

平成 30 年 6 月 11 日現在

機関番号：14301

研究種目：新学術領域研究(研究領域提案型)

研究期間：2013～2017

課題番号：25106005

研究課題名(和文) ナノ構造情報に基づいた機能探索

研究課題名(英文) Exploration of nanostructure-property relationships

研究代表者

田中 功 (Tanaka, Isao)

京都大学・工学研究科・教授

研究者番号：70183861

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 108,400,000円

研究成果の概要(和文)：ナノ構造情報を、新規な材料設計・創出に有効活用するために、マクロ情報とのギャップを埋める学術的枠組みを作り出すことを目指し、ナノ構造情報を統計熱力学に基づいて統合・整理する手法の開拓と応用、材料探索のためのデータマイニング技法の開拓と応用を実施した。成果は、仮想スクリーニング法・推薦システムによる効率的な新物質・新機能の発見、第一原理計算に基づいた高精度原子間ポテンシャルの構築などに代表される。本研究で得られた結果は、第一原理計算とデータマイニング技法による手法が、新規材料探索に有効であることを実証したものである。

研究成果の概要(英文)：This study aims to develop frameworks for materials design using nanostructure datasets including atomic configurations, electronic structures localized at surfaces, interfaces and point defects. We developed i) thermodynamics-based methods for generating nanostructure datasets from first principles such as machine-learning interatomic potential and ii) machine learning-based techniques for discovering new functional materials. These data-mining approaches based on exhaustive first-principles calculations are expected to be useful for exploring new materials and unknown structures.

研究分野：材料基礎科学

キーワード：ナノ構造情報 第一原理計算 データマイニング

### 1. 研究開始当初の背景

結晶の表面、界面、点欠陥等に局在した特異なナノ構造が、材料特性に決定的な役割を担う例は枚挙に暇がない。近年、このようなナノ構造の実態と構造・機能の相関性についての定量的情報を直接的に得るための実験・理論計算手法が格段に進歩しつつあり、これまで未知であった**ナノ構造情報**を直接かつ定量的に獲得する方途が拓かれた。本領域研究のメンバーは、その分野で世界のフロンティア開拓の実績を有している。

本班が目指すのは、このような高度手法で得られたナノ構造情報を、新規な材料設計・創出に有効活用するための学術的枠組みを作り出すことである。(図1) そのために**2つの問題を解決**する。すなわち、個々の化学組成や構造など「点」についてのナノ構造情報と材料特性として観測される統計平均としてのマクロ情報とのギャップを埋めるべく、統計熱力学に立脚したデータ統合を進める。化学組成や原子配列の巨大バラエティのなかから最適解を抽出するためのデータマイニング手法を確立し、的確な実験計画

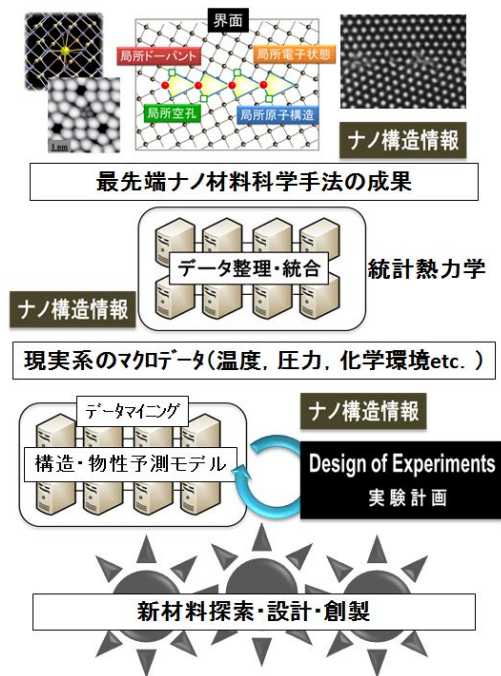


図1 ナノ構造情報を材料創出につなげるための本領域での連携スキームを提供する。

### 2. 研究の目的

ナノ構造情報を統計熱力学に基づいて統合・整理する手法の開拓と応用

A01 各班において獲得された『点』のナノ構造情報を集積し、統計熱力学に基づいて統合・整理する手法を開拓する。多数の高精度第一原理計算によって系統的に求めたエネルギーと力をもとに、フォノ計算と一般化クラフ展開法により平衡状態図に統合・整理するものと同様に、現実系で観測される統計平均

