

令和4年度高性能汎用計算機高度利用事業  
「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」  
成果報告書

令和5年5月30日  
国立研究開発法人産業技術総合研究所

三宅 隆

## 目次

|                               |        |
|-------------------------------|--------|
| 1. 補助事業の目的.....               | - 2 -  |
| 2. 令和4年度（報告年度）の実施内容 .....     | - 2 -  |
| 2-1. 当該年度（令和4年度）の事業実施計画 ..... | - 2 -  |
| 2-2. 実施内容（成果） .....           | - 3 -  |
| 2-3. 活動（研究会の活動等） .....        | - 20 - |
| 2-4. 実施体制 .....               | - 20 - |

## 補助事業の名称

「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」

### 1. 補助事業の目的

大規模第一原理計算とマテリアルズ・インフォマティクス手法により、利用環境に応じた最適な特性を持つ高性能磁石の設計技術を確立するとともに、ポスト「京」重点課題プロジェクトで開発したアプリケーションの維持・普及活動を行うことを目的とする。

### 2. 令和4年度（報告年度）の実施内容

#### 2-1. 当該年度（令和4年度）の事業実施計画

##### (1) シミュレーションとデータ駆動手法による永久磁石研究

大規模第一原理計算とマテリアルズ・インフォマティクスによる磁石研究の一環として、令和4年度は次の研究課題に取り組む。

- (i) 希土類磁石副相の第一原理計算を実行する。密度汎関数理論計算により、磁気モーメントなど、合金組成に依存した副相の磁気物性値を算出する。(国立大学法人東京工業大学)
- (ii) 磁石化合物に適用可能な第一原理計算の自動化技術を開発・機能更新する。これを遷移金属化合物に適用し、有限温度安定性を含め磁性材料の候補を提示する。(国立研究開発法人物質・材料研究機構)
- (iii) 幅広い磁性材料に対して系統的な第一原理計算を実行し、電子状態、磁気特性、伝導特性のデータを蓄積する。第一原理計算の結果に基づいた磁化反転シミュレーションを実行し、保磁力の界面構造依存性を調べる。(国立大学法人東京大学物性研究所)
- (iv) 希土類磁石化合物等の第一原理計算を実行する。物性や省希少元素の観点から主相候補を提示する。(国立研究開発法人産業技術総合研究所)
- (v) データ駆動手法を用いて第一原理計算や実験・計測データをデータマイニングすることにより、磁性に関する構造などの予測モデルを構築し、マルコフ連鎖モンテカルロ法の活用により構造理解を加速する。(国立大学法人東京大学大学院総合文化研究科)

なお、国立研究開発法人物質・材料研究機構、国立大学法人東京工業大学、国立大学法人東京大学大学院総合文化研究科、国立大学法人東京大学物性研究所とは、委託契約を結んで推進する。

##### (2) アプリケーションの普及

- (i) 「MateriApps」の運用、改善を行い、アプリケーションの効率的な開発および活用を促す。(国立大学法人東京大学物性研究所)
- (ii) CMD Workshop 等のイベントを開催し、アプリケーションの普及を図る。(国立大学法人大阪大学)

なお、国立大学法人東京大学物性研究所、国立大学法人大阪大学とは、委託契約を結んで推進する。

### (3) プロジェクトの全体推進

本事業を効率的かつ効果的に推進するため、プロジェクト推進会議を適宜開催し、参画各機関の連携・調整を実施する。具体的にはプロジェクト全体の管理・調整業務、全サブテーマに共通的な課題の推進支援業務を行う。また、成果報告会もしくはシンポジウムを1回以上開催する。

## 2-2. 実施内容（成果）

### (1) シミュレーションとデータ駆動手法による永久磁石研究

(i) 希土類磁石副相の第一原理計算を実行する。密度汎関数理論計算により、磁気モーメントなど、合金組成に依存した副相の磁気物性値を算出する。

協力機関（再委託先）：国立大学法人東京工業大学、協力機関代表者：合田義弘

#### （総括）

希土類磁石副相の第一原理計算を実行した。密度汎関数理論計算により、磁気モーメントなど、合金組成に依存した副相の磁気物性値を算出した。その結果、SmCu 金属間化合物に基づく合金が SmFe<sub>12</sub> 磁石副相として有望であることを 1-12 相と SmCu 基液相との直接平衡の存在より示した。実験により得られた SmCu 基副相への Fe の固溶を第一原理クラスター展開に基づく CALPHAD 法により再現した。これは定量的には過小評価であったが、B27 相を副相として考慮することにより Fe の固溶限が上昇することを第一原理熱力学計算により示した。さらに、2-14-1 相の第一原理フォノン計算を軽元素置換とともにを行った。F 元素置換の際における動的不安定性の原因を明らかにした。また、常磁性状態がフォノンにより安定化し、理論的な Curie 温度が低下することを示した。

