

# 機械学習とイジングマシンを組み合わせた光学特性を対象としたコアシェルナノ粒子の最適化アルゴリズムの開発

漆原 誠 軽部 允也 田村 亮 山口 健志

Development of Optimization Algorithms for Optical Properties of Core-shell Nanoparticles  
Using a Combination of Machine Learning and Ising Machine

Makoto URUSHIHARA Masaya KARUBE Ryo TAMURA Kenji YAMAGUCHI

## Abstract

In recent years, data-driven approaches have been widely applied to complex materials development, such as high degrees of freedom in structure and materials. In this study, we developed a new optimization algorithm for optical properties of core-shell nanoparticles (CSNPs), which is combined with machine learning and Ising machine. In the proposed algorithm, the structural configuration of the CSNPs is optimized using an Ising machine, whereas the constituent materials are selected through Bayesian optimization, with their optical properties serving as descriptors. The target optical properties of the CSNPs are transparency in the ultraviolet range (355–375 nm) and opacity in the visible range (400–830 nm). The CSNPs obtained by the proposed algorithm is a diameter of approximately 40 nm and outer shells composed of Mg or Pb. In addition, it is shown that CSNPs with double metal shell could potentially achieve the target optical properties. Furthermore, it is confirmed that the use of the GPU-based Ising machine for combinatorial optimization reduces computation time for optimization work. These results suggest that an appropriate combination of optimization techniques can allow more efficient design of more complex materials from an increasingly vast design space.

キーワード：マテリアルズ・インフォマティクス、ブラックボックス最適化、機械学習、イジングマシン、ナノ粒子

## 1. はじめに

近年、半導体産業や自動車、医療分野で用いられるデバイスや機器は高性能化しており、それらを支える材料・素材においても、求められる機能は高度化・複雑化している。多種の元素や複数の材料<sup>[1-3]</sup>を組合せることで、従来にない機能を持つ材料開発が盛んに行われている。これらの複雑な材料の設計・開発では、元素や材料、構造の組合せ候補は膨大となり、組合せ爆発を起こす。このような系では、最適な組合せを見出すことは容易ではない。

このような中、マテリアルズ・インフォマティクス (MI) やデータ駆動型の材料開発が注目されており、材料開発を効率化するためのさまざまな最適化手法が提案され、実際に活用されている<sup>[4]</sup>。著者らは、NIMS- 三菱マテリアル情報統合型材料開発センター (NIMS-MMC-CoE) の中で、実験・材料シミュレーションと最適化手法や MI 手法を組み合わせることで、材料やそのプロセ

スを解析・最適化する試みを複数行ってきた<sup>[5-7]</sup>。本稿ではその中から、量子アニーリングに代表されるイジングマシンと機械学習を組み合わせた材料の最適化事例である光学特性を対象としたコアシェルナノ粒子の最適化アルゴリズムの開発事例<sup>[5]</sup>を紹介する。

コアシェルナノ粒子は、単一の材料からなるナノ粒子に比べて材料設計の自由度が高く、高度に機能が制御された材料を作成できる可能性がある、そのため触媒<sup>[8]</sup>やバイオマテリアル<sup>[9]</sup>等で研究が進められている。紫外～近赤外光に対する光学応答を利用した光学材料<sup>[10-13]</sup>も主要な用途のひとつである。ナノ粒子の構造や構成材料によって光学特性が大きく変わることから、用途に応じて粒子の設計が必要である。過去には全数探索<sup>[12]</sup>や機械学習モデルによる探索<sup>[13]</sup>の試みもあるが、事前データや大きなデータセットが必要であるという課題があり、より効率的な探索方法の開拓が必要である。今回我々は、紫外・可視領域の波長で所望の光学特性を持つ材料をターゲットとした。具体的には、355～375 nm では光を通さ

すに、400~830 nmにおいては光を透過する材料である。これは例えばi線のフォトリソグラフィで用いられる光学材料を想定したものである。コアシェルナノ粒子を構成する材料、粒子径、シェル厚みを変数として、所望の光学特性を持つ粒子の最適化アルゴリズムの開発を行った。

## 2. 実験方法

### 2.1 目標とする光学特性と性能指數

目標とする光学特性は、透過率の波長依存性である可視紫外スペクトルで評価される。図1に概略図を示す。目標とするのは、355~375 nmでは透過率が高く、それ以外の領域では透過率が低いスペクトルを持つ粒子である。目標とするスペクトルに近いかどうか評価するための性能指數 (Figure of merit: FOM) を下記のように導入する。

$$FOM = - \left[ \frac{S_1}{w_1} - \frac{S_2}{w_2} \right]$$

ただし、 $T(\lambda)$ を波長に対する透過率の関数としたとき、 $S_1, S_2$  は

$$S_1 = \int_{355}^{375} T(\lambda) d\lambda,$$

$$S_2 = \int_{400}^{830} T(\lambda) d\lambda,$$

であらわされ、 $w_1 = 20$  (=375~355)、 $w_2 = 430$  (=830~400) である。 $S_1/w_1, S_2/w_2$  は重みづけされた透過領域と非透過領域の面積である。前者が大きいほど、後者が小さいほど、つまり FOM が小さいほど狙いの材料に近い、ということになる。

