



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 公式を用いると磁氣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。

### 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合金の特徴量解析

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、これらの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

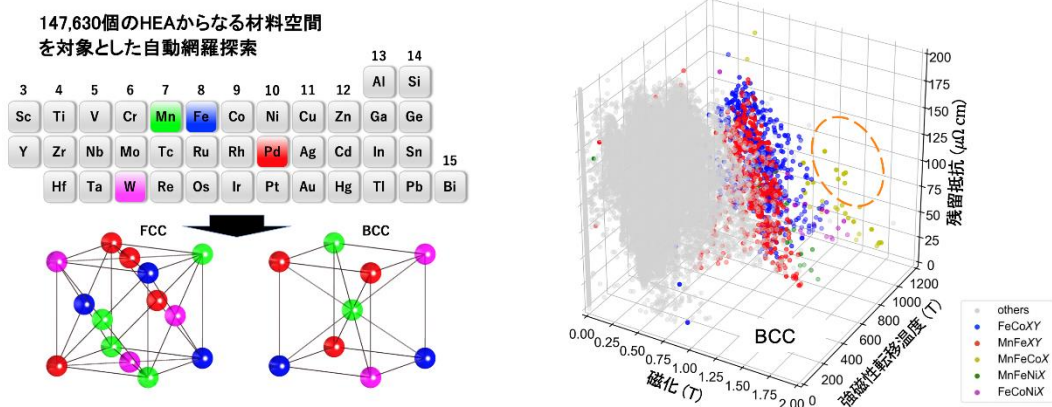


図 1: (左)面心立方格子(FCC)と体心立方格子(BCC)を有する 4 元高エントロピー合金(HEA)から成る材料空間(合計 147,630 個)。例として Mn、Fe、Pd、W が記されている。(右)「富岳」と「AkaiKKR」による自動網羅計算の結果(BCC の場合のみ)。各軸は磁化、強磁性転移温度、残留抵抗に対応する。オレンジ色の領域は高性能軟磁性材料として有望な系である。



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と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

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( $R^2$ )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( $xyzw$ )において、 $xyz$ 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

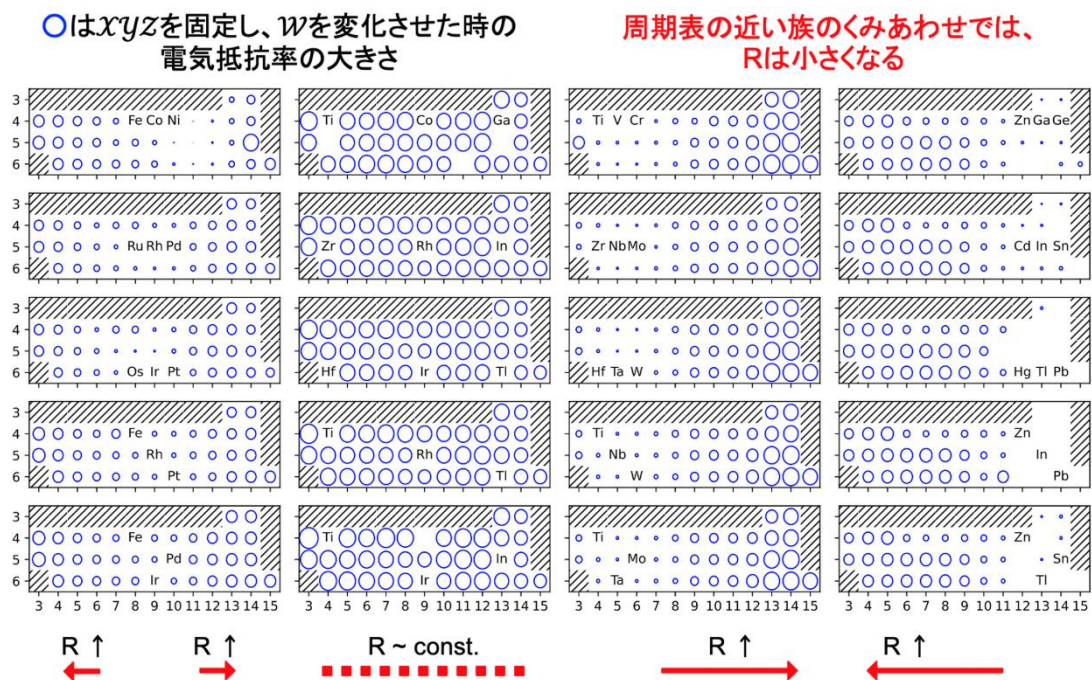


図 3 : 4 元ハイエントロピー合金( $xyzw$ )における電気抵抗率。青丸の大きさは電気抵抗率の大きさを表しており、全パネルで同じスケールである。

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つ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げ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、JPMJCR18I2)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>.
2. J. E. Saal, S. Kirklin, M. Aykol, B. Meredig, and C. Wolverton, *JOM* **65**, 1501 (2013).
3. 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).
4. 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>
6. T. Fukushima, H. Akai, T. Chikyow, and H. Kino, *Phys. Rev. Materials* **6**, 023802 (2022).
7. <http://research.nii.ac.jp/~uno/codes.htm>