としてのマクロ情報とナノ構造情報のギャップを埋め、得られた結果をA03材料創製各班に帰還することで、適切な実験計画を策定する。

材料探索のためのデータマイニング技法の開拓と応用

集積されたナノ構造情報が単純な物理法則で説明できる現象である場合には、そのような統計熱力学を用いた方法が有効である。しかし物性値を支配する因子が空間的・時間的に多階層に亘っている複雑な現象の場合には、妥当な物理モデルを構築することが一般に困難であり、統計熱力学の適用にも限界がある。このような場合には、集積された計算や実験データをもとに、非線形回帰などの情報科学手法を駆使して予測モデルを構築することが有効である。未知データの予測手法が確立できると、化学組成や原子配列の巨大バラエティのなかから適切な組み合わせの解を抽出するデータマイニングが可能となる。予測された結果をA03各班において実験することで、得られた実験結果をもとに、逐次的に予測モデルの精度向上を図ることができる。このような実験と計算の逐次的実行による材料開発という研究アイデアは本班オリジナルであり、新しい分野開拓を精力的に進めたい。

### 3. 研究の方法

ナノ構造情報を統計熱力学に基づいて統合・整理する手法の開拓と応用

A01 各班において獲得されるナノ構造情報に対応するには、表面・界面・転位などを含む大規模な系について、高精度な統計的計算を可能とする手法を開拓することが必要になる。例えば、ニューラルネットワークポテンシャルは多数の第一原理計算を機械学習することで構築したものであり、現在広く利用されているEAMポテンシャルに比べて、広いエネルギー範囲で高精度が担保されていることがわかる。このような手法を任意方位の表面、界面などに適用し、有限温度での非調和振動の効果も取り入れたダイミクスや平均エネルギーなどを第一原理計算の精度で評価し、ナノ構造情報とマクロ情報のギャップを埋めることで、A03各班での材料創製に重要な情報を提供する。

材料探索のためのデータマイニング技法の開拓と応用

化学組成や原子配列の巨大バラエティのなかから適切な組み合わせの解を抽出するデータマイニング技法を開拓する。例えば、多数の第一原理計算と実験結果をサポートベクトル回帰法で機械学習させたりチウム固体電解質酸化物のイオン伝導度の予測と同様に、実験計画の策定を行う。さらに、予測結果を検証し、得られた実験結果をもとに、逐次的に予測モデルの精度向上を図る。

### 4. 研究成果

ナノ構造情報を統計熱力学に基づいて統合・整理する手法の開拓と応用

第一原理計算と機械学習手法に基づき、高精度原子間ポテンシャルを構築する手法の開発を行った。具体的には、体系的な二体間記述子の交差項や三体間構造記述子を導入することにより、遷移金属を含むすべての金属に対して高精度な原子間ポテンシャルを構築することが可能な統一的な枠組みを提案した[A. Takahashi et al., Phys. Rev. Mater. 1, 063801 (2017). A. Takahashi et al., arXiv: 1710.05677 など]. また結晶粒界などの大規模構造への応用を目指し、構造データ分布に基づいた異常検知の機械学習による指標を導入し、その指標により精度保証する方法論および精度を向上させるための方法論を構築した。このような方法により、結晶粒界などの大規模構造に対する高精度な原子シミュレーションが可能になると期待される。

その他にも、効率的基底状態探索の手法や、不規則構造の熱力学量、欠陥形成エネルギーなどを高精度に見積もる手法、第一原理計算から常磁性不規則合金のフォノン分散関係を評価する Band-unfolding 法を提案した[Y. Ikeda et al. PRB 95, 024305 (2017)など]。

