

令和 5 年 6 月 13 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05068

研究課題名(和文)ハイエントロピー合金物性探索のための機械学習を取り入れた物性自動探索

研究課題名(英文) Automatic property search incorporating machine learning for high entropy alloy property search

研究代表者

木野 日織 (KINO, Hiori)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・統合型材料開発・情報基盤部門・主幹研究員

研究者番号：70282605

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：この申請者は第一原理計算KKR法の自動化を行い網羅自動計算を実現し、磁化、磁気相転移温度、残留電気伝導率の計算も行った。4f系を除いて金属元素を中心に38元素の組み合わせによる四元等比ハイエントロピー合金のBCC構造、FCC構造それぞれに対して約7万個、合計約14万個の物質計算を行った。網羅計算結果に対して説明可能な機械学習手法を適用することにより構成元素の周期律表列の散らばり(分散)が小さいほど残留電気伝導率が高いという法則を発見した。また、磁化がノンコリニアになる場合に、HEAのカクテル効果として元素間のフラストレーションにより非磁性体の可能性を示唆した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

材料設計を行う場合に都度材料の物性を探索するのではなく、予め物性値データベースを作成し、そこからデータを選べると材料設計が大幅に加速する。高強度物質として知られる固溶状態相であるハイエントロピー合金は3d遷移金属元素などを含む場合に磁性を持つ可能性がある。構造から柔磁性になり、また、様々な元素が混じった合金であり、単結晶として原理的に大きな電気抵抗を持つことも期待される。ハイエントロピー合金に対してこの網羅計算ソフトの作成および網羅データ生成を行った。

研究成果の概要(英文)：The applicant has automated the first-principles KKR method to realize an exhaustive automatic calculation, and has also calculated magnetization, magnetic phase transition temperature, and residual electrical conductivity. The calculation of the amount of material was performed. By applying an explanatory machine learning method to the results of the exhaustive calculations, we found that the smaller the scatter (dispersion) of the periodic table sequence of the constituent elements, the higher the residual conductivity. We also suggested the possibility of nonmagnetic materials due to frustration between elements as a cocktail effect of HEA when the magnetization is noncollinear.

研究分野：マテリアルズインフォマティクス

キーワード：マテリアルズインフォマティクス ハイエントロピー合金 第一原理網羅計算 説明可能な人工知能  
残留電気抵抗率 磁気相転移温度 磁性

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

軟磁性体はモーターの磁心材料として広く用いられる。現在パーマロイに依存している次世代携帯電話向けのより高周波に電磁波吸収限界を持つ物質、またスピントロニクス分野においても低磁化・高磁気転移温度かつ高スピン軌道相互作用を持つ物質が求められている。日本の物質材料の優位性を保つためにより高性能な軟磁性体の開発は必要である。優れた機械的強度を持った構造材料として注目を集めている固溶体、もしくはハイエントロピー合金 (HEA) は容易軸を持たず磁性を持つ場合は結晶構造から軟磁性体になる。HEA の膨大な組成組み合わせの中に優れた軟磁性特性を示す可能性があるが、その可能性があまりに膨大であるが為に HEA の物質探索はほとんど進んでいない。

従来研究では HEA の物性発現の起源は特異なカクテル効果 (構成原子間の非線形相互作用) であると曖昧に説明される。各構造に対してカクテル効果が何を起こすのか、物性量に対してカクテル効果とは具体的に何か明らかにせねばならない。

近年のマテリアルズ・インフォマティクスやデータ科学の発展に伴い、材料科学開発速度が増している。HEA に代表される元素組み合わせが多い材料探索の障害は、実験では膨大な組成・比率組み合わせに対応できない点である。そのため、信頼できる理論計算を行うことが望ましい。更に、ある特性を示す材料をその都度探索するのではなく、材料の特性を予め網羅計算もしくは機械学習モデルを作成し予め物性データベースを作成しておくことが望ましい。

## 2. 研究の目的

KKR-CPA 法により自動計算を行い HEA の網羅計算を可能とする。更に、網羅計算結果を機械学習手法を用いて解析することにより、HEA 物性の原理を明らかにし、HEA のカクテル効果に関する知見を得る。そして、将来的な材料設計に活かすために計算結果を公開する。

