

技術論文

材料開発のための機械学習原子間ポテンシャルの構築とその応用

Construction and Application of Machine-Learning Interatomic Potentials for Materials Design

伊 藤 一 真*
Kazuma ITO

抄 録

カーボンニュートラルの実現に向けて鉄鋼材料の高強度化ニーズが高まっている。新規高強度鋼の開発に向けては従来の実験主体のアプローチに加え、原子レベル計算科学手法の活用が有用である。本報では、原子レベル計算科学手法の鉄鋼材料開発への活用に向けた最近の日本製鉄(株)の取り組みとして、1) 高精度かつ転用性に優れる α -Fe の機械学習原子間ポテンシャル (Machine-Learning Interatomic Potential : MLIP) 構築と、2) 高精度 MLIP 構築による合金系の水素拡散係数の非経験的予測に関して報告する。

Abstract

The demand for higher-strength steel materials is increasing in pursuit of carbon neutrality. In addition to conventional experiment-driven approaches, the application of atomistic computational science methods is highly effective for the development of novel high-strength steels. This paper reports Nippon Steel Corporation's recent efforts to apply such methods to steel materials development, including: (1) the construction of a highly accurate and transferable machine-learning interatomic potential (MLIP) for α -Fe, and (2) the non-empirical prediction of hydrogen diffusion coefficients in alloy systems using MLIP.

1. はじめに

鉄鋼材料は、自動車、建築、産業機器等の様々な用途で用いられており、最も重要な素材の一つである。主に Fe, C で構成され、Mn, Si, Al などの合金元素と、P, S などの不純物元素を含む。そしてこれら化学組成に加え、熱加工プロセスを制御することで、所望の材料特性を実現する。また鉄鋼材料は一般に多結晶であり、異なる結晶方位を持つ結晶粒の間の界面、すなわち粒界が存在する。そして、合金元素や不純物元素の多くは、主に Fe との原子半径や化学的結合性の違いに由来して粒界部に濃化する、粒界偏析が生じる。特に、鉄鋼材料では、古くから P, S といった特定の元素が粒界偏析することで粒界での割れを引き起こし、機械的特性や製造性を劣化させる粒界脆化という現象が知られている¹⁾。粒界脆化はこれまでもしばしば鉄鋼材料の構造用材料としての適用の障害になってきた。

2050 年カーボンニュートラルの実現に向けて、様々な用途の鋼材においてさらなる高強度化が求められている²⁾。例えば、自動車用鋼板においては、衝突安全性を担保した

うえでの車体の軽量化を意図して、高強度化ニーズが一層高まっており、新規高強度鋼の開発が進められている³⁾。高強度化は、塑性変形の担い手である転位の結晶粒内でのすべり運動を合金元素や、それによって構成される析出物により阻害することにより実現される。この時、結晶粒内の変形が阻害されることにより、粒界に変形が集中するため、機械的特性が粒界の性質に支配されやすくなる。そのため高強度化が進むにつれて、これまでは問題とならなかった粒界脆化元素 (P, S, Mn, H など) の含有量で粒界脆化が生じてしまう可能性がある⁴⁾。中でも鋼材の製造工程や使用環境から侵入する H による脆化、いわゆる水素脆化の抑制は最重要課題の一つである²⁾。特に粒界脆化による粒界割れは、粒界の大半を占め特定の結晶学的対称性や規則性を持たない複雑な原子構造からなる粒界、いわゆる一般粒界で生じる⁵⁾。したがって、高強度鋼の開発のためには、強度を高めつつも、一般粒界での粒界割れを抑制するような材料設計が求められる。

しかしながら、粒界は数原子層幅からなる微小領域であり、最先端の分析手法をもってしても観察が難しい⁶⁾。さ

* 先端技術研究所 解析科学研究部 主幹研究員 博士(工学) 千葉県富津市新富 20-1 〒293-8511

らに、軽元素である H は分析が特に難しい元素であり、鋼中での振る舞いを実験的に調査することは極めて困難である⁹⁾。したがって、実験的な手法のみで上述した材料設計のための知見を得ることは困難である。

こうした背景の下、密度汎関数理論 (Density Functional Theory: DFT) に基づく第一原理計算 (以降では DFT 計算と記す) や経験的原子間ポテンシャルに基づく分子動力学解析といった原子レベル計算手法によって、多くの研究がなされている^{5,7)}。日本製鉄(株)でも DFT 計算や分子動力学解析を用いて粒界や水素脆化^{8,9)}に関する基礎研究を実施してきた。例えば、DFT 計算によって取り扱い可能で計算コストが比較的小さい対称性のよい粒界 (数百原子規模) における、種々の合金元素の偏析傾向¹⁰⁻¹²⁾ や、粒界強度への影響¹³⁻¹⁵⁾ の調査を行ってきた。また計算コストが小さく、数百万原子規模の大規模な系の解析が可能な経験的原子間ポテンシャルを用いた一般粒界における粒界偏析挙動の調査¹⁶⁻¹⁸⁾ を実施してきた。

