

# イジングマシンを利用したブラックボックス最適化手法の材料研究応用

田村 亮（NIMS，東大），津田宏治（東大，NIMS，理研）

## 1. ブラックボックス最適化

ブラックボックス最適化問題は、出力が入力のみ  
に依存し、関数の具体的な形が未知であるブラック  
ボックス関数（図1）に対して、より良い出力が得  
られる入力を探索する問題である。ブラックボック  
ス最適化問題の例としては、実験条件の最適化、シ  
ミュレーションパラメータの最適化、機械学習モデ  
ルのハイパーパラメータの最適化などがあり、これ  
らは基礎科学から実社会に至るまであらゆる分野  
に点在している。

ブラックボックス関数を最適化するために、まず  
は、入力と出力の両方が既に知られている学習デー  
タを用いて、代理モデルを機械学習により構築する  
ことからスタートする。代理モデルを利用すること  
で、任意の入力に対しての出力値が予測できるよ  
うになる。代理モデルを最適化することで、予測値に  
対して最良の入力を知ることができる。代理モデル  
の予測精度が高ければ、この入力は元のブラックボ  
ックス関数にとっても良い入力である可能性が高  
い。そこで、代理モデルにおける最良の入力に対  
して、ブラックボックス関数を読み出すことで、真の  
出力値を獲得する。この操作は、実験やシミュレー

ションを実施することになるため、比較的時間のか  
かかる工程となる。このとき、ブラックボックス関  
数の真の出力値が最良であるとは限らないが、入力  
と出力が揃ったデータとなるため、学習データとし  
て利用することができる。そこで再度、代理モデル  
を学習し、代理モデルにとっての最良の入力を求め  
る。その入力に対する出力値をブラックボックス関  
数から得ることで、さらに学習データが増加する。  
この繰り返し工程により、徐々にブラックボックス  
関数に対する入力が最適化されていく。これがブラ  
ックボックス最適化の基本的な考え方である（図  
1）。

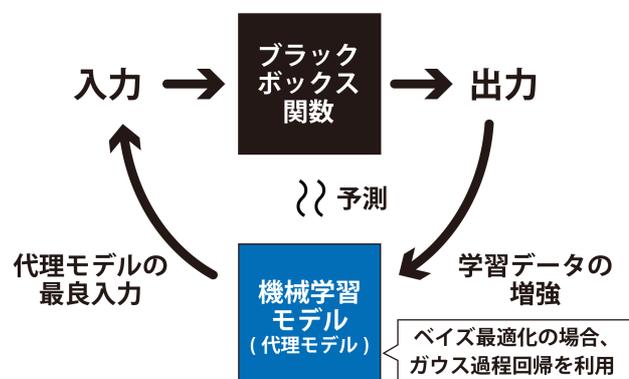


図1 ブラックボックス最適化の概念図。繰り返し計算を実施することで、ブラックボックス関数を最適化する。

## 2. イジングマシンの活用

ブラックボックス最適化における「代理モデルにおける最良の入力」はどのように得ることができるだろうか？代理モデルが連続関数で表される場合、勾配降下法やニュートン法によって、局所最小となる入力を見つけることができるだろう。しかしながら、入力変数が離散値である場合、代理モデルの最適化は組合せ最適化問題となる。そのため、入力変数が高次元の場合、最適解の探索が困難となる。ここでは、代理モデルの最良の入力を得ることができず、ブラックボックス最適化を進めることができなくなってしまう。

そこでイジングマシンの出番である。イジングマシンは、イジングモデルと呼ばれる物理モデルの基底状態（エネルギー最小状態）を探索するための専用ハードウェアである。イジングモデルはもともと統計物理学における臨界現象を扱うために提案されたものであるが、ほとんどの組合せ最適化問題はイジングモデルに変換可能であることが知られている。イジングモデルのエネルギー関数（ハミルトニアン）は以下のように表現される。

$$H_{\text{Ising}} = \sum_{i=1}^N h_i s_i + \sum_{i,j} J_{ij} s_i s_j \quad (1)$$

