

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 4 年 6 月 1 日現在

機関番号：12608

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02416

研究課題名(和文)酸素空孔の系統的理解と機械学習による予測

研究課題名(英文)Systematic understanding of oxygen vacancies and prediction by machine learning

研究代表者

熊谷 悠 (Kumagai, Yu)

東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授

研究者番号：00722464

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：従来の点欠陥計算は、複雑な処理を行うために、特定の物質を対象とした各論研究を行うのが限界であった。だが計算機性能は年を経るごとに飛躍的に向上しており、近年では系統的な点欠陥計算を行うに十分な状況にあった。そこで研究代表者らは、数千物質を対象に系統的な点欠陥計算を行い、それらの計算材料データベース構築を行なった。更に本データベースを基盤とした点欠陥形成エネルギーの機械学習による予測、点欠陥に関する特異現象の発見を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

物質中には、点欠陥が多数存在し、それらが材料機能発現において重要な役割を担っている。しかしながら、点欠陥特性を詳細に調べるため必要な原子レベルでの解析を、実験により行うことは極めて難しい。そこで近年、電子に関する量子力学の基本方程式を解く、第一原理計算を用いて点欠陥特性を調べる研究が行われる様になってきた。本研究では、数千物質を対象に系統的な点欠陥計算を行い、それらの計算材料データベース構築を行なった。これにより、効率的な新材料探索につながると期待される。

研究成果の概要(英文)：Conventional point defect calculations were limited to individual studies of specific materials due to the complexity of the process. However, computer performance has improved dramatically over the years, and in recent years, it has become sufficient to perform systematic point defect calculations. Therefore, we performed systematic point defect calculations for several thousand materials and constructed a database of calculated materials. Furthermore, based on this database, we predicted point defect formation energies by machine learning and discovered peculiar phenomena related to point defects.

研究分野：計算材料学

キーワード：酸素空孔 第一原理計算 ハイスループット計算 機械学習

1. 研究開始当初の背景

物質中には、空孔や不純物元素などの点欠陥が多数存在し(図1)、それらが材料機能発現において重要な役割を担っている。例えば、鉄に炭素を加えると鋼となり、その強度は飛躍的に向上する。また2014年に赤崎先生らがノーベル物理学賞を受賞した*p*型 GaN は、僅かな Mg を添加することにより実現された。さらに、2019年に吉野先生らがノーベル化学賞を受賞した Li イオン伝導体の負極材料においては、Li の拡散のために多量の Li 空孔を導入することが鍵となる。これらに代表されるように、点欠陥が材料特性に及ぼす影響は多岐に亘る。

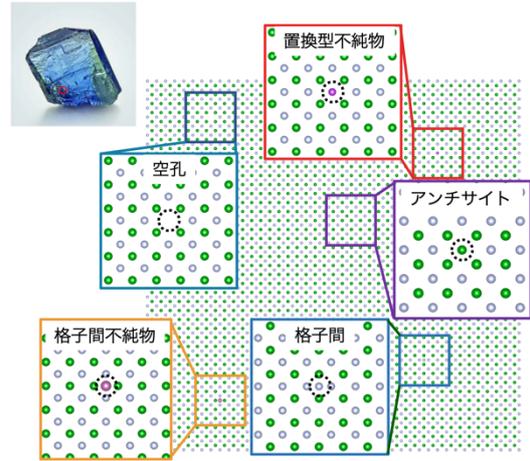


図1. 物質中に存在する種々の点欠

しかしながら、点欠陥特性を詳細に調べるため必要な原子レベルでの解析を、実験により行うことは極めて難しい。そこで2000年頃より、原子位置を入力として、電子に関する量子力学の基本方程式を解く、第一原理計算を用いて点欠陥特性を調べる研究が行われる様になってきた。

