

2024/5/10

イジングマシンを用いた ブラックボックス最適化手法の 材料研究への応用

物質・材料研究機構/東京大学 田村 亮



国立研究開発法人
物質・材料研究機構



CBRM
CENTER FOR BASIC RESEARCH
ON MATERIALS



東京大学
THE UNIVERSITY OF TOKYO

マテリアルズ・インフォマティクス

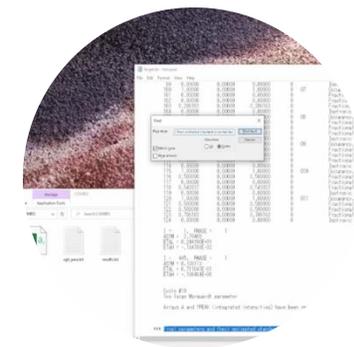
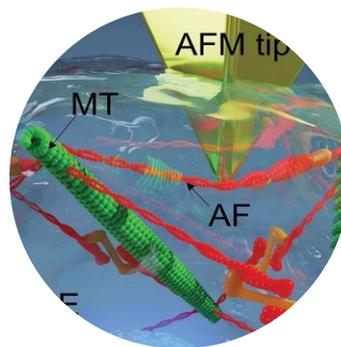
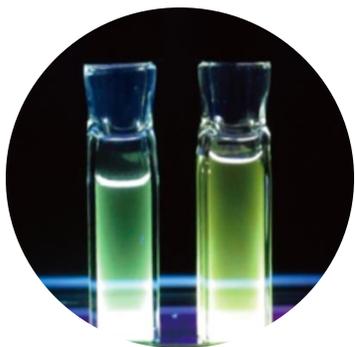
電池, 磁石, 金属,
電子・光デバイス,
センサなど

材料 × 情報

材料データを情報技術で解析

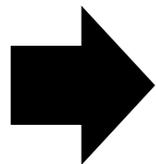
新材料創出

欲しい物性を持つ材料を予測



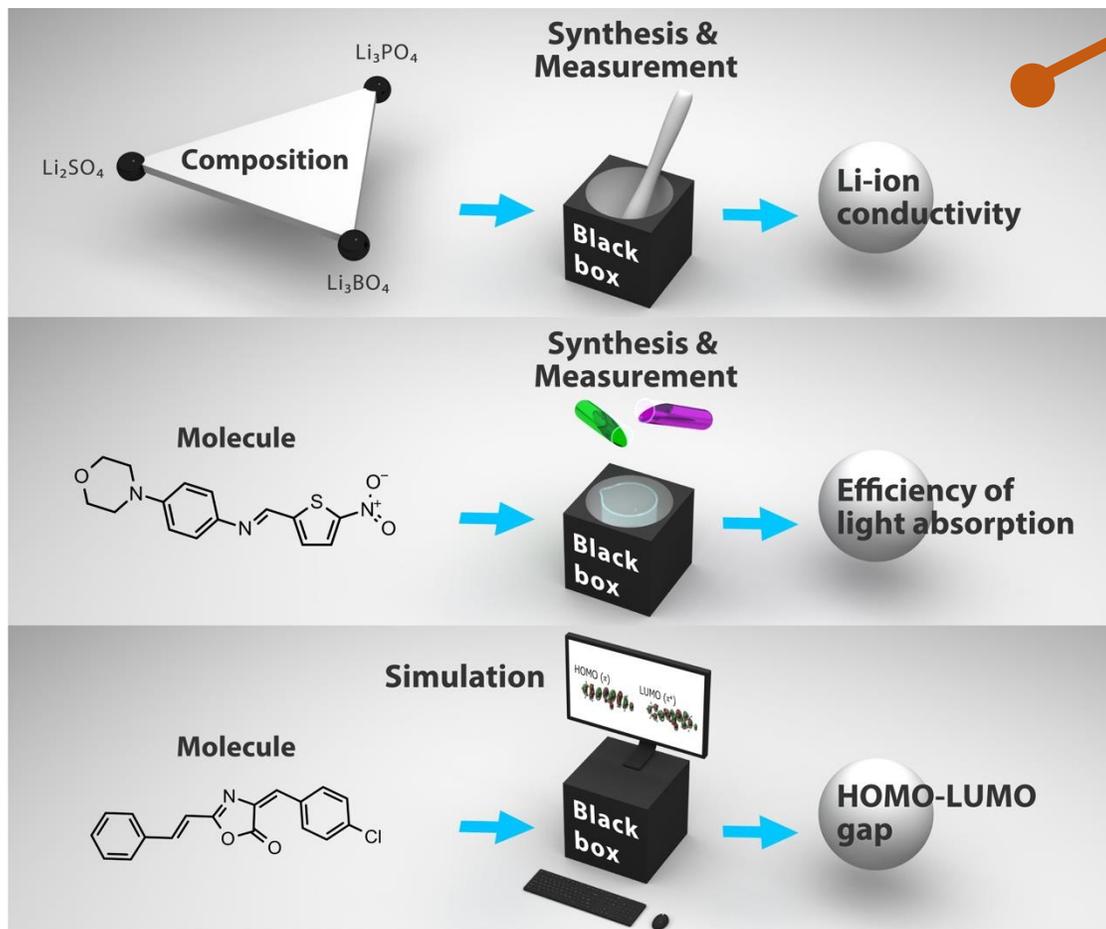
ブラックボックス最適化

材料組成
構造
プロセス

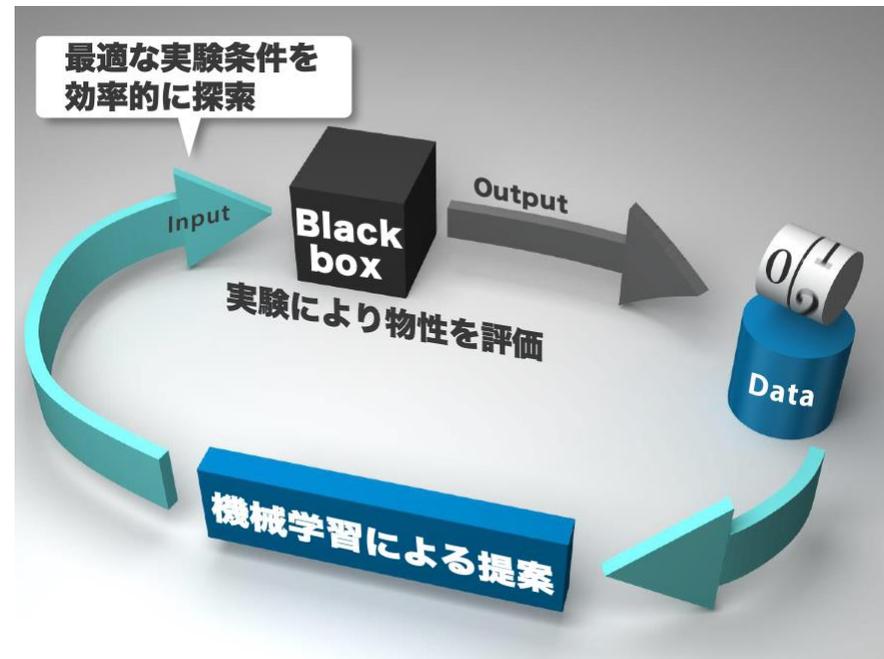


材料特性

機械学習にとっては
ブラックボックス！



機械学習をうまく使って
ブラックボックスを最適化する



ベイズ最適化とは？

回帰

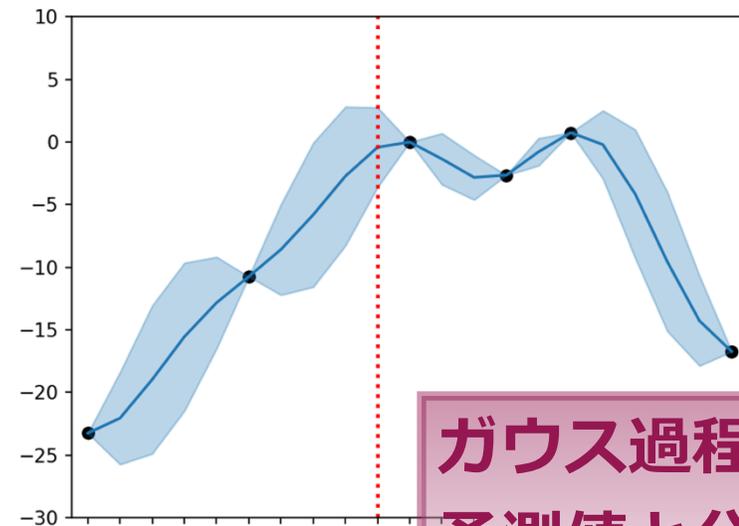
$$\underbrace{y}_{\substack{\text{目的変数} \\ \text{(材料特性)}}} = f(\underbrace{\mathbf{x}}_{\substack{\text{説明変数} \\ \text{(組成, 構造, プロセス)}}})$$

f を機械学習で置き換える

- N個の候補点があり, この中から最大の観測値を持つものを探したい.

$$\mathbf{x}_i \quad (i = 1, 2, \dots, N)$$

- できるだけ実験数を少なくしたい.
- M個の候補点に対する実験が終わった.
- 次のM+1個目の候補点を最適に選びたい.
- M個のサンプル点から予測モデルを学習し, それを用いて, 残りの候補点をスコアリングし実際に観測するサンプルを選ぶ.



ガウス過程回帰
予測値と分散から,
次の候補を選ぶ

ベイズ最適化Pythonパッケージ

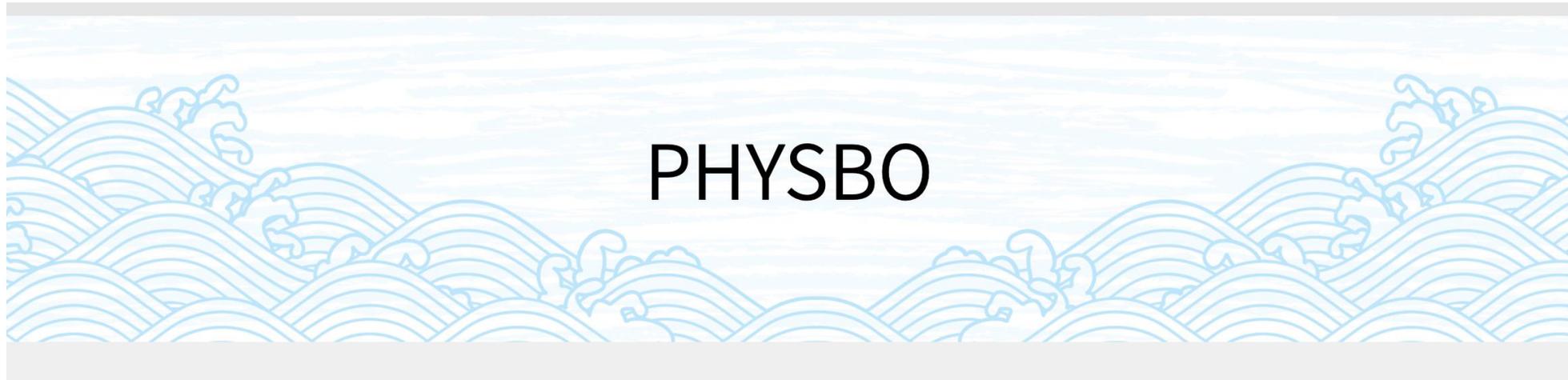


English

日本語



[Top](#) [PHYSBOについて](#) [インストール](#) [ドキュメント](#) [ニュース](#) [お問合せ](#)



<https://www.pasums.issp.u-tokyo.ac.jp/physbo/>

- pipでインストール
- Python3対応
- 計算スピード高速化
- 複数候補提案
- 多目的最適化
- インタラクティブな実行

PASUMS

Project for advancement of
software usability in materials science

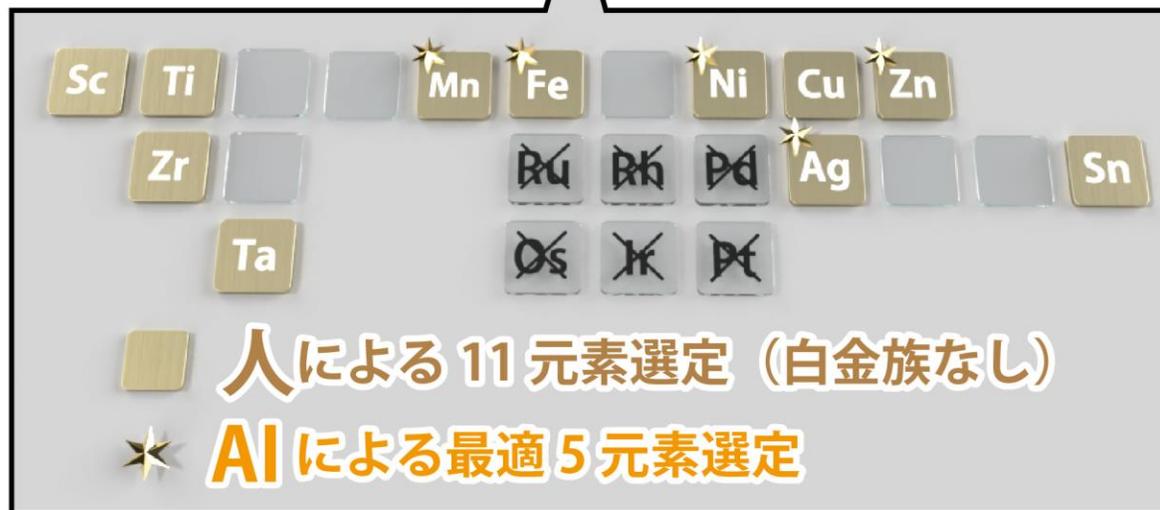
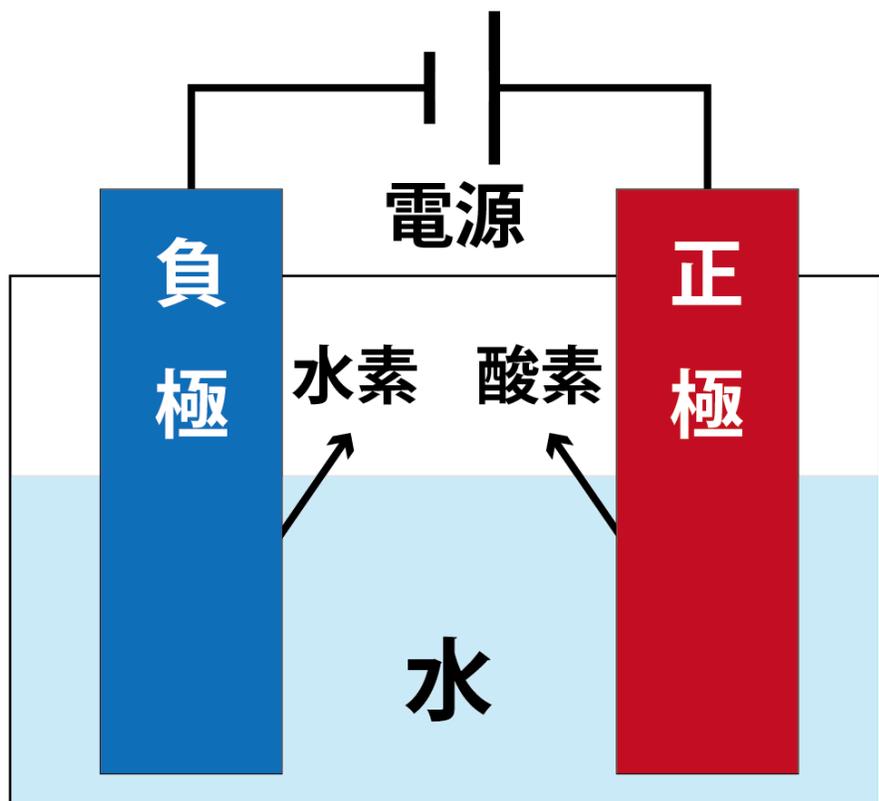
PASUMS

