

材料設計のためのデータシステム－逆問題への適用

陳迎、○金田保則、川口福太郎(*), 岩田修一、P. Villars**

東京大学大学院工学系研究科

(現在、ブーズ・アレン・アンド・ハミルトン株式会社) *

Material Phases Data System (Switzerland)**

Data System for Material Design – Application for Inverse Problem

Ying CHEN, Yasunori KANETA, Fukutaro Kawaguchi*, Shuichi IWATA, P. Villars**

School of Engineering, The University of Tokyo

Booz Allen Hamilton (Japan) Inc. *

Material Phases Data System (Switzerland)**

Materials design is a typical inverse problem to find out certain atomic constitution with required properties based on available information. Although in the long history of development of new materials, the experience has been played an important role, the data-driven discovery approach which based on well organized materials data is becoming an powerful tool nowadays with the drastic progress of informative technology. PAULING FILE is a comprehensive database for alloy, intermetallic and inorganic binary materials with containing structure, diffraction, constitution, and physical property data published within the last 100 years. The newly released PAULING FILE, Binaries Edition contains about 28,000 structure entries, 27,000 diffraction entries, 43,000 property data and 8,000 constitution entries and 8,000 images of phase diagram. Searching within this huge amount data from various aspects would reveal the “hidden” regularities and correlation and directly provide hints on candidate materials in preliminary stage.

1. はじめに

一般的に材料設計は、「材料に対する探索空間が無限とも言えるほど広い。」という本質的な難しさを持っており、ある種の経験的知識が重要な役割を担っている作業といえる。本来、理想とされる材料設計は、必要とされる材料特性を出発点にし、それを実現する元素の成分（配合）比やそれぞれの元素のミクロな配置（構造）、可能ならその作り方までを導き出すというものであろう。しかし、100あまりの元素種からどれをどのように選び、それをどう並べるかというのですら、ほぼ無限といってよいほどの可能性を有しており、全ての可能性を試すことはまず不可能である。

一方、近年の物質科学の発展により、例えば、元素の種類とその原子配置・構造を与えれば、ある程

度の物質特性は予測可能となってきた。これは、材料設計における順問題の解法が確立されつつある状況と見ることができる。これに対し、上で述べた、期待する特性からそれを実現する元素の構成・構造を導くという状況は、まさに順問題に対する逆問題であり、この点で、理想とされる材料設計は、典型的な逆問題を解く作業となっていると言える。

最近、Franceschetti 等は、特定の電子構造（エネルギーギャップ）を実現するための元素配置を計算により示したが[1]、これは先に述べた物質・材料設計における逆問題へのアプローチの一例である。このような計算科学的手法とは異なり、ここでは、大規模な物質・材料データベース(DB)を用いたデータ主導型の材料設計を考えることにする。物質に関する多量のデータ群から、目的とする特性と関連のあるパラメータの探索・抽出（＝規則性の探索）を試み、そのパラメータを軸とした予測により、新たな材料開発を行おうとするものである。

以下では、まず、我々が用いている物質・材料DB、Pauling File [2, 3]を簡単に紹介する。次に、このDBを用いた規則性探索の事例をいくつか紹介する。最後に、現状の問題点を整理し、今後の物質・材料データシステム開発に対する展望を述べる。

2. Pauling File (Binary Edition)

まず、ここで用いる材料・物質データベース、データシステム、Pauling File を簡単に紹介する。Pauling File は、過去 100 年に亘る文献から物質・材料に関する様々なデータを格納したデータベースと、そのデータを検索・閲覧するためのツール群からなるデータシステムである。2003 年現在、この DB (Binary Edition)には二元系の合金、金属間化合物、無機材料のデータが格納されており、10,000 件以上の異なる相（物質）に対し、約 28,000 件の結晶構造に関するエントリー、27,000 件の回折パターン、8,000 件の二元系相図、さらに 43,000 件の物性値データが格納されている、物質・材料に関しては非常に大規模な DB であるといえる。この Pauling File には、CD-ROM バージョン[2]のものと、ネットワークバージョン[3]の2種類の利用方法があるが、検索等のツール群はそれぞれで異なっている。以下では、主に前者を用い作業を行った。