上記の特性を評価するには、ナノ粒子の透過スペクト

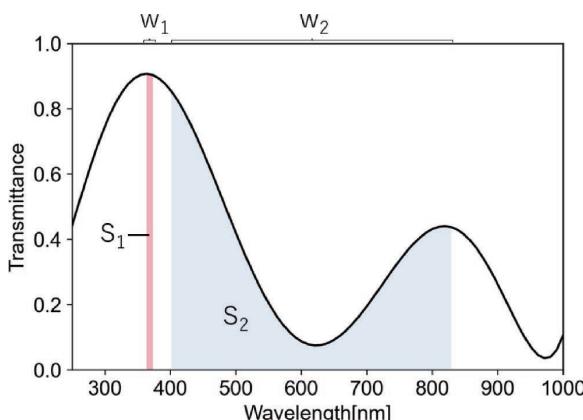


図1 透過スペクトルと性能指數を計算するためのパラメータの関係。目標とする材料は重みづけされた面積である  $S_1/w_1$  が大きく、 $S_2/w_2$  が小さい材料

Parameters for calculating the structural figure of merit (FOM) of core shell nano particles. The desired particles correspond to a large value of  $S_1/w_1$  and small value of  $S_2/w_2$

ルを得る必要がある。本研究では、Mie 散乱シミュレーター Scattnlay<sup>14)</sup> を用いて算出した。真空中に対象のナノ粒子が一つ存在する場合の波長 355~830 nm の光に対する吸収効率係数  $Q_{abs}(\lambda)$  と散乱効率係数  $Q_{sca}(\lambda)$  を計算した。この和から散逸効率係数  $Q_{ext}(\lambda)$  が求められる ( $Q_{ext}(\lambda) = Q_{abs}(\lambda) + Q_{sca}(\lambda)$ )。Scattnlay で  $Q_{abs}(\lambda)$  と  $Q_{sca}(\lambda)$  を計算するにあたり、ナノ粒子を構成する材料の光学定数 (屈折率  $n(\lambda)$  と消衰係数  $k(\lambda)$ ) が必要であり、公開データベース<sup>15)</sup> を参照した。得られた  $Q_{ext}(\lambda)$  を基にして、ナノ粒子が均一に真空中に分散していると仮定し、下記の式で透過スペクトル  $T(\lambda)$  を算出した。

$$T(\lambda) = \exp[-Q_{ext}(\lambda) \times S \times C \times L]$$

ここで、 $S$  はナノ粒子の直径から求まる断面積、 $C$  はナノ粒子の数密度、 $L$  は光を透過させるナノ粒子が分散している領域の光路長である。本研究では、ナノ粒子の体積密度が 5 vol% になるように  $C$  を算出し、 $L$  は 1  $\mu\text{m}$  と設定した。なお、粒子間の相互作用による影響は考慮していない。

### 2.2 探索範囲と最適化アルゴリズム

コアシェルナノ粒子の最適化にあたり、探索する範囲を決める必要がある。今回の粒子構造として、一つのコアと 4 層のシェルを持つ構造を想定した。より具体的には、コアは 20, 50, 75, 100 nm、シェル厚みは 2, 4, 6, 8 nm のいずれかとした。またコアとシェルを構成する材料は、公開データベース<sup>15)</sup> の中で波長 300 nm~900 nm の光学定数データが存在する無機材料 70 種 (表1) を探索範囲の対象とした。

上記から所望の光学特性をもつナノ粒子の最適化問題は、コア径は 4 つの選択肢、4 層のシェルは各シェル厚みが 4 つの選択肢、それぞれのコアとシェルの材料は 70 種類の選択肢があり、それらから最もよい組み合わせを

表1 最適化の対象とした 70 種の無機材料  
70 inorganic materials targeted for optimization

Ag	BiFeO <sub>3</sub>	Fe	InP	MoS <sub>2</sub>	Sc <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiN
Al	C	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	InSb	MoTe <sub>2</sub>	Se	TiO <sub>2</sub>
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CdS	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	KCl	NaCl	Si	V
AlAs	CdSe	GaAs	Li	Ni	SiC	VC
AlSb	CdTe	GaN	Lu	Os	SiO <sub>2</sub>	VN
Au	Co	GaP	Mg	Pb	Ta	W
B <sub>4</sub> C	Cr	GaSb	MgH <sub>2</sub>	PbSe	Te	Zn
BaF <sub>2</sub>	CsBr	Ge	Mn	Pd	Ti	ZnO
Be	CsI	GeO <sub>2</sub>	Mo	Pt	TiC	ZnS
Bi	Cu	InAs	MoO <sub>3</sub>	Rh	TiH <sub>2</sub>	Zr