東京大学物性研究所

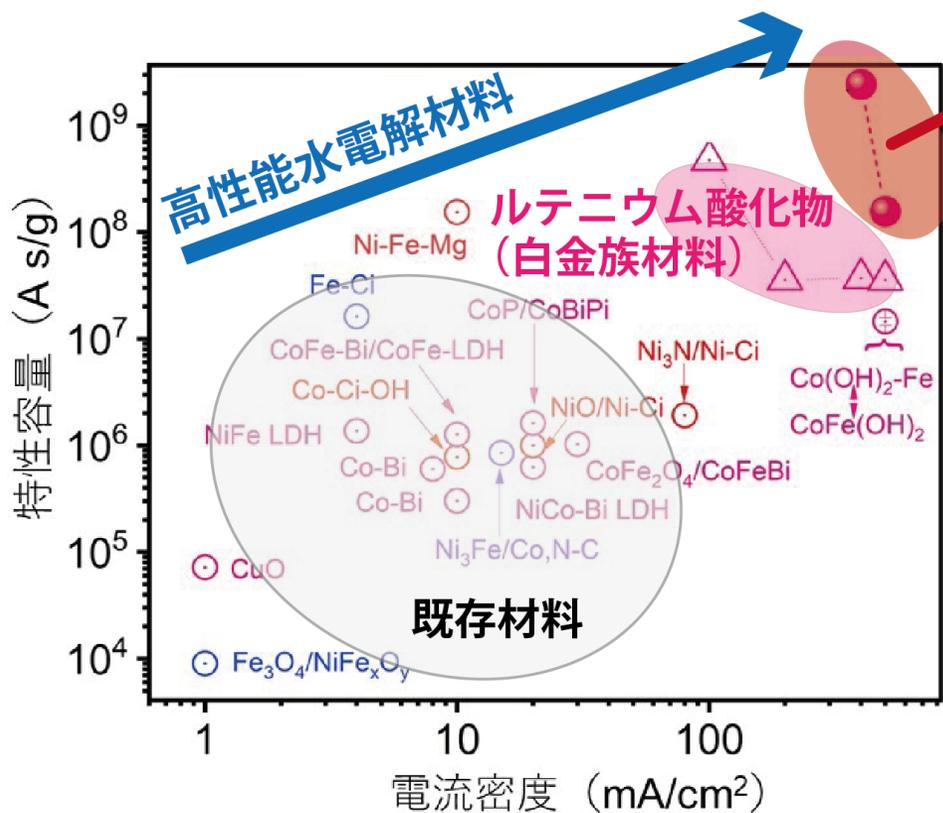
ソフトウェア開発・高度化プロジェクト

電極触媒最適化

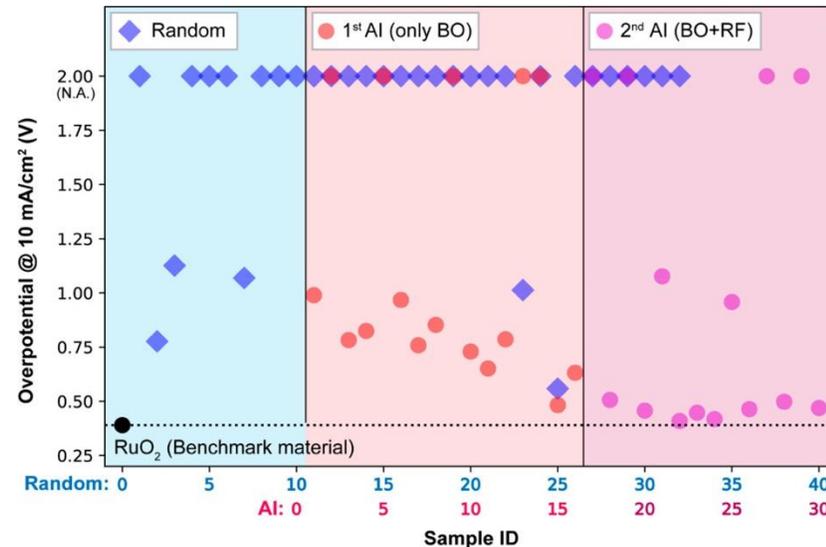
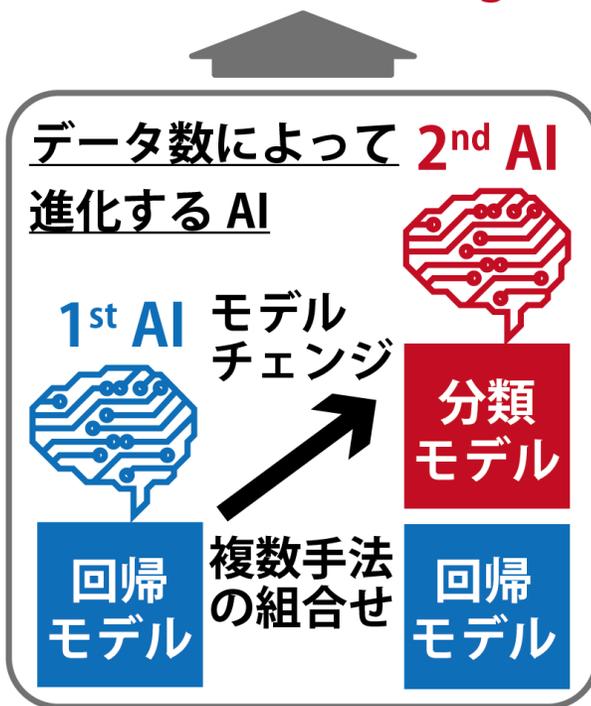
水電解性能の良い
電極触媒材料を探索
ベイズ最適化と分類を利用



電極触媒最適化



白金族元素なし NIMS 材料 (Mn, Fe, Ni, Zn, Ag)