3. 規則性の探索例（1）：構造安定性マップ

ある元素を複数種選り化合物を作成しようとする際、その化合物が存在する可能性の有無、さらにそれが存在する場合の原子配置に関する予測は、材料設計において最も基本的必要事項と考えられる。ここでは、二元系の中でも最も単純な 1 : 1 の成分組成を持つ AB 化合物に焦点を絞り、規則性の探索を行った例を示す。図 1 は横軸を Mendeleev Number (MN) [4, 5]の比 $MN(A)/MN(B)$ 、縦軸を $MN(A)$ 、 $MN(B)$ の最大値として、DB 中に存在する AB 化合物の構造を（色別に）散布図としてプロットしたもの（構造マップ）である。図中の実線で区切られたそれぞれの領域が、同種の原子配置を持つものとして示されている。（幾つかの例外も見られる。）この構造マップを用いることで、二種の元素を 1:1 で任意に選んだ場合、それから作られる化合物のおよその原子配置を予測することができる。

ここで、注意すべき点が二つある。一つ目は、原子配置の分類として、Atomic Environment Type (局所的な原子配置環境:AET)[6]を用いたことである。通常、物質の結晶構造の分類は、数学的な空間群やそれに対応付けが可能な記号による表現で行われることが多い。しかしこの分類では、頻繁に現れる類

似の結晶構造を全て異種のものとしてしまい、このようなマップを作成しても明確な領域として現れにくい。ここでは、ある原子に注目した AET に着目し、類似の構造を同領域のものとして表現することに成功した。二つ目は、MN に関する演算を行ったことである。MN の比や最大値をマップの軸として採用する物理的根拠は明確ではない。実際、演算を試行錯誤的に何種類か行い、そのなかで最も明確な領域出現が得られたのが、比と最大値によるプロットであった、ということである。

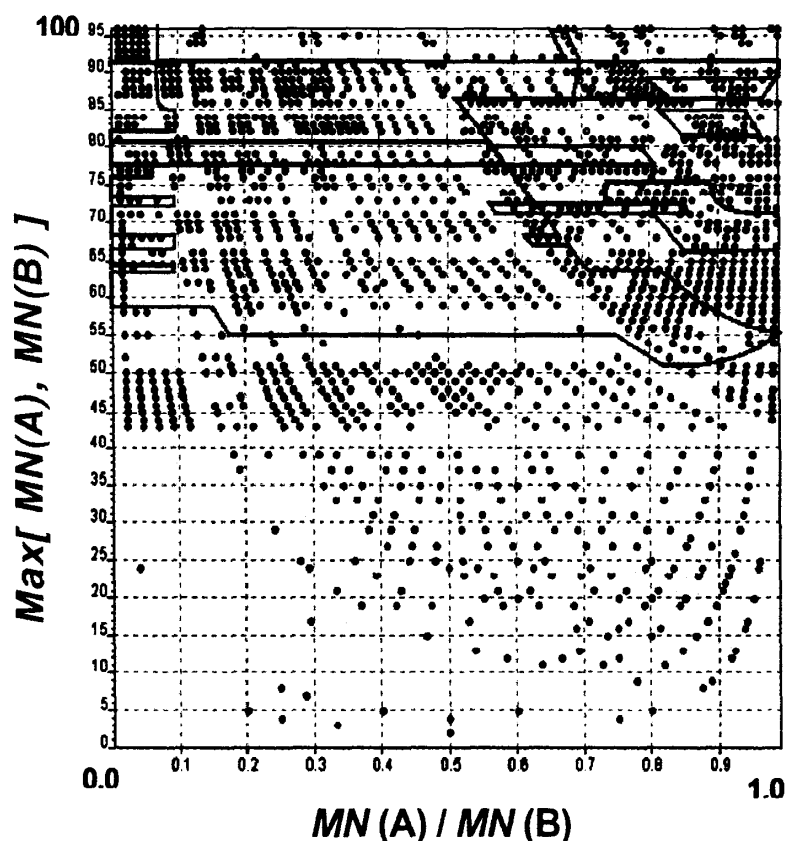


図1. AB化合物の構造マップ。縦軸はA, B 元素それぞれの Mendeleev number(MN) の大きいほうの値。横軸はMNの比。図中の丸は、Pauling File 中に存在しているAB化合物を表し、同種の Atomic Environment Type を持つものが実線で区切られたそれぞれの領域である。この図は、A 元素を中心とした場合である。

4. 規則性の探索例 (2) : 特性値間相関

図2は、Pauling File からある特定の結晶構造を持つ物質の密度と融点のデータを抽出し、その分布を示したものである。直感的には関連性は小さいと思われる密度と融点の間にも、結晶構造 (や他の物理量) で探索範囲を絞ることで、何らかの相関が現れる場合がある。[7] 図2の MgZn_2 型結晶構造の物質群に対しては密度と融点の間に明確な正の相関を見出すことができ、 KHg_2 型では融点はほとんど一定であると言える。DB 中の物性値に関するデータ群に対し、このような解析を進めることにより、目的とする特性値を出発点とした材料設計が、より効果的に行えると考えられる。