## 3. 研究の方法

HEA などは、座標の長距離秩序があるが原子組み合わせに関してある程度ランダムさを持つ物質であり、波動関数法による第一原理計算による物性値評価は周期構造が大規模計算になりとても費用がかかる。更に、組み合わせが膨大であると網羅的な第一原理計算組み合わせ数が急激に大きくなる点に困難がある。Green 関数法である KKR-CPA 法はこれを基本周期構造で簡単に行うことができる近似であり合金計算では広く用いられる。しかし、この計算手法はこれまで網羅計算に対して用いられたことが無かった。この理由は Green 関数法では積分下限を電子密度が小さいエネルギー領域に設定する必要があるからである (図 1 参照)。従来は人が行っていた電子密度の認識および調整を自動化するためにプログラム化 KKR-CPA 法による網羅計算を可能とする。更に、HEA に対する説明変数を開発し高精度な回帰モデルを作成すると同時に、網羅計算結果を説明可能な機械学習手法を用いて解析することにより、HEA 物性の原理を解明する。また、HEA のカクテル効果に関する知見を得る。そして、将来的な産学材料設計に活かすために計算プログラムおよび計算結果を公開する。

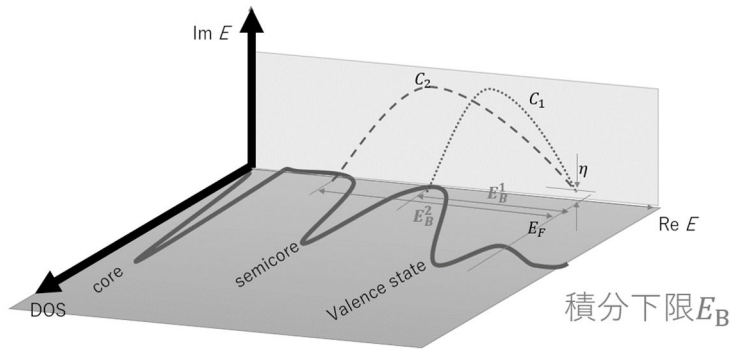


図 1：積分経路  $C_1$  や  $C_2$  のように電子状態密度 (DOS) が小さいエネルギー領域に KKR 法のエネルギー積分下限 ( $E_B$ ) を設定する必要がある。

#### 4. 研究成果

電子状態密度 (DOS) が小さい領域を認識し、エネルギー積分下限を設定するワークフローを作成した (図 2 参照)。電子状態密度が小さいエネルギー範囲は、電子状態を収束させるとエネルギー範囲がずれるために繰り返しエネルギー積分範囲を決定する必要があることもワークフローに含めている。

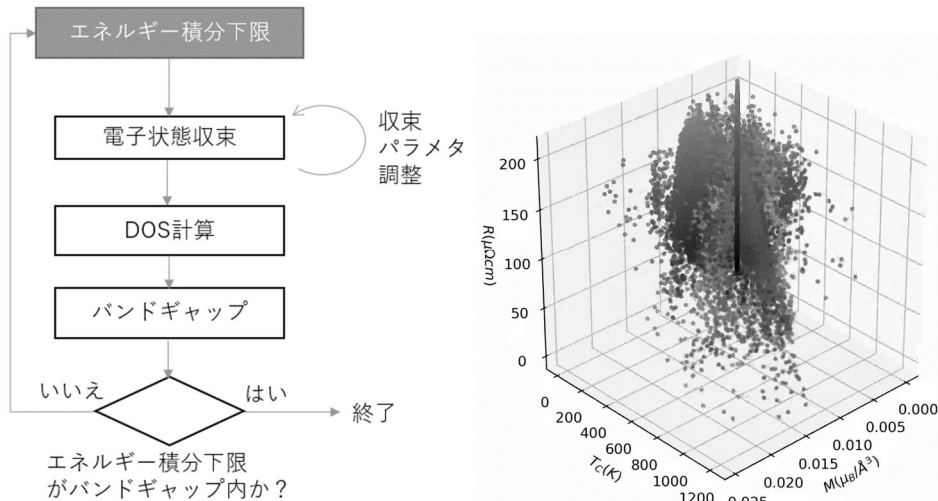


図 2：左パネル：エネルギー積分下限を自己無撞着に設定するワークフロー。右パネル：四元等非ハイエントロピー合金の元素を変えた場合の各物質の磁気相転移温度 ( $T_C$ ), 全磁化 ( $M$ ), 残留電気抵抗率 ( $R$ ) を可視化した。

4f 元素を除いた遷移金属を中心とした 38 元素から BCC と FCC 構造各物質それぞれ約 7 万件のキュリー温度 ( $T_C$ ), 全磁化 ( $M$ ), 残留電気抵抗率 ( $R$ ) を計算した。BCC 結果例を図 2 右に示す。この結果から様々な特徴を解析できる。例えば、線形応答的に  $M$  や  $T_C$  を増加させる元素を特定することが可能である。よく知られているようにパラジウム (Pd) は多くの場合に  $T_C$  を増加させるが、磁化に対してはロジウム (Rh), 元素組み合わせによっては錫 (Sn), ビスマス (Bi),  $T_C$  に対しては銅 (Cu) などが物性値を大きく増加させる元素ことが分かった (図 3 参照)。