2. 研究の目的

従来は、点欠陥計算の計算コストと図2に示すような複雑な処理を行うための人的コストにより、特定の物質を対象とした各論研究を行うのが限界であった。だがムーアの法則に見られる様に、計算機性能は年を経るごとに飛躍的に向上しており、近年では系統的な点欠陥計算を行うことが計算資源の上では現実的な状況にあった。そこで研究代表者らは、数千物質を対象に系統的な点欠陥計算を行い、それらの計算材料データベースを構築することを研究目標とした。近年、電子構造等の比較的単純な物性を纏めた計算材料データベースが世界中で公開されているが、点欠陥特性を含めた計算材料データベースの構築は世界初である。更に本データベースを基盤とした点欠陥形成エネルギーの機械学習による予測、点欠陥に関する特異現象の発見を行うことを目指した。

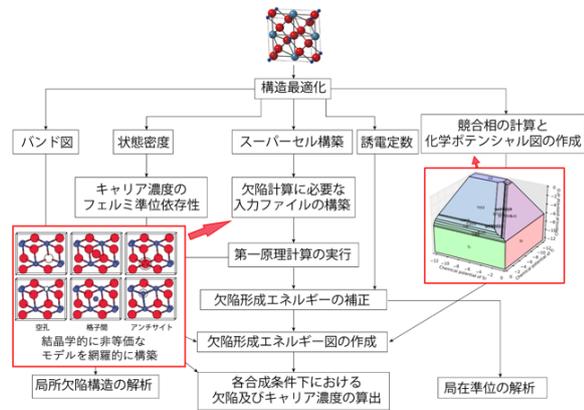


図2. 点欠陥計算の流れ。

3. 研究の方法

多数の物質を対象に点欠陥計算を実行するためには、点欠陥計算の高速化と自動化が必須である。高速化に関しては、任意の物質の点欠陥形成エネルギーを高精度に(図3)かつ自

動的に算出できる手法を提案しており、既に点欠陥計算の標準的手法として世界中で実装され、用いられている。

一方、点欠陥計算では、先に述べたように、数多くの複雑な処理が必要となるが、多数の物質を対象とする為にはこれらの全自動化が必要となる。そこで我々は、第一原理計算の入力ファイル生成と出力結果の解析を行う為の `vise` コード、点欠陥計算の処理を自動化する為の `pydefect` コード、それぞれの処理を繋ぎ合わせて完全自動化するための `pacman` コードの開発を行なった。

本研究では更に、光学特性や耐圧特性を決めるバンドギャップの高精度計算[29]や、太陽電池性能や透明性を決める光吸収係数の計算に関しても、数千種類の物質を対象に計算を行い、世界で初めてこれらのデータベース化に成功している。

本計算で得られた結果を掲載した GUI の一例を図 3 に示す。この様に、ウェブ上で視覚的に結果を参照し、双方向に操作することが可能となっている。

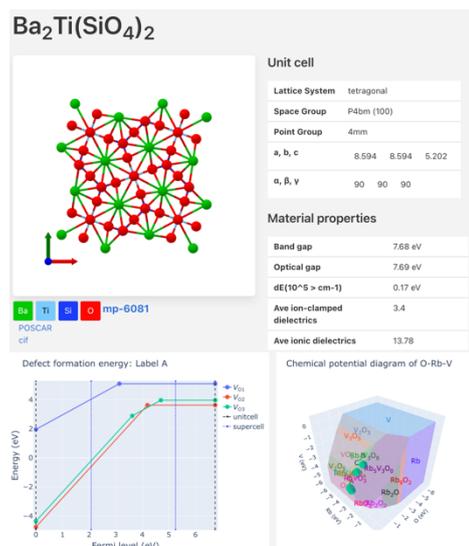


図 3. 我々が開発した計算材料データベースの GUI。

4. 研究成果

酸化物は、透明導電膜や不揮発性メモリなど様々な材料として応用されている。これら応用上重要な役割を担うのが、酸素が抜けた点欠陥である酸素空孔である。本研究では、6,000 種類以上の酸素空孔を計算し、それらの形成エネルギーを対象として機械学習を適用した。

先行研究では、45 物質の結果に基づき形成エネルギーの予測式が提案されていたが、本研究で得られた計算結果で検証したところ、図 4 に示すように、その予測精度は報告値よりも大幅に劣ることがわかった。一方、本研究で行なった機械学習では、予測誤差が 3 分の 1 程度にまで減少することができた。このような点欠陥形成エネルギーの高精度予測は、世界初の成果である。本機械学習結果を用いることで、およそ 1 日かかる空孔形成エネルギーをわずか 0.001 秒以下の時間で予測することが可能となる。