#### （実施・検討内容）

### (a) Sm-Cu-Fe 系の相平衡

磁石材料の材料組織設計において、マクロスコピックな相平衡の知見を得ることは非常に重要であるため、希土類磁石副相の第一原理計算を実行した。SmFe<sub>12</sub> 磁石に着目し、その副相の候補となる化合物を自由エネルギーによる平衡論から議論した。まず、Sm-Cu-Fe 系の Gibbs エネルギーデータベースを精緻化するために、B2 相に対する第一原理クラスター展開を実行した。その結果を図 1 に示す。得られた不規則合金系の混合エンタルピーを用いて Gibbs エネルギーを高精度化した。また、Cu-Fe の相互作用が、2 元系では斥力的である一方、Sm(Cu, Fe) では引力的になることを明らかにした。得られた各相の Gibbs エネルギーを用いて CALPHAD 法により 3 元系状態図を構築した。ここでは、添加元素による 1-12 系の安定化を考慮し、2-17 系を除いた擬 3 元系として議論する。その結果を図 2 に示す。1053 K において、1-12 系と SmCu 液相との直接平衡が得られた。これは 1-12 系主相粒の液相焼結が可能であることを示唆している。さらに、そのごく近傍には固相の B2Sm-Cu-Fe が得られた。したがって、液相の凝固により顕著な原子の拡散を伴わずに非磁性粒界副相を得るといった材料組織設計指針が得られた。これらの結果は原著論文として発表した[S. Enomoto, et al., J. Alloys Compd. (2023).].