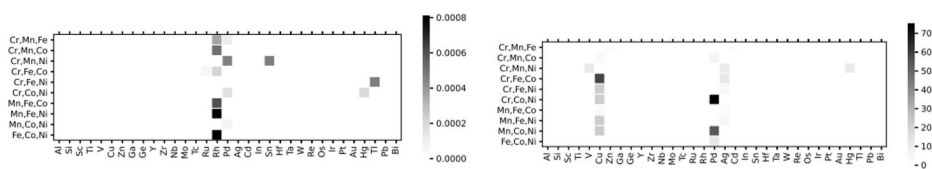


図 3：左パネル：全磁化  $M$  や右パネル：磁気相転移温度  $T_C$  を増加させる元素を示す。

非等比 HEA も妥当な予測モデルの範疇とすると残留電気抵抗率に対しては  $R_{test}^2 = 0.97$  の妥当な予測モデルを作成することが可能である。更にこの予測モデルをモデル全探索を用いた説明変数重要性に関する解析を行った。最も依存性が大きい説明変数は、周期律表のグループの分散であることが分かった。周期律表に模した図にこれをまとめることができる（図4参照）。BCC 構造  $xyzw$  組成で  $xyz$  を図中の元素名で固定して  $w$  を周期律表に模した図の元素で変えた場合の残留電気抵抗率  $R$  を円の大きさで表す。全てのパネルで円の大きさのスケールは同じである。例えば、最左上のパネルでは  $xyz=(Fe,Co,Ni)$  であり、 $w$  が周期律表に模した図の元素である。 $w$  に依存して分散が変化することになり、同最左列パネルでは、 $xyz$  が 8, 9, 10 列にある場合に、 $w$  を変えても周期律表全体に対して列の分散が小さいと小さい値、列の分散が大きいと大きな値を持つほぼ同じ大きさの円 ( $R$  の値) を示している。同様に、左から2つめの列パネルでは分散が  $xyz$  が 4, 11, 13 列であり  $w$  によらずグループ分散が大きく、周期律表全体に対してほぼ同じ円の半径 ( $R$  の値) を示す。 $xyz$  が片側に寄っている場合（右から2つ目と最も右）も同様にグループ分散に依存した  $R$  の値を示す。本結果は四元系で配置エントロピーがもっとも大きい場合の結果であるが、逆に少量ドーパした場合の銅 (Cu), アルミ (Al) 配線の抵抗率の変化も同様に元素グループの差でまとめられることが知られており、この法則が一般的な法則であることが期待される。また、HEA のカクテル効果として、磁化がノンコリニアになる場合に、元素間のフラストレーションにより非磁性体を得ることができる可能性を示唆した。本研究成果である Python ライブラリ及び、AiIDA を用いたワークフローは gitlab にて公開している。