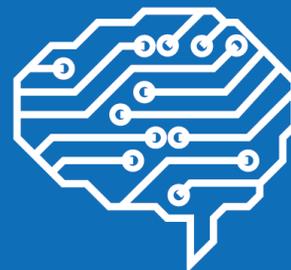


K. Sakaushi, W. Hoisang, and R. Tamura, ACS Central Science 9, 2216 (2023).

ロボット実験との連携

こんな材料研究の結果があるのだけど、次にどんな材料を作ったら良いかな？

材料探索用 AI



研究者の頭

使う元素は〇〇で、 $XX^{\circ}\text{C}$ の実験環境で作って見たら？

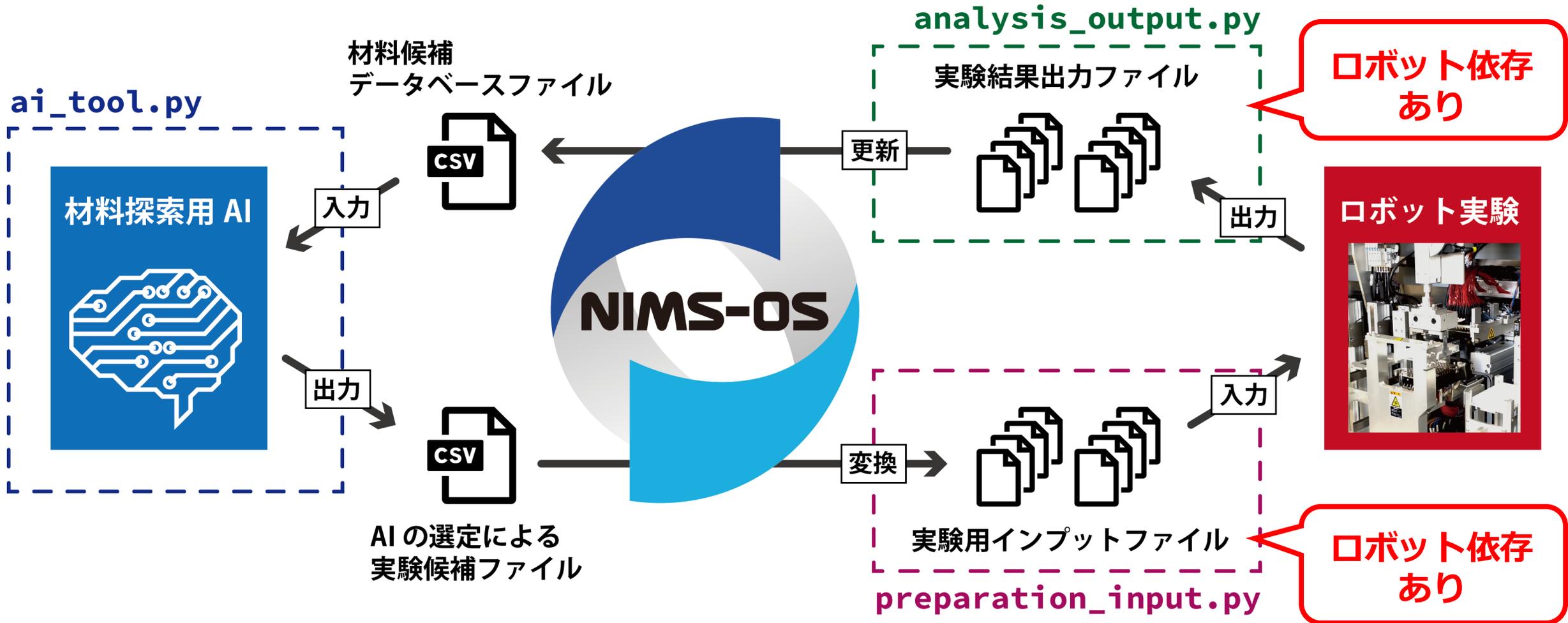
研究者の手

ロボット実験



自律自動実験：
材料開発のためのAIとロボット実験による
完全に自動的な材料開発ができるようになってきた！

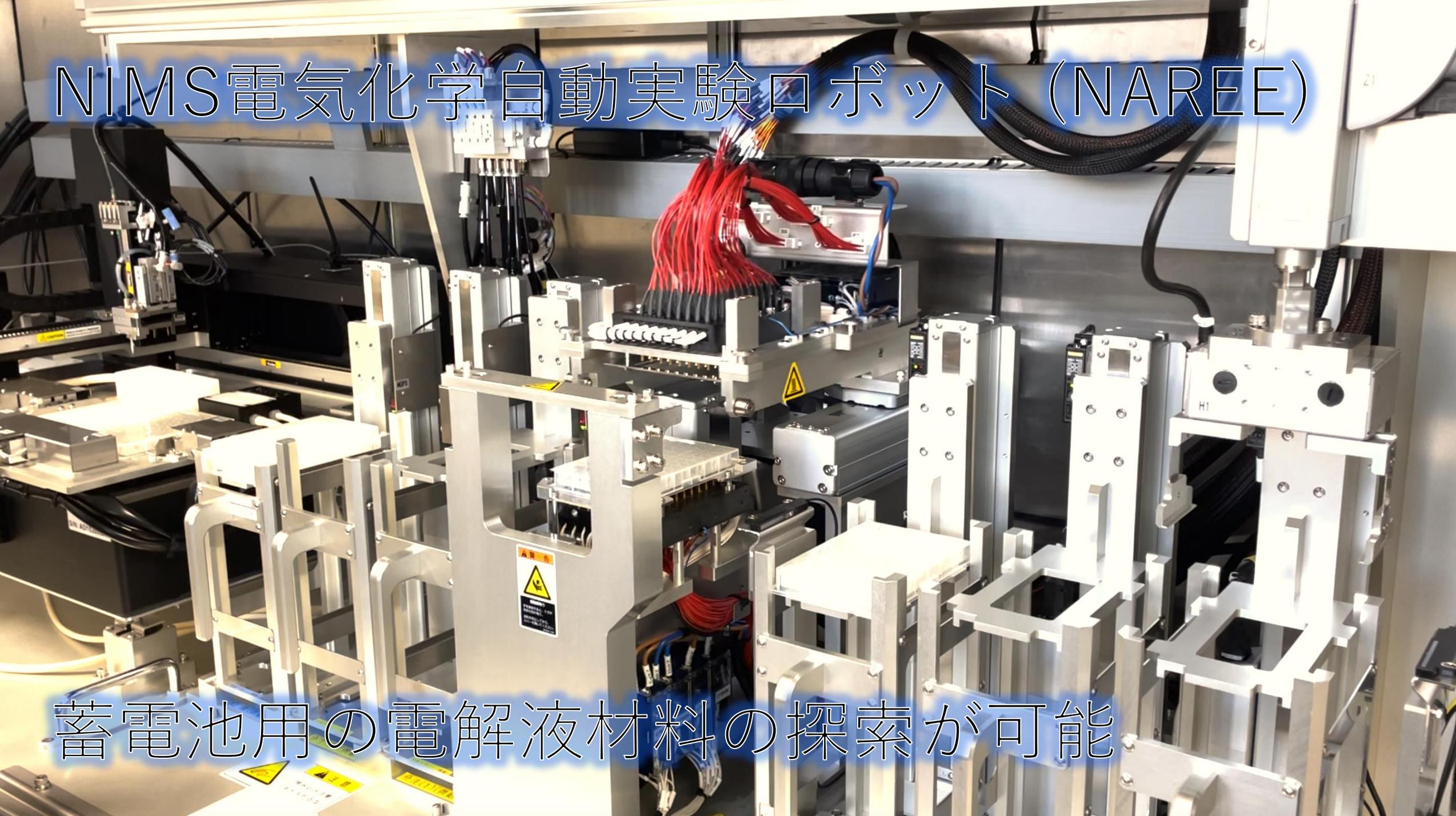
NIMS-OSによるシームレス連携



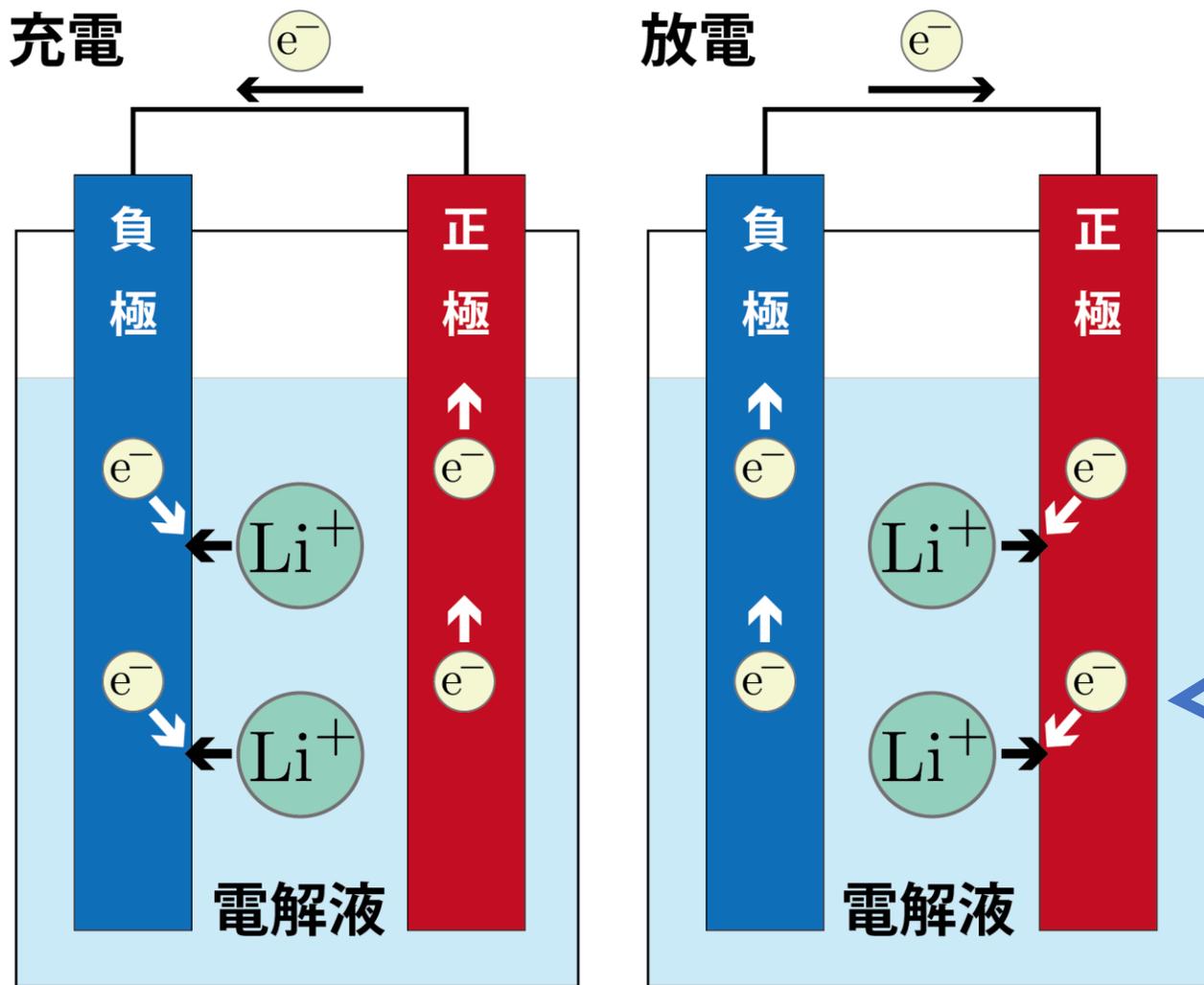
- AIへの入力を共通化, 3種類のアプローチを標準搭載
- ロボット実験の操作を明確化

NIMS電気化学自動実験ロボット (NAREE)

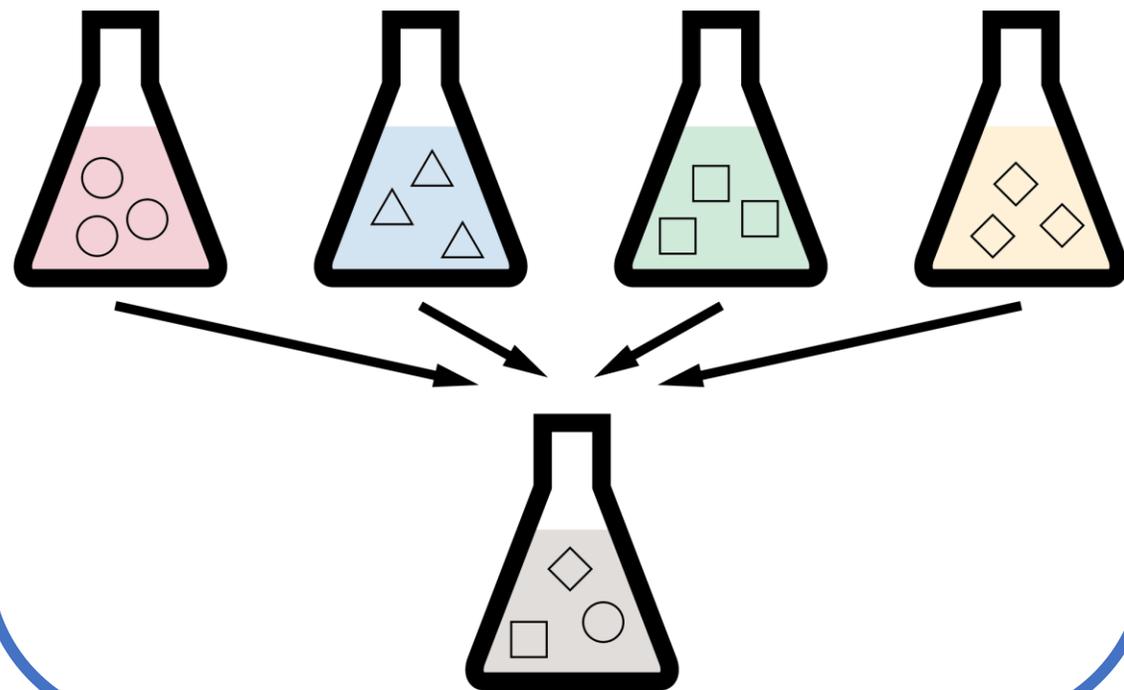
蓄電池用の電解液材料の探索が可能



蓄電池用電解液探索



複数の添加剤を混ぜ合わせて、
性能の良い電解液を作りたい！



イジングマシンを用いた ブラックボックス最適化 FMQA

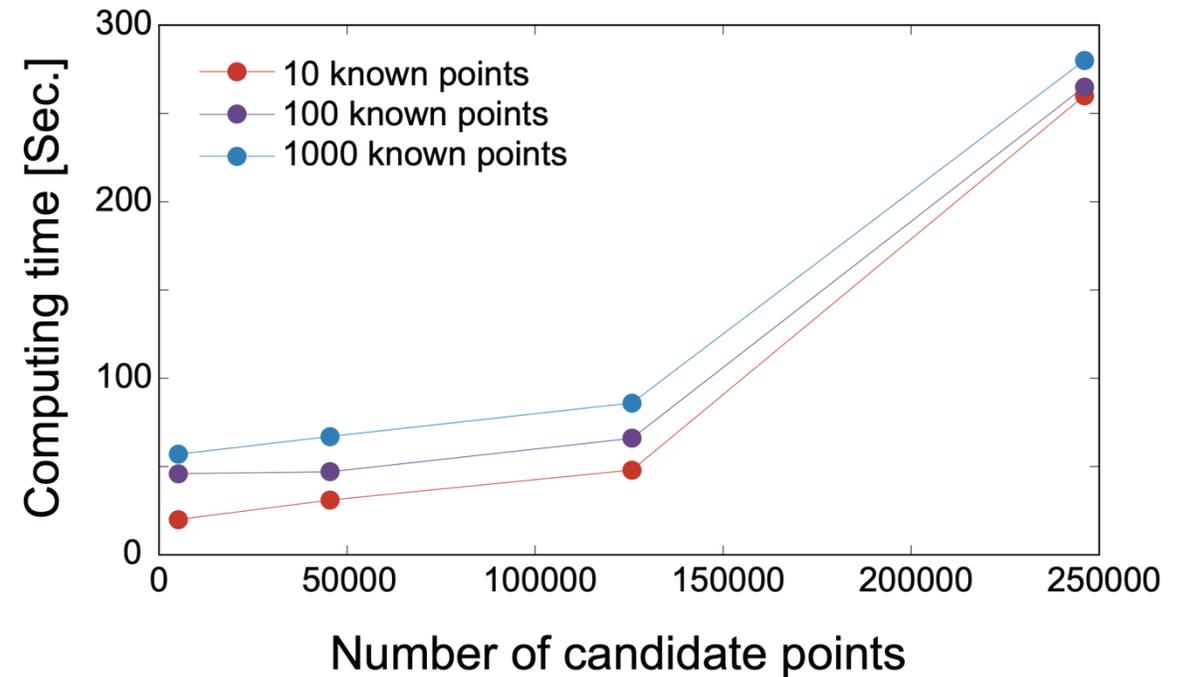
ベイズ最適化に残された課題

ベイズ最適化では、全ての候補に対して獲得関数を計算している。
候補が多いと計算が大変…

添加物1	添加物2	添加物3	添加物4	放電時間
0	0	0	1	980
0	0	1	0	1022
0	0	1	1	
0	1	0	0	
0	1	0	1	
0	1	1	0	
0	1	1	1	
1	0	0	0	887
1	0	0	1	
1	0	1	0	
1	0	1	1	
1	1	0	0	
1	1	0	1	
1	1	1	0	
1	1	1	1	



候補が増えてしまう…



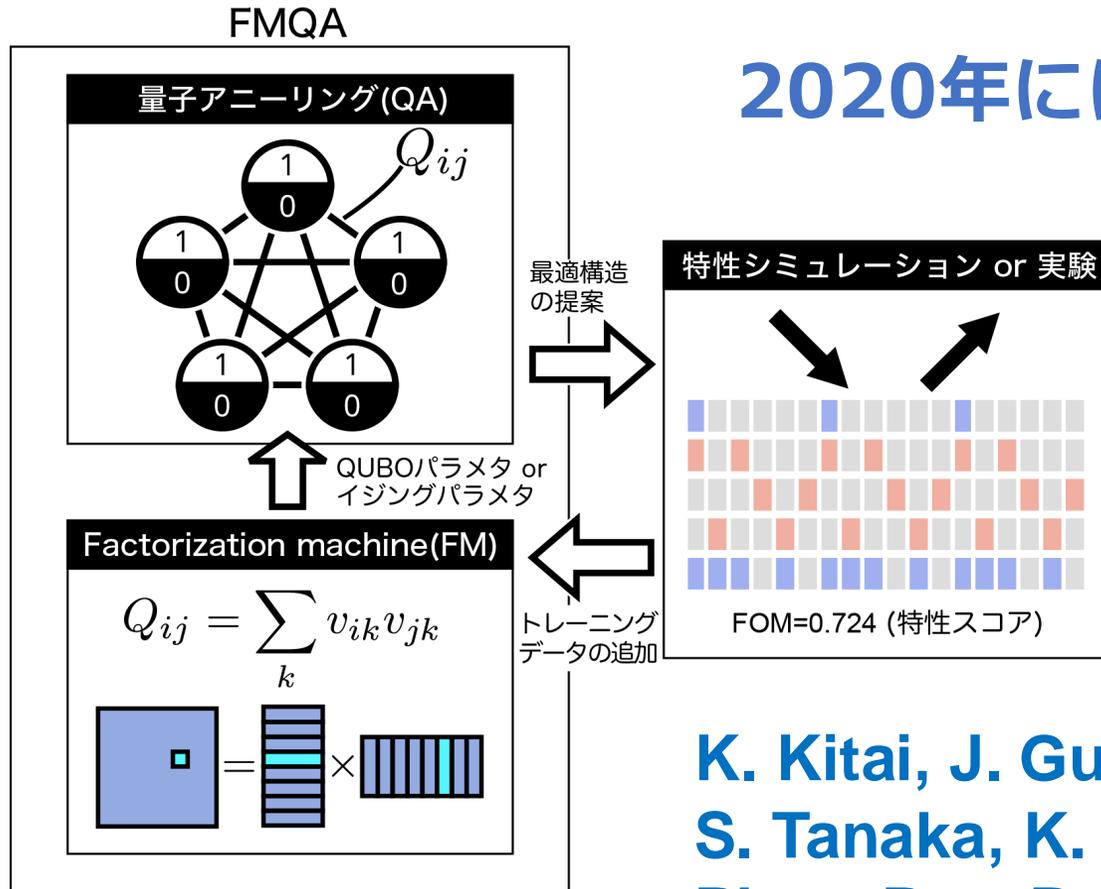
どうにか高速化することはできないか？ → イジングマシン!!!