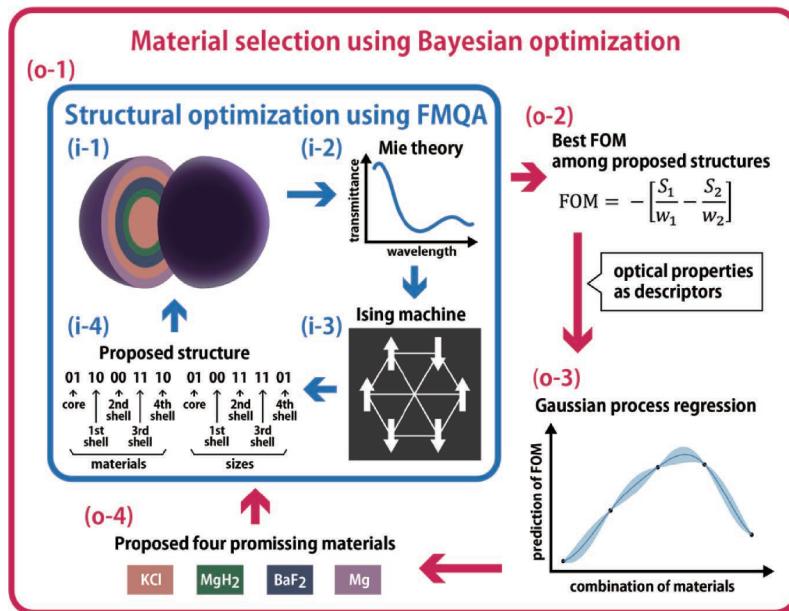


図 2 FMQA とベイズ最適化を組み合わせた最適化手法の概略図。内側水色 (i-1～4) は FMQA を用いたコアシェルナノ粒子の構造最適化、外側赤色 (o-1～4) は、材料の光学特性を説明変数としたベイズ最適化を用いたコアシェルナノ粒子の材料候補の選定（参考文献 5 から転載）

Process flow of the proposed optimization method obtained by combining factorization machine with quantum annealing (FMQA) and Bayesian optimization. In the inner loop, procedure from (i-1) to (i-4) is repeated, and FMQA was used to optimize the structure of the core–shell nanoparticles (CSNPs) using Ising machines. In the outer loop, procedure from (o-1) to (o-4) is repeated, and Bayesian optimization was used to select the constituent materials of the CSNPs with the corresponding optical properties as the descriptors. (Reprinted from Ref. 5)

選び出す、いわゆる組み合わせ最適化問題として設定できた。組み合わせ最適化問題の最適化法は問題に応じて色々と提案されているが、材料開発にも適用可能な方法の一つに FMQA<sup>16)</sup>がある。FMQA はイジングマシンを用いたブラックボックス最適化アルゴリズムの一つであり、いくつかの材料開発に応用されている<sup>16–18)</sup>。この方法は、探索対象を 2 進法で表現しさえすれば、様々な系に適用できる点が強みであるが、同じく材料開発でよく用いられているガウス過程回帰を使ったベイズ最適化のように、記述子によって材料候補があらかじめ一覧化されているような最適化問題には適さない。

そこで我々は、その両者の特性を活かした最適化手法を開発した。アルゴリズムの概略図を図 2 に示す。本アルゴリズムはコアシェルナノ粒子の構造最適化 (i-1～4) と材料選定 (o-1～4) の二つに大別される。コアシェルナノ粒子の構造最適化では、事前に 4 種類の材料を選定した上で、FMQA を用いてコア径・シェル厚み・材料をそれぞれの四つの選択肢から選定する。FMQA では、問題を二進法で表現する必要があるが、コア径、シェル厚

表 2 コアシェルナノ粒子のコア径、シェル厚み、構成材料の 2 進法表現

Binary representations of the core radius, shell thickness, and constituent material of the CSNPs

ビット	コア直径 [nm]	シェル厚み [nm]	材料
00	20	2	材料 1
01	50	4	材料 2
10	75	6	材料 3
11	100	8	材料 4

み、材料の 4 種類の表現方法を表 2 に示した。例えば、コア径が 50 nm、シェル厚みが内側から 2, 4, 6, 8 nm で、材料が内側から [材料 3, 材料 1, 材料 1, 材料 4, 材料 4] のナノ粒子の場合は、コア径、シェル厚み、材料の順番で、数字を並べていくと、01000110111000001111 という 20 桁の 2 進法で表現できる。なお、この場合の候補数の全数は 1048576(2<sup>20</sup>)である。FMQA による最適化

を実行する際は、最初にランダムな10組のナノ粒子（10組の20桁のビット列）を初期のデータベースとして用意し、それぞれのナノ粒子に対して透過率をシミュレーションにより評価し、FOMを計算した。それらの初期データベースを基に、FMQAを用いて100サイクルの最適化を実施した。なお、1サイクルあたり3つの最適化を並列で実施しており、最終的には330回のFMQAによる最適化を実施した。