ここで、 $s_i = \pm 1$  はスピン変数（ビット変数）、 $N$  はスピン変数の個数、 $h_i$  は外部磁場、 $J_{ij}$  はスピン間相互作用を表す。スピン変数の個数によって状態の総数が  $2^N$  となるため、 $N$  が増大すると最小エネルギー状態の探索が困難になることがわかる。イジングマシンは  $h_i$  と  $J_{ij}$  を指定することにより、高速に式(1)を最小化する解を得ることができるマシンである。シミュレーテッドアニーリングや量子アニーリング[1]等のアルゴリズムが実機に実装されており、D-Wave社の量子アニーラや富士通社のデジタルアニーラ、Fixstars Amplify社のAmplify Annealing Engineなどがイジングマシンの一例である。また、汎用的

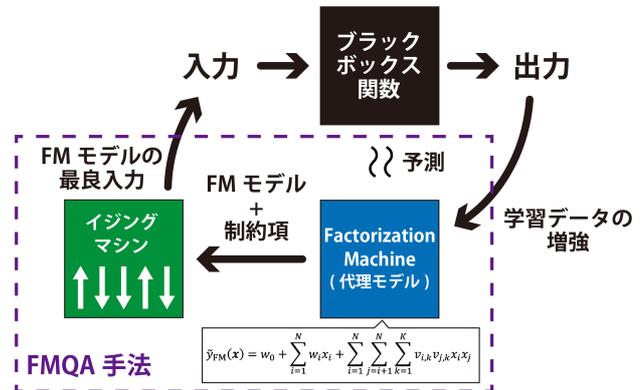


図2 ブラックボックス最適化へのイジングマシンの利用。代理モデルとして Factorization Machine を利用する点が図1とは異なる。

量子コンピュータでイジングモデルを解くための QAOA アルゴリズムも開発されており、組合せ最適化問題を解くための技術開発が整っている。

イジングマシンを利用することで組合せ最適化問題を効率よく解くことができるのであれば、「代理モデルにおける最良の入力」を得るための組合せ最適化問題もイジングマシンで解くことができるだろう（図2）。ブラックボックス最適化にイジングマシンを活用するためには、イジングモデルで表すことのできる代理モデルを導入すればよい。都合のいいことに、イジングモデルで表現することのできる Factorization Machine (FM) という代理モデルが Rendle によって考案されている[2]。FM は以下のようなモデルである。

$$\hat{y}_{\text{FM}}(\mathbf{x}) = w_0 + \sum_{i=1}^N w_i x_i + \sum_{i=1}^N \sum_{j=i+1}^N \sum_{k=1}^K v_{i,k} v_{j,k} x_i x_j \quad (2)$$

$x_i = \pm 1$  は入力ビット変数、 $w_i$  および  $v_{i,k}$  は学習されるパラメータである。 $\hat{y}_{\text{FM}}(\mathbf{x})$  は入力  $\mathbf{x} = \{x_i\}_{i=1, \dots, N}$  が与えられた際の出力の予測値である。式(2)はイジングモデルのハミルトニアンである式(1)と係数以外は一致していることがわかるだろう。つまり、FM を代理モデルとして利用すると、代理モデルに対する最良な入力（最小の出力値を示す状態）をイジングマシンで高速に得ることが可能となる。これにより、

離散ブラックボックス最適化において代理モデルの最適化が困難になるという問題を解消することができる。代理モデルとして FM を利用し、FM をイジングマシンで解くことで、ブラックボックス最適化を高速に実施する手法は FMQA (a factorization machine with quantum annealing or with quadratic-optimization annealing) と呼ばれている [3]。FMQA の流れを図 2 にまとめた。

