

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：13302

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K05301

研究課題名（和文）構造物性機構への説明性を備えたデータ駆動型AIを用いた磁性材料の探索

研究課題名（英文）Magnetic materials exploration using data-driven AI that can explain structure-property mechanisms

研究代表者

DAM Hieu Chi (DAM, Hieu Chi)

北陸先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・教授

研究者番号：70397230

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）：本研究は構造物性機構の理解を重視したAIと材料科学の首尾一貫的な枠組みを構築し、RE（希土類金属）-T（遷移金属・構造安定化元素）-X（軽元素）結晶性磁性材料の候補空間を系統的に探索し、高磁気能で構造安定性をもつ代替結晶候補を発見した。特に、優れた磁気特性を示すThMn12構造を持つSmFe12系化合物をホスト格子として選定し、結晶性構造の各原子サイトへの元素置換・挿入操作で作成できる膨大な候補空間を自動生成機によって構築し、第一原理計算と能動学習手法を統合した材料探索手法を確立し、優れた磁気特性を示すThMn12構造を持つSmFe12系化合物に適用し、SmFe12置換構造の候補を推奨できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は構造物性機構の理解を重視したAIと材料科学の首尾一貫的な枠組みを構築し、RE（希土類金属）-T（遷移金属・構造安定化元素）-X（軽元素）結晶性磁性材料の候補空間を系統的に探索し、高磁気能で構造安定性をもつ代替結晶候補を発見することと構造物性科学に対して、理解・応用の両面で貢献するした。特に、ThMn12構造を持つ磁石材料SmFe12化合物に対して、網羅的に結晶構造の各原子サイトに元素を置換を行い、第一原理計算と能動学習手法を統合した材料探索法を確立し、SmFe12置換構造の有望な候補を見つけた。この結果、新規磁石材料の開発に貴重な構造、物性、安定性に関する知見を得ることができた。

研究成果の概要（英文）：We developed an integrated framework of AI and materials science to gain a better understanding of the mechanisms underlying structural properties. Specifically, we systematically explored the candidate space of rare earth-metal (RE)-transition metal (T)-light element (X) crystalline magnetic materials and discovered alternative crystal candidates with high magnetic ability and structural stability. We selected SmFe12, a compound with a ThMn12 structure, as a host lattice due to its excellent magnetic properties. To generate a large number of candidate spaces, we used an automatic generator to substitute elements into each atomic site of the crystalline structure. We established a material search method that integrates first-principles calculations and active learning methods, resulting in the identification of promising candidates for the SmFe12 substitution structures. Our results demonstrate the effectiveness of this approach in discovering new materials with desirable properties.

研究分野：マテリアルインフォマティクス

キーワード：磁性材料 データ駆動型AI 第一原理計算

1. 研究開始当初の背景

最強磁石の研究開発：現代社会で

は、強い磁石材料が求められ、高性能磁石の開発は急務である。現状で最強のネオジム鉄ボロン (Nd-Fe-B) 磁石は熱的・機械的に脆弱で希土類元素 Dy 添加などの対策により、自動車モータ等での実用化を可能にしているが、資源供給が不安定である。資源に余裕のある希土類金属 Sm を用い、高い磁気性能を持つ $\text{Sm}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_{12}$ 薄膜が報告されたが、実用化に必要な安定した強固な結晶構造