これら原子レベル計算手法はメカニズム解明などの基礎研究において有用であるが、鉄鋼材料開発へ活用することは容易ではない。具体的には、DFT 計算は原子構造のエネルギーや原子間に働く力を電子状態計算に基づき非経験的に算出するため、任意の元素を取り扱える利点がある反面、計算コストが高く、取り扱える計算領域は数百原子領域と極めて小さい。そのため、例えば、高強度鋼開発において重要な一般粒界での割れは、計算コストの制約から取り扱うことができない。さらに水素脆化において重要と想定される変形中の粒界近傍での H の拡散など動的な因子を取り扱うことが困難である。一方、経験的原子間ポテンシャルを用いた分子動力学解析は、低い計算コストから一般粒界での割れを取り扱うことができる。しかしながら、一般に経験的原子間ポテンシャルは格子定数、弾性係数、凝集エネルギーといった少数の物性値を再現するよう、比較的単純な関数系の少数のパラメータをフィッティングすることで作成される。したがって、例えば α -Fe の粒界エネルギーや、粒界近傍原子のダイナミクスですら十分な精度で再現できない場合が多い¹⁹⁾。さらに、単純な関数系に由来して柔軟性が乏しく、高精度な三元系以上の原子間ポテンシャルの構築は原理的に困難である。したがって、高強度鋼に含まれる C やその他の元素の影響を十分な精度で考慮できない。

最近になって、原子間ポテンシャル構築に関するブレイクスルーが起こり、機械学習原子間ポテンシャル (Machine-Learning Interatomic Potential: MLIP) が提案され、様々な材料系に適用され、その妥当性が示されている^{20,21)}。MLIP は、DFT 計算で様々な原子構造と、そのエネルギー及び各原子に働く力を計算し、それを学習データにして原子間ポテンシャルを構築するものである。学習データを適切に選定し、MLIP を構築することで、原理的には DFT 計算の精

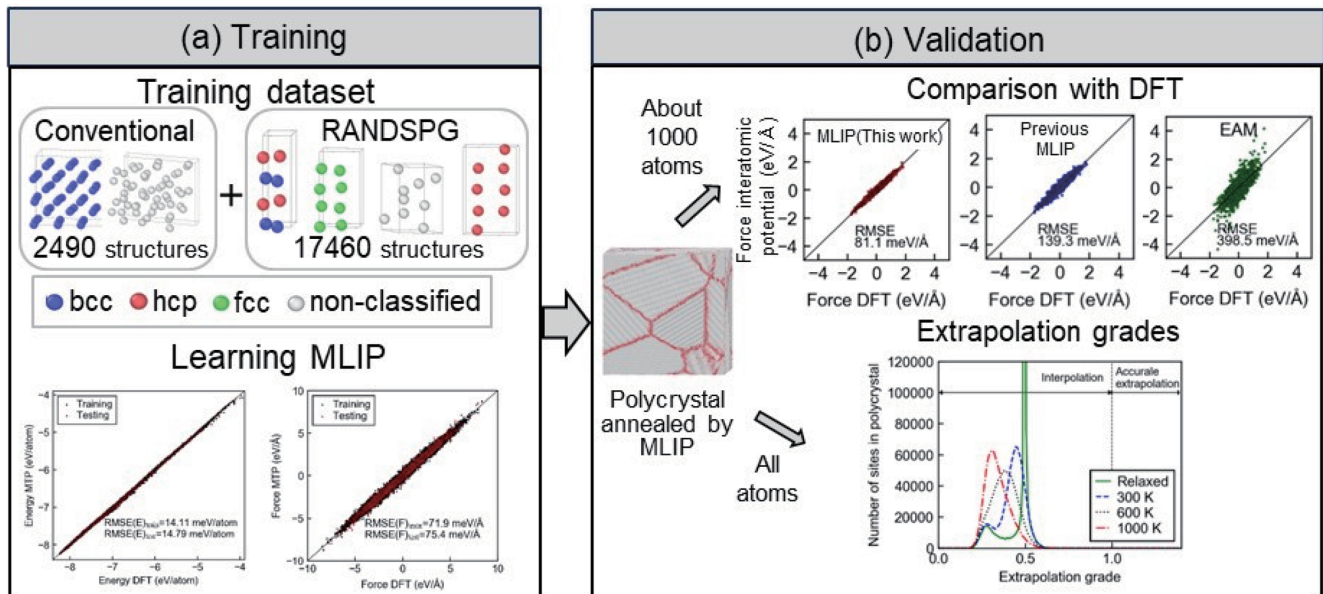
度を維持したまま、多元系かつ大規模な計算が可能になり、高強度鋼の開発のための材料設計に活用できる可能性がある。一方で、MLIP は、物理モデルに基づかないため、学習データに含まれない、いわゆる外挿領域に相当する原子構造では顕著に精度が低下し、時には非物理的な挙動を引き起こすことが指摘されている²²⁾。特に、原子間ポテンシャルにおいては外挿領域に相当するかの判断も容易ではなく、例えば、一般粒界やその変形・破壊挙動等の複雑な原子構造を含む系や、複数の合金元素が構成する多様な元素配置からなる系に対して、高精度に再現可能な MLIP の構築は容易ではない。したがって、MLIP の材料開発への応用に向けては解決すべき課題が多いのが現状である²³⁾。