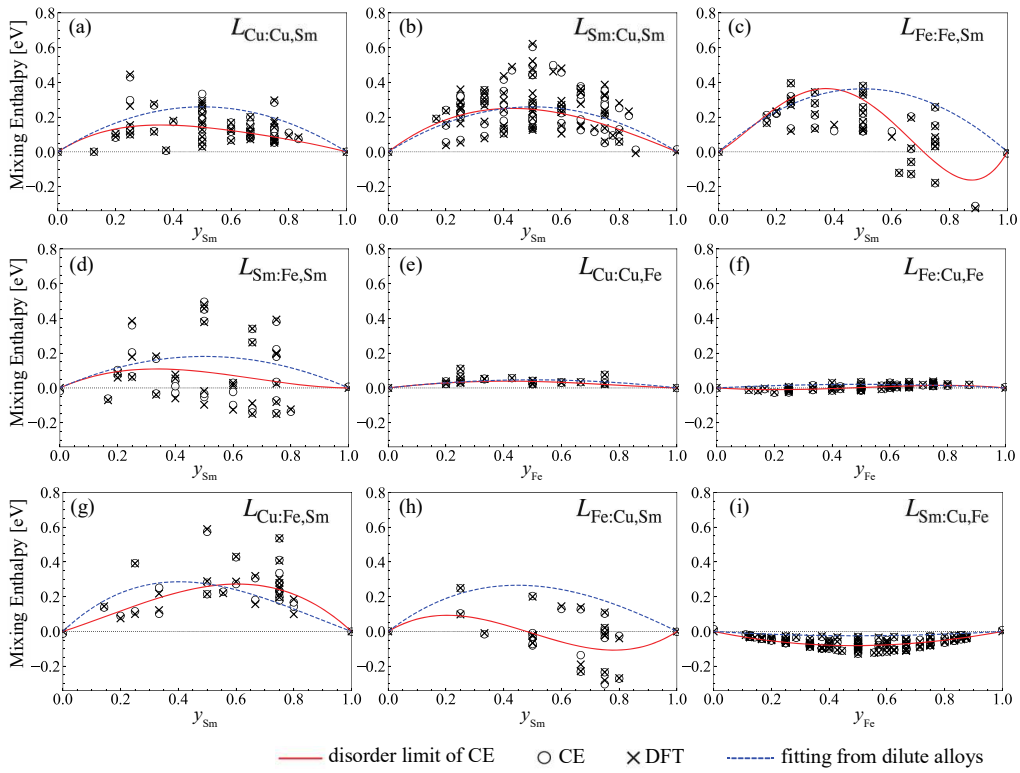


図 1: Sm-Cu-Fe 系における第一原理クラスター展開計算によって得られた混合エンタルピー。

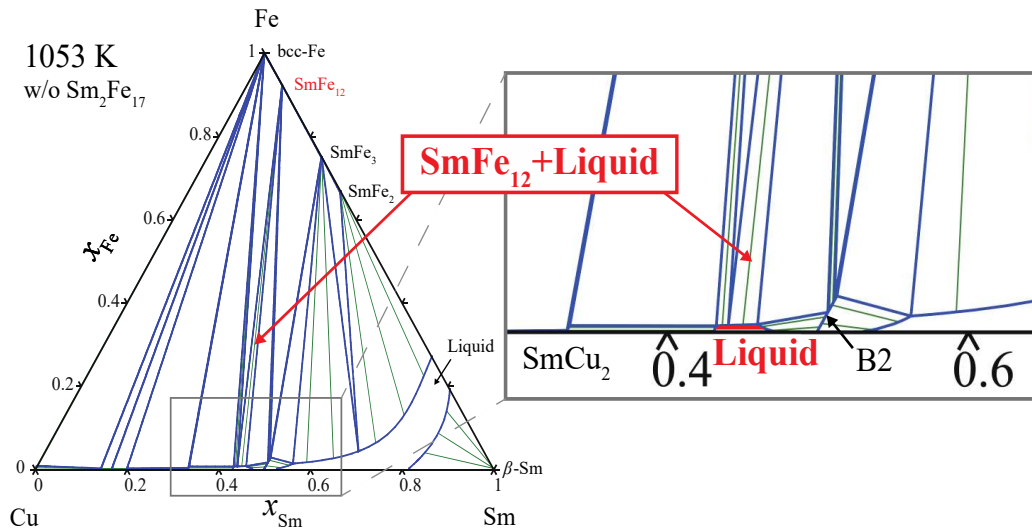


図 2: Sm-Cu-Fe 系における CALPHAD 状態図。赤色の 1-12 系と液相が直接平衡している。

上記の第一原理クラスター展開に基づく CALPHAD 法は実験により得られた SmCu 基副相への Fe の固溶を再現していたが、これは定量的には過小評価であった。そこで、フォノン自由エネルギーを第一原理計算によって行い、B2 相に加えて B27 相を副相として考慮した。その結果を図 3 に示す。B27 相の方が B2 相よりも Fe を固溶することにより Fe の固溶限が上昇することが、第一原理熱力学計算により示した。また、B2・B27 相それぞれの単相領域と 2 相平衡領域も同定した。これらの結果は原著論文として発表した [S. Nishino & Y. Gohda, Jpn. J. Appl. Phys. (2023).]。