アニーリングマシンを用いて高速化

Factorization machine with quantum annealing
(量子アニーリングを用いたアルゴリズム)



2020年にはじめて提案！



K. Kitai, J. Guo, S. Ju,
S. Tanaka, K. Tsuda, J. Shiomi, and R. Tamura,
Phys. Rev. Research 2, 013319, (2020).

アニーリングマシンとは？

イジングモデルの基底状態(エネルギーが低い)を高速で解くハードウェア

イジングモデル

$$\mathcal{H} = \sum_{i,j} J_{ij} s_i s_j + \sum_i h_i s_i \quad s_i \in \{-1, +1\}$$

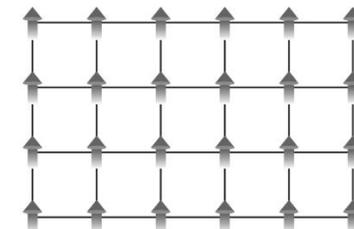
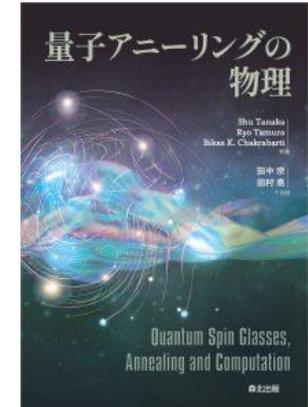
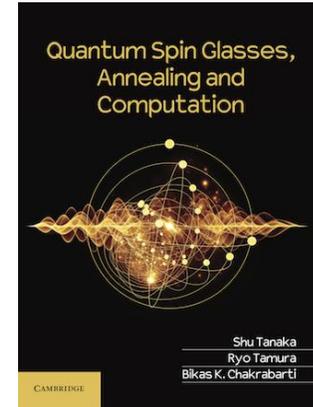
スピンの間相互作用 磁場

QUBO (Quadratic unconstrained binary optimization)

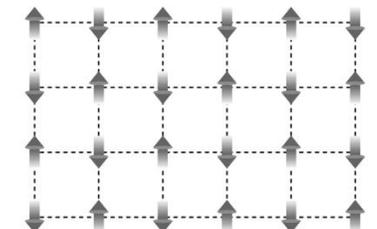
$$\mathcal{H} = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N Q_{ij} x_i x_j \quad x_i \in \{0, 1\}$$



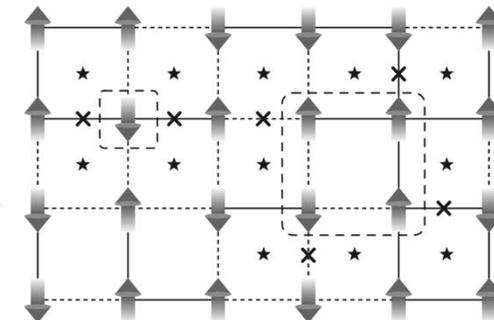
組合せ最適化問題(NP問題)は
イジングモデルで表現可能



J < 0: 強磁性相互作用



J > 0: 反強磁性相互作用



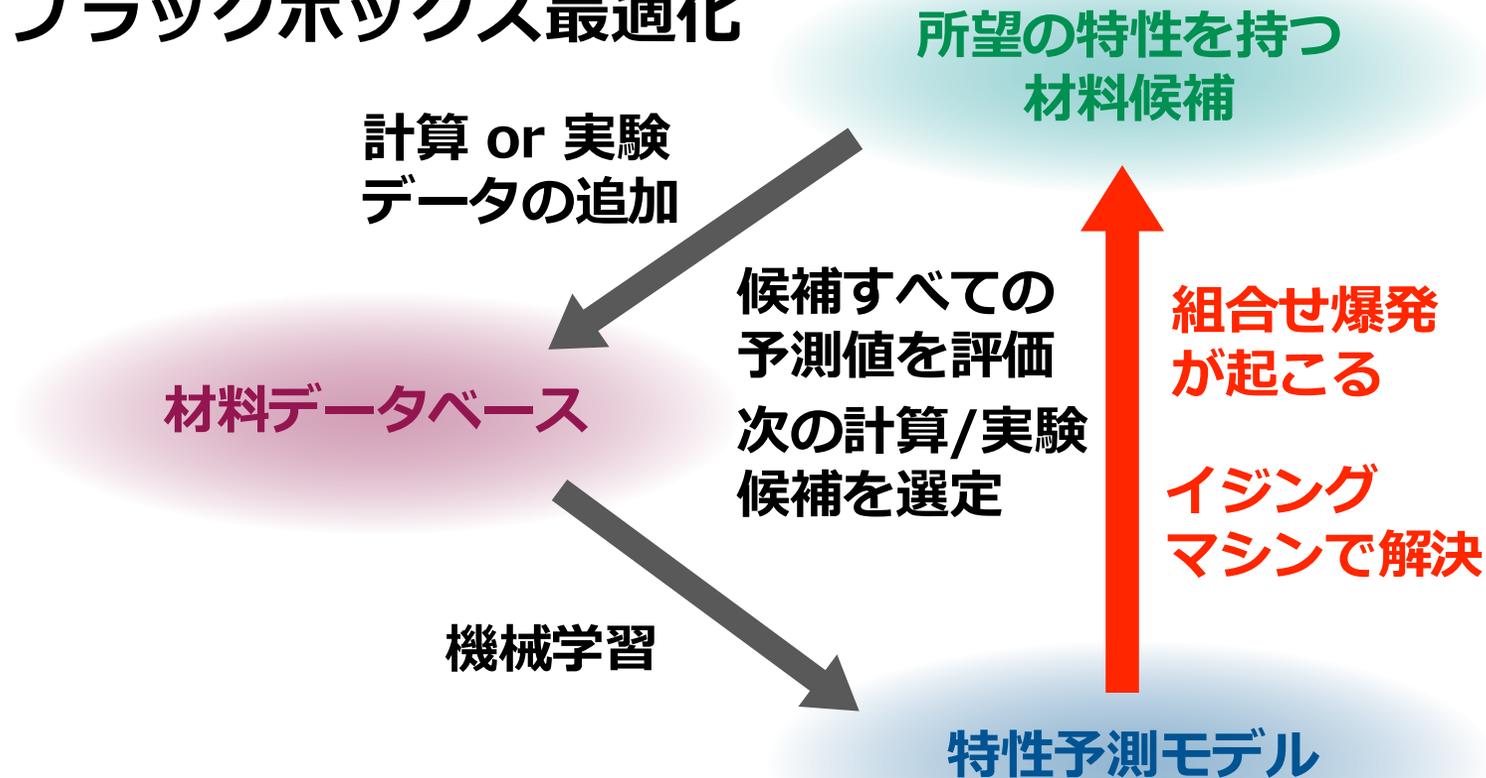
相互作用が混ざったとき

全てのエネルギーが
満たされることがなく、
基底状態を見つけるのは
難しい
(スピングラス)

ベイズ最適化を加速！

より多くの候補数を扱うためにイジングマシンを用いた候補選択を行う。

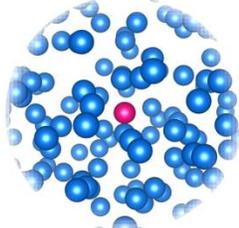
ブラックボックス最適化



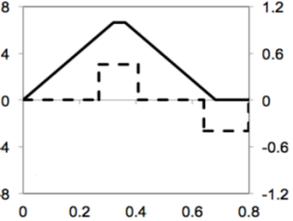
組成

$\text{SmFeAs}(\text{O}_{1-x}\text{F}_x)$
 $(\text{Li}_3\text{BO}_3)_{1-x}(\text{Li}_2\text{SO}_4)_x$
 $\text{Fe}_a\text{Ni}_b\text{Cu}_c\text{Si}_d$

構造



プロセス



バイナリ問題に特化したブラックボックス最適化手法

0-1で表せる問題に適用可能

アニーリングマシンの利用 : FMQA

全ての候補から
予測特性が一番よい
候補をイジング
マシンで選ぶ。

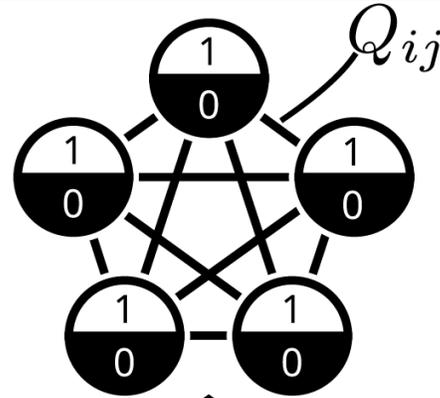
特性予測用
イジングモデル
を学習する。

Factorization machine

イジングモデルの
基底状態が望みの特性を
持つと予測される材料

FMQA

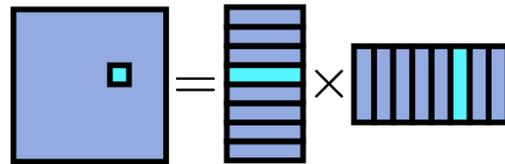
量子アニーリング(QA)



QUBOパラメタ or
イジングパラメタ

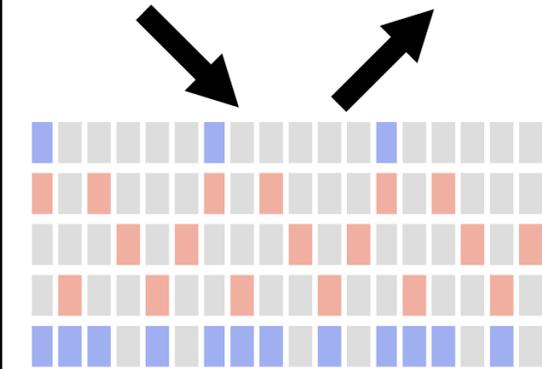
Factorization machine(FM)

$$Q_{ij} = \sum_k v_{ik} v_{jk}$$



一番良い候補の特性を
計算or実験する。

特性シミュレーション or 実験



FOM=0.724 (特性スコア)

最適構造
の提案

トレーニング
データの追加

既存の材料シミュレータ
に置き換え不要
簡単に導入可能

Factorization machine

$$y(\mathbf{x}) = \sum_{i=1}^N w_i x_i + \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \sum_{k=1}^K v_{ik} v_{jk} x_i x_j$$
 : FMの予測モデル(Adamで学習)
 (BOでのガウス過程の代わり)

目的変数
(材料特性)

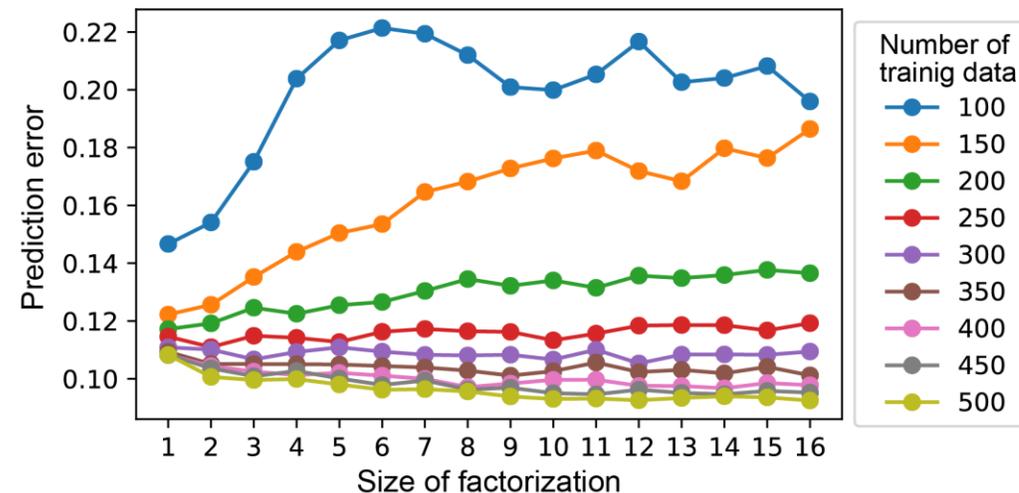
$$\mathcal{H} = \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N Q_{ij} x_i x_j$$
 : QUBO

$x_i \in \{0, 1\}$: 説明変数(構造)

書き換え可能

FMの利点：フィッティングパラメタがスパース(少なく)になり過学習が防げる。

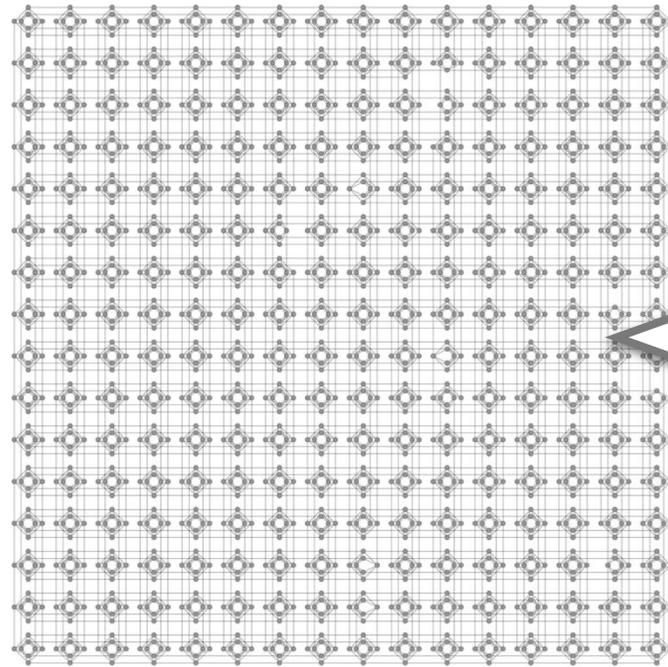
S. Rendle, IEEE International Conference on Data Mining pp. 995–1000 (2010).