FMQAによるコアシェルナノ粒子の構造の最適化の際に、材料候補は「事前に選定した4種類の材料」としたが、表1の70種の材料から4種の材料を選ぶ手法としてガウス過程回帰を用いたベイズ最適化を適用した。コアシェルナノ粒子の光学特性である透過率は、構成する材料の光学特性である光学定数の影響を強く受けると考え、材料の光学定数を説明変数として利用することで最適化効率が向上すると考えたためである。しかし、FMQAでは説明変数を用いることはできないためガウス過程回帰によるベイズ最適化を適用した。ガウス過程回帰の説明変数は、4つの材料の光学定数からなる26次元ベクトルによって定義した。具体的には、4つの材料の屈折率と消衰係数を、波長範囲300~900 nmで平均化し50 nm間隔で離散化した。FMQAを実行する際に用いたFOMをベイズ最適化における目的関数として使用した。ベイズ最適化では、期待改善量（Expected Improvement, EI）を獲得関数としてPHYSBOパッケージ<sup>19)</sup>を用いた。初期データセットとして、10組の材料の組み合わせをランダムに生成しそれらのFOMを事前に評価した。ベイズ最適化での総サイクル数は350とした。

改めて最適化全体の流れを説明する。最初にベイズ最

適化により4つの材料が選定され（図2(o-4)）、この4つの材料を用いたときのコアシェルナノ粒子の構造の最適化がFMQAによりなされる（図2(o-1)）。最もよいFOMの値は、その4つの材料の組み合わせにおけるFOMとしてデータベースに格納される（図2(o-2)）。その後、材料の光学特性を説明変数としてFOMを推算するガウス過程回帰を行い（図2(o-3)）、そのモデルを用いてFOMが最良となりうる4つの材料候補を提案する。4つの材料候補に対してFMQAによる構造最適化を行う、という流れである。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 FMQAを用いたナノ粒子の最適化

FMQAを用いることで、ナノ粒子構造最適化が効率に進んでいるかを確認するために、材料は事前に4種類を選定した上で、FMQA部分のみ（図2のi-1~4のみ）で最適化を行った。なお、テストケースとして10ケース実施し、各10ケースにおける材料4種もランダムに変更した。結果を図3に示す。図3は、最適化サイクル数を横軸に、各サイクル時点における最小のFOM値（3回の試行のうち最小値）を縦軸に示している。図3を見ると、100サイクル後においてはいずれのケースでも十分に低いFOM値を持つ構造が得られていることが分かる。なお、200サイクルまで行っても、FOMの大きな改善は見られなかったことから、構造最適化の総サイクル数を100に固定することとした。

更に、FMQAが効率的なのかを確認するためにランダム探索との比較を行った。ランダム探索は条件をFMQAと同じとした上で、10ケース全てに対して100サイクル

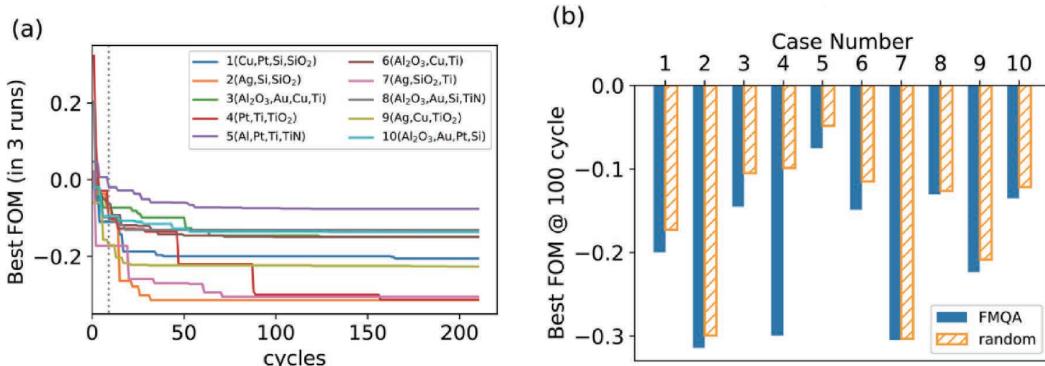


図3 (a) FMQA最適化におけるサイクル数と最小FOMの関係。点線はFMQAの初期データ生成のためのランダム最適化との切り替え点、括弧書きは材料を示す。一部のケースで材料が3種になっているが、4種の中で2種の材料が重複した場合である。(b) FMQA最適化とランダム最適化の100サイクル時の最良のFOM値（参考文献5から転載）

(a) Best FOM values obtained using the FMQA method for structural optimization. The dotted line indicates the switching point from random optimization to FMQA. Note that, in some cases, the number of selected materials is three because overlap limitation is not imposed in the selection of the four materials. (b) Comparison of the best FOM values yielded by FMQA and random optimization for each case. (Reprinted from Ref. 5)

すべての構造をランダムに生成して実施した。100サイクル時点における最小のFOM値の比較を図3の(b)に示した。すべてのケースにおいて、FMQAはランダム最適化よりも低いFOM値を持つ構造を探索できており、FMQAがコアシェルナノ粒の構造を効率的に最適化できることが分かる。

### 3.2 FMQAとベイズ最適化の組み合わせによるナノ粒子の最適化

2.2で説明したFMQAによる構造最適化とベイズ最適化による材料選定を組合せたアルゴリズムを用いて、70種類の材料を対象にコアシェルナノ粒子の最適化した結果を図4に示す。独立な試行を3回繰り返し、得られたFOMの最小値のサイクル依存性を図4(a)にプロットした。いずれのケースでも、サイクルを進めることでFOMが小さくなっていること、最適化が進んでいることが確認できる。ここで、最もFOMが小さいナノ粒子について透過スペクトルを図4(b)に示した。365 nm付近では0.8以上の高い透過率を維持しつつも、可視光域では広い波長