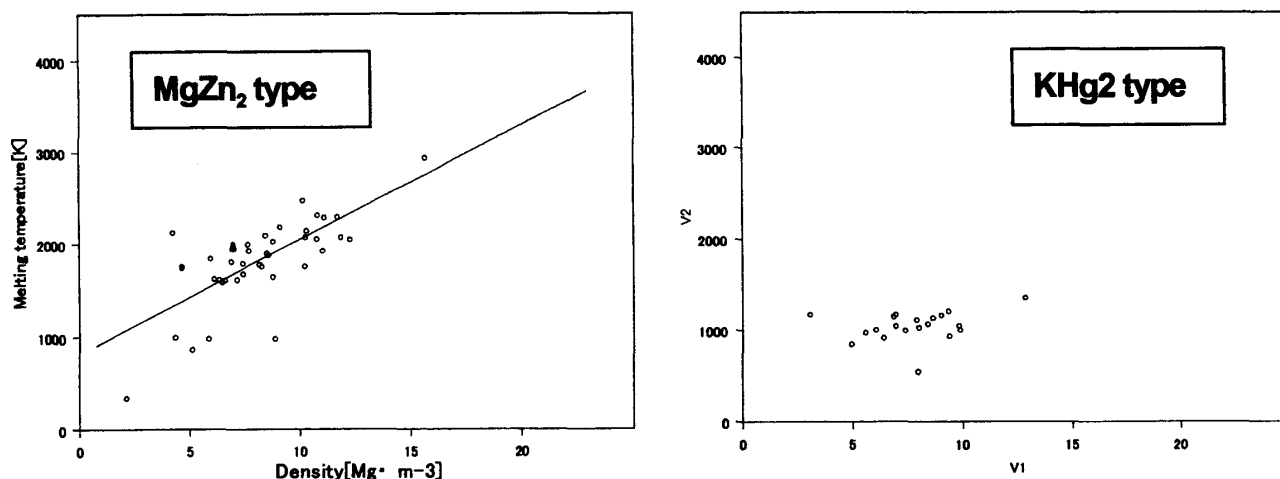


図2. 二種の特値、密度と融点の間の相関図。(左) MgZn_2 型結晶構造を持つ物質群。
(右) KHg_2 型結晶構造を持つ物質群。横軸は密度「 Mg m^{-3} 」、縦軸は融点[K]。

5. おわりに

以上、物質・材料 DB を用い、材料設計のための規則性探索の例を二つほど示した。データの解析や抽出等に不十分な点は見られるが、特値を出発点とした材料設計へ、僅かながらにも近づきつつあると思われる。総じて、特値を出発点とした材料設計という逆問題に対し解を得るには、何らかの仮説設定が不可欠である。現状は、その仮説設定を場当たり的に行っている感が否めず、その作業効率は高くない。もちろん、DB 中のデータのみ固執する必然性はなく、データ群に対し理論的な計算によるアプローチを加えた予測・解析手法の導入はひとつの重要な方向である。一方、はじめに述べた経験的知識の抽出・導出という点では、データ主導の材料設計は依然重要であると考えられる。設定した仮説をできるだけ効率的に検証し得る、半ば自動化された、それでいて汎用性の高い解析ツールの開発が、当面の研究課題であると考えられる。

参考文献

- [1] A. Franceschetti and A. Zunger, *The inverse band-structure problem of finding an atomic configuration with given electronic properties*, Nature, vol. 402, pp.60-63, 1999.
- [2] <http://www.crystalimpact.com/pauling/>, <http://www.mpds.ch/projects.htm>.
- [3] <http://crystdb.nims.go.jp/>.
- [4] D.G. Pettifor, *A chemical scale for crystal-structure maps*, Solid State Communications, vol. 51, pp.31-34, 1984.
- [5] P. Villars, et al., *Binary, ternary and quaternary compound former/nonformer prediction via Mendeleev number*, J. Alloys and Compounds, vol. 317-318, pp.26-38, 2001.
- [6] P. Villars and F. Hulliger, *Structural-stability domains for single-coordination intermetallic phases*, J. Less-Common Metals, vol. 132, pp.289-315, 1987.
- [7] 川口福太郎、材料設計のための物質・材料データベース化学軽量解析、東京大学工学部システム創成学科卒業論文、2003.