Factorization machineをQUBOに書き換えると、QUBOの基底状態は、予測特性が最も良い材料の説明変数

アニーリングマシンによる選択

D-Wave 2000Qを用いて選択を実行
(あらゆるアニーリングマシンが適用可能)



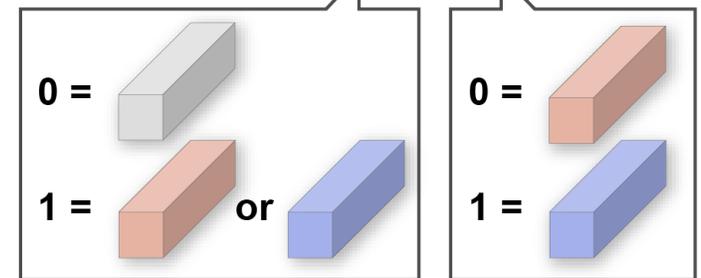
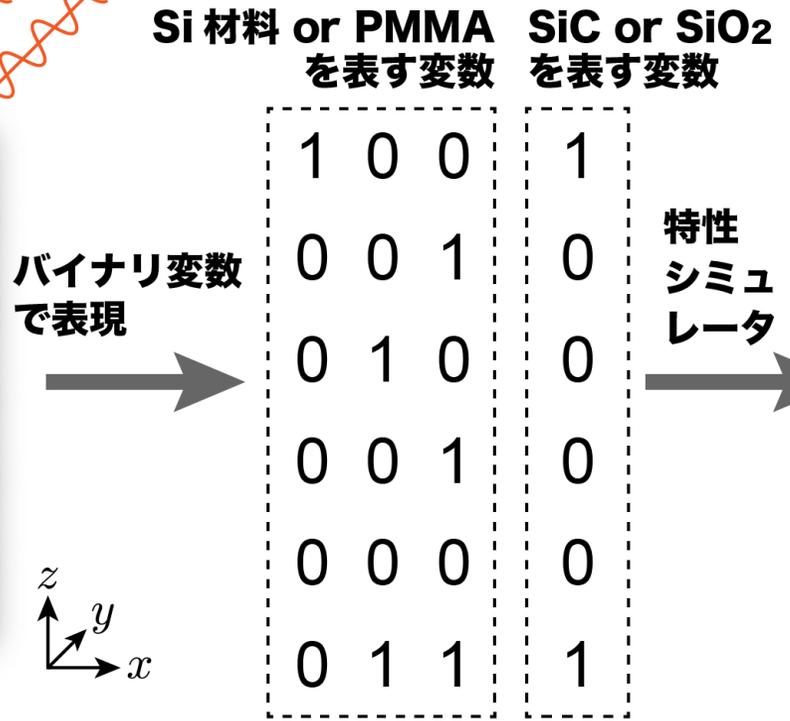
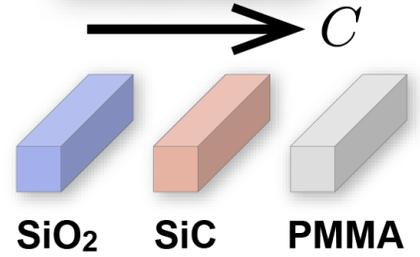
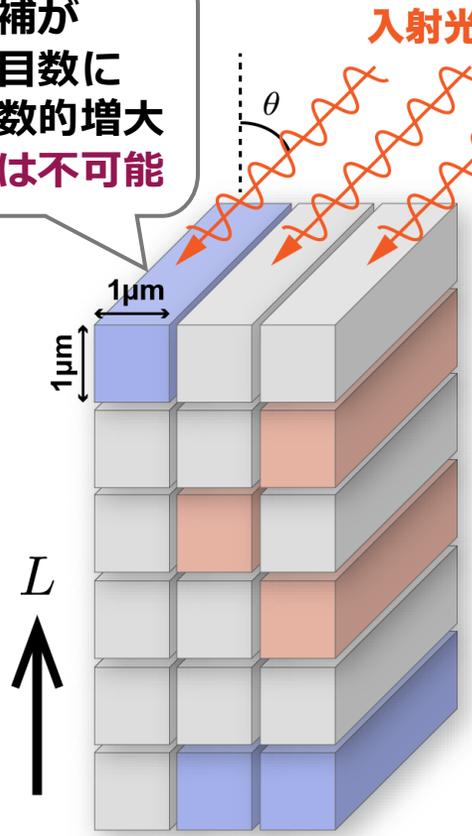
num_reads=50で
最小エネルギー状態を
次の候補に採用

2038キュービットのキメラグラフ
(63ビットの全結合グラフの計算が可能)

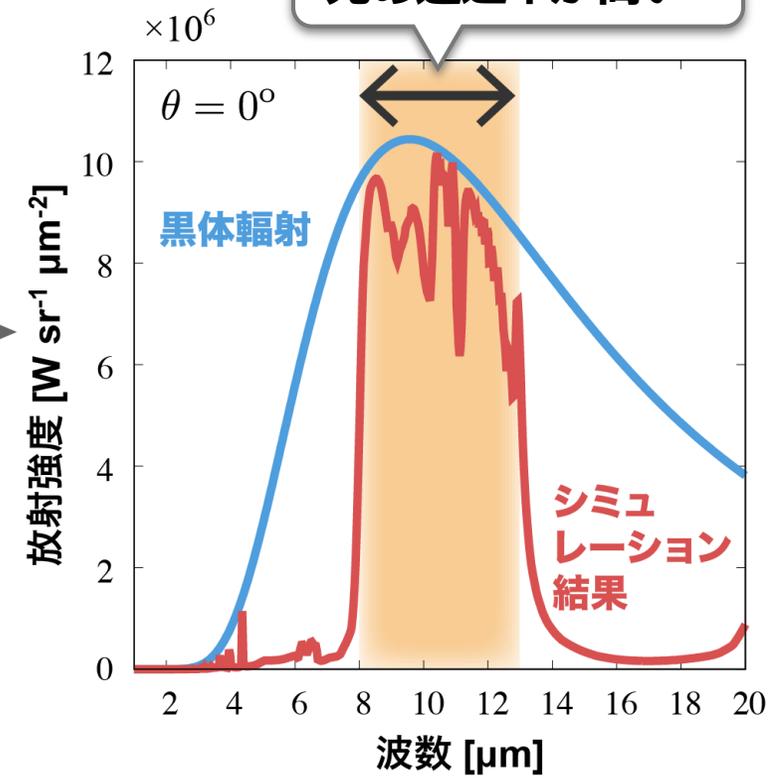
すでに選択された材料が選択された場合 → ランダムに選択
ベイズ最適化の「探索」

応用事例：放射冷却用メタマテリアル

構造候補が
さいの目数に
指数関数的増大
全計算は不可能



大気窓
大気の影響が少なく
光の透過率が高い



スコアを評価
↓
FOM=0.686

電磁波が宇宙空間に放出され温度が低下

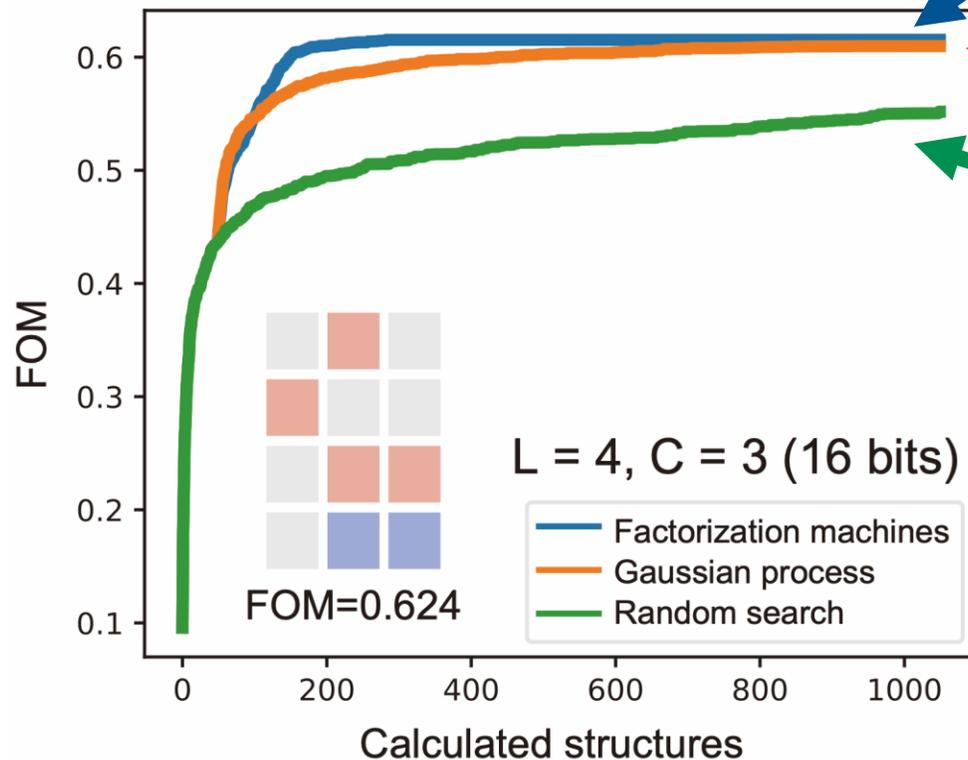
FMQA有効性の検証

16ビットで表せる構造
($2^{16}=65536$)

24ビットで表せる構造
($2^{24}=16777216$)

全探索による選択
(D-Waveは使用せず)

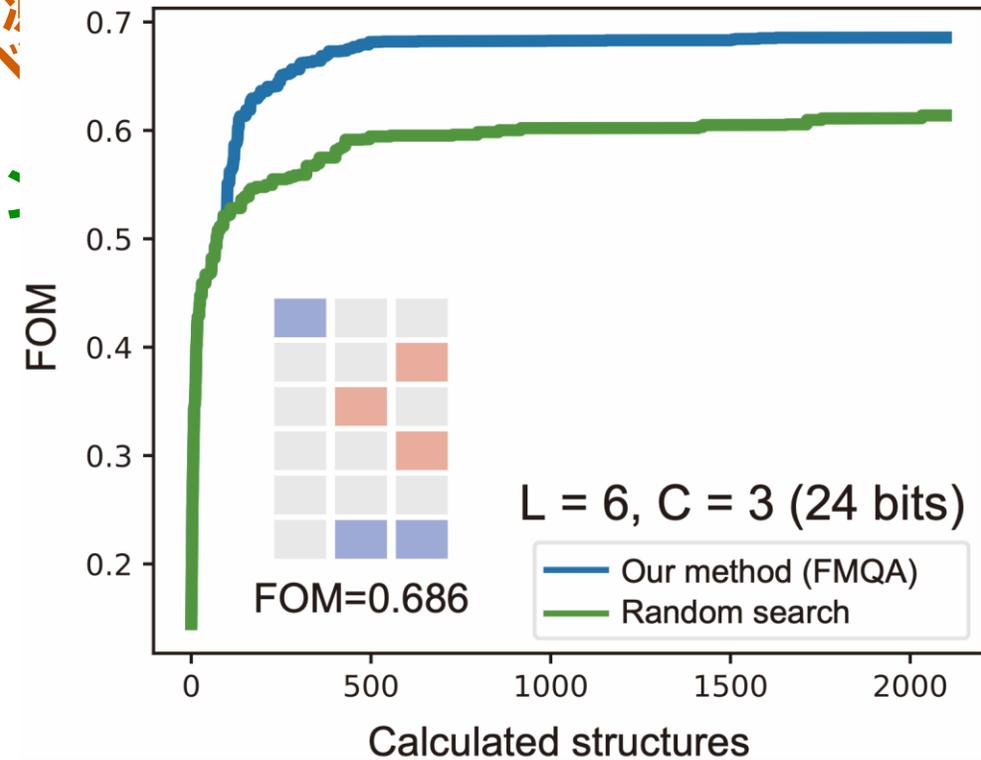
Dr-Waveを用いた選択
(候補数が多くなった)



予測モデルとしてFMを利用

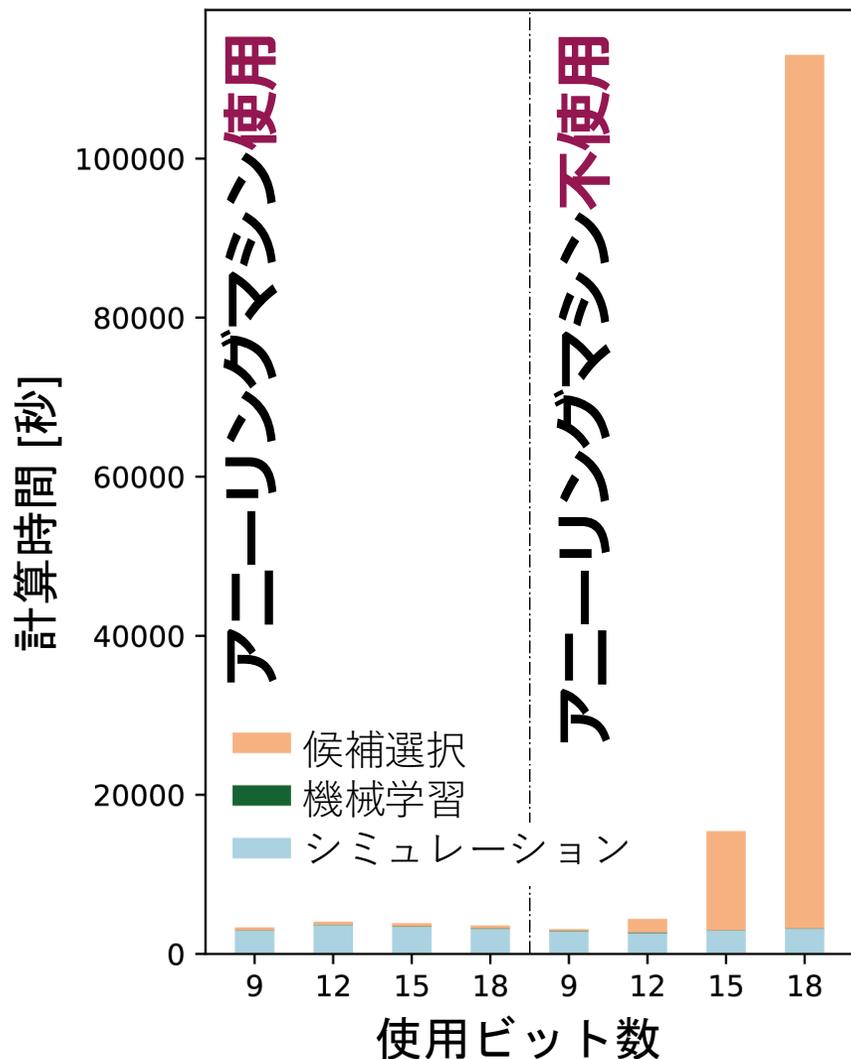
予測(ベ)

