# スーパーコンピュータ「富岳」による大規模物性 データの自動創出

- 不規則系磁性材料におけるビッグデータの実現へ-

東京大学物性研究所、データ統合型材料物性研究部門 福島 鉄也、赤井 久純物質・材料研究機構(NIMS)、統合型材料開発・情報基盤部門 知京 豊裕、木野 日織

# はじめに

理論、実験に問わずマテリアル研究の目的は新奇物理現 象・物性機能の発見、そしてそれらの微視的機構を解明す ることである。微視的機構の定量化が可能であるならば、 自由に物理現象を制御し、望みの機能性物質を設計(デザ イン)できることも期待される。しかし、室温をはるかに 超える転移温度を持つ超伝導体、レアアースを使用しない 超強力な永久磁石等が未だ存在しないことから推測できる ように、物質設計(マテリアルデザイン)は容易ではない。 その理由は、マテリアルデザインは物質が与えられ物理現 象を解明する一般的な研究(順問題)とは異なり、膨大な自 由度の中から目的とする機能を発現する最適なマテリアル の構成原子と構造配置を見つける逆問題だからである。

従来の試行錯誤的なトライアル・アンド・エラーによる 材料探索手法を用いて、このような逆問題を解くのは、時 間・人的コストの観点から困難を極める。それゆえ、コン ピュータ上で、経験的パラメーターを用いず材料特性を定 量的に評価可能な第一原理電子状態計算は、高効率にマテ リアルデザインを実施するツールとして期待されてきた。 しかし、試料合成技術の発展に伴い、高・多機能性実現の ため対象系は単純な化学量論的化合物だけでなく、多元合 金や複合構造材料、さらには非平衡成長で得られる準安定 材料へ広がっている。そのため、汎用の第一原理計算コー ドを単純に使用するだけでは、この果てしなく広がる材料 空間には太刀打ちできない。

そこで、データ科学が登場する。ICT、AI、自動化の発 展に伴い、あらゆる分野でデジタルトランスフォーメー ション(DX)が推進されており、それはマテリアルの分野 においても例外ではない。要するに、蓄積されたマテリア ルデータに、データ科学を適用して、新たな知識を獲得し、 物性支配因子の推定、または材料探索を加速させようとい うのである。近年、「python」や「R」におけるデータ科 学用ライブラリの充実は目を見張るものがあり、誰でも データ駆動型マテリアルデザインを実行できる。しかし、 データ科学により革新的な無機材料が見つかるまでは至っ ておらず、バイオ・ケモインフォマティクスの分野に比べ て遅れをとっているのが現状である。その主たる原因は、 高品質の無機材料のデータ数が少ないため、効率よくデー タ科学の手法を適用できていない点が挙げられる(スモー ルデータ問題)。この問題を克服するため、海外において は、第一原理計算によって創出されたマテリアルデータを 蓄積し、さらに利活用を可能にするリポジトリの構築・運 営が積極的に行われている。既に、NOMAD[1]、 OQMD[2]、AFLOW[3]、Materials Project[4]等のリポジ トリが世界的にスタンダードになっており、ユーザーは API機能を用いて、自由にマテリアルデータを獲得し、ス クリーニングを実行することができる。残念ながら、我が 国では、このようなリポジトリは存在せず、データ駆動型

マテリアルデザインは海外に比べ遅れているのは否めない。

我が国の国際競争力を向上するためには、これらのリポ ジトリと差別化を図り、世界に先んじて材料開発にとって 利用価値の高い高品質のデータを創出する必要がある。幸 い、上記に挙げた海外のデータリポジトリは単体物質や単 純化合物をターゲットにしており、含まれる物理量も電子 状態や構造安定性に関わる情報に限られる。そこで、我々 は、スーパーコンピュータ「富岳」と、独自の第一原理計 算コードである「AkaiKKR」[5]を用いることにより、約 15万個の磁性多元合金から成る広大な材料空間を自動網 羅的に探索することで、電子状態、磁化、強磁性転移温度、 電気抵抗率を含むユニークで利用価値の高い大規模物性 データベースの構築を試みた。また、データベースに頻出 パターンマイニング等のデータ科学手法を適用することに より、磁気特性を決定する支配因子や電気抵抗率の法則性 の発見にも成功した。[6]

