するエポキシモノリスシートを具体的な例として、MIによって既知の実験結果から能動的に有望な設計パラメーターの範囲を効率良く明確化する手法を検討した。エポキシモノリスシートは、3種の原料の組成比によって微細構造が変化し、またエポキシモノリスシートが得られない原料組成比も存在する。さらに、エポキシモノリスシートの形成は、原料の反応性にも強く影響されるため、原料の化学構造の違いにも依存する。そのため、エポキシモノリスシートが得られる原料組成比などの設計パラメーター範囲を特定するには、実験的な試行錯誤を要して膨大な時間が必要であった。

本稿では、既知の実験データを用いた機械学習によって有望な設計パラメーター範囲を推定した上で、予測の不確実性が高く、かつ実験データの少ない条件を次の実験点に選定することで、有望な設計パラメーターの範囲を効率良く明確化するMI手法を開発し、エポキシモノリスシートに適用した事例について述べる。

2. 有望な設計パラメーターの範囲の推定方法

今回の目的のように、複数の原料の組成比などの条件が可変であるという前提の下、所望の材料が得られるパラメーター範囲を明確化する手法として、能動学習によって材料の温度や成分に応じた安定状態を示す相図を推定する取組みがある。Daiらは、ガウス過程を用いた事後予測に基づいたベイズ最適化を用いることで、二つの相を持つ相図を推定する過程で必要なサンプリング点を大幅に削減できることを明らかにした⁽³⁾。Terayamaらは、相境界付近の不確かな領域を重点的に探索する不確実性サンプリングによって、複数の相を持つ相図でも効率的なサンプリングが可能であることを明らかにした⁽⁴⁾。これら先行研究が対象とする相図推定では、熱力学的平衡状態を取り扱うため、熱力学計算を活用できる場合も多くあることから、ある程度多いサンプリング回数も許容できる。一方、本稿が対象とするエポキシモノリスのよ

うに、製造プロセスに応じて微細構造が変化することを特徴とする材料では、実験的な検証が必要であるため、サンプリング回数の制約が厳しい。そこで、効率良く有望な設計パラメーター範囲を推定するために、不確実性サンプリングで、これまで検証したことのある教師データとの距離が離れている条件を優先的に提案する手順を導入した。

2.1 推定フレームワーク

図1に、有望な設計パラメーター範囲の推定フレームワークを示す。ここでは、設計パラメーターとして3種の原料A, B, Cの比率を選択した場合を例示した。図1の三角図は原料組成比を表しており、原料Aの頂点に近ければ、原料Aが多いことを意味している。

まず、初期の教師データとして、所望の材料が得られた結果と望ましくない結果の2種類を用意する。ここで、必要な原料が欠損している組成比では、望ましくない結果が得られることは明らかであることから、三角図の頂点では望ましくない結果が得られるなどを教師データに追加した。

次に、この教師データを用いて機械学習を行うことで、設計パラメーターが有望であるかどうかを分類する予測モデルを構築し、有望な設計パラメーター範囲を推定した。この推定結果に基づいて不確実性スコアを評価するとともに、罰則項として教師データとの近さを算出し、それによってデータ希薄性スコアを評価した。不確実性スコアは、設計パラメーターが有望であるかどうかを予測モデルが分類する不確かさを評価する数値であり、有望と推定された範囲と、望ましくないと推定された範囲の境界が最も不確実であると算出されることから、境界の全周が同等に不確実であると評価される。そこで、不確実性スコアにデータ希薄性スコアを加えた評価関数を設計することで、不確実であると同時にこれまで実験を行っていない候補条件を一義に提案可能にした。この手法で提案された候補条件で実験的に検証を行い、所望の材料が得られるか確認した。そしてこの結果を教師データとして追加して推定・評価・検証のサイクルを繰り返すことで、有望な設計パラメーター範囲を明らかにした。