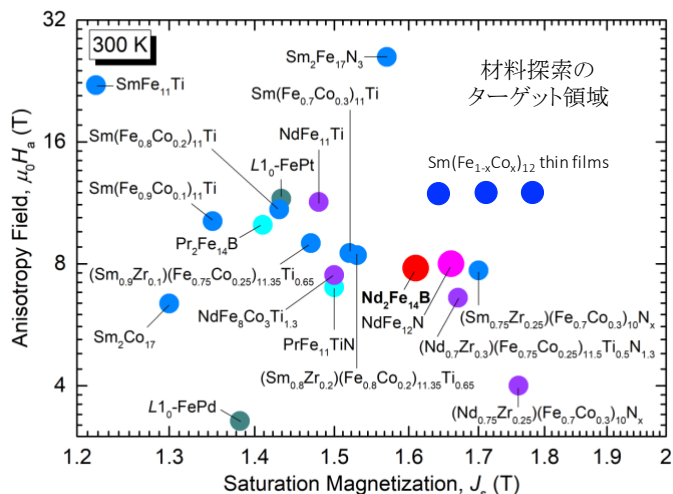


図1. 最新の代表的な磁石化合物の固有磁気特性

には未だ得られていない (図 1)。このように高性能磁性材料に求められている要件は、①原料に安定供給資源、②安定した強固な結晶構造、③強磁性、である。こういった要件を満たす新規の構造組成が可能であるかという観点で、賢く・漏れなく、系統的に新しい高磁気材料を探索することが求められている。

材料探索の研究：材料物質開発応用研究では、どのような構造が安定かを理論計算により予備評価することである。磁性材料は主相と副相からなっており、性能や構造安定には主相だけではなく副相も寄与する。また、物性が優れた主相の探索や合成にもどのような副相が形成されやすいかは大事な情報である。そのため主相と副相の可能な構造への系統的な調査が望ましい。最近我々は新規磁石材料の開発において、既存の希土類金属 RE (Nd, Sm, Dy, など) - 遷移金属 T (Fe, Co, など) - 軽元素 X (B, C, N, など) の材料系 (RE-T-X) を基にして高い磁気性能と耐熱性を持つ最適な化学組成・安定構造の探索問題に対してデータ駆動型 AI (機械学習およびデータマイニング) の手法の有効性を証明し (図 2)、注目を集めている。

材料研究開発への AI 導入：材料研究開発においては、データ駆動型 AI 導入によって既に幾つか良い材料の報告がされている。しかし、それらの物性メカニズムを理解するという課題は取り残されているように見える。そもそも、データ駆動型 AI は、新規性のあるデータ領域での動作が数学的に保証されない (外挿問題)。材料科学研究における発見は、本質的に予想が付かない事態を含み、これは近年社会問題となっている AI 自動運転と同様、人間の介入と理解を可能とする説明可能/検証可能な AI が絶対に必要である。そのため、AI と材料科学の融合を図る際に、物性現象の理解を重視した首尾一貫的な枠組みの構築を必要とする。

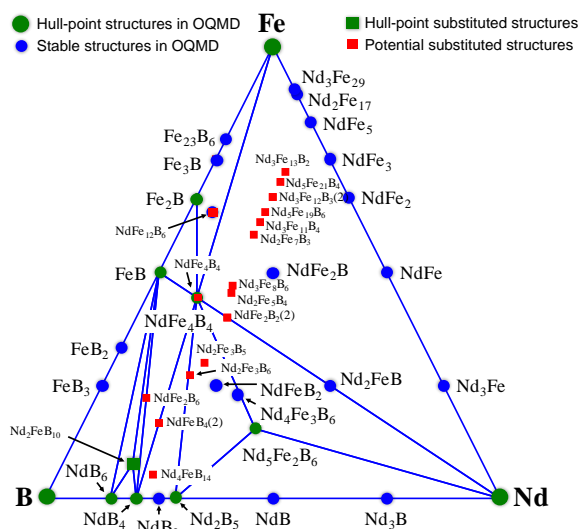


図2. 申請らが既に発見した安定なNd-Fe-B結晶候補

2. 研究の目的

本研究は構造物性機構の理解を重視した AI と材料科学の首尾一貫的な枠組みを構築し、RE-T-X 磁性材料の候補空間を系統的に探索し、高磁気能で構造安定性をもつ代替結晶候補を発見することを目的とする。構造物性科学に対して、理解・応用の両面で寄与する。