範囲にわたって透過率が0.2以下になっており、目標とする光学特性を有するナノ粒子が得られていることが確認できる。また図4(c)に、最もFOMが小さいナノ粒子の散逸 $Q_{ext}$ 、吸収 $Q_{abs}$ 、散乱 $Q_{sca}$ 効率係数を示した。透過率の元になる $Q_{ext}$ は、 $Q_{abs}$ と $Q_{sca}$ の和であることを述べたが、この図から散乱効率係数 $Q_{sca}$ の影響は小さく、吸収 $Q_{abs}$ による影響が主であることが確認できる。

さらに、最適化で得られたナノ粒子の中から、FOMが小さい順に10個の粒子を抽出した結果を表3にした。これらのナノ粒子の特徴として、ナノ粒子のサイズは40 nm程度のナノ粒子であり、材料は最外周のみが金属であるMgもしくはPbの2 nmのシェルになっていること、それ以外のシェル・コアともに非金属材料であることが確認できる。なお、実際にこれらのナノ粒子を製造することを考えるとMgは大気中の酸化、Pbは毒性といった観点から懸念が生じる。本研究では代替材料の探索指針を得るために、粒子のスペクトル等の解析を行い、どのような光学定数を持つ材料が必要かの指針も検討しており、詳細は参考文献5を参照頂きたい。

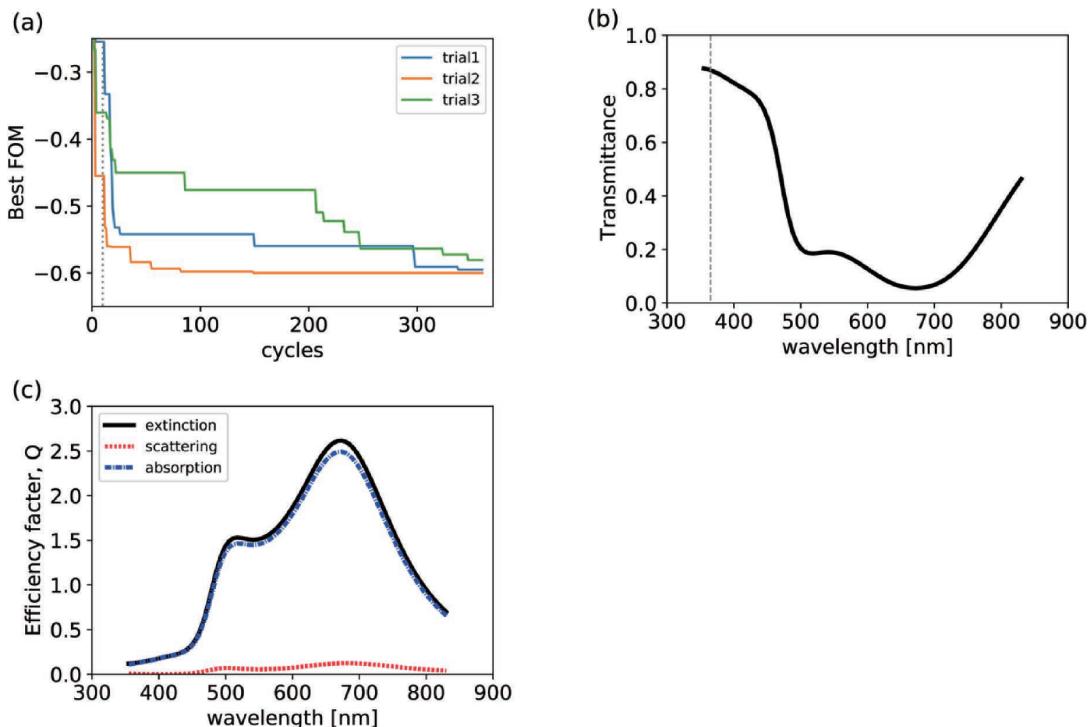


図4 (a) FMQAとベイズ最適化を組合せた最適化における試行回数とFOMの関係。点線はFMQAの初期データ生成のためのランダム最適化との切り替え点を示す。(b) 最もFOMが小さくなったコアシェルナノ粒子の透過スペクトル。点線は透過させたい波長である365 nmを示す。(c) 最もFOMが小さくなったコアシェルナノ粒子の散逸、散乱、吸収効率係数( $Q_{ext}$ ,  $Q_{sca}$ ,  $Q_{abs}$ ) (参考文献5から転載)

(a) Best FOM values obtained using the combined FMQA and Bayesian optimization method for three independent trials. The dotted line indicates the switching point from random optimization to FMQA. (b) Transmittance spectrum of the best core shell nano particle. The dotted line indicates the target wavelength. (c) Extinction, scattering, and absorption efficiencies of the best core shell nano particle as functions of wavelength. (Reprinted from Ref. 5)

**表3 最適化により得られたFOM Top10のコアシェルナノ粒子**  
**Top 10 core shell nano particles yielded by the proposed optimization technique**