本報では、原子レベル計算手法を用いた鉄鋼材料開発に向けた日本製鉄での取り組みとして、1) 高精度かつ転用性に優れる α -Fe の MLIP 構築^{24,25)} と、2) 高精度 MLIP 構築による合金系の水素拡散係数の非経験的予測²⁶⁾ に関して報告する。

2. 高精度かつ転用性に優れる α -Fe の MLIP 構築^{24,25)}

従来の α -Fe の MLIP 構築においては、 α -Fe バルクに加え、DFT 計算が実行可能な数百原子以下で表現される転位や、対称性の高い粒界、低指数表面等の格子欠陥やそれらを乱した構造を学習データに含め汎用性の高い MLIP の構築が試みられた²⁷⁾。一方で、高強度鋼の開発において重要な一般粒界は、特定の結晶学的対称性を持たず、複雑かつ多様な原子構造からなるため、従来の MLIP 構築方法では十分な精度が得られないと想定された。

そこで、一般粒界を含む任意の粒界の粒界エネルギー、原子構造、ダイナミクスに対し DFT 計算の精度を有する機械学習ポテンシャルの構築に取り組んだ²⁵⁾。図 1 (a) に示すように、学習データセットとして、従来の α -Fe のバルク構造に関する学習データセットに加え、結晶空間群に基づき機械的かつ多量に生成した多様な原子構造からなる RANDSPG と呼ばれる学習データセット²⁸⁾ を追加したものをを用いた。さらに MLIP の形式として、精度と計算コストのバランスに優れるモーメントテンソルポテンシャル (Moment Tensor Potential: MTP)²⁹⁾ を採用した。得られた MLIP の一般粒界に対する計算精度は図 1 (b) に示すように、構築した MLIP を用いた分子動力学計算で緩和して得られたナノ多結晶から粒界近傍を切り出したセルに対する DFT 計算との直接比較によって評価された。比較として先行研究の MLIP と経験的原子間ポテンシャルの精度も評価した。しかしながら、DFT 計算は計算コストが高いため、DFT との直接比較による精度評価は一部の粒界構造にしか適用できない。そこで能動学習手法に基づいた局所原子環境の外挿グレード³⁰⁾ を用いた評価も実施した。外挿グレードは構築した MLIP を用いて評価できるものであり、MLIP 構築に用いた学習データセットにおいて、任意の原子構造

図1 α -Feの機械学習原子間ポテンシャル (MLIP) の構築²⁵⁾

(a) MLIP 構築に用いた学習データセット MLIP のフィッティング結果, (b) 構築した MTP の検証方法

第一原理計算 (DFT) で計算された一般粒界近傍の原子に働く力に対する各原子間ポテンシャルの精度。比較として経験的原子間ポテンシャル (EAM の表記) の精度も示している。

Construction of a machine-learning interatomic potential (MLIP) for α -Fe²⁵⁾

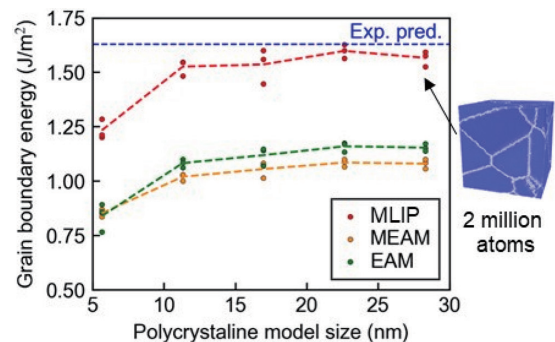
(a) Training dataset used for MLIP construction and fitting results, (b) Validation procedure for the constructed MLIP

Accuracy of each interatomic potential in reproducing the forces on atoms near general grain boundaries calculated by DFT calculations. For comparison, the accuracy of an empirical interatomic potential (denoted as EAM) is also shown.

がその MLIP の内挿域に相当するものであるか、外挿域に相当するものであるかを数値的に評価するものである³⁰⁾。したがって、MLIP を用いた評価のため、DFT による検証よりも計算コストが著しく小さく、ナノ多結晶に含まれるすべての原子についての精度評価が可能である。

DFT との直接比較による精度評価の結果、これまで粒界に対し最も精度が高いとされていた先行研究の MLIP²⁷⁾では、一般粒界近傍原子に対する DFT 計算との誤差が α -Fe バルクと比較し、二倍程度の $139.3 \text{ meV}/\text{\AA}$ となった。したがって、一般粒界は先行研究の MLIP において外挿領域に相当するものである可能性がある。これに対し、構築した MLIP は一般粒界近傍原子に対する誤差が、 α -Fe バルクに対する誤差と同等レベルの $81.1 \text{ meV}/\text{\AA}$ と極めて優れた精度を示すことがわかった²⁵⁾。さらに外挿グレードによる評価では、ナノ多結晶に含まれるすべての原子について、外挿グレードは 1 未満であり、いずれも高精度が期待される構築した MLIP における内挿域であると判断された³¹⁾ (図 1 (b) 参照)。