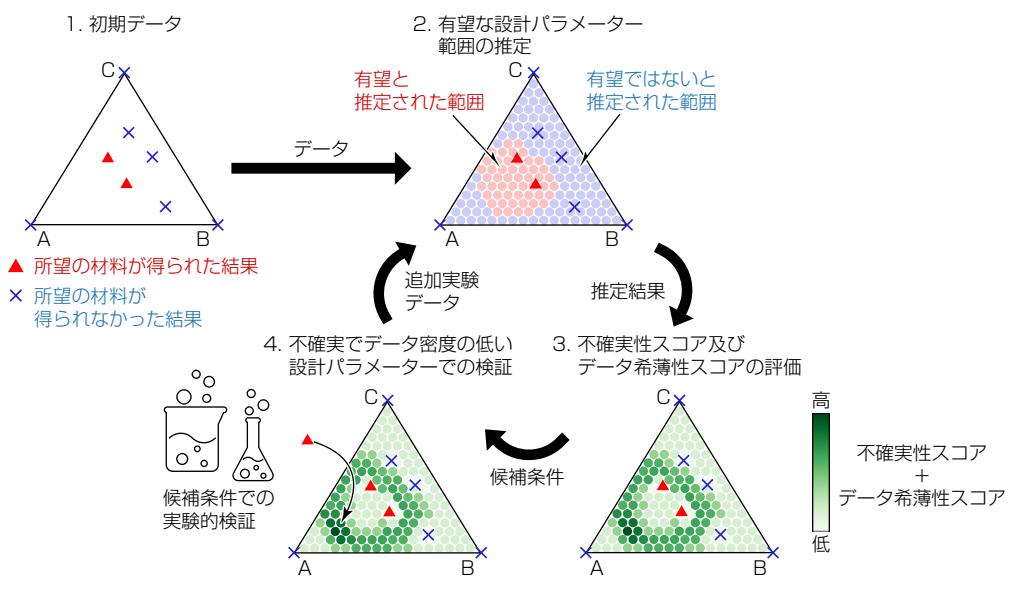
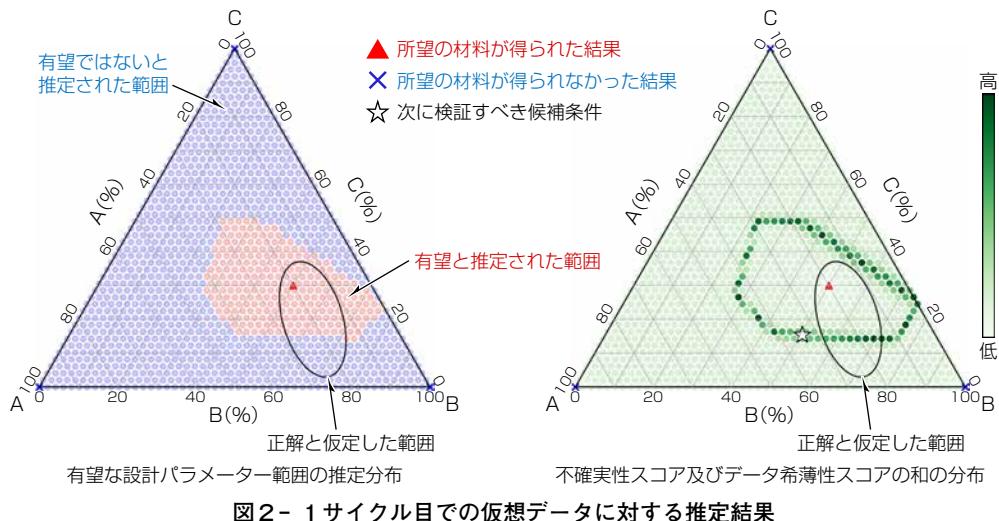