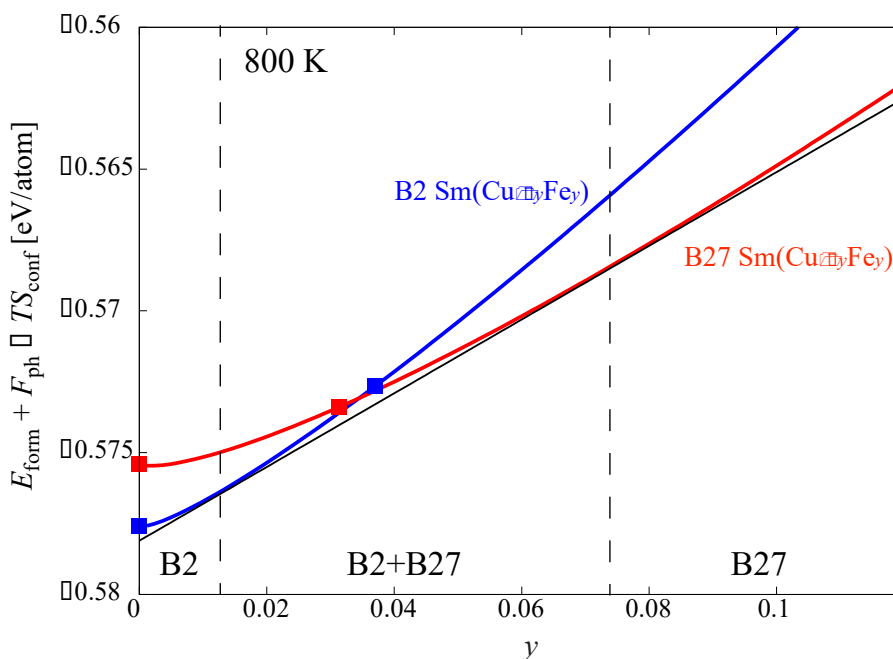


図 3：第一原理熱力学計算によって得られた Sm(Cu, Fe) 合金における B2 相と B27 相の相平衡。

#### (b) ネオジウム磁石主相のフォノン自由エネルギー

2-14-1 相の第一原理フォノン計算を軽元素置換とともに行った。その結果を図 4 に示す。置換した軽元素の原子番号の増加に伴い、軽元素由来のフォノン振動数が低下し、F 元素置換では動的不安定性、つまり結晶構造の不安定性が現れた。その原因を精査したところ、直感的に予想される F 原子による質量増加ではなく、電子数の増加による電子状態の変調と、元素置換に伴う結晶構造の変調に由来していることが明らかとなった。また、Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B において、常磁性状態と強磁性状態のフォノン振動数を比較した。その結果を図 5 に示す。常磁性状態がフォノンにより安定化し、bcc Fe の場合と同様に、フォノンの自由エネルギーを考慮することにより理論的な Curie 温度が低下することを示した。これらの結果は原著論文として発表した [S. Tsuna & Y. Gohda, J. Appl. Phys. (2023).]。