さらに構築した MLIP を用いた大規模分子動力学解析により、重要な物性であるが直接的な実験での決定が困難な α -Fe 多結晶粒界の平均粒界エネルギーを算出した。その結果、得られた平均粒界エネルギーは $1.57 \text{ J}/\text{m}^2$ であり、実験結果に基づいて最近推定された α -Fe の一般粒界の粒界エネルギー³¹⁾ とよく一致した (図 2 参照)。以上のように、構築した MLIP は複雑かつ多様な原子構造からなる一般粒界

図2 構築した MLIP を用いて計算した多結晶の平均粒界エネルギーと実験値³¹⁾の比較

用いたナノ多結晶の原子構造モデルも示している。比較として、従来の原子間ポテンシャル (EAM, MEAM と表記) を用いて得られた結果も示す。

Comparison between the average grain boundary energy of polycrystals calculated using the constructed MLIP and the experimental values³¹⁾

The atomic structure model of the nanocrystalline polycrystal used in the calculations is also shown. For comparison, results obtained using conventional interatomic potentials (denoted as EAM and MEAM) are also presented.

に対しても極めて高精度であることがわかった。

さらに構築した MLIP のナノ多結晶の変形・破壊挙動に対する計算精度を検証した²⁴⁾。構築した MLIP を用いた分子動力学計算でナノ多結晶の単軸引張計算を実施した。そして単軸引張過程に生成された原子構造中に含まれる約 66 万原子について網羅的に外挿グレードを評価した。単軸引張過程における原子構造としては、変形した一般粒界、

粒界からの転位や変形双晶といった格子欠陥の核生成、転位のすべり運動や変形双晶の成長、亀裂の発生やその成長等が観察された(図3(a))。したがって、これらに関連した複雑かつ多様な原子構造が含まれる。外挿グレードは2以上であると、学習が不十分な構造と判断されるため、図3(b)にはひずみ量と外挿グレードが2以上と判断された原子の個数をプロットした。その結果、外挿グレードが2以上の原子は各ひずみにおいて約66万原子のうち最大でも数個しか存在しない。これら原子についてはDFTとの直

接比較によってMLIPの計算精度を評価したが、誤差は許容レベルであった。以上の結果から、構築した α -FeのMLIPは一般粒界に加え、その変形・破壊挙動に対しても高精度であり、様々な用途に活用可能な転用性に優れるものであることがわかった。

そこで構築したMLIPを用いた大規模分子動力学解析でナノ多結晶の変形・破壊挙動の結晶粒径依存性を明らかにした(図4)²⁴⁾。ここでは、富岳を用いて約500万原子からなるナノ多結晶の分子動力学計算を実施しており、過去金

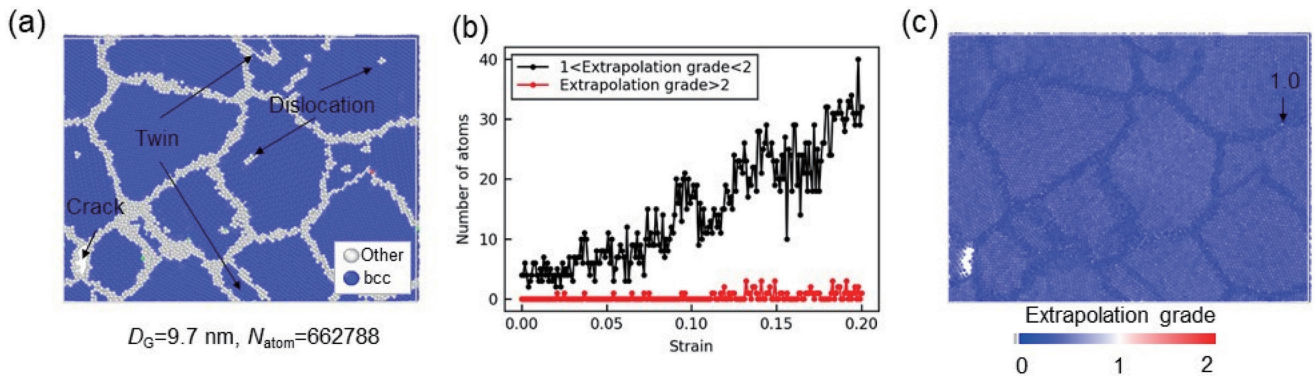


図3 構築したMLIPのナノ多結晶の変形・破壊挙動に対する計算精度²⁴⁾

(a) 20%ひずみ時点での原子構造, (b) 外挿グレードのひずみ依存性。外挿グレードが2を超える原子は学習不足の原子構造と判断される, (c) 20%ひずみ時点の各原子の外挿グレードのカラーマップ

Computational accuracy of the constructed MLIP in predicting the deformation and fracture behavior of nanocrystalline polycrystals²⁴⁾