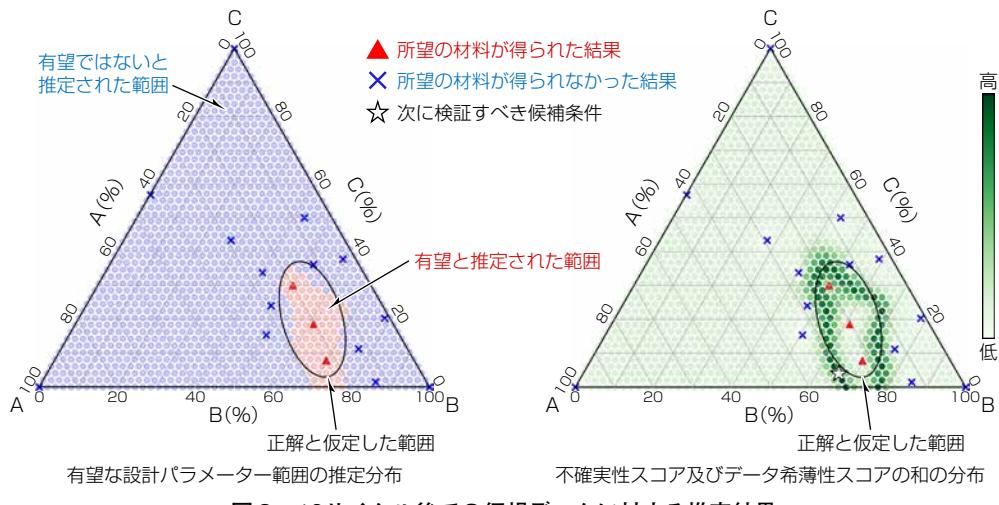
図1-有望な設計パラメーター範囲の推定フレームワーク

2.2 推定フレームワークの事前検証

この手法の動作を確認するために、仮想的な正解を設定し、有望な設計パラメーター範囲を推定できるかを検証した。図2に、1サイクル目の推定結果を示す。図中の黒線で示す楕円(だえん)の内部が正解と仮定した範囲であり、図2左の赤い領域が有望と推定された範囲を意味する。1サイクル目では推定された範囲と正解は一致していないことが分かる。図2右では、推定結果から算出された不確実性スコア及びデータ希薄性スコアの和の分布を示している。有望と推定された範囲と、望ましくないと推定された範囲の境界で、不確実性スコアとデータ希薄性スコアの和が高く評価されており、星印が次に検証すべき候補条件として提案される。候補条件が正解と仮定した範囲内であれば所望の材料が得られたという仮想データを追加し、範囲外であれば所望の材料が得られなかったという仮想データを追加した。



推定フレームワークを13サイクル繰り返した後の推定結果を図3に示す。13回の仮想データの追加によって、有望と推定された範囲は正解に非常に近い結果を示しており、少ない実験でも有望な設計パラメーター範囲を導ける可能性を確認した。



3. 新規エポキシ系接着材料の開発への適用

この章では、新規エポキシ系接着材料に使用するエポキシモノリスシートにこの手法を適用した事例について述べる。

3.1 新規エポキシ系接着材料に使用するエポキシモノリスシート

電気モーターや半導体デバイス、航空宇宙機器に広く使用されるエポキシ系接着材料は、高強度で耐熱性に優れた材料である一方、塑性変形しにくく脆(もろ)いという欠点もある。電気機器では、動作時と停止時の温度サイクルによって周辺部材が膨張と収縮を繰り返すため、エポキシ系接着材料の柔軟性の向上が求められる。当社では、連続気孔を持ったエポキシモノリスシートに接着成分を含侵させたシート接着材料を開発し、柔軟なエポキシモノリスシートを接着接合部の応力緩和層として機能させることで、エポキシ系接着材料の温度サイクル耐性向上に寄与することを明らかにしており⁽⁵⁾、更なる高性能化に向けて研究開発を進めている。