ラ:

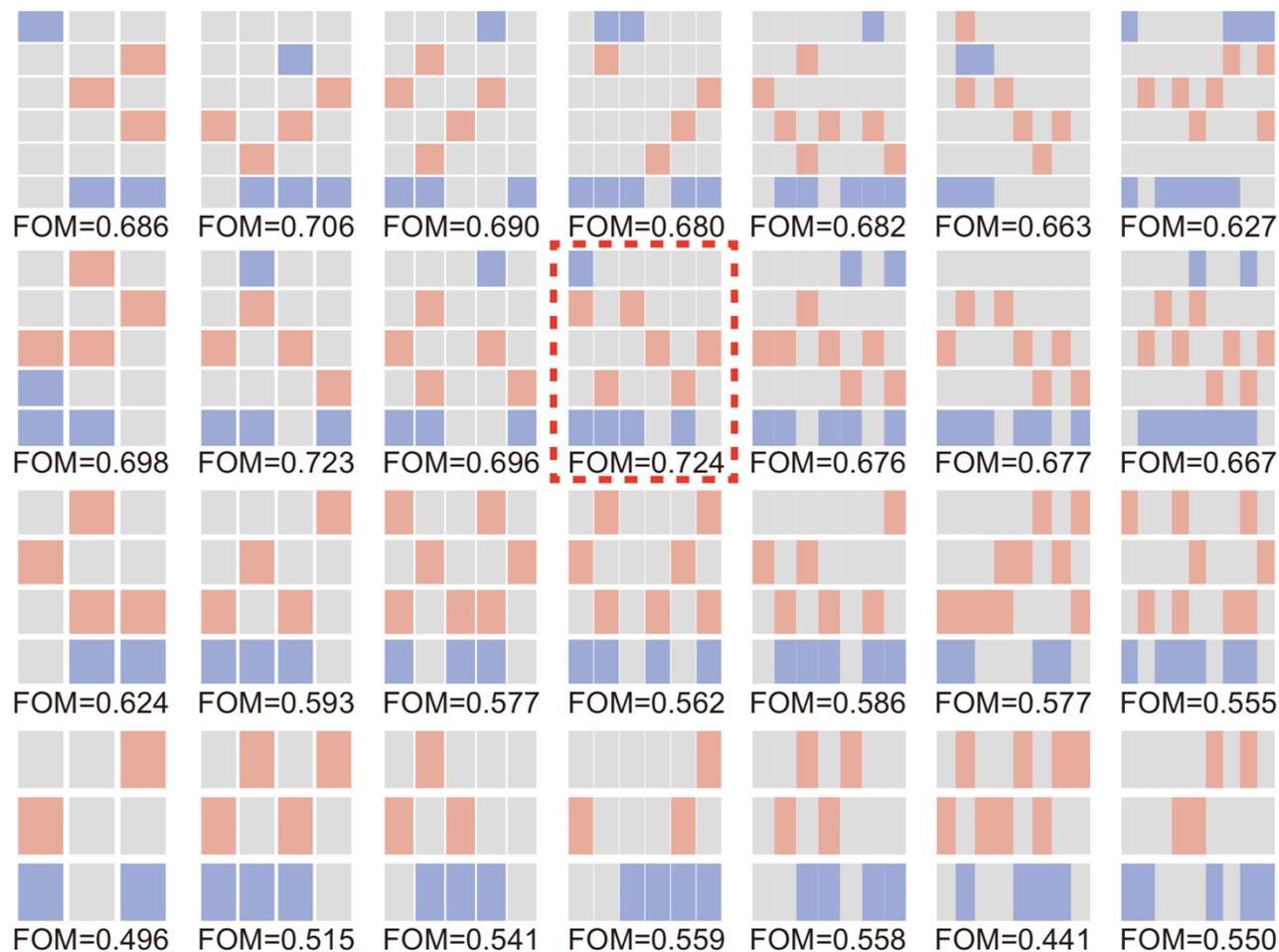


計算時間と探索結果

計算時間比較



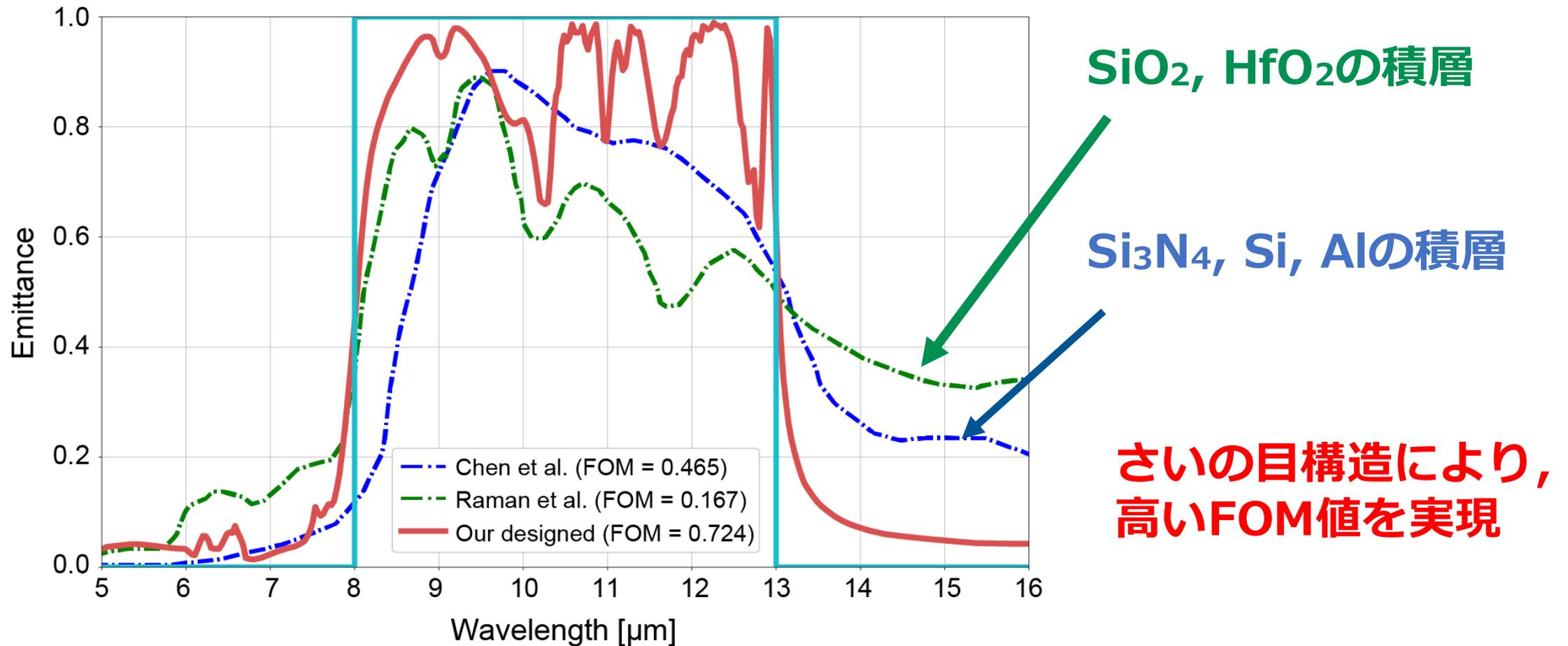
FMQAが見つけた最適構造



計算時間の短縮により網羅計算が実行可能に

これまでの材料との比較

アニーリングマシンを用いてデザインした
メタマテリアルは既存の材料より良いFOM値を示す。



FMQAパッケージ



Why GitHub? Team Enterprise Explore Marketplace Pricing Search

tsudalab / fmqa

<> Code Issues Pull requests Actions Projects Security Insights

master 2 branches 0 tags Go to file Code

k-kitai Prevent error when key is missing 848a74e on 30 Sep 2020 12 commits

fmqa	Prevent error when key is missing	6 months ago
LICENSE	Licensing and reference	2 years ago
README.md	Update README.md	13 months ago
setup.py	Rename fmbqm to fmqa	13 months ago

README.md

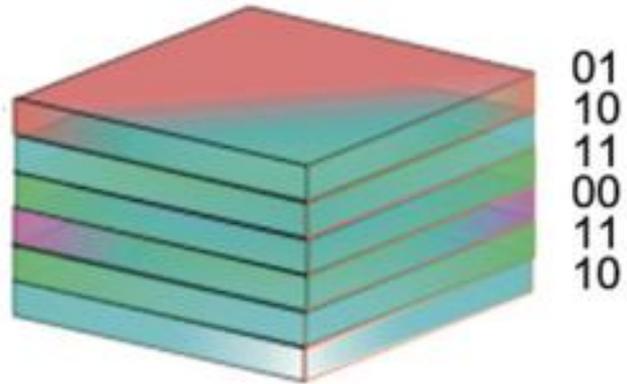
fmqa

シミュレーテッドアニメーションも利用できる。

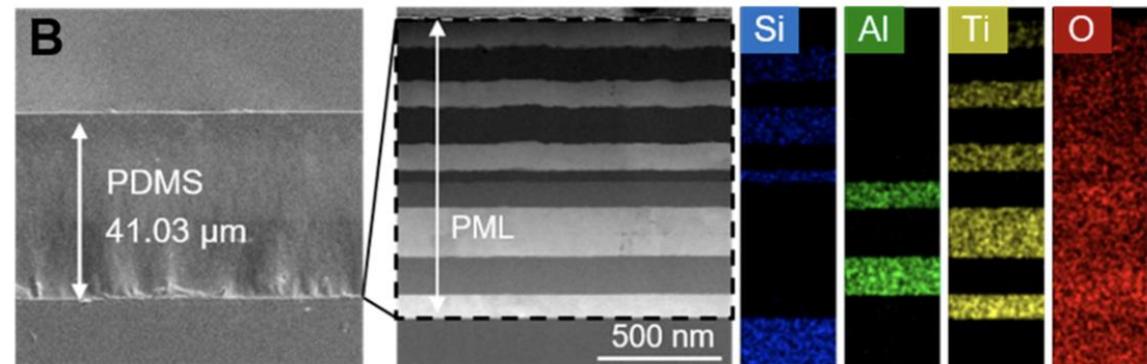
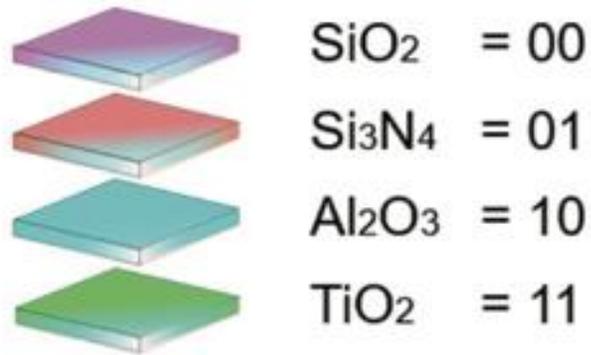
<https://github.com/tsudalab/fmqa>

層状材料 by Notre Dame

high-performance transparent radiative cooling



Binary vector: 01 10 11 00 11 10



S. Kim, T. Luo et al., ACS Energy Lett., 7, 4134 (2022)

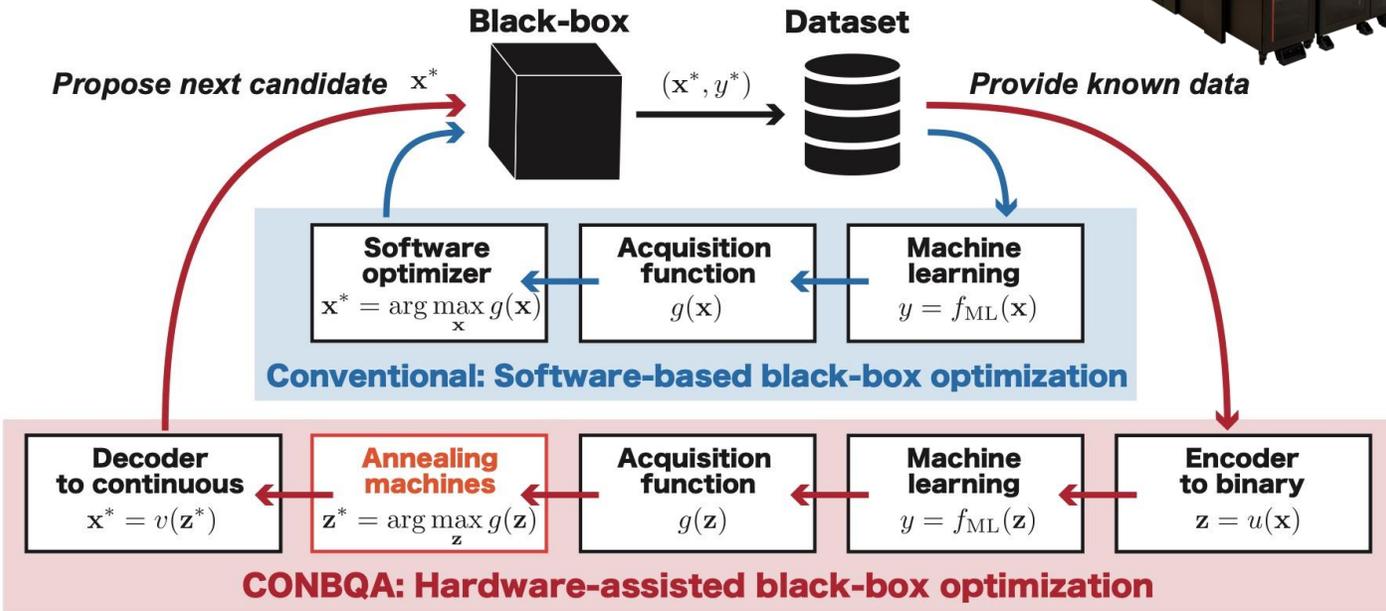
FMQAのさらなる拡張

連続値や離散値も扱いたい！

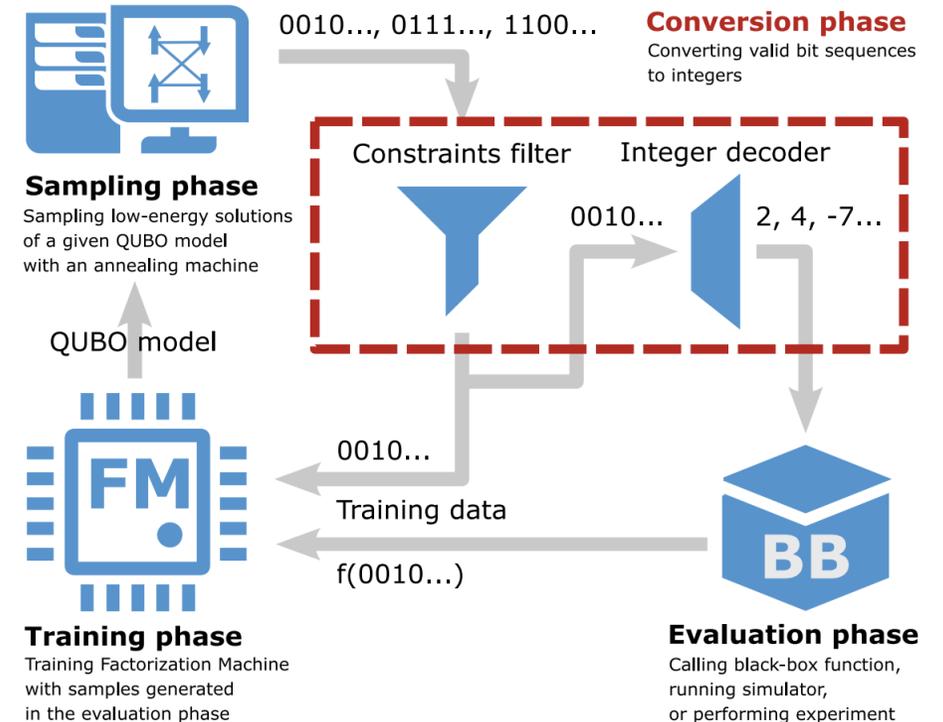


CONTinuous Black-box optimization with Qubo model solved by Annealer (CONBQA)