材料探索のためのデータマイニング技法の開拓と応用

リン酸塩系リチウムイオン電池の正極材料についてのハイスループットスクリーニングを実施し、化学組成や原子配列の巨大パラエティのなかからリチウムイオン電池の寿命を最大化する組み合わせを抽出した。さらに、公募班との連携により、単相試料の作製に成功し、従来のリチウムイオン電池の寿命を6倍以上に達成した。この結果は、データマイニング技法により、実際の材料開発が大幅に加速できることを実証したものである(図2)。(Nishijima et al. Nat. Commun. 5, 4553 (2014))

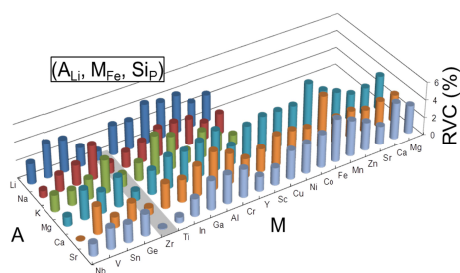


図2 リン酸塩系リチウムイオン電池の正極材料における相対体積変化。

熱電材料を目的とした低格子熱伝導率を持つ化合物の探索を行った。具体的には、101化合物についての第一原理熱伝導率計算とベイズ最適化により、ICSDに含まれる54,000件以上の化合物の中から、バーチャルスクリーニングを行った(図3)。その結果、従来の1/10となる格子熱伝導率を持つ化合物を提案した[A. Seko et al. PRL 115, 205901 (2015), A. Togo et al. PRB 91, 094306 (2015)]。

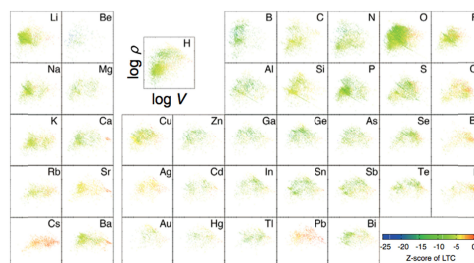


図3 ICSDに含まれる化合物についての格子熱伝導率の予測。

スズ酸化物系において、様々な結晶構造についての第一原理計算を実施し、新規化合物が生成されることを予測した。さらに、実際に化合物の合成を行い、良い光触媒特性を示すことを明らかにした。これらの結果は、データマイニング技法により、実際の材料開発が大幅に加速できることを実証したものである。

様々な材料物性予測に応用可能である一般的な記述子を生成する方法を提案した[A. Seko et al., PRB 95, 144110 (2017)]。これにより、様々な化学組成や結晶構造を持つ化合物に対して、凝集エネルギーなどの物性を高精度にモデリングすることができた。さらに、第一原理MD計算とクラスター展開法に基づき、酸化物イオン伝導体  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  のイオン伝導度が長時間安定となる溶質元素の探索を行った。得られた指針に基づいて合成実験を行った結果、予測どおりイオン伝導度が長時間安定となることが確認できた。[K. Shitara et al., Chem. Mater. 29, 3763 (2017)]

無機結晶データベースに推薦システムを応用することで、合成可能な新規無機化合物を効率的に発見する方法を提案した(図4)。この方法は、100億以上の化学組成の中から、無機化合物が存在する組成を予測可能にするものであり、新規無機化合物の発見を大幅に加速させることができると期待される。また、化学組成記述子を事前知識として用いる推薦システムの方法を提案した。その結果、既知データが少ない場合においても、化学組成記述子を事前知識として用いれば、新規無機化合物の発見を加速させることができることがわかった。

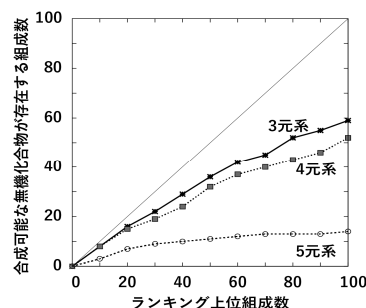


図4 推薦システム(テンソル分解)のランキング上位に含まれる合成可能な無機化合物が存在する化学組成数。

これらの結果は、第一原理計算とデータマイニング技法による手法が、新規材料探索に有効であることを実証したものである。

## 5. 主な発表論文等

[ 雑誌論文 ] (計 35 件)