エポキシモノリスシートは、網目状のエポキシ骨格と空隙がそれぞれ三次元的につながった連続多孔体構造を特徴とする薄膜である(図4)⁽⁶⁾。エポキシモノリスシートを実現するためには、主剤と硬化剤、細孔形成剤の少なくとも3種の原料を混合する必要があり、原料組成比の違いによって微細組織は変化する。原料組成比が適切な範囲内ではないと、エポキシ骨格が不連続になってシートの自立性を確保できず、又は、空隙が不連続になって接着成分を含侵できず、接着材料として成立しない。このことから、エポキシモノリスシートが得られる原料組成比の明確化が求められていた。

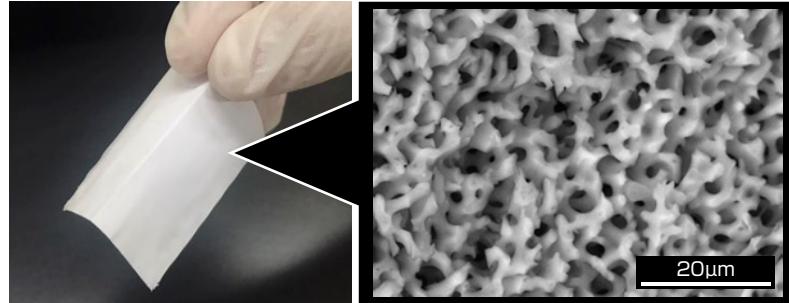


図4-エポキシモノリスシート

3.2 エポキシモノリスシートを得るために有望な設計パラメーター範囲の推定方法

本稿では、硬化剤に4, 4'-メチレンビス(シクロヘキシルアミン)(BACM)、細孔形成剤にポリエチレングリコール(PEG)を用いて、主剤として2, 2'-ビス(4'-グリシジルオキシフェニル)プロパン(BADGE)、又は1, 3-ビス(N, N-ジグリシジルアミノメチル)シクロヘキサン(TETRAD-C)を用いたエポキシモノリスを対象とした。この二つのエポキシモノリスの系に対して、それぞれ原料3種の組成比を設計パラメーターに設定し、エポキシモノリスシートが得られる有望な設計パラメーター範囲を推定した。まず、事前の実験でエポキシモノリスが形成されたPEG濃度70wt%の結果と、モノリスが形成しない各原料の単体の結果(三角図の頂点)を初期の教師データとして使用した。2. 2節での事前検証に基づいて、教師データに追加実験の結果を加えつつ、推定フレームワークを13サイクル繰り返した。

4. エポキシモノリスシートが得られる有望な設計パラメーター範囲の推定結果

図5に、13サイクル後に推定された、エポキシモノリスが得られる設計パラメーター範囲を示す。実験を行った条件の分布に注目すると、2. 2節での事前検証の結果と同様、モノリスの作製に有望と推定された範囲の全周を囲うように、モノリスの作製に有望ではない実験点が分布していることから、有望な設計パラメーター範囲を高精度に推定できていると考えられる。特に、主剤にBADGEを用いたモノリスとTETRAD-Cを用いたモノリスとで有望な設計パラメーター