連続値を0/1に変換すれば扱える



Black-box optimization for integer-variable problems

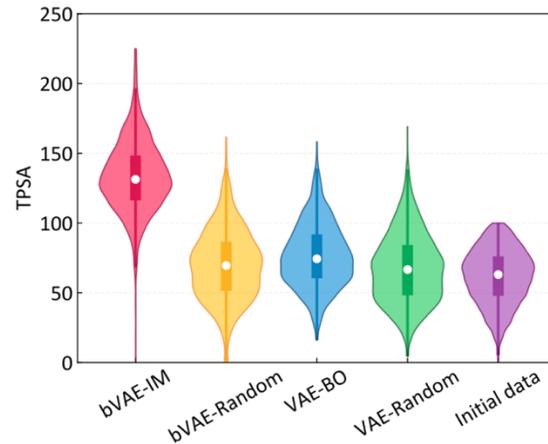
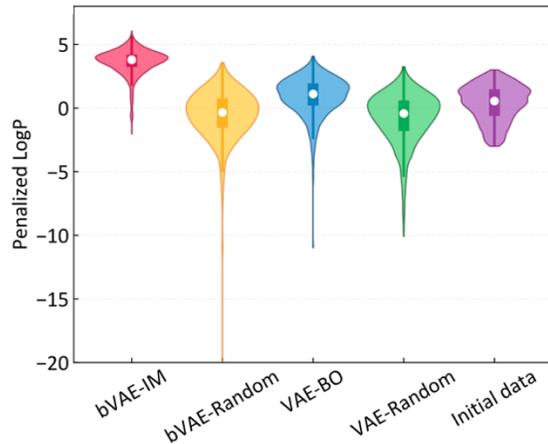
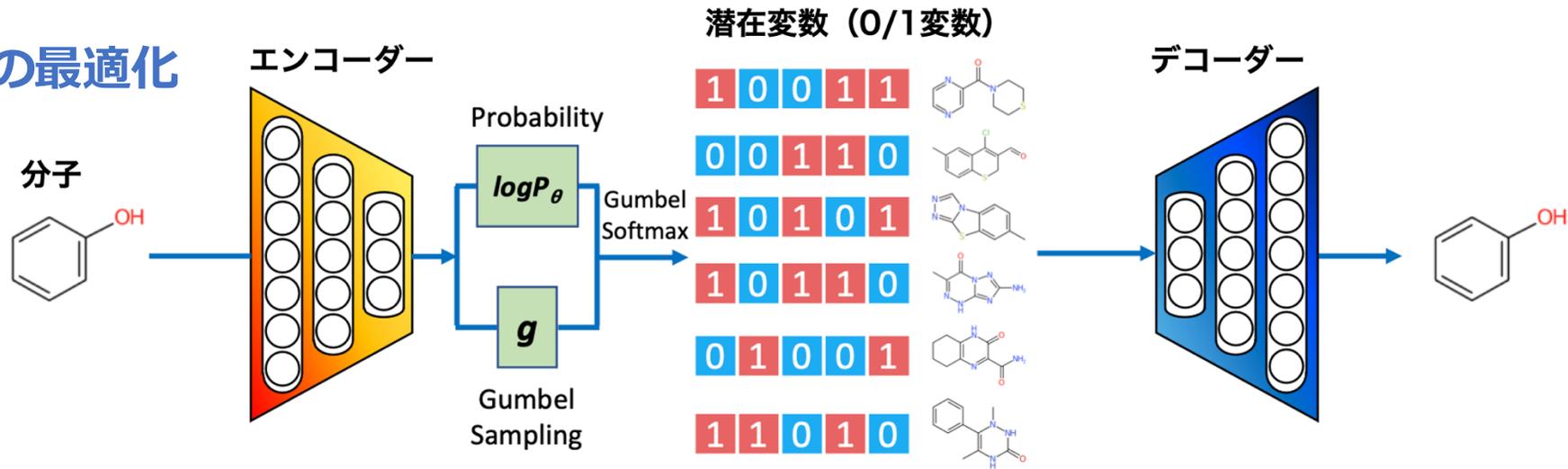


S. Izawa, K. Kitai, S. Tanaka, R. Tamura, and K. Tsuda, Phys. Rev. Res. 4, 2, 023062 (2022).

Y. Seki, R. Tamura, and S. Tanaka, arxiv:2209.01016

データベースからのスクリーニング

分子構造の最適化



標準マシン

Fixstars Amplify AE

Fixstars Amplify Annealing Engine (AE) は、GPUベースのアニーリングマシンです。フィックスターズの高速化技術を基に開発され、26万ビット以上の大規模問題の入力と高速実行が可能です。将来の高性能量子コンピュータ利用に備えて、互換性のあるアプリケーション開発やPoCの実施に適しています。

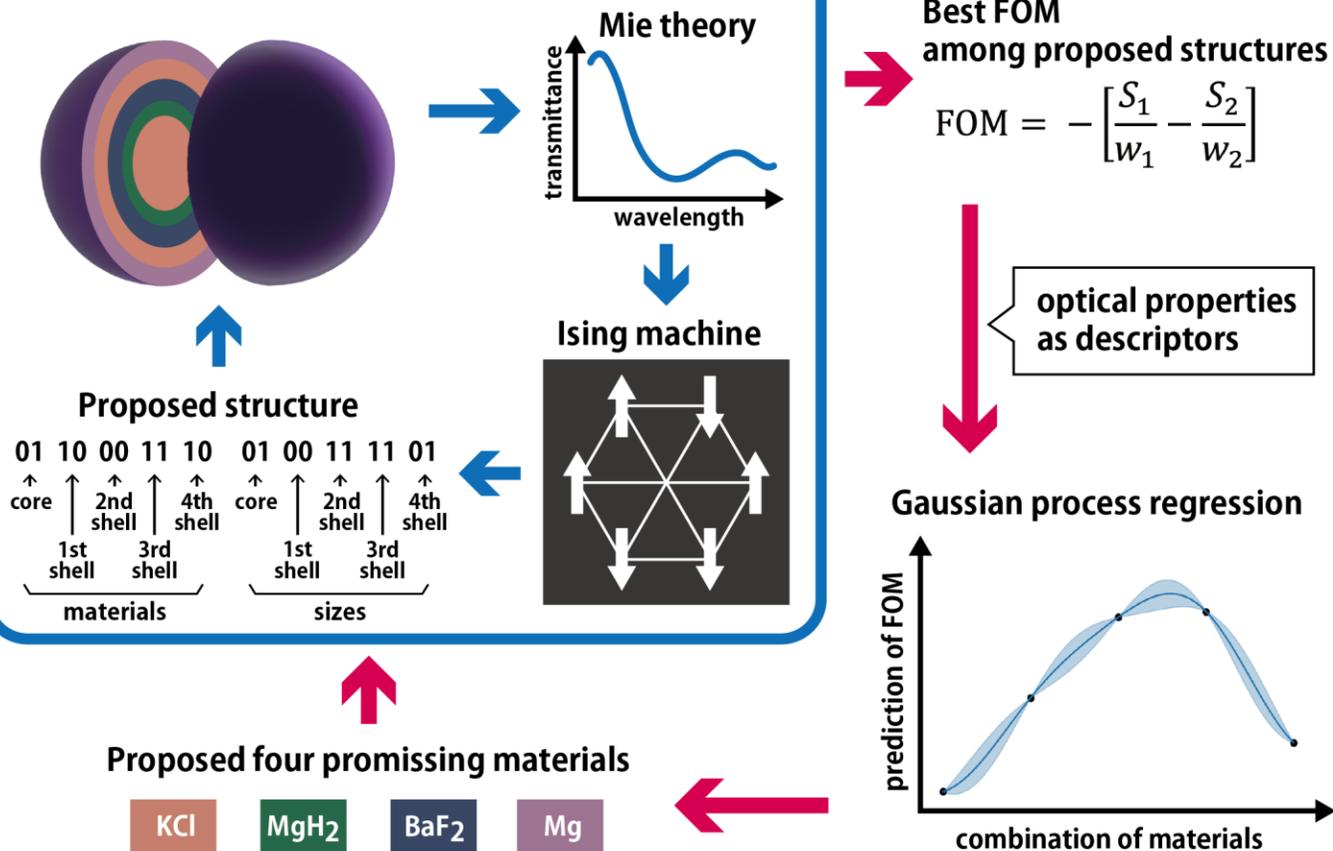
[パフォーマンスを見る](#) →

Z. Mao, Y. Matsuda, R. Tamura, and K. Tsuda,
Digital Discovery 2, 1098 (2023).

離散&スクリーニング同時実行

Material selection using Bayesian optimization

Structural optimization using FMQA



離散最適化はFMQA

スクリーニングはベイズ最適化



標準マシン

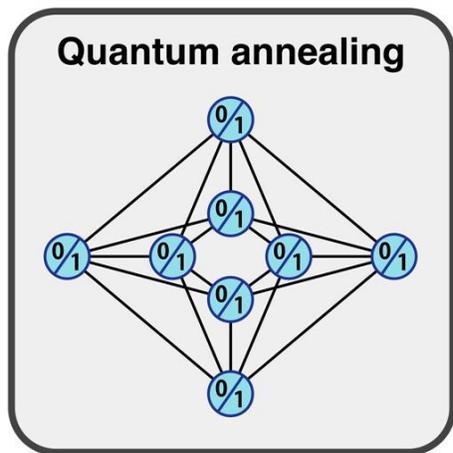
Fixstars Amplify AE

Fixstars Amplify Annealing Engine (AE) は、GPUベースのアニーリングマシンです。フィックスターズの高速化技術を基に開発され、26万ビット以上の大規模問題の入力と高速実行が可能です。将来の高性能量子コンピュータ利用に備えて、互換性のあるアプリケーション開発やPoCの実施に適しています。

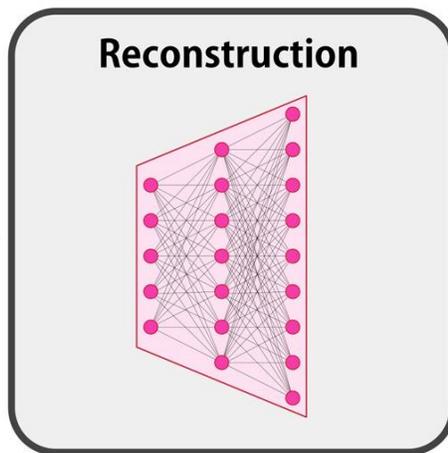
[パフォーマンスを見る](#)

M. Urushihara, M. Karube, K. Yamaguchi, and R. Tamura
Advanced Photonics Research,
23002 (2023).

多目的最適化



0110...