3. 研究の方法

本研究は、独自の AI 要素技術として、①高精度な物性値予測と人間の理解・説明性とを担保する材料記述子、②構造物性機構に関するデータ駆動型の類似度評価方法、③直観的な物質空間の可視化手法、④構造物性の法則を帰納法で説明・解明する方法の各要素技術が協奏的に融合し、磁石結晶の構造・安定性・磁性に関する知識を抽出した。具体的には、**RE (希土類金属) - T (遷移金属・構造安定化元素) - X (軽元素)** 結晶性材料において、安定結晶構造候補の完全な相図や構造物理関係性の抽出を出口成果とし、データ駆動型 AI の構築を行い、構造物性機構の理解を進めて、高性能な代替結晶の候補を呈示する。研究遂行のために以下に示す2点の目標を設定した。

- (a) 原子置換手法による膨大な候補空間から、物質群の構造物性の相関関係を抽出し、安定かつ特性の良い磁性材料の候補を効率よく探索できる第一原理計算とデータ駆動型AIを融合したシステムを構築する。
- (b) 構築したシステムを使って、特定の原子に関して系統的に安定なRE-T-X結晶構造候補を発掘し、構造物性機構を解明し、特性の良い代替結晶を見つけて、第一原理計算を用いて検証する。

目標を達成する為に、以下に挙げる2つの到達点 M1, M2 を設定し、研究を遂行する。

M1) 開発した記述子を用いて、機械学習用の RE-T-X 結晶性材料の基本データベースを構築する。既存の結晶性材料データベースを統合し、必要に応じて第一原理計算を実行して計算値を充ち、完備する。

M2) 機械学習を用いて構築したデータベースからデータ駆動的に以下のモデルを構築する。

M2-a) RE-T-X結晶性材料のデータベースから物質の安定性に注目した構造物性相関関係の抽出及び安定性を定性的に評価する確率モデルの構築する。

M2-b) 構築した結晶性材料データベースから網羅的にホスト格子を選定し、RE-T-X結晶性材料の各原子および空洞サイトへの元素置換・挿入操作で作成できる膨大な候補空間を自動生成機によって構築し、安定性評価モデルを用いて候補を特定し、さらに第一原理計算を用いて理論検証を行う。特に**RE (Nd, Sm, Zr) - T (Fe, Co, Ti, Al, Si, V, Cr, Mn, Mo, W) - X (H, B, N, O)** を検討する。

M2-c) 特定の元素群について完全な相図を得られた時点で、最初の出口成果として公開する。最後に全体のサイクルを設計し、系統的に安定な RE-T-X 結晶性材料の候補を発掘し、特性の良い RE-T-X 磁石の代替結晶を探索する。

- 1) (M2-b) のRE-T-X結晶性材料の候補の自動生成機を稼働し、(M2-a) の安定性を定性的に評価する確率モデルで予備検査し、有効な結晶候補を選ぶ。

有効な結晶候補を対象に、実際に第一原理計算を実行して理論評価し、得られた結果を構築したデータベースに追加する。さらに、(M2-a) の構造物性相関関係の抽出及び安定性を定性的に評価する確率モデルの再構築を行う。

4. 研究成果

本研究の主要な成果は、特定の RE-T-X 結晶性材料の安定結晶構造候補の完全相図と構造物性関係性の抽出できる説明可能なデータ駆動型 AI 技術である。さらに、データ駆動型 AI の構築を通じて構造物性機構の理解を深め、高性能な代替結晶の候補を提示するための基盤技術を開発した。

2020 年度には以下の二つの研究成果を得た。

1. OFM 記述子という、原子軌道と配位子場の情報を取り入れた新たなツールを開発し、それを用いて RE-T-X 結晶性材料の基本データベースを構築した。既存の結晶性材料データベースと統合し、第一原理計算を実行し、その結果を新たなデータベースに反映した。
2. 機械学習を利用し、構築した RE-T-X 結晶性材料のデータベースからデータ駆動的に物質の安定性に注目した。それにより構造物性相関関係の抽出と、安定性の定性的評価を行う確率モデルを構築した。