Seko, A., Hayashi, H., Kashima, H. and Tanaka, I., Matrix- and tensor-based recommender systems for the discovery of currently unknown inorganic compounds, PHYSICAL REVIEW MATERIALS, 2-1, 13805 (2018). 査読有

Ikeda, Y., Kormann, F., Dutta, B., Carreras, A., Seko, A., Neugebauer, J. and Tanaka, I., Temperature-dependent phonon spectra of magnetic random solid solutions, NPJ COMPUTATIONAL MATERIALS 4, UNSP7-1-7 (2018). 査読有,

Hinuma, Y., Kumagai, Y., Tanaka, I. and Oba, F., Band alignment of semiconductors and insulators using dielectric-dependent hybrid functionals: Toward high-throughput evaluation, PHYSICAL REVIEW B 95, 75302 (2017). 査読有,

Hinuma, Y., Pizzi, G., Kumagai, Y., Oba, F. and Tanaka, I., Band structure diagram paths based on crystallography, COMPUTATIONAL MATERIALS SCIENCE 128, 140-184 (2017). 査読有

Hinuma, Y., Hayashi, H., Kumagai, Y., Tanaka, I. and Oba, F., Comparison of approximations in density functional theory calculations: Energetics and structure of binary oxides, PHYSICAL REVIEW B 96, 94102 (2017). 査読有

Hayashi, H., Katayama, S., Komura, T., Hinuma, Y., Yokoyama, T., Mibu, K., Oba, F. and Tanaka, I., Discovery of a Novel Sn(II)-Based Oxide beta-SnMoO<sub>4</sub> for Daylight-Driven Photocatalysis, ADVANCED SCIENCE 4, 1600246 (2017). 査読有

Takahashi, A., Seko, A. and Tanaka, I., Conceptual and practical bases for the high accuracy of machine learning interatomic potentials: Application to elemental titanium, PHYSICAL REVIEW MATERIALS 1, 63801 (2017). 査読有  
Carreras, A., Togo, A. and Tanaka, I., DynaPhoPy: A code for extracting phonon quasiparticles from molecular dynamics simulations, COMPUTER PHYSICS

COMMUNICATIONS 221, 221-234 (2017). 査読有

Lee, J., Ikeda, Y., and Tanaka, I., First-principles screening of structural properties of intermetallic compounds on martensitic transformation, NPJ COMPUTATIONAL MATERIALS 3, UNSP52 (2017). 査読有

Shitara, K., Moriasa, T., Sumitani, A., Seko, A., Hayashi, H., Koyama, Y., Huang, R., Han, DL., Moriwake, H. and Tanaka, I., First-Principles Selection of Solute Elements for Er-Stabilized Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Oxide-Ion Conductor with Improved Long-Term Stability at Moderate Temperatures, CHEMISTRY OF MATERIALS 29 (2017). 査読有

H. Hinuma, Y. Kumagai, F. Oba and I. Tanaka, Categorization of surface polarity from a crystallographic approach, Computational Materials Science 113, 221-230 (2016). 査読有

Hinuma, T., Hatakeama, Y., Kumagai, LA., Burton, H., Sato, Y., Muraba, S., Iimura, H., Hiramatsu, I., Tanaka, I. and H. Hosono, Discovery of earth-abundant nitride semiconductors by computational screening and high-pressure synthesis, Nature Communications 7, 11962 (2016). 査読有

S. Katayama, H. Hayashi, Y. Kumagai, F. Oba and I. Tanaka, Electronic Structure and Defect Chemistry of Tin(II) Complex Oxide SnNb<sub>2</sub>O<sub>6</sub>, Journal of Physical Chemistry C 120, 9604-9611 (2016). 査読有

Seko, A., Takahashi, A. and Tanaka, I., First-principles interatomic potentials for ten elemental metals via compressed sensing, PHYSICAL REVIEW B 92, 54113 (2015). 査読有

Togo, A. and Tanaka, I., First principles phonon calculations in materials science, SCRIPTA MATERIALIA 108, 1-5 (2015). 査読有