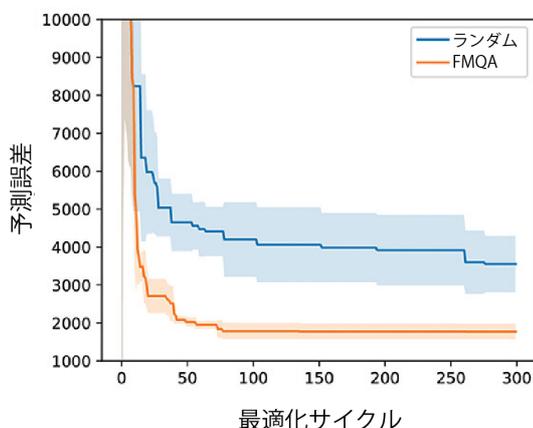
FMQA を利用して、さまざまなタイプのブラックボックス最適化研究が実施されている。本解説では、材料研究への応用例として、ポリマーの X 線回折 (XRD) の回折パターン解析および、プロトン伝導性セラミック燃料電池を念頭においたプロトン配置最適化に FMQA を利用した例を紹介する。

### 3. X 線回折パターン解析

XRD は、構造情報を捉えることができ、材料開発では必須の計測手法である。XRD の回折パターンと特性の関係を明らかにすることで、材料の構造と特性の関係が理解できる。そこで、射出成形されたポリプロピレン (PP) 材料の機械的特性が回折パターンにより予測できるかについて考えよう。従来、ポリマーの機械特性は高次構造に強く依存するため、一次構造 (モノマー分子の構造) や製造条件に基づく予測には限界があった。そこで、成形後の高次構造を反映した結果が得られる XRD の回折パターンであれば、機械特性を予測することができるだろう。

これを検証するために、成形条件が同一または類似した 2 種類の材料 (ホモ PP およびエラストマーを混合したホモ PP) を収集し、XRD 回折パターンが計測されている [4]。さらに、9 種類の機械特性 (引張弾性率、降伏応力、降伏ひずみ、破断伸び、曲げ強度、曲げ弾性率、シャルピー衝撃値、熱変形温度、ロックウェル硬度) を測定することで、オリジナルの材料データセットを作成した。XRD 回折パターン

ホモ PP



エラストマーを混合したホモ PP

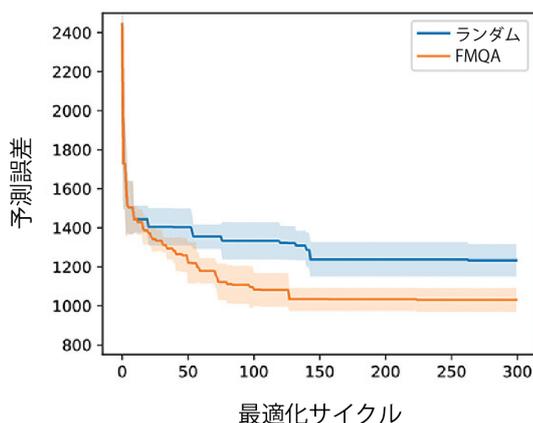


図 3 XRD 回折パターン解析における機械学習モデルの予測誤差の最適化サイクル依存性。実線は平均値を表し、網掛け部は分散を表す。Sci. Technol. Adv. Mater. 25, 2388016 (2024) より改変の上転載。

に対し、ベイズスペクトル分解 (Bayesian spectral deconvolution) [5] を適用し、ピーク分解を行なった。そして、各ピークに対して、位置、高さ等 5 つのパラメータを抽出することで、XRD パターンに対する特徴量を作成した。今回扱った PP 試料に対しては、10 程度のピークが抽出されたため、100 次元程度の特徴量となる。これらの特徴量から機械特性を予測することができれば、PP 材料の機械的特性を XRD 回折パターンから予測できることとなる。

しかしながら、スペクトル分解によって得られた特徴量は冗長であると考えられ、過学習を避けるためには特徴量選択が必要となる。この部分に FMQA を利用することができる。具体的には、使用する特徴量をビット配列で表し、それをブラックボックス関数の入力とする。そして、ブラックボックス関数の出力を機械学習モデルの予測誤差とする。このブラックボックス関数を最適化することで、機械学習モデルの予測誤差が小さくなる特徴量の組み合わせを得ることができる。例えば、100 個の特徴量が抽出された場合、100 次元のビットを用意し、各ビットが 1 のとき、その位置の特徴量を使用し、0 の場合その特徴量は使用しないとすれば、特徴量の組み合わせをビット配列でそのまま表すことができる。また、機械学習モデルとしてはどのようなものを採用しても構わないが、ここでは簡単のため、線形回帰を利用することとした。