(a) Atomic structure at 20% strain, (b) Strain dependence of the extrapolation grade, where atoms with an extrapolation grade exceeding 2 are considered to represent insufficiently sampled atomic configurations. (c) Color map of the extrapolation grade for each atom at 20% strain

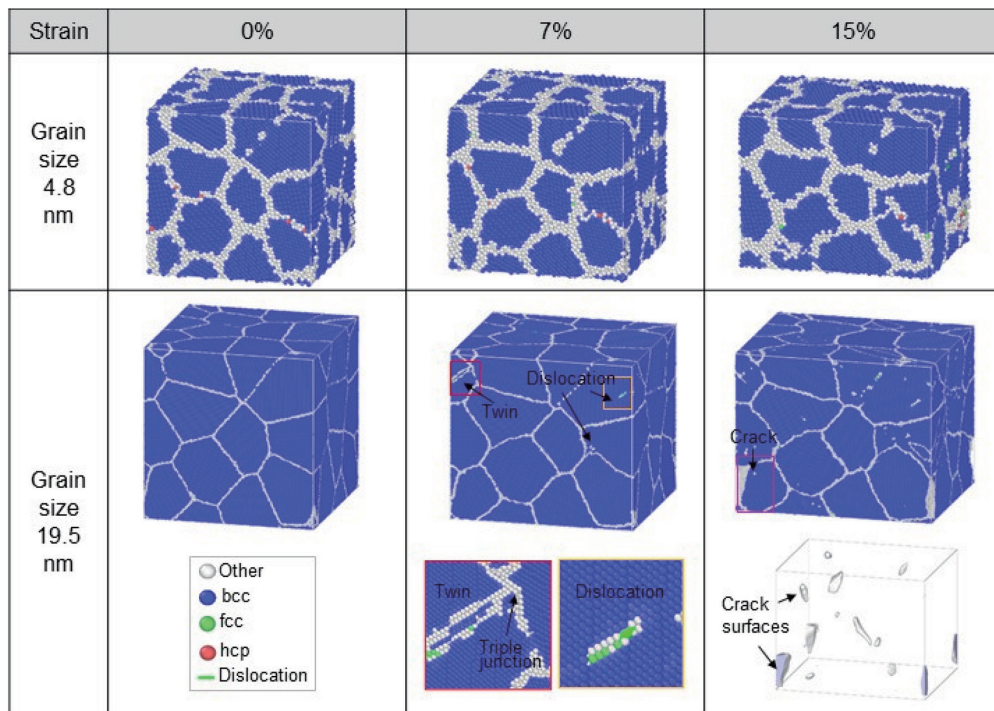


図4 平均結晶粒径が4.8nm及び19.5nmのナノ多結晶のひずみの増加に応じた原子構造の変化と亀裂の形態²⁴⁾
各原子の結晶構造を色で示す。

Changes in atomic structure and crack morphology of nanocrystalline polycrystals with average grain sizes of 4.8nm and 19.5nm under increasing strain²⁴⁾

The crystal structure of each atom is indicated by color.

属材料に対する MLIP の計算として我々の知る限り最大規模の解析である。なおここで構築した MLIP のように一般粒界やその変形・破壊挙動に対して優れた精度を持つ MLIP の構築は、他の金属系においても前例がない²³⁾。そして今回用いた MLIP 構築手法は他の金属材料にも適用可能である。したがって、本検討は高精度かつ転用性に優れた MLIP 構築方法を提案するものとしても重要である。

以上のように、適切に学習データセットを取得し、MLIP を構築することで、様々な用途に適用可能な高精度な MLIP が得られ、これにより従来不可能であった高精度かつ大規模な解析が実行可能になる。

3. 高精度 MLIP 構築による合金系の水素拡散係数の非経験的予測²⁶⁾

前述したとおり、鋼材開発において水素脆化の解決は重要な課題である。水素は使用環境において鋼材表面から侵入し、鋼中を高速に拡散し、粒界等の格子欠陥に偏析し、水素脆化を引き起こす²⁾。そのため水素環境下で使用される鋼材の材料設計において、水素の拡散挙動及びそれに与える合金元素の影響を理解することは極めて重要である³²⁾。しかしながら、これを実験的に調査することは多大な時間を要する。そこで計算科学を活用した水素拡散に与える合金元素の影響の予測について検討した。

ここでは水素ガス環境下で使用されるオーステナイト鋼の単純系として、同じ fcc 構造を持ち、水素拡散に関する実験データが存在する Ni-Mn 合金における水素拡散の予測に取り組んだ。純 Ni 中の水素拡散に関しては、DFT に整合するようにパラメータを調整した経験的原子間ポテンシャルを用いた分子動力学計算で、水素拡散係数の実験結果を定量的に再現できることが報告されていた³³⁾。一方、磁性がある Ni-Mn-H 三元系の高精度な経験的原子間ポテンシャルを構築することは困難である¹⁹⁾。また MLIP を用いた検討としても、Ni-Mn 合金は、Ni 中に Mn がランダムな配置で存在するランダム合金であると想定され⁹⁾、そこに含まれる多様な原子環境下での水素拡散挙動を再現可能な三元系 MLIP の構築例は存在しなかった。