#### 結果

# <u>スーパーコンピュータ「富岳」と「AkaiKKR」による自</u> 動網羅計算

スーパーコンピュータ「富岳」は、2021年11月に4部 門で4期連続の世界1位を獲得した。「富岳」は基礎科学、 気象、防災、医療等の幅広い分野で用いられており、産業 分野においても画期的な成果を期待されている。我々が参 加している「富岳」成果創出加速プログラム(大規模計算 とデータ駆動手法による高性能永久磁石の開発)では、こ のような要請に応えるため、基盤的シミュレーション手法 の開発、そして不規則系磁性材料を対象とした大規模物性 データベースの構築を通じ、高性能磁性材料の開発を目指 している。

物性研究所は長年にわたって、国産の第一原理計算コー ド「AkaiKKR」の開発を行ってきた。「AkaiKKR」は全 電子計算手法の一つである Korringa-Kohn-Rosotker(KKR)グリーン関数法に基づいた電子状態計算 ソフトウェアである。最大の特徴はコヒーレントポテン シャル近似(CPA)と組み合わせることにより、スーパー セル法を用いることなく不規則系の電子状態を高精度かつ 高速度に計算可能な点である。CPA はシングルサイト近 似の一種であり完全ランダムな配置を仮定するが、非局所 CPA など短距離秩序を記述する手法も存在する。また、

Kohn-Sham 方程式に対応する1電子グリーン関数が直接 求まるため、線型応答理論との整合性がよく多様な物理量 を計算できる。Force theorem に立脚した Liechtenstein 公式を用いると磁気的相互作用及び強磁性転移温度、

Kubo-Greenwood の公式と組み合わせることにより電気 抵抗率の定量的評価が可能である。さらに、全電子計算で あるため擬ポテンシャルを必要とせず、transferabilityの 問題を気にせず自動網羅計算を実行できる。

図 1(左)は、今回のターゲットとなる材料空間を表して いる。金属元素を中心に 38 元素の中から 4 元素を選び FCC、BCC 構造を有する 4 元高エントロピー合金を構築 する(合計約15万個)。図では MnFePdW が例として示さ れている。この材料空間に対して全自動網羅計算を実行し、 磁化、強磁性転移温度、電気抵抗率のマテリアルデータを 蓄積する。計算の収束性制御などは全自動であり、「富岳」 と「AkaiKKR」を利用することで1週間以内に15万個か ら成る材料空間を探索し尽くすことが可能である。図 1(右)は全自動網羅計算によって得られたデータ(BCC 構 造のみ)を、各物理量を軸に取った3次元散布図で示した ものであり、各点が一つの系に対応している。磁気特性が 良い材料(FeCoXY、FeCoNiX、MnFeXY、MnFeCoX、 MnFeNiX: X、Y は非磁性元素)は色分けされており、特 にオレンジ色で囲まれている領域は、高磁化・高強磁性転 移温度・高電気抵抗率を有する新規軟磁性材料の候補物質 を示している。

# <u>頻出パターンマイニングを用いた4元磁性高エントロピー</u> <u>合金の特徴量解析</u>

データ科学手法を構築したマテリアルデータベースに適 用することで、物性支配因子に関する知識を獲得すること ができる。今回は、磁化と強磁性転移温度の磁気特性に着 目し、これらを特徴づける量を抽出するため、頻出パター ンマイニングを用いて区画特徴特定を行った。頻出パター ンマイニングは大量のデータから頻出する特徴、規則性、 パターンを抽出する機械学習の手法である。この手法の有 名な例として「ビールとおむつ」というものがある。国外 のあるスーパーマーケットがバスケットデータ(トランザク ションデータ)をマイニングしたところ、「ビールとおむつ」 を同時に購入する男性客が多いことが判明した。そこで、 「ビールとおむつ」を近くに陳列すると売り上げが向上し



図 1:(左)面心立方格子(FCC)と体心立方格子(BCC)を有する 4 元高エントロピー合金(HEA)から成る材料空間 (合計 147,630 個)。例として Mn、Fe、Pd、W が記されている。(右)「富岳」と「AkaiKKR」による自動網羅計 算の結果(BCC の場合のみ)。各軸は磁化、強磁性転移温度、残留抵抗に対応する。オレンジ色の領域は高性能軟 磁性材料として有望な系である。

たという話である(単なる都市伝説とも言われている)。理 由は、母親が「おむつ」を持つのはかさばるので、父親に 購入を依頼するとついでに「ビール」を購入するというこ とらしい。マテリアル研究に、このような頻出パターンマ イニングが適用された例はほとんどない、その原因はマテ リアルデータの少なさにあったと考えられる。