引張弾性率を対象として、最適化を行なった結果を図 3 に示す。まず初めに 10 通りの特徴量の組み合わせをランダムに生成し、10-fold クロスバリデーションによる予測誤差を計算した。これを初期状態として FM を学習し、次に予測誤差を計算すべき特徴量の組みをイジングマシンで選定する。本検討では Fixstars Amplify 社の Amplify Annealing Engine をイジングマシンとして利用した。選定された特徴量の組みに対して機械学習の予測誤差を評価する。この繰り返し操作を実行することで、1 サイクルごとにデータが 1 つずつ増加していく。図 3 の横軸は FMQA の繰り返しサイクルであり、縦軸はその時点で計算された予測誤差の最小値である。つまり、横軸に対して単調現象な振る舞いを示すプロットである。初期の 10 個の組み合わせを変えた 5 回の独立な最適化計算を実施し、平均値をプロットしている。また、各サイクルでランダムに特徴量を選択した場合も示している。FMQA を利用することで少

ない計算回数で、ランダムよりも予測誤差の小さい特徴量の組み合わせを発見できており、FMQA の性能を示すことができた。また、9 つの機械特性全てについて FMQA による特徴量探索を実施し、7 種の機械特性に対して、線形モデルに対する特徴選択手法としてよく利用される LASSO を上回る予測精度を達成することが確認された。一方で、破断伸びとロックウェル硬度の予測精度は、特徴量の組み合わせを最適化しても高くできないことがわかった。これは対象試料の構造欠陥や実測値のばらつきに起因し、XRD がこれらの情報を反映しにくいことが原因であると考察されている。このように、FMQA の最適化計算によって、ポリマー材料に対して構造と機械特性の関係を議論することが可能となった。

## 4. プロトン配置最適化

固体酸化物型燃料電池などで使用されるプロトン伝導材料を理解するために、分子動力学シミュレーションを利用した解析が実施される。分子動力学シミュレーションを行う際には初期条件として「安定なプロトン配置」を知る必要がある。しかしながら、これを導き出すためには、密度汎関数理論 (DFT) による数値計算を大量に行う必要があり、非常に高い計算コストを要する問題である。例えば、プロトン伝導材料として知られている、Sc 元素をドーブした BaZrO<sub>3</sub> を対象とする場合、プロトンおよびドーブ元素が取りうる配置数が組合せ爆発を起こし、網羅的な DFT 計算を実施することで安定なプロトン配置を探索することは不可能である。

この問題は、プロトンおよびドーブ元素の位置を入力として、出力を DFT 計算によって得られる全エネルギーとしたブラックボックス関数の最適化と捉えることができる。つまり、全エネルギーを最小とするプロトンおよびドーブ元素の配置を効率よく見つけることができれば、安定なプロトン配置を

見つけたいという問題を解くことができる。このとき、配置数が組合せ爆発を起こす問題となっており、まさに FMQA の得意とする問題であろう。

前述した Sc 元素をドーブした BaZrO<sub>3</sub> を扱った FMQA による最適化のデモンストレーションが行われている [6]。この系では、Sc を 1 つドーブすることで、プロトンが 1 つ加わる。このとき、プロトンはどこかの酸素に結合することになり、結合する位置が 8 つあることが知られている。つまり、各酸素には、プロトンが結合していない状態、8 つの結合位置のどこかにプロトンが結合している状態という 9 つの取りうる状態が存在する。この 9 つの状態をビット変数 (±1 を持つ変数) によって表す必要がある。そこで、各酸素に対して、9 つのビットを用意し、各ビットの位置がプロトンの結合位置になるように定義する。そして、ビットが 1 となっている箇所にはプロトンが結合していると考えられる。つまり、100000000 は 1 番目の結合位置にプロトンが結合し、010000000 は 2 番目の結合位置にプロトンが結合するという形である。ただし、最後のビットはプロトンが結合していない場合を表し、000000001 はプロトンが結合しない場合となる。このように扱うと、実数をビット変数で扱うことができるため、実数問題も FMQA で扱うことが可能となる。このように実数値をビット列で表すことを one-hot エンコーディングと呼ぶ。ただし、この 9 つのビットは 1 つしか、1 になってはいけないという制約が必要となる。この制約を全エネルギーの代理モデルとして学習した FM に加えた上で、イジングマシンで解くことで、制約を満たされた解を得ることが可能となる。具体的な制約は、以下のものである。