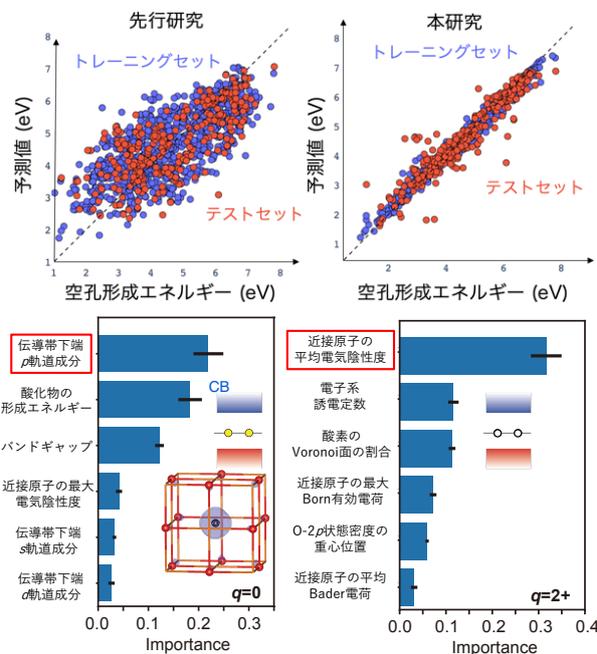


図 4. 酸素空孔形成エネルギーの(上)機械学習性能と(下)重要な記述子。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計14件（うち査読付論文 14件 / うち国際共著 3件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Nagai Takayuki, Kuwabara Akihideo, Kumagai Yu, Terasaki Ichiro, Taniguchi Hiroki	4. 巻 101
2. 論文標題 Optical enhancement of dielectric permittivity in reduced lanthanum aluminate	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 184114
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.184114	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Mochizuki Yasuhide, Sung Ha-Jun, Takahashi Akira, Kumagai Yu, Oba Fumiyasu	4. 巻 4
2. 論文標題 Theoretical exploration of mixed-anion antiperovskite semiconductors M ₃ XN (M=Mg, Ca, Sr, Ba; X=P, As, Sb, Bi)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 44601
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.4.044601	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Ding Yu, Kumagai Yu, Oba Fumiyasu, Burton Lee A.	4. 巻 11
2. 論文標題 Data-Mining Element Charges in Inorganic Materials	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 8264 ~ 8267
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcllett.0c02072	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Takahashi Akira, Kumagai Yu, Miyamoto Jun, Mochizuki Yasuhide, Oba Fumiyasu	4. 巻 4
2. 論文標題 Machine learning models for predicting the dielectric constants of oxides based on high-throughput first-principles calculations	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 103801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.4.103801	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kikuchi Ryosuke, Ueno Koki, Nakamura Toru, Kurabuchi Takahiro, Kaneko Yasushi, Kumagai Yu, Oba Fumiyasu	4. 巻 33
2. 論文標題 SrZn ₂ N ₂ as a Solar Absorber: Theoretical Defect Chemistry and Synthesis by Metal Alloy Nitridation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemistry of Materials	6. 最初と最後の頁 2864 ~ 2870
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.1c00075	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gake Tomoya, Kumagai Yu, Freysoldt Christoph, Oba Fumiyasu	4. 巻 101
2. 論文標題 Finite-size corrections for defect-involving vertical transitions in supercell calculations	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 20102
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.020102	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Tsunoda Naoki, Kumagai Yu, Oba Fumiyasu	4. 巻 3
2. 論文標題 Stabilization of small polarons in BaTiO ₃ by local distortions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 114602
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.3.114602	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Liu Ran, Khalyavin Dmitry D., Tsunoda Naoki, Kumagai Yu, Oba Fumiyasu, Katsuya Yoshio, Tanaka Masahiko, Yamaura Kazunari, Belik Alexei A.	4. 巻 58
2. 論文標題 Spin-Glass Magnetic Properties of A-Site Columnar-Ordered Quadruple Perovskites Y ₂ MnGa(Mn _{4-x} Gax) ₀₁₂ with 0 ≤ x ≤ 3	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Inorganic Chemistry	6. 最初と最後の頁 14830 ~ 14841
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.inorgchem.9b02542	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Wang Yong, Ohsawa Takeo, Kumagai Yu, Harada Kou, Oba Fumiyasu, Ohashi Naoki	4. 巻 115
2. 論文標題 Achieving non-degenerate Zn3N2 thin films by near room temperature sputtering deposition	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Physics Letters	6. 最初と最後の頁 092104 ~ 092104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5101037	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Gake Tomoya, Kumagai Yu, Takahashi Akira, Oba Fumiyasu	4. 巻 5