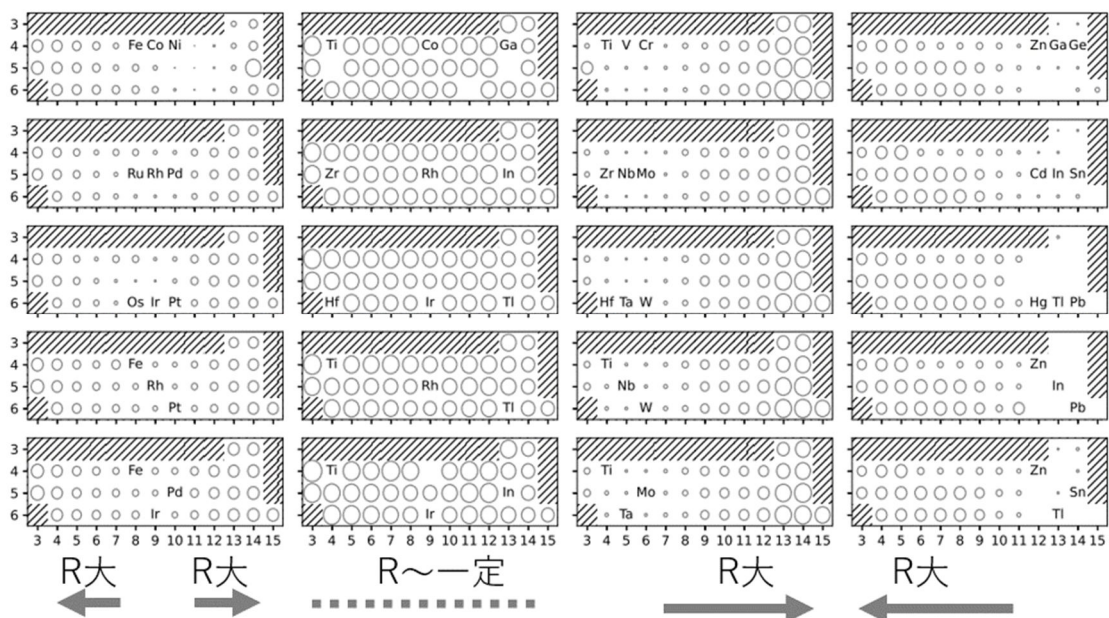


図4：BCC 構造  $xyzw$  組成で  $xyz$  を図中の元素名で固定し、 $w$  を周期律表に模した図の元素で変えた場合の残留電気抵抗率  $R$  を円の大きさで表す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Ha Minh-Quyet, Nguyen Duong-Nguyen, Nguyen Viet-Cuong, Kino Hiori, Ando Yasunobu, Miyake Takashi, Denoeux Thierry, Huynh Van-Nam, Dam Hieu-Chi	4. 巻 133
2. 論文標題 Evidence-based data mining method to reveal similarities between materials based on physical mechanisms	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 053904 ~ 053904
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0134999	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 Yamashita Tomoki, Kino Hiori, Tsuda Koji, Miyake Takashi, Oguchi Tamio	4. 巻 2
2. 論文標題 Hybrid algorithm of Bayesian optimization and evolutionary algorithm in crystal structure prediction	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	6. 最初と最後の頁 67 ~ 74
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/27660400.2022.2055987	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 Fukushima T., Akai H., Chikyow T., Kino H.	4. 巻 6
2. 論文標題 Automatic exhaustive calculations of large material space by Korringa-Kohn-Rostoker coherent potential approximation method applied to equiatomic quaternary high entropy alloys	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 023802-1-19
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.6.023802	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 Ha Minh-Quyet, Nguyen Duong-Nguyen, Nguyen Viet-Cuong, Nagata Takahiro, Chikyow Toyohiro, Kino Hiori, Miyake Takashi, Denaeux Thierry, Huynh Van-Nam, Dam Hieu-Chi	4. 巻 1
2. 論文標題 Evidence-based recommender system for high-entropy alloys	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nature Computational Science	6. 最初と最後の頁 470 ~ 478
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s43588-021-00097-w	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 該当する

1. 著者名 Hiori Kino, Hieu-Chi Dam, Takashi Miyake, Riichiro Mizoguchi	4. 巻 2205
2. 論文標題 Function Decomposition Tree with Causality-First Perspective and Systematic Description of Problems in Materials Informatics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 arXiv.org	6. 最初と最後の頁 00829-1-41
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.48550/arXiv.2205.00829	査読の有無 無
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 -

〔学会発表〕 計5件(うち招待講演 4件/うち国際学会 4件)

1. 発表者名 木野日織
2. 発表標題 新機能材料設計のための自動計算と機械学習用データの生成
3. 学会等名 MNC 2022 技術セミナー「最先端デバイスとデータ駆動型開発の可能性」(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木野日織
2. 発表標題 Acquisition of "law" of residual electrical resistivity by white-boxing regression models from automated calculations of equiatomic quaternary solid solution phases..
3. 学会等名 COMBI 2022 (11th International Workshop on Combinatorial Materials Science and Technology)(国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 木野日織
2. 発表標題 case study IV
3. 学会等名 40th Computational Materials Design(CMD) Workshop (招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Development of Data-driven Methods as a bridge to Deductive Methods
2. 発表標題 木野日織
3. 学会等名 The 29th International Toki Conference on Plasma and Fusion (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木野日織、福島鉄也、知京豊裕
2. 発表標題 第一原理計算の自動化によるマテリアル空間の拡大
3. 学会等名 第68回応用物理学会 春季学術講演会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 木野 日織、ダム ヒョウ チ	4. 発行年 2022年
2. 出版社 近代科学社	5. 総ページ数 194
3. 書名 Pythonではじめるマテリアルズインフォマティクス	

〔産業財産権〕

〔その他〕

Python utilities for AkaiKKR <a href="https://github.com/AkaiKKRteam/AkaiKKRPythonUtil">https://github.com/AkaiKKRteam/AkaiKKRPythonUtil</a> AiiDA-AkaiKKR <a href="https://github.com/nim-hrkn/aiida-akaikkr">https://github.com/nim-hrkn/aiida-akaikkr</a>
---

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
---------	---------