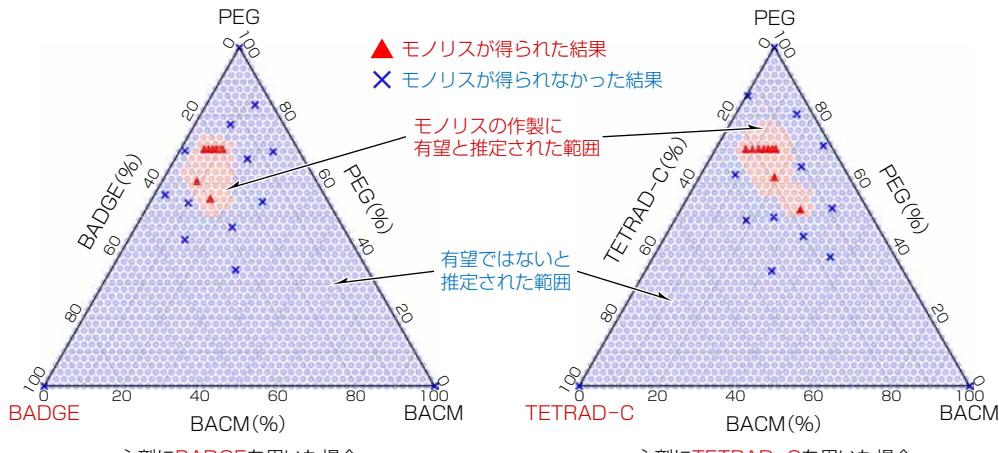


図5-エポキシモノリスシートが得られる設計パラメーター範囲

範囲が異なっていることから、原料の種類の違いを反映した設計パラメーター範囲を推定できている。このように有望な設計パラメーター範囲を明確化できたことから、少ない実験でエポキシモノリス合成の全体的な傾向を把握した上で材料を設計できるようになった。また、13サイクル後の推定結果でエポキシモノリスの作製に有望ではないと推定されたPEG濃度40wt%以下の実験回数を減らして、有望である条件での実験に注力できた。従来、10wt%刻みで全条件の実験を行う場合には66回の追加実験が必要であったのに対して、この手法によって13回の追加実験で有望な設計パラメーター範囲を明らかにできた。実験回数を約80%削減しており、この手法が研究開発の効率化に有効であることを示した(図6)。

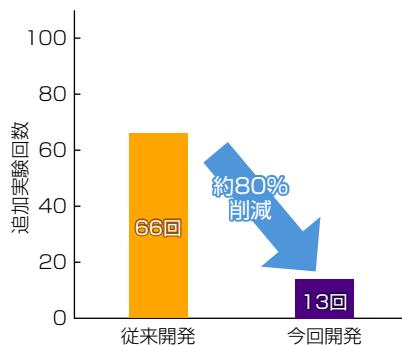


図6-有望な設計パラメーター範囲の明確化に必要な実験回数の変化

5. むすび

革新的な材料の効率的な研究開発のために、機械学習を用いて設計パラメーターを効率的に選定する手法を開発した。多数の設計パラメーターを含む系でも、設計パラメーター範囲を少ない実験回数で高精度に推定する手法を見いだして、この手法を新規エポキシ系接着材料の開発に適用することで、従来開発に比較して、約80%の実験回数を削減した。この手法は設計パラメーターの種類が三次元以上の高次元に対しても拡張可能であるため、今後は更に複雑で高度な材料開発にも適用を進める。

参考文献

- (1) 内閣府 マテリアル戦略有識者会議：マテリアル革新力の一層の強化に向けた論点と検討の方向性 (2024)
<https://www8.cao.go.jp/cstp/material/11kai/siryol-1.pdf>
- (2) 国立研究開発法人 科学技術振興機構 研究開発戦略センター：研究開発の俯瞰報告書 ナノテクノロジー・材料分野 (2024年)
<https://www.jst.go.jp/crds/report/CRDS-FY2024-FR-04.html>
- (3) Dai, C., et al. : Efficient Phase Diagram Sampling by Active Learning, *The Journal of Physical Chemistry B*, **124**, 1275~1284 (2020)
- (4) Terayama, K., et al. : Efficient construction method for phase diagrams using uncertainty sampling, *Physical Review Materials* 3, 033802-1~033802-8 (2019)
- (5) Kamo, Y., et al. : Stress relaxation and improved fracture toughness of metal bonding using flexible monolith sheets and an epoxy adhesive, *Polymer Journal*, **57**, 203~214 (2025)
- (6) 松本章一：エポキシモノリスを用いる異種材料接合, *ネットワークポリマー*, **38**, No.2, 93~102 (2017)