抗菌性と非溶血性を同時に示すペプチド探索

sequence	MIC ($\mu\text{g/mL}$)	hemolyticity
GFKTLKNLAKKVAKKVLKAVR	6.25	non-hemolytic
KLGGKILKKVGGKHVGGFYTGII	6.25	non-hemolytic
WKSVLKKVIKIGIKVVSVMGQAQ	3.13	hemolytic
GLVTVLKKVAKGIVKTASKVGSKEL	>100	N/A
N/A	6.25	N/A

QUBO

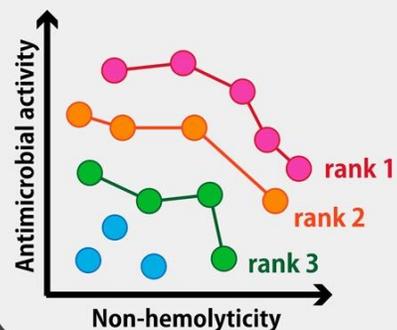
sequences

Factorization Machine

$$y = \sum_{i=1}^M h_i x_i + \sum_{i,j=1}^M J_{ij} x_i x_j$$

$$J_{ij} = \sum_{k=1}^K w_{ki} w_{kj}$$

Nondominated Sorting



Property Acquisition

Antimicrobial activity
Non-hemolyticity

training data

properties

A. Tučs, F. Berenger, A. Yumoto, R. Tamura, T. Uzawa, and K. Tsuda, *ACS Medicinal Chemistry Letters* 14, 577 (2023).



Fixstars Amplifyを用いた実装



Japanese 無料ユーザ登録 ログイン
デモ&チュートリアル 製品紹介 ドキュメント お客様事例 会社情報



チュートリアル応用編

ブラックボックス最適化 (1)

プログラミング難易度 ★★★★★

複雑で未知な目的関数にも適用可能な、機械学習と組み合わせ最適化を組み合わせたブラックボックス最適化手法を紹介し、Amplifyを用いて実装します。

サンプルコード



チュートリアル応用編

ブラックボックス最適化 (2)

プログラミング難易度 ★★★★★

機械学習と量子アニーリング・イジングマシンを活用するブラックボックス最適化の適用例として、疑似的な高温超電導を実現する材料探索を取り扱います。

サンプルコード



チュートリアル応用編

ブラックボックス最適化 (3)

プログラミング難易度 ★★★★★

化学プラントにおける生産量を最大化するための運転条件最適化を行います。最適化には、機械学習モデルに基づくブラックボックス最適化と化学反応に関する物理シミュレーションを用います。

サンプルコード



Japanese 無料ユーザ登録 ログイン
デモ&チュートリアル 製品紹介 ドキュメント お客様事例 会社情報

Home > デモ&チュートリアル > ブラックボックス最適化 (1)

Jupyter Notebookで実行する

サンプルコード

量子アニーリング・イジングマシンによるブラックボックス最適化

本サンプルコードでは、クソ関数と見なし、そのサンプルコードは、

- ブラックボックス
- ブラックボックス
- ブラックボックス

```
import torch
import torch.nn as nn

# 乱数シードの固定
torch.manual_seed(seed)
```

```
class TorchFM(nn.Module):
    def __init__(self, d: int, k: int):
        """モデルを構築する

        Args:
            d (int): 入力ベクトルのサイズ
            k (int): パラメータ k
        """
        super().__init__()
        self.d = d
        self.v = torch.randn((d, k), requires_grad=True)
        self.w = torch.randn((d,), requires_grad=True)
        self.w0 = torch.randn((), requires_grad=True)
```

<https://amplify.fixstars.com/ja/demo>

https://amplify.fixstars.com/ja/demo/fmqa_0_algebra

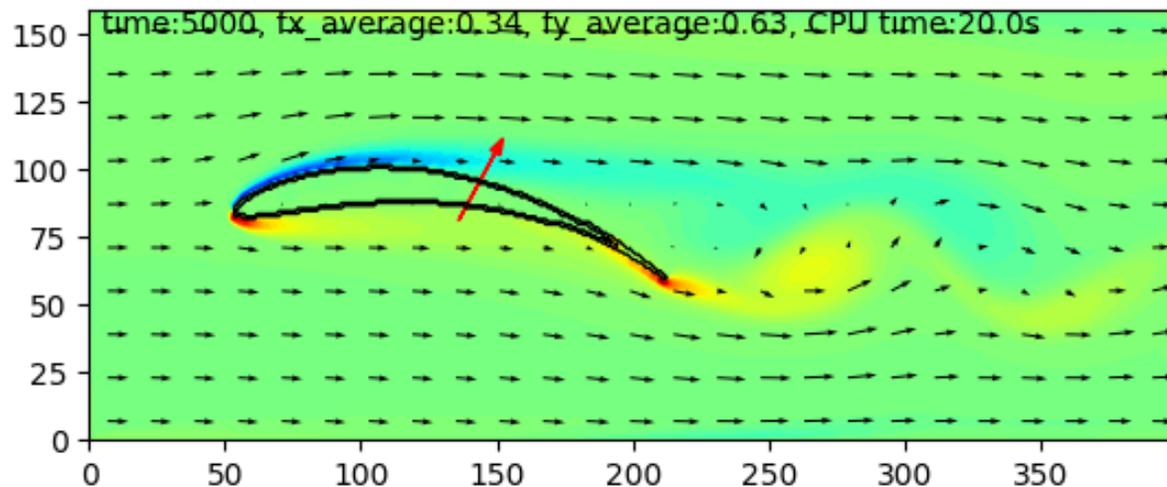
整数値問題の各種デモ by Amplify



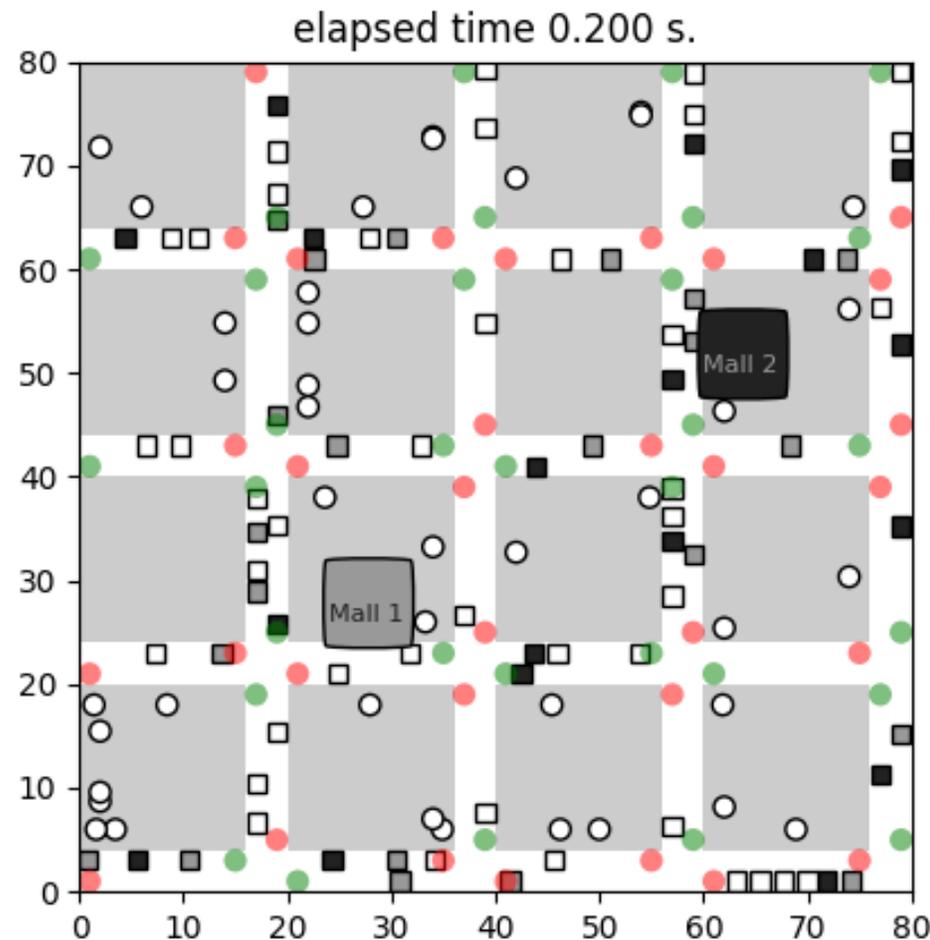
整数値はOne-hotエンコーディング

- 1は $[1, 0, 0, 0]$
- 2は $[0, 1, 0, 0]$
- 3は $[0, 0, 1, 0]$
- 4は $[0, 0, 0, 1]$

翼形状の最適化



信号制御最適化



FMQA誕生秘話@Fixstars Amplify

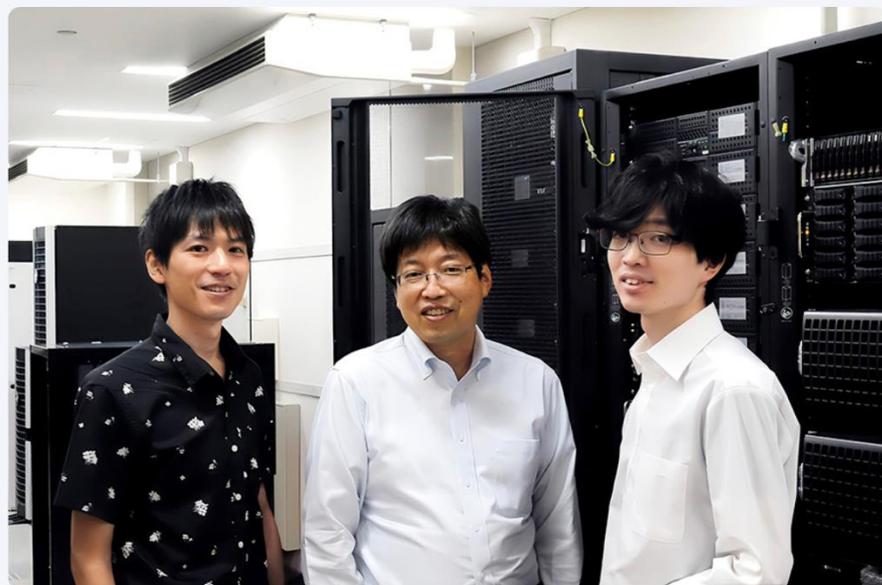


デモ&チュートリアル 製品紹介 リソース セミナー お客様事例 会社紹介 スケジュール最適化

東京大学大学院 新領域創成科学研究科

ブラックボックス最適化手法 (FMQA) の開発に成功

<https://amplify.fixstars.com/ja/customers/interview/fmqa>



(左から) 田村さん、津田先生、北井さん

田村さん 私はもともと物理の出身で、学生時代はイジングモデルの研究などを行っていました。2012年からは国立研究開発法人 物質・材料研究機構 (NIMS) に所属し、研究対象が材料や化学の領域へと移っていましたが、2017年からはご縁があってMI分野が専門の津田研究室で講師をやらせていただくことになりました。

2018年頃だったと思いますが、会話の中で先生が唐突に「量子アニーリング (イジングモデル) はブラックボックス最適化にも使えると思う」と仰ったんです。

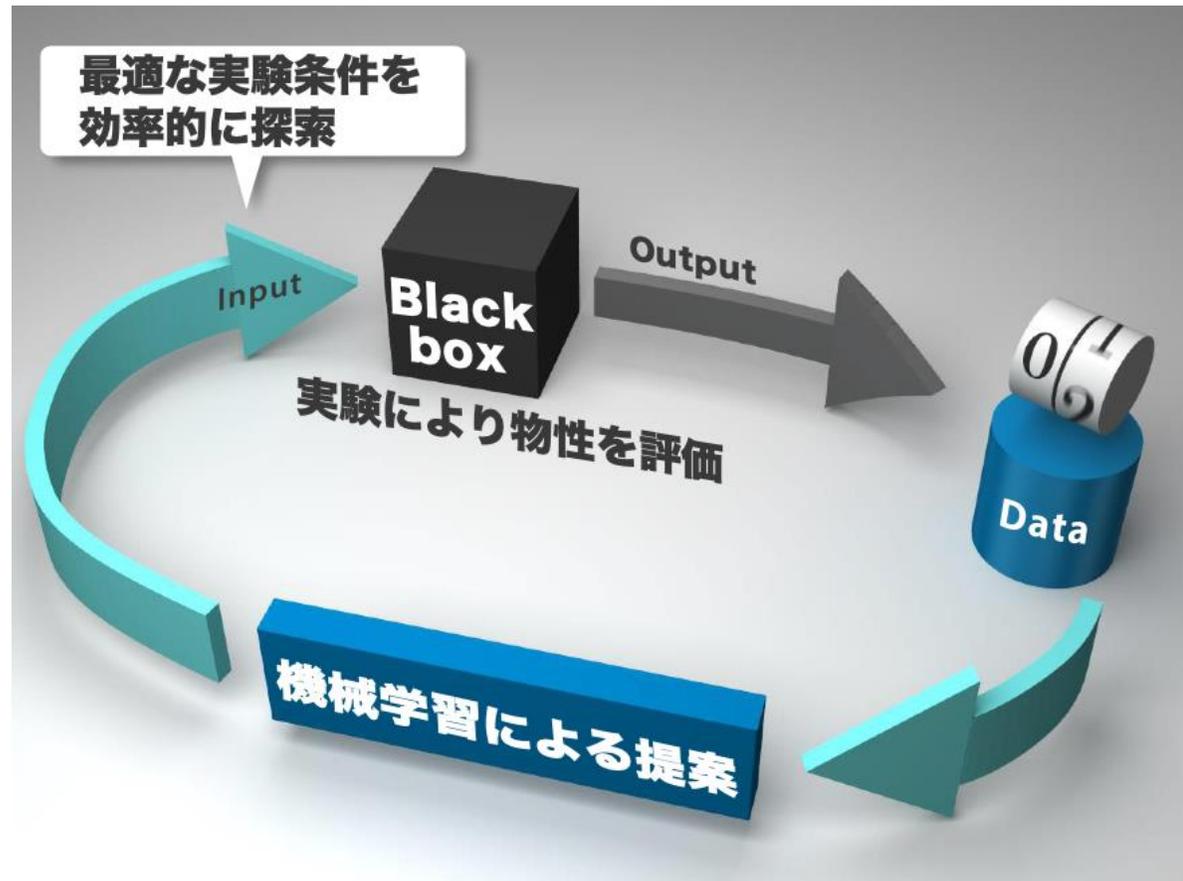
2017年にD-Wave社の2000Qという量子アニーリングマシンがリリースされ、世の中で少しずつ「量子アニーリング」という言葉を聞く機会が増えてきた頃でしたが、当時は、量子アニーリングマシンを使うためにはまず定式化が必要との認識のもとで、量子アニーリングマシンの特徴を活かすような2次の問題やその定式化について試行錯誤を繰り返している状況だったので、明示的な定式化を行わないブラックボックス最適化に量子アニーリングを使うと聞いた時は、えっと驚いたのを覚えています。

津田先生 当時は「量子コンピュータ」が注目され始めた頃で、個人的に大変興味を引かれており、なんとか自分の研究でも活用できないかと思っていました。決定的な何かがあったというわけではなく、なんとなく量子アニーリングを使うならこのあたりかな、と直感的に思いました。田村さんがイジングモデルや量子アニーリングの研究をしていたことを知っていたので、田村さんに話をしたんです。

田村さん そのお話があってから、最初は半信半疑だったのですが、回帰問題をブラックボックス最適化問題として量子アニーリングマシンを使って解いたところ、思った以上にうまくいったため、大変驚きました。その後、北井さんも含めて色々試行錯誤を繰り返していく中で、入力データの学習には、決定変数同士の2次の項を含めたモデル推定を行うFMにすれば、推定したモデルの係数をそのままQUBO係数として使うことができ、一気に最適化問題が解けるのではないかと気付いたことで、研究が一気に進んでいきました。

ブラックボックス最適化

機械学習の予測とアニーリングマシンで最適化を**超**高速化する！



Optigan