図 2(a)は、BCC 構造を有する四元ハイエントロピー合 金の、磁化と強磁性転移温度の2次元マップである。高磁 化・高強磁性転移温度を有する系は色分けされている。ま ず、このマップをデジタイズして区画分割を行う。図2(b) では、10×10の区画に分割されており、カラーバーは区 画内に含まれる系の数を示している。次に各区画に対して トランザクションデータベースを各系のレコードから構築 する。レコードを構成するアイテムを次のように定義する。

- 1. 四元高エントロピー合金の構成元素: element1、 element2、element3、element4。
- 2. デジタイズした区画の ID: C10 等(図 2(b)を参照)。
- 「AkaiKKR」によって得られた構成元素のマフィンティン球内の局所磁気モーメントを|m<sub>1</sub>| > |m<sub>2</sub>| > |m<sub>3</sub>| > |m<sub>4</sub>|となるように並び替える。m<sub>1</sub>を正に取り直し、m<sub>th</sub>以上を磁気モーメントがあ

ると定義して $m_1$ からの相対磁化で強磁性、反強磁 性の磁化並びを定義する。例えば、 $|m_1| > |m_2| >$  $|m_3| > m_{th} > |m_4|$ かつ $m_2 < 0, m_3 > 0$ の場合、こ の系の磁気モーメントに対するアイテムを階層的 に文字列 FA、FAF、FAFN と定義する。 $|m_1| >$  $|m_2| > m_{th} > |m_3| > |m_4|$ かつ $m_2 < 0$ の場合は、 FA、FAN のみとする。

例えば、CrRuHgBi に対応するトランザクションは Cr, Ru, Hg, Bi, D4, FA, FAN となる。頻出パターンマイニン グには、宇野らによって開発された LCM (Linear time Closed itemset Miner)[7]を用いた。

図 2(c)、(d)はそれぞれ頻出パターンマイニングによっ て抽出された、各区画の元素特徴量とスピン配列特徴量を 示している。高強磁性転移温度を得るためには、Fe と Co 原子を同時に含む必要があるのが、本解析によりわかる。 高磁化には、Fe と Mn 原子のスピンが平行に揃う必要が ある。合金中の Fe と Mn のスピン配列は、格子定数、他 元素種、成長条件に大きく依存することが知られており、 これらを制御するのが高磁化実現のキーポイントになる。 また、我々の頻出パターンマイニングは Rh 原子が磁化を 増強させる効果があることを示唆している。セル ID:B1、



図 2:(a)BCC 構造を有する四元ハイエントロピー合金における磁化と強磁性転移温度(キュリー温度)の2次元マップ。 (b)2次元マップの区画分割。(c、d)頻出パターンマイニングによって得られた元素特徴量とスピン配列特徴量。

D1、E1からわかるように、early transition metal のスピン配列は late transition metal と反平行になる。これは、 電子状態の観点から、次のように理解できる。例えば、 Cr と Fe 原子を含む高エントロピー合金を考えると、Fe 原子に比べて小さい原子番号を有する Cr 原子は、相対的 に斥力的なポテンシャルを感じ、その 3d 仮想束縛状態は フェルミ準位直上に押し上げられる。その結果、Cr 原子と Fe 原子の 3d 状態と逆向きにスピン分裂することになる。

#### 電気抵抗率の回帰と法則性の発見

線型応答の範囲内であれば、密度汎関数理論から得られ る基底状態の情報から、励起状態特性である電気伝導率を 計算することができる。完全周期系なら、絶対零度におい て電気伝導率は発散する。有限温度では、フォノンやマグ ノン励起が散乱過程に影響を与え完全周期系であっても電 気伝導率は発散しない。不規則系の場合は、不純物ポテン シャル散乱に影響により、絶対零度であっても有限の電気 伝導率、すなわち残留抵抗率を得ることができる。先人の 方々の研究のおかげで、電子論に基づいた磁性の理解は、 かなり進んできている。例えば、計算で得られた状態密度 を精査することにより、支配的な磁性発現機構(例えば、 二重交換相互作用、p-d 交換相互作用、超交換相互作用 等)と磁気構造を推測するこが可能になっている。しかし、 電気伝導となるとそう簡単ではない。自由電子系であれば フェルミ準位での状態密度の大きさから電気伝導率を議論