順位	FOM	粒子直径	コア直径	シェル厚み				材 料				
				1層 [nm]	2層 [nm]	3層 [nm]	4層 [nm]	コア	1層 shell	2層 shell	3層 shell	4層 shell
1	-0.600	34	20	2	6	4	2	MgH <sub>2</sub>	BaF <sub>2</sub>	KCl	KCl	Mg
2	-0.598	40	20	4	6	8	2	BaF <sub>2</sub>	KCl	KCl	KCl	Pb
3	-0.595	40	20	8	8	2	2	BaF <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	BaF <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	Pb
4	-0.595	40	20	8	4	6	2	BaF <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	BaF <sub>2</sub>	Pb
5	-0.594	36	20	8	2	4	2	MgH <sub>2</sub>	BaF <sub>2</sub>	CsBr	BaF <sub>2</sub>	Mg
6	-0.593	40	20	8	4	6	2	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	BaF <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	Pb
7	-0.593	40	20	8	2	8	2	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	NaCl	SiO <sub>2</sub>	Pb
8	-0.593	40	20	2	8	8	2	NaCl	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	Pb
9	-0.593	38	20	6	8	2	2	KCl	SiO <sub>2</sub>	NaCl	KCl	Pb
10	-0.593	40	20	8	4	6	2	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	NaCl	Pb

**表4 最適化により提案された金属二重シェル構造を持つコアシェルナノ粒子**  
**Core shell nano particles with a double-shell structure yielded by the proposed optimization technique**

順位	FOM	粒子直径	コア直径	シェル厚み				材 料				
				1層 [nm]	2層 [nm]	3層 [nm]	4層 [nm]	コア	1層 shell	2層 shell	3層 shell	4層 shell
34	-0.574	72	50	2	8	8	4	SiO <sub>2</sub>	Mg	SiO <sub>2</sub>	BaF <sub>2</sub>	Mg
36	-0.573	70	50	2	8	6	4	BaF <sub>2</sub>	Mg	BaF <sub>2</sub>	BaF <sub>2</sub>	Mg
37	-0.571	72	50	2	8	8	4	KCl	Mg	KCl	BaF <sub>2</sub>	Mg
39	-0.570	64	50	2	4	6	2	BaF <sub>2</sub>	Pb	SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub>	Pb
40	-0.570	58	50	2	2	2	2	KCl	KCl	Mg	KCl	Mg

### 3.3 二重シェル構造の可能性

最適化で見つかった上位10位のナノ粒子はいずれも金属シェルは1層であり、金属が2層含まれる構造（以下、二重シェル構造と呼ぶ）は含まれていなかった。一方、上位40位まで確認すると、MgまたはPbの二重シェル構造のナノ粒子が5つ選定されていた。その結果を表4に示した。また、具体例として、40位のナノ粒子の透過スペクトルと効率係数を図5の(a), (b)に示した。このナノ粒子は、直径54 nm のKClコアの周りに、2 nm のMgシェル、2 nm のKClシェル、最外層に2 nm のMgシェルが存在する。図5(a)を、最もFOMの小さかったナノ粒子のスペクトルである図4(b)と比べると、可視光域の透過度が高い傾向にあるが、目的に十分近い形状をしていることがわかる。一方で、効率係数のスペクトル図5(b)を見ると、散乱効率係数  $Q_{sca}$  の影響が大きいことに加えて、吸収効率係数  $Q_{abc}$  が二つの山をもつ形状となっていることが確認できる。この二つの山の吸収ピークがあることで、400~830 nmでの広い範囲で非透過性を実現している。このことから、吸収ピークをうまくコントロールすることができれば、さらにFOMを低下させることができると可能性がある。この方針について確認するために、Mgシェルを2層持つナノ粒子について、内

側のシェルの大きさを変えた場合の効率係数の変化を調べた。Mgシェルの厚みは内側、外側ともに2 nmとし、最外層の半径を50 nmに固定して、内側のMgシェルの外側の半径を15, 25, 35 nmとした場合の計算を行った。なお、Mg以外の部分は真空とした。結果を図5(d)に示した。各々のMgシェルに由来するピークが2つ確認できる。シェル間の距離が遠い場合、長波長側に大きなピークが現れる。一方で、シェル同士を近づけると、低波長側に大きなピークが現れる。そして中間程度の距離の場合にはっきりとしたダブルピークをもつ構造となり、広い波長領域で低透過性を実現できることがわかる。つまり、このように幅広い領域での吸収が必要な場合には、2層シェルも重要な候補となりうる構造であることがわかった。このように広大な探索空間から材料および構造最適化を行うことで、目的に即したバラエティに富んだコアシェルナノ粒子が提案できることもわかった。

### 3.4 組み合わせ最適化のためのイジングマシンの利用

ナノ粒子の構造最適化では、FMQAを用いることを述べたが、イジングモデルの解を求める必要がある。イジングモデルの解法は、最も手軽な方法だと通常のコンピューターを用いて焼きなまし法を実装したソフトウエ