そこで、Ni-Mn-H 三元系の MLIP を新たに構築し、それを用いた分子動力学計算により、ランダム合金中の水素拡散係数を非経験的に予測し、実験結果との比較によりその妥当性を検証した。MLIP 構築においては、MLIP 構築でよく用いられている原子間に働く力の不確かさ³⁴⁾に基づく能動学習手法に、原子構造の特徴量に基づくスクリーニングプロセスを追加したより新たな能動学習手法³⁵⁾を適用した。この手法により、合金中の水素拡散挙動の解析で考慮すべき多様な原子環境を効率的にサンプリングし、高精度な MLIP の構築を可能とした。

詳細は割愛するが、得られた MLIP は水素拡散係数の高精度予測に必要な、Ni-Mn 合金の格子定数や、Ni-Mn 合金

における水素の固溶エネルギー、拡散の活性化エネルギー等に関し、DFT 計算をよく再現した。得られた MLIP を用いて図 5 に示すような、ランダム合金の原子構造モデルを構築し、そこに水素原子を配置し、分子動力学計算によって、700–900 K の範囲で等温でアニールした。アニール中の水素の平均二乗変位を計算し、その結果をアインシュタインの関係式でフィッティングし、各温度の水素の拡散係数を求めた。各温度の拡散係数のアレニウスプロットから、水素拡散係数の前因子と活性化エネルギーを算出した。

図 6 には、Ni-Mn 合金における水素拡散係数の前因子と活性化エネルギーの Mn 添加量の関係について、計算結果と実験結果を併せて示した。純 Ni については Omura ら³²⁾、Katz ら³⁶⁾、及び Völkl ら³⁷⁾ が報告した実験結果を示した。純 Ni における実験データのばらつきを考慮すると、計算結果は実験結果を極めて良い精度で再現できているといえる。特に、Mn 添加量増加による活性化エネルギー及び前因子の非線形な振る舞いをよく再現した。なお計算結果の活性化エネルギーは系統的に実験値と比較し小さな値を示しているが、これは分子動力学計算で考慮していない量子効果によるものである³⁸⁾。

さらに計算結果に基づき Mn の作用を詳細に解析したところ、Mn 添加による水素拡散への影響として、拡散障壁

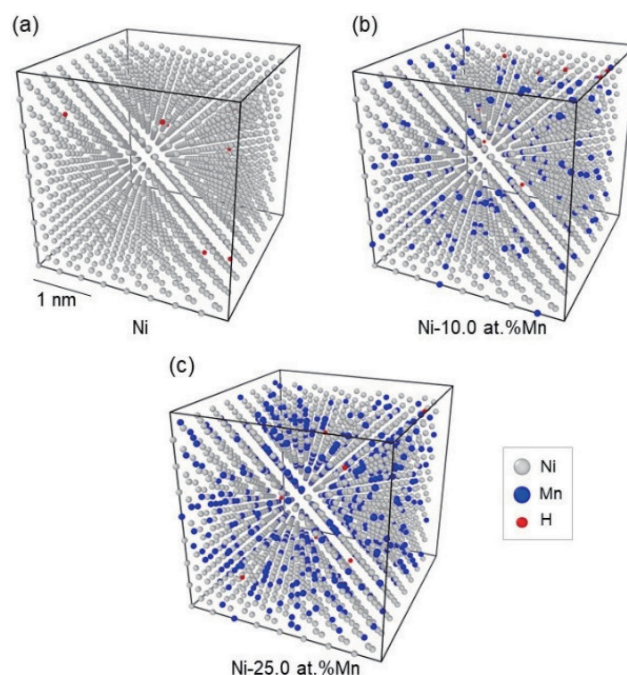


図 5 水素拡散係数予測のための分子動力学計算に用いた原子構造²⁶⁾

ここでは一例として、Ni, Ni-10.0 at.% Mn, Ni-25.0 at.% Mn について示す。灰色、青色、赤色の球はそれぞれ Ni, Mn, H 原子を示す。

Atomic structures used in molecular dynamics simulations for predicting hydrogen diffusion coefficients²⁶⁾

As examples, results for Ni, Ni-10.0 at.% Mn, and Ni-25.0 at.% Mn are shown. Gray, blue, and red spheres represent Ni, Mn, and H atoms, respectively.