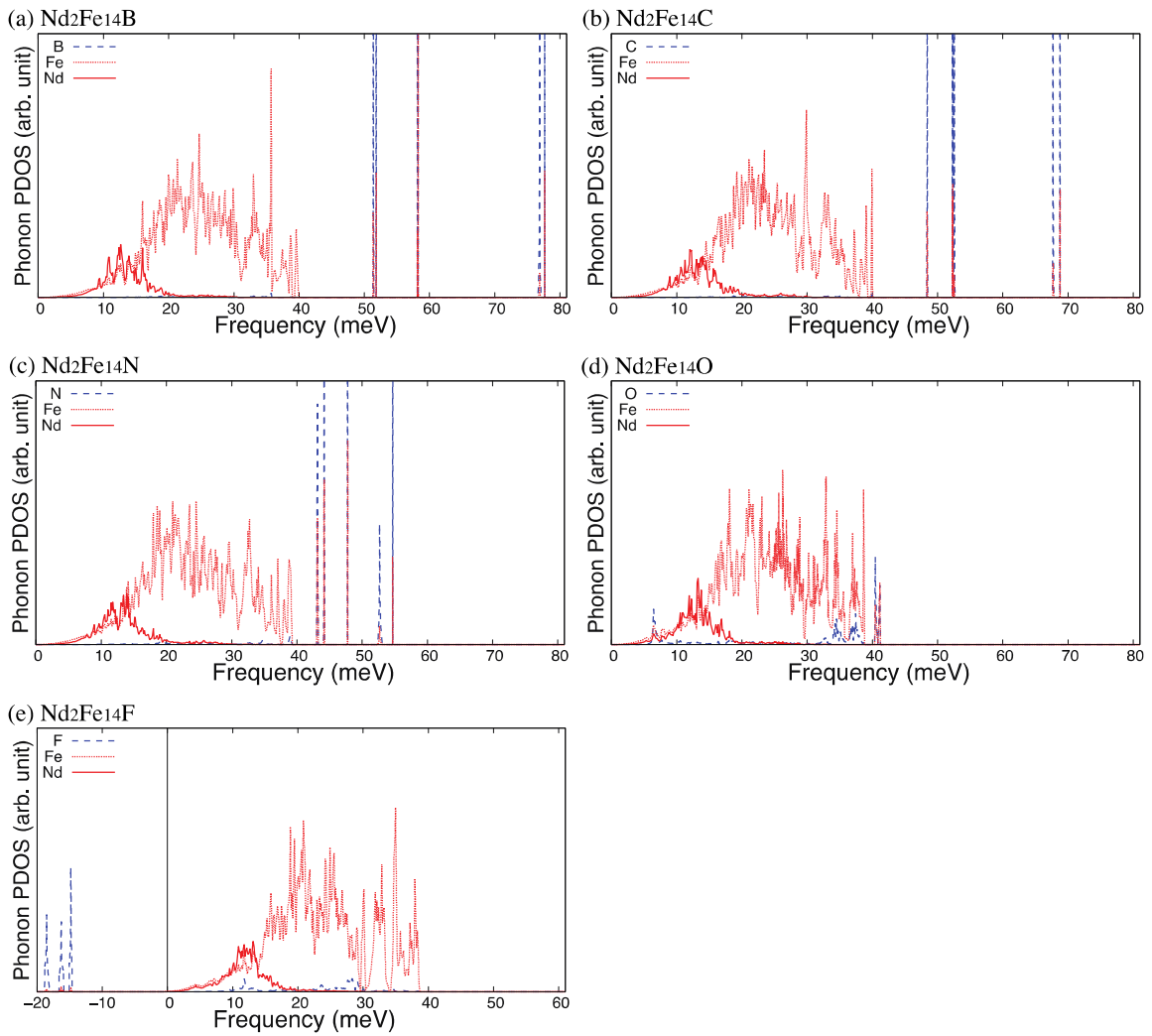


図 4：2-14-1 系における軽元素置換に対する第一原理フォノン状態密度。負の振動数は虚数を意味する。

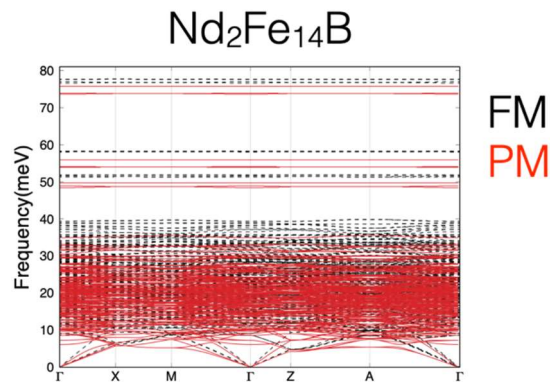


図 5：Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B における常磁性(PM)状態と強磁性(FM)状態のフォノンバンド。

(ii) 磁石化合物に適用可能な第一原理計算の自動化技術を開発・機能更新する。これを遷移金属化合物に適用し、有限温度安定性を含め磁性材料の候補を提示する。

協力機関（再委託先）：国立研究開発法人物質・材料研究機構(NIMS)、協力機関代表者：木野日織

(総括)

本プロジェクトで絶対零度で第一原理計算により探索した YCoB 三元系に対して、有限温度の格子自由エネルギー寄与を百件以上行い限定的な有限温度相図を評価し、Co を多く含む物質が高温で安定化する傾向を見出した。関連して、格子振動調和項による自由エネルギー評価の際に四倍に高速化する技術を開発した。磁石化合物に対して適用可能な三つのソフト（構造探索を行う CrySPY, 格子振動物性値を評価する Alamode, 電子由来物性評価を行う第一原理計算ソフト AkaiKKR）に対して国際的な再利用可能な共通化した自動計算枠組み（AiiDA）により連携した自動計算を行うためのコードを開発、もしくは改良し、公開した。

(実施・検討内容)

(a) 有限温度の格子自由エネルギー寄与を百件以上行い限定的な有限温度相図を評価し、Co を多く含む物質が高温で安定化する傾向を見出した。

本プロジェクトにおいて1万件以上のYCoB三元系物質の第一原理計算による絶対零度全エネルギーを評価し、絶対零度相図を作成した。一方、物質は高温で合成されることから絶対零度の相図による安定性は物質の合成可能性を必ずしも定量的に評価できないことが知られている。結晶の自由エネルギーは以下の用に表される。

$$F(V, T) = E_{el}(V) + F_{el}(V, T) + F_{vib}(V, T) + F_{spi} + \dots,$$

ここで、 $E_{el}(V)$ は一原理計算による絶対零度全エネルギー $E_{el}(V_0)$ と近似できる。第二項以降有限温度の自由エネルギーに対する寄与で最も大きいのは格子振動による第三項の寄与であり、これは

$$F_{vib}(V, T) = kT \int_0^\infty d\omega D(\omega, T) \ln \left[ 2 \sinh \left( \frac{\hbar\omega}{2kT} \right) \right]$$