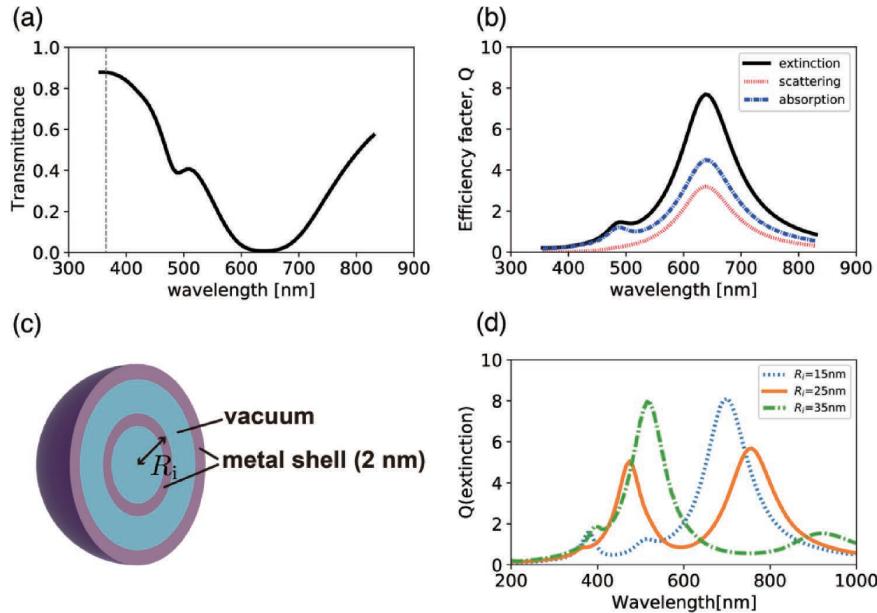


図 5 Mg からなる二重シェル構造を持つコアシェルナノ粒子の (a) 透過スペクトルならびに (b) 散逸, 散乱, 吸収効率係数の波長依存性。(a) の点線は透過させたい波長である 365 nm を示す。(c) 金属シェル 2 層と真空層からなる二重シェル構造の概念図。(d) Mg からなる二重シェル構造で、内側のシェル直径を変量した場合の散逸効率係数の変化。(参考文献 5 から転載)

**Optical properties of double-shell core shell nano particles composed of Mg ranked 40th:** (a) transmittance spectrum and (b) extinction, scattering, and absorption efficiencies as functions of wavelength. The dotted line in (a) indicates the target wavelength. (c) Schematic of the double-shell structure focused only Mg. The optical constants of vacuum were used for the core and the second shell. (d) Extinction efficiency as a function of wavelength for different inner Mg shell radius  $R_i$  for the structure illustrated in (c). (Reprinted from Ref. 5)

アを用いる方法がある。一方で、D-Wave 社が提供する量子アニーリングマシン<sup>20)</sup>を代表に、イジングモデルを用いた組み合わせ最適化問題の解法に特化した専用機であるイジングマシンが多く公表されており<sup>21)</sup>、それらを用いる方法がある。本研究でも、最適化を行うという作業自体の高速化やより大きな問題への適用を目指して、イジングマシンの活用を試みた。ハードウェアの大きな区分として量子デバイスを用いたものと GPU を用いたものがある。FMQA を用いる際、ビット間が全結合であることが求められるが、量子アニーリングマシンは完全結合グラフではない。一方、GPU ベースのイジングマシンは、多数のビットを完全結合グラフで扱うことができる。そこで本研究では GPU ベースのイジングマシンを適用し、ソフトウェアを用いた焼きなまし法による解法との比較を実施した。企業の研究開発において、外部の計算リソースを用いることで、どの程度時間が短縮されるかは重要なポイントである。

GPU ベースのイジングマシンとして、Fixstars Amplify Annealing Engine<sup>22)</sup>を用いた。比較対象の焼きなまし法は、Intel Xeon プロセッサを搭載したワークステーション

表 5 ソフトウェアで実装された焼きなまし法と GPU ベースのイジングマシンを用いた場合の最適化時間の比較  
Comparison of optimization time between software-implemented annealing solver and GPU-based Ising machine

工 程	ソフトウェア実装 焼きなまし法	GPU ベース アニーリング マシン
全計算時間 [sec]	<b>3866</b>	<b>830</b>
(内訳) [sec]		
初期データ生成他	19	22
FMQA (200 cycles)	3847	813
FMQA 内訛	イジング モデルの求解	3500 (17.5 s/it)
	FOM 評価, モデル訓練他	347
		433

ンと FMQA プログラムに実装されている焼きなまし法を用いた。なお、最適化自体は、3.1 で示した問題の一つを用いた。計算時間の結果を表 5 示す。計算全体が 1/4 程度の時間で完了していることが分かるが、特にイジング

モデルの解を求める部分が 1/10 程度になっており、イジングマシンを用いることで高速化されることが確認できた。より大きな問題を解く場合は、外部のイジングマシンの利用により開発を加速することができると期待できる。

#### 4. おわりに

本研究では、コアシェルナノ粒子の最適化アルゴリズムの開発を行い、イジングモデルを用いた最適化手法である FMQA と、機械学習を用いたペイズ最適化を組み合わせた新しい手法を提案した。FMQA はコアシェルナノ粒子の構造を最適化するために使用され、ペイズ最適化はコアシェルナノ粒子の構成材料を選定するために用いた。