### しは*XYZ*を固定し、*W*を変化させた時の 電気抵抗率の大きさ

できそうだが、磁性合金ともなると、不純物ポテンシャル 散乱やスピン散乱等の複雑な散乱過程を考慮する必要があ る。実際、我々が創出した約 15 万個の 4 元高エントロ ピー合金の電気抵抗率を対象に、全状態密度と部分状態密 度を説明変数とし回帰モデルの構築を試みたが、説明力が 高い回帰モデルを得ることはできなかった。

今回、我々は元素の基礎物理量(原子質量や電子数等)と 周期表の特徴量(周期と族)に着目し、4 つの構成元素に対 する最大値、最小値、平均、標準偏差を説明変数(合計 40 個)として、電気抵抗率の回帰を実施した。その結果、説 明変数の3次までを考慮した線形回帰では決定係数(R<sup>2</sup>)が 0.840、ランダムフォレスト回帰では0.964、k近傍回帰で は 0.941 と説明力の高い回帰モデルを構築できた。次に permutation importance を使用することで、得られた回 帰モデルのホワイトボックス化を行った。permutation importance は、ある説明変数をランダムに置換した際の 予測能力の変化から、説明変数の重要度を判定する手法で ある。この手法により、4元高エントロピー合金の電気抵 抗率においては、周期表の族の平均と標準偏差が重要な説 明変数であることが判明した。ホワイトボックス化された 回帰モデルが導いた電気抵抗率の法則性が図3にまとめら れている。図3は4元高エントロピー合金(XYZW)のお いて、XYZを図中の元素に固定しWを変化させた時の、 電気抵抗率の大きさを青丸の大きさで示している。青丸の 大きさは全パネルで同じスケールである。図から直ちにわ

#### 周期表の近い族のくみあわせでは、 Rは小さくなる



図 3:4元ハイエントロピー合金(**XUZW**)における電気抵抗率。青丸の大きさは電気抵抗率の大きさを表しており、 全パネルで同じスケールである。

かるのは、周期表で近い族の組み合わせによる系では電気 抵抗率が小さく、離れた族で構成される系では電気抵抗率 が大きくなるということである。今回得られた電気抵抗率 の法則性はランダムな合金であれば満たされる可能性は高 いため、磁性材料や抵抗材料等の探索に非常に有用である と考えられる。

# 今後の展望

本研究は、「富岳」の計算能力と国産ソフトウェアが あってこそなし得たものであり、マテリアル DX において 基盤となる大規模物性データベースを構築したモデルケー スである。本研究で開発したソフトウェアや自動網羅計算 ツールは、4 元高エントロピー合金だけでなく、永久磁石 材料やスピントロニクス材料等へ適用することができる。 そのため、データ駆動により新たな知識や法則性を見つけ 出すことが可能になると同時に、多様な材料の開発が大幅 に短縮されることが期待される。

#### 謝辞

本研究は、文部科学省「富岳」成果創出加速プログラム 「大規模計算とデータ駆動手法による高性能永久磁石の開 発」(JPMXP 1020200307)の一環として実施されたもの である。また、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、実施した(課題番号 hp210179)。上記に加え、日本学術振興会の科学研究費 (課題番号 18K04926、20K05068、21H01375)、科学技 術振興機構の CREST(課題番号 JPMJCR1777、JPMJCR 18I2)と未来社会創造事業(課題番号 JPMJMI18G5、 JPMJMI21G2)の支援を受けて行われた。

## 参考文献

- 1. https://nomad-coe.eu.
- J. E. Saal, S. Kirklin, M. Aykol, B. Meredig, and C. Wolverton, JOM 65, 1501 (2013).
- S. Curtarolo, W. Setyawan, G. L. Hart, M. Jahnatek,
  R. V. Chepulskii, R. H. Taylor, S. Wang, J. Xue, K.
  Yang, O. Levy, M. J. Mehl, H. T. Stokes, D. O.
  Demchenko, and D. Morgan, Comput. Mater. Sci 58, 218 (2012).
- A. Jain, S. P. Ong, G. Hautier, W. Chen, W. D. Richards, S. Dacek, S. Cholia, D. Gunter, D. Skinner, G. Ceder, and K. A. Persson, APL Materials 1, 011002 (2013).

- 5. http://kkr.issp.u-tokyo.ac.jp
- T. Fukushima, H. Akai, T. Chikyow, and H. Kino, Phys. Rev. Materials 6, 023802 (2022).
- 7. http://research.nii.ac.jp/~uno/codes.htm