と書け、 $D(\omega, V)$ は絶対零度格子振動計算 $D(\omega, V_0)$ から主要な寄与を評価可能である。フォノン計算は膨大な計算時間が必要になるため評価を見送ってきたが、今回百件以上の物質に対してこの寄与を評価した。図6にはCo100%が左下、B100%が上、Y100%が右下に対して、 $E_{el}(V_0)$ （左パネル）、 $E_{el}(V_0) + F_{vib}(V_0, T)$ のT=1000Kにおける相図を記す。図中でオレンジから赤へhull distanceの値を表し、各パネルにおける黒点はconvex hullにおける安定点を示す。（左右図でhull distanceスケールが異なるので見にくい）左右図を比較するとCoが豊富な領域でhull distanceが小さい点が増えており、相対的にCoが豊富な領域が有限温度でより安定化する傾向がわかり、例えば、右パネルでは $YCo_2B_2$ に対応する黒点が無くなっており $YCo_2B_2$ が不安定化している。第一原理計算のみで評価可能な絶対零度全エネルギーに対して、有限温度においてはCoが豊富な物質がより安定になる傾向を見いだせたことは、今後の物質探索においても有用な知見である。



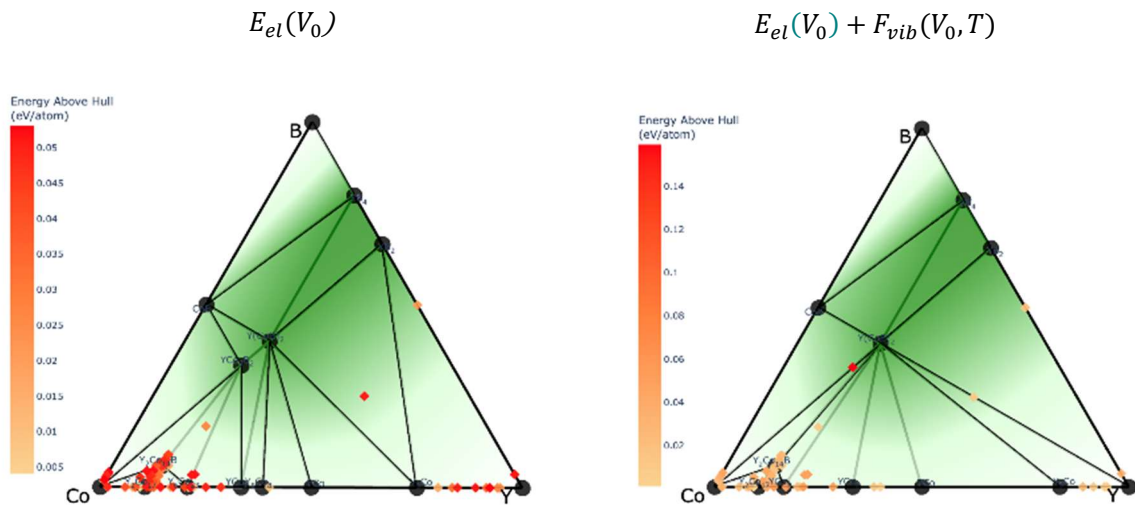


図 6 : (左)  $T=0$  の convex hull。 (右) 約 100 構造に対する格子振動調和項の寄与を含めた 1000K における convex hull。左パネルの赤、黒点に対して右パネルの有限温度重エネルギー計算を行った。

(b) 自由エネルギーの評価を四倍に高速化する技術を開発した。

(a)に関連して、有限温度の格子自由エネルギーの網羅評価の大きな妨げになっていた事項は、フォノン計算は単位格子よりも大きな格子を用い、更に対称性が低い構造が多いため有限変異に対する第一原理評価回数が多いこと、そして、ばね定数を求めるための実空間カットオフ半径の自動最適化が困難だった三点にある。一方、参画者(只野)が開発した格子振動に対する物理量評価パッケージ ALAMODE はバネ定数( $\Phi_{ij}$ )に対して情報理論のスパースモデリング

$$\bar{\Phi} = \operatorname{argmin}_{\Phi} \|A\Phi - F^{DFT}\|^2 + \alpha|\Phi|^p$$

により未知数が拘束条件( $F^{DFT}$ )の数より少なくとも最適なバネ定数( $\bar{\Phi}$ )を求めることが可能な手法である。この特性を活かし、従来の 1/4 の第一原理計算による力の評価数 (50 材料に対して VASP を用いて 6.5 千ノード時間) で有限温度の格子振動によるエネルギーを定量的に評価することが可能になり、今後様々な物質の有限温度安定性を網羅評価する際に有用となる技術を確認した。

(c) 異なるソフト間で連携した統一的な自動計算を可能にする AiiDA を用いた自動計算枠組みを開発・公開した。

各自が作成したソフトに対して個別の枠組みに従い自動計算ワークフローを作成するのは比較的容易だが、異なるソフト間ではソフトの再利用性が大きく低下し、個別自動計算ワークフローを再度作成することを要求されることが少なくない。これは計算物性物理学