$$H_{\text{one-hot}} = \left( \sum_{i=1}^9 x_i - 1 \right)^2 \quad (3)$$

$x_i = \pm 1$  は各酸素におけるプロトン位置を表す 9 つのビット変数を表し、9 つの  $x_i$  のうち 1 つだけ 1 と

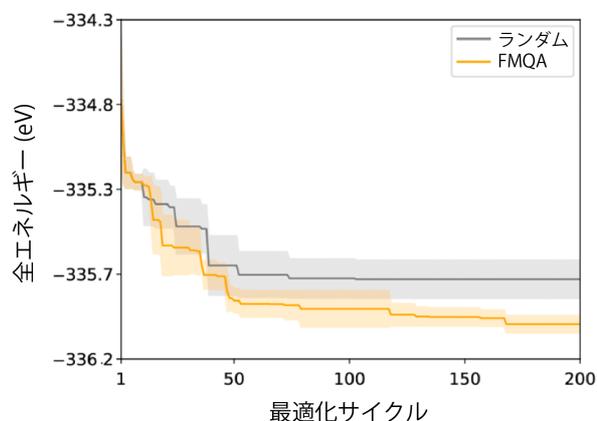


図 4 プロトン配置最適化における全エネルギーの最適化サイクル依存性。実線は平均値を表し、網掛け部は分散を表す。J. Phys. Chem. C 129, 2332 (2025)より改変の上転載。

なっている場合に  $H_{\text{one-hot}}$  が最小になるように設計されている。この式と式 (2) を線型結合させたハミルトニアンをイジングマシンで解くこととなる。

本検証では、 $2 \times 2 \times 2$  のスーパーセルモデルを扱っている。このスーパーセルには Zr 元素のサイトが 8 つあり、それを Sc 元素で置換する。Sc 元素のドーブ数が 2、5、7、8 の 4 つのケースについて FMQA を利用した最適化を実施した。また、このサイズでは、独立な酸素は 24 個あるため、プロトン配置を表す変数は、9 ビット  $\times$  24 サイト = 216 ビットが必要となる。Sc 元素のドーブ位置も考えると、必要なビット数は増加することとなる。全エネルギー計算は DFT 計算パッケージ VASP を利用し、イジングマシンは Amplify Annealing Engine を利用した。まず初めに、少数のプロトン配置 (10 個) をランダムに生成し、VASP で全エネルギーを計算した。それに基づいて FM モデルを学習した。学習された FM と one-hot 制約を利用して、イジングマシンにより安定プロトン配置が予測される。その構造に対して DFT 計算を実施するという繰り返し操作を実施することで、少ない試行でエネルギー的に安定なプロトン構造を探索することができる。

Sc 元素のドーピング数が 5 の場合において、最適化を実施した結果が図 4 である。初期に用意する 10 個のプロトン配置を変更した 3 回の独立な計算を行い、平均をプロットしている。横軸は、繰り返し計算のサイクルであり、1 サイクルで一つのプロトン構造に対する DFT 計算を実施している。縦軸は、その時点での最小の全エネルギーの値をプロットしている。各サイクルでプロトン配置をランダムに用意した場合の結果も示しており、FMQA の方が少ない計算回数で低い全エネルギーを持つ構造を見つげられている。FMQA による最適化計算を実施し、得られた安定プロトン構造を図 5 にまとめる。この結果より、プロトンが Sc-O-Sc 構造内の酸素に集中して存在する傾向が見られ、プロトンが Sc の近傍において安定化することが確認された。