Katayama, S., Ogawa, Y., Hahashi, H., Oba, F. and Tanaka, I., Epitaxial growth of tin(II) niobate with a pyrochlore structure, JOURNAL OF CRYSTAL GROWTH 416, 126-129 (2015). 査読有

Dawson, J., Miller, J. and Tanaka, I., Li Intercalation into a beta-MnO<sub>2</sub> Grain Boundary, ACS APPLIED MATERIALS & INTERFACES 7, 8125-8131 (2015). 査読

有 ほか 18 件

[ 学会発表 ] (計 17 件)

(招待講演) Tanaka, I., Materials Discovery Through Machine Learning Process, 9th International Symposium on Nitrides (2017)

Hayashi, H., DFT-Based Screening of Novel Sn(II)-Based Oxide Photocatalysts, 10th International Conference on the Science and Technology for Advanced Ceramics (2017)

(招待講演) 田中 功, 第一原理計算とインフォマティクス手法を用いた材料, 日本金属学会2017年秋期講演大会 (2017)

世古 敦人, 行列およびテンソル分解を用いた新規無機化合物の推薦システム, 日本金属学会2017年秋期講演大会 (2017)

林 博之, 無機化合物データベースの機械学習に基づいた新規 Li 複合, 日本金属学会 2017 年秋期講演大会 (2017)

(招待講演) Tanaka, I., Materials discovery through first principles calculations, Materials discovery through first principles calculations (2016)

(招待講演) Tanaka, I., Real and virtual screening for materials discovery through first principles calculations, Workshop I: Machine Learning Meets Many-Particle Problems (2016)

(招待講演) Tanaka, I., Thermal conductivity of spinel nitrides and related materials by first principles calculations, 8th International Workshop on Spinel Nitrides and Related Materials (2016)

Yoyo Hinuma, Yu Kumagai, Hiroyuki Hayashi, Fumiyasu Oba, Isao Tanaka, Calculating binary oxide surface properties with a high-throughput procedure, MRS Fall Meeting (2016)

Yoyo Hinuma, Yu Kumagai, Hiroyuki Hayashi, Fumiyasu Oba, Isao Tanaka, High-throughput calculations of binary oxide surface properties, E-MRS Fall (2016)

(招待講演) Tanaka, I., Accelerated Discovery of Ceramic Materials via Systematic Density-Functional Calculations, 11th International Conference on Ceramic Materials and Components for Energy and Environmental Applications (2015)

(招待講演) Tanaka, I., Materials Genome and materials design, 第 1 回マテリアルズ・ゲノム(情報統合型物質・材料研究)に関する日米ワークショップ(2015)

(招待講演) Tanaka, I., Efficient Materials Exploration based on Systematic Density-Functional Calculations and Machine Learning Techniques, AMTC4 (2014)

(招待講演) Tanaka, I., Efficient materials exploration based on systematic density-functional calculations and machine learning techniques, E-MRS 2014 Spring Meeting (2014)

Yoyo Hinuma, Effects of Misfit Dislocations on the Band Alignment of Zincblende Semiconductors, AMTC4 (2014)

日沼洋陽, RbMg<sub>1-x</sub>H<sub>2x</sub>(PO<sub>3</sub>)<sub>3</sub> yH<sub>2</sub>O におけるプロトン伝導機構, 日本金属学会 2014 秋期講演大会 (2014)

Abel Carreras Conill, New code for phonon anharmonic effects analysis of MD trajectories, Nose30 (2014)

## 6 . 研究組織

### ( 1 ) 研究代表者

田中 功 (TANAKA, Isao)  
京都大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号 : 70183861

### ( 2 ) 研究分担者

吉矢真人 (YOSHIYA, Masato)  
大阪大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号 : 00399601

大場史康 (OBA, Fumiyasu)  
東京工業大学・フロンティア材料研究所・教授  
研究者番号 : 90378795

### ( 3 ) 連携研究者

世古 敦人 (SEKO, Atsuto)  
京都大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号 : 10452319

林 博之 (HAYASHI, Hiroyuki)  
京都大学・大学院工学研究科・助教  
研究者番号 : 50727419