2021 年度と 2022 年度には初年度の研究成果を引き継ぎ、以下の二つの新たな成果を得た。

3. 研究チームが構築した結晶性材料データベースから、優れた磁気特性を示す ThMn12 構造を持つ SmFe12 系化合物をホスト格子として選定した。そして、各原子サイトへの元素置換・挿入操作によって大規模な候補空間を生成した。具体的には、 $\text{SmFe}(12-\alpha-\beta)\text{X}\alpha\text{Y}\beta$ の組成を持つ安定結晶構造を探索ターゲットとした。この $\text{SmFe}(12-\alpha-\beta)\text{X}\alpha\text{Y}\beta$ 構造は、元の SmFe12 構造の鉄サイトに $\alpha+\beta<4$ の範囲で X, Y 元素 - Mo, Zn, Co, Cu, Ti, Al, Ga を置換したものである。
4. 高速に安定化する可能性のある結晶構造の探索と、その安定化メカニズムの解明を目指した。そのために、第一原理計算と Query And Learn の能動学習手法を統合した全体のサイクルを設計し、優れた磁気特性を示す ThMn12 構造を持つ SmFe12 系化合物に適用し、材料探索手法を開発した。開発した材料探索手法は、(i) 限られた第一原理計算データで生成エネルギーを正確に見積もり、(ii) 構造探索プロセスの進行を視覚的にモニターし、(iii) 構造と生成エネルギーの相関を抽出し、(iv) 次の第一原理計算のために最も有益な SmFe12-置換構造の候補を推奨する、といった特性を有する。

研究成果は Nature Computational Science 誌, MRS Bulletin 誌 - Impact, Journal of Applied Physic 誌 - Featured Article など、 査読付き学術誌論文 7 本で発表した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Ha Minh-Quyet, Nguyen Duong-Nguyen, Nguyen Viet-Cuong, Nagata Takahiro, Chikyow Toyohiro, Kino Hiori, Miyake Takashi, Denoeux 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 Nguyen Duong-Nguyen, Dao Duc-Anh, Miyake Takashi, Dam Hieu-Chi	4. 巻 153
2. 論文標題 Boron cage effects on Nd-Fe-B crystal structure 's stability	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 114111 ~ 114111
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0015977	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 Nu Thanh Ton Nhan, Ha Minh-Quyet, Ikenaga Takuma, Thakur Ashutosh, Dam Hieu-Chi, Taniike Toshiaki	4. 巻 8
2. 論文標題 Solvent screening for efficient chemical exfoliation of graphite	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 2D Materials	6. 最初と最後の頁 015019 ~ 015019
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/2053-1583/abc08a	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 Pham Tien-Lam, Nguyen Duong-Nguyen, Ha Minh-Quyet, Kino Hiori, Miyake Takashi, Dam Hieu-Chi	4. 巻 7
2. 論文標題 Explainable machine learning for materials discovery: predicting the potentially formable Nd-Fe-B crystal structures and extracting the structure-stability relationship	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 IUCrJ	6. 最初と最後の頁 1036 ~ 1047
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1107/S2052252520010088	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 Nguyen Duong-Nguyen, Kino Hiori, Miyake Takashi, Dam Hieu-Chi	4. 巻 48
2. 論文標題 Explainable active learning in investigating structure-stability of SmFe12- X Y structures X, Y {Mo, Zn, Co, Cu, Ti, Al, Ga}	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 MRS Bulletin	6. 最初と最後の頁 31 ~ 44
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1557/s43577-022-00372-9	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 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 -

1. 著者名 Nguyen Duong-Nguyen, Dam Hieu-Chi	4. 巻 133
2. 論文標題 Machine learning-aided Genetic algorithm in investigating the structure?property relationship of SmFe12-based structures	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 063902 ~ 063902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0134821	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1件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 DAM Hieu Chi
2. 発表標題 Learning similarities between materials from data
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021 (招待講演) (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
研究 分担 者	水上 卓 (Mizukami Taku) (50270955)	北陸先端科学技術大学院大学・先端科学技術研究科・助教 (13302)	

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