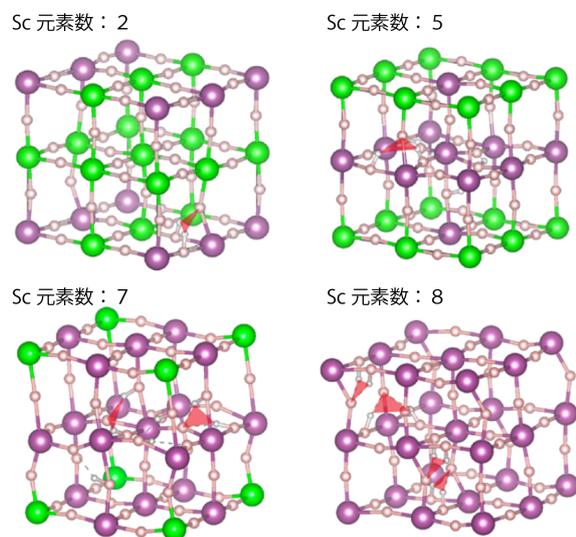


図 5 プロトン配置最適化結果。Sc 元素の置換個数が 2、5、7、8 の場合を記載。J. Phys. Chem. C 129, 2332 (2025) より改変の上転載。

## 5. まとめと今後の展望

本稿では、イジングマシンを活用して離散ブラックボックス最適化問題を解くための FMQA 手法について、実例を交えながら解説した。FMQA 手法はさまざまな応用への適用が広く期待される。例えば、4 章で紹介した構造最適化は、固体材料開発のあらゆる場面で登場し、構造候補が離散的である限り、FMQA はほぼ全ての構造最適化問題に適用可能と考えられる。また、3 章で紹介した計測結果の解析手法は、XRD に限らず、X 線光電子分光法やメスbauer分光など他のスペクトル分析法にも適用可能であり、材料科学におけるデータ駆動型設計の新たな基盤技術となる可能性がある。FMQA を Python で実装しイジングマシンを利用するプログラムについては、Fixstars Amplify 社が有用な記事を掲載しているため、以下の URL を参照されたい。  
[https://amplify.fixstars.com/ja/demo/fmqa\\_0\\_algebra](https://amplify.fixstars.com/ja/demo/fmqa_0_algebra) ぜひ FMQA を活用し、さまざまな離散ブラックボックス最適化問題にトライして欲しい。

### 参考文献

- [1] 田中宗、田村亮 “量子アニーリングの物理” (森北出版, 2023).
- [2] S. Rendle, 2010 IEEE International Conference on Data Mining (IEEE, Piscataway, 2010), pp. 995-1000.
- [3] K. Kitai, J. Guo, S. Ju, S. Tanaka, K. Tsuda, J. Shiomi, and R. Tamura, Phys. Rev. Res. 2, 013319 (2020).
- [4] R. Tamura, K. Nagata, K. Sodeyama, K. Nakamura, T. Tokuhira, S. Shibata, K. Hammura, H. Sugisawa, M. Kawamura, T. Tsurimoto, M. Naito, M. Demura, and T. Nakanishi, Sci. Technol. Adv. Mater. 25, 2388016 (2024).
- [5] K. Nagata, S. Sugita, and M. Okada, Neural Networks 28, 82 (2012).
- [6] J. Lin, T. Tada, A. Koizumi, M. Sumita, K. Tsuda, and R. Tamura, J. Phys. Chem. C 129, 2332 (2025).

田村 亮 (非会員)

tamura.ryo@nims.go.jp

1984年生. 2012年3月東京大学大学院理学系  
研究科博士課程修了, 博士(理学). 2023年4  
月より物質・材料研究機構 チームリーダー.  
2021年日本物理学会若手奨励賞, 2023年文部  
科学大臣表彰若手科学者賞受賞. 専門分野: マ  
テリアルズ・インフォマティクス.

津田 宏治 (会員)

tsuda@k.u-tokyo.ac.jp

1972年生. 1998年3月京都大学大学院工学研  
究科博士課程修了, 博士(工学). 2014年4月  
より東京大学 大学院新領域創成科学研究科  
教授. 専門分野: バイオインフォマティクス,  
機械学習.