2. 論文標題 Point defects in p-type transparent conductive CuMO2 (M = Al, Ga, In) from first principles	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 104602-1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.5.104602	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tsunoda Naoki, Kumagai Yu, Oba Fumiyasu	4. 巻 203
2. 論文標題 Recommendation of interstitial hydrogen positions in metal oxides	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 111068 ~ 111068
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2021.111068	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kumagai Yu, Tsunoda Naoki, Takahashi Akira, Oba Fumiyasu	4. 巻 5
2. 論文標題 Insights into oxygen vacancies from high-throughput first-principles calculations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 123803-1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.5.123803	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kikuchi Ryosuke, Nakamura Toru, Kurabuchi Takahiro, Kaneko Yasushi, Kumagai Yu, Oba Fumiyasu	4. 巻 33
2. 論文標題 Theoretical Prediction and Thin-Film Growth of the Defect-Tolerant Nitride Semiconductor YZn ₃ N ₃	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemistry of Materials	6. 最初と最後の頁 8205 ~ 8211
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.1c02149	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kikuchi Ryosuke, Ueno Koki, Nakamura Toru, Kurabuchi Takahiro, Kaneko Yasushi, Kumagai Yu, Oba Fumiyasu	4. 巻 33
2. 論文標題 SrZn ₂ N ₂ as a Solar Absorber: Theoretical Defect Chemistry and Synthesis by Metal Alloy Nitridation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemistry of Materials	6. 最初と最後の頁 2864 ~ 2870
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.1c00075	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計13件 (うち招待講演 11件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 酸化物物性と酸素空孔に関する系統的計算
3. 学会等名 第30回日本MRS年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 酸化物に関する計算材料データベース構築
3. 学会等名 2020年度第5回物性アプリオープンフォーラム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 計算材料データベース構築とその応用
3. 学会等名 日本セラミックス協会2021年年会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 半導体材料探索に向けた計算データベースの開発：酸化物を例として
3. 学会等名 応用物理学会シリコンテクノロジー分科会 モデリング研究委員会研究集会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yu Kumagai
2. 発表標題 High-throughput computations on oxygen vacancies and their machine learning
3. 学会等名 The 3rd Innovation Camp for Computational Materials Science（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 第一原理計算による半導体物性の計算手法開発
3. 学会等名 2019年理研シンポジウム：計算で物事を理解する予測する～データサイエンス、自然知能、そして圏論へ（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yu Kumagai
2. 発表標題 High-Throughput Calculations and Machine-Learning Prediction of Oxygen Vacancy Formation Energies
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 計算材料データベースの開発
3. 学会等名 第88回マテリアルズ・テラリング研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 非金属物質中の点欠陥を対象とした系統的第一原理計算
3. 学会等名 第1回計算イオニクス研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 計算材料データベースの構築に関して
3. 学会等名 第6回アドバンス・シミュレーション・セミナー2021 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 理論計算・データ科学による機能性セラミックス材料開発の革新
3. 学会等名 金属材料研究所ワークショップ・セラミックス材料をめぐる最近の研究動向（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 熊谷 悠
2. 発表標題 酸素空孔に関する系統的計算と機械学習
3. 学会等名 日本化学会第102春季年会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yu Kumagai, Akira Takahashi, Fumiyasu Oba
2. 発表標題 Automation of First-Principles Point Defect Calculations for Non-Metallic Materials
3. 学会等名 MRM2021（国際学会）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------