FMQA による構造の最適化についてランダム探索との比較を行い、効率的に最適化ができることが確認できた。開発されたアルゴリズムを用いて設計されたコアシェルナノ粒子は、波長 355~375 nm の紫外線に対して透明であり、波長 400~830 nm の可視光に対して不透明という、目標とする光学特性に従った粒子であることが確認できた。また、最適化の結果から二重シェル構造をもつコアシェルナノ粒子についても目標とする特性を実現できる可能性があることを確認することができた。また、組み合わせ最適化問題の求解に特化した GPU ベースのイジングマシンを活用することで最適化に必要となる時間を効率化できることも確認した。

近年、材料設計のためにデータ駆動型の最適化技術が多く提案・開発されている。そのような中、本研究の結果は目標とする課題や特性に応じて複数の最適化手法をうまく組み合わせることで、広大な探索空間から適切な材料を効率的に探し出せることを示している。今後も、材料開発に求められる難易度がますます高まることが予想されるが、本研究で得られた知見を活用することで、社会に求められる材料開発の迅速化に貢献していきたい。

#### 謝 辞

イジングマシンの計算では、株式会社 Fixstars Amplify が提供する Fixstars Amplify Annealing Engine を使用させていただきました。ここに深く感謝の意を表します。

#### 文 献

- 1) M. Curto, J. Dowsett, A. P. Kao, G. Tozzi and A. H. Barber, *Scientific Reports*, **15**, 6278 (2025).
- 2) H. Zhang, A. Li, J. Wu and D. Yang, *Composites Part*

*B*, **298**, 112373 (2025).

- 3) S. Sen, M. Palabathuni, K. M. Ryana and S. Singh, *ACS Energy Lett.*, **9**(8), 3694–3718 (2024).
- 4) K. Terayama, M. Sumita, R. Tamura and K. Tsuda, *Acc. Chem. Res.*, **54**(6), 1334–1346 (2021).
- 5) M. Urushihara, M. Karube, K. Yamaguchi and R. Tamura, *Adv. Photonics Res.*, **4**, 2300226 (2023).
- 6) R. Tamura, R. Inaba, M. Watanabe, Y. Mori, M. Urushihara, K. Yamaguchi and S. Matsuda, *Sci. Technol. Adv. Mater. Meth.*, **4**, 4 (2024).
- 7) M. Urushihara, K. Yamaguchi and R. Tamura, *AIP Advances*, **14**, 125008 (2024).
- 8) S. Das, J. P.-Ramirez, J. Gong, N. Dewangan, K. Hidajat, B. C. Gates and S. Kawi, *Chem. Soc. Rev.*, **49**, 2937–3004 (2020).
- 9) R. Jenjob, T. Phakkeeree and D. Crespy, *Biomater. Sci.*, **8**, 2756–2770 (2020).
- 10) H. Gonome, T. Hira, B. J. Lee and M. Kashiwagi, *Applied Physics Letter*, **119**, 133903 (2021).
- 11) Y. Hu, R. C. Fleming and R. A. Drezek, *Optics Express*, **16**(24), 19579–19591 (2008).
- 12) A. Sheverdin and C. Valagiannopoulos, *Physical Review B*, **99**, 075305 (2019).
- 13) S. So, J. Mun and J. Rho, *ACS Applied Materials and Interfaces*, **11**, 24264–24268 (2019).
- 14) O. Peña and U. Pal, *Computer Physics Communications*, **180**, 2348–2354 (2009).
- 15) M. N. Polyanskiy, “Refractive index database,” <https://refractiveindex.info>. Accessed on 2021-06-10
- 16) K. Kitai, J. Guo, S. Ju, S. Tanaka, K. Tsuda, J. Shiomi and R. Tamura, *Phys. Rev. Res.*, **2**, 013319 (2020).
- 17) T. Matsumori, M. Taki and T. Kadowaki, *Sci. Rep.*, **12**, 12143 (2022).
- 18) K. Nawa, T. Suzuki, K. Masuda, S. Tanaka and Y. Miura, *Phys. Rev. Applied*, **20**, 024044 (2023).
- 19) Y. Motoyama, R. Tamura, K. Yoshimi, K. Terayama, T. Ueno and K. Tsuda, *Comput. Phys. Commun.*, **278**, 108405 (2022).
- 20) <https://www.dwavesys.com/>
- 21) 野澤哲生, 日経クロステック, 2021.8.26, <https://xtech.nikkei.com/atcl/nxt/column/18/01755/00002/> (2025/7/13 Access)
- 22) <https://amplify.fixstars.com/>



漆原 誠 Makoto URUSHIHARA  
開発 PMO-A2  
プロジェクトリーダー



軽部 允也 Masaya KARUBE  
開発 PMO-B1  
研究員



田村 亮 Ryo TAMURA  
国立研究開発法人 物質・材料研究機構  
マテリアル基盤研究センター  
チームリーダー  
博士（理学）



山口 健志 Kenji YAMAGUCHI  
開発 TMO 解析領域  
主席研究員  
博士（理学）