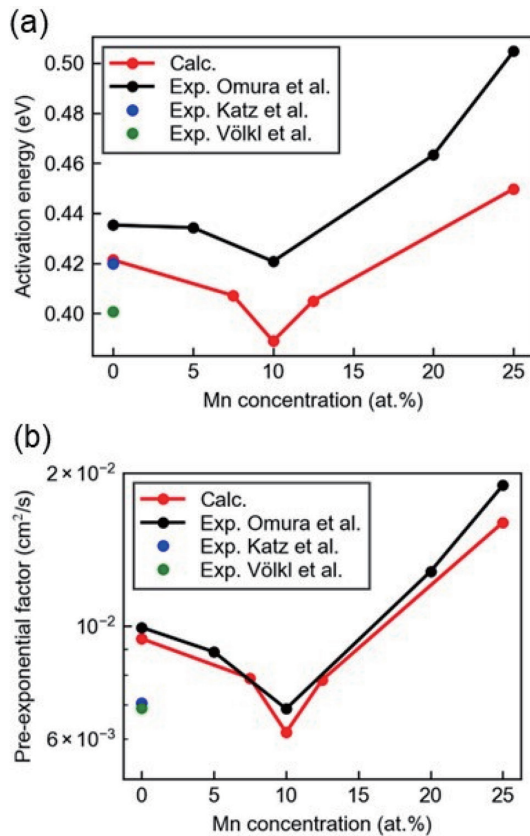


図6 Ni-Mn合金中の水素拡散係数の計算結果と実験値の比較²⁶⁾

Mn添加量がNi中の水素拡散の(a)活性化エネルギー、(b)前因子に与える影響。比較としてOmuraら³²⁾、Katzら³⁶⁾、及びVölklら³⁷⁾が報告した実験結果を示した。

Comparison of calculated hydrogen diffusion coefficients in Ni-Mn alloys with experimental values²⁶⁾

Effect of Mn addition on hydrogen diffusion in Ni: (a) activation energy and (b) pre-exponential factor. For comparison, experimental results reported by Omura et al.³²⁾, Katz et al.³⁶⁾, and Völkl et al.³⁷⁾ are also shown.

位置でのMnと水素との直接的な相互作用による活性化エネルギーの上昇と格子定数の膨張による活性化エネルギーの低下という、相反する二つの効果が存在することを示した。これらの効果のうち、Mn添加量に応じて優位に働く機構が変化することで、水素拡散係数の非線形な挙動が生じることが明らかとなった。

以上のように、高精度なMLIP構築とそれを用いた分子動力学計算によって、合金元素が水素拡散係数に与える影響を実験を実施することなしに調査することが可能となる。

4. おわりに

MLIPの出現により、DFT計算の精度で大規模な解析が可能になってきた。最近では、ハイエントロピー合金のような多元系においてもMLIPが構築されている²¹⁾。一方、例えば複雑な原子構造を含む一般粒界やその変形挙動に対する精度は十分に担保されていないのが現状である²⁰⁾。

現在は、富岳産業課題にて、Fe多元系のMLIP構築に

取り組んでいる。Feは磁性を含む元素であるためMLIP構築は他の金属と比較すると難しいが、最近では一般粒界での変形・破壊及びそれに与える水素の影響を高精度に取り扱い可能なFe-H二元系のMLIP構築に成功している³⁹⁾。

この技術領域の発展は著しく、近い将来、多元系かつ大規模な系の高精度な解析が可能になると考える。その際には、鉄鋼材料の開発においても原子レベル計算手法が必要不可欠なものになっているはずである。

謝 辞

本研究の一部は、スーパーコンピュータ“富岳”の計算資源の提供を受け、実施しました(課題番号:hp230272, hp240280)。本研究の一部は、一般財団法人高度情報科学技術研究機構が実施する伴走型利用支援(支援利用番号:23Z-03, 23Z-05, 24H1-01, 支援内容:アプリケーションの移植, ジョブ投入, 実行性能チューニング, 等)を受けました。

参考文献

- 1) Briant, C.L., Banerji, S.K.: *Int. Mater. Rev.* 23, 164-199 (1978)
- 2) Yu, H., Díaz, A., Lu, X., Sun, B., Ding, Y., Koyama, M., He, J., Zhou, X., Oudriss, A., Feaugas, X., Zhang, Z.: *Chem. Rev.* 124, 6271-6392 (2024)
- 3) 上西朗弘: *日本製鉄技報.* (412), 8-13 (2019)
- 4) Takayama, S., Ogura, T., Fu, S.-C., McMahon, C.J.: *Metall. Trans. A.* 11, 1513-1530 (1980)
- 5) Lejček, P., Šob, M., Paidar, V.: *Prog. Mater. Sci.* 87, 83-139 (2017)
- 6) Chen, Y.-S., Liu, P.-Y., Niu, R., Devaraj, A., Yen, H.-W., Marceau, R.K.W., Cairney, J.M.: *Microsc. Microanal.* 29, 1-15 (2023)
- 7) Dong, L., Wang, S., Wu, G., Gao, J., Zhou, X., Wu, H.-H., Mao, X.: *Int. J. Hydrog. Energy.* 47, 20288-20309 (2022)
- 8) Taniguchi, S., Kameya, M., Kobayashi, Y., Ito, K., Yamasaki, S.: *ISIJ Int.* 64, 1057-1066 (2024)
- 9) Ito, K., Yamamura, M., Omura, T., Yamabe, J., Matsunaga, H.: *Int. J. Hydrog. Energy.* 50, 148-164 (2024)
- 10) Ito, K., Sawada, H.: *Comput. Mater. Sci.* 210, 111050 (2022)
- 11) Ito, K.: *Mater. Today Commun.* 38, 107849 (2024)
- 12) Ito, K., Tanaka, Y., Tsutsui, K., Omura, T.: *Comput. Mater. Sci.* 218, 111951 (2023)
- 13) Ito, K., Tanaka, Y., Mitsunobu, T., Kohtake, T., Tsutsui, K., Sawada, H.: *Phys. Rev. Mater.* 6, 053604 (2022)
- 14) Ito, K., Mitsunobu, T., Ishiguro, Y., Kohigashi, Y., Tsutsui, K.: *Phys. Rev. Mater.* 6, 093603 (2022)
- 15) Ito, K., Tabata, S.-i.: *Mater. Today Commun.* 46, 112890 (2025)
- 16) Ito, K., Sawada, H., Ogata, S.: *Mater. Trans.* 62, 575-581 (2021)
- 17) Ito, K., Tanaka, Y., Sawada, H.: *Mater. Trans.* 63, 269-277 (2022)
- 18) Ito, K., Tanaka, Y., Tsutsui, K., Sawada, H.: *Comput. Mater. Sci.* 225, 112196 (2023)

- 19) Shiihara, Y., Kanazawa, R., Matsunaka, D., Lobzenko, I., Tsuru, T., Kohyama, M., Mori, H.: *Scr. Mater.* 207, 114268 (2022)
- 20) Mortazavi, B.: *Adv. Energy Mater.* 15, 2403876 (2025)
- 21) Wang, F., Wu, H.-H., Dong, L., Pan, G., Zhou, X., Wang, S., Guo, R., Wu, G., Gao, J., Dai, F.-Z., Mao, X.: *J. Mater. Sci. Technol.* 165, 49-65 (2023)
- 22) Szlachta, W.J., Bartók, A.P., Csányi, G.: *Phys. Rev. B.* 90, 104108 (2014)
- 23) Mortazavi, B., Zhuang, X., Rabczuk, T., Shapeev, A.V.: *Mater. Horiz.* 10, 1956-1968 (2023)
- 24) Ito, K., Yokoi, T., Hyodo, K., Mori, H.: *Int. J. Mech. Sci.* 291-292, 110132 (2025)
- 25) Ito, K., Yokoi, T., Hyodo, K., Mori, H.: *Npj Comput. Mater.* 10, 255 (2024)
- 26) Ito, K., Matsumura, N., Iwasaki, Y., Sakai, Y., Yamamura, M., Omura, T., Yamabe, J., Matsunaga, H.: *Commun. Mater. in press* (2025)
- 27) Meng, F.-S., Du, J.-P., Shinzato, S., Mori, H., Yu, P., Matsubara, K., Ishikawa, N., Ogata, S.: *Phys. Rev. Mater.* 5, 113606 (2021)
- 28) Poul, M., Huber, L., Bitzek, E., Neugebauer, J.: *Phys. Rev. B.* 107, 104103 (2023)
- 29) Shapeev, A.V.: *Multiscale Modeling & Simulation.* 14, 1153-1173 (2016)
- 30) Podryabinkin, E., Garifullin, K., Shapeev, A., Novikov, I.: *J. Chem. Phys.* 159, 084112 (2023)
- 31) Li, C., Lu, S., Divinski, S., Vitos, L.: *Acta Mater.* 255, 119074 (2023)
- 32) Omura, T., Yamamura, M., Ito, K., Yamabe, J., Matsunaga, H.: *ISIJ Int.* 65, 1402-1409 (2025)
- 33) Torres, E., Pencer, J., Radford, D.D.: *Comput. Mater. Sci.* 152, 374-380 (2018)
- 34) Zhang, Y., Wang, H., Chen, W., Zeng, J., Zhang, L., Wang, H., Weinan, E.W.: *Comput. Phys. Commun.* 253, 107206 (2020)
- 35) Matsumura, N., Yoshimoto, Y., Yamazaki, T., Amano, T., Noda, T., Ebata, N., Kasano, T., Sakai, Y.: *J. Chem. Theory Comput.* 21, 3832-3846 (2025)
- 36) Katz, L., Guinan, M., Borg, R.J.: *Phys. Rev. B.* 4, 330-341 (1971)
- 37) Völkl, J., Alefeld, G., in *Hydrogen in Metals I: Basic Properties*, eds. G. Alefeld and J. Völkl, Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1978, pp. 321-348
- 38) Wimmer, E., Wolf, W., Sticht, J., Saxe, P., Geller, C.B., Najafabadi, R., Young, G.A.: *Phys. Rev. B.* 77, 134305 (2008)
- 39) Ito, K., Otaki, T., Hyodo, K., Yokoi, T., Mori, H.: *Research Square*. doi:10.21203/rs.3.rs-7113724/v1 (2025)



伊藤一真 Kazuma ITO
 先端技術研究所 解析科学研究部
 主幹研究員 博士(工学)
 千葉県富津市新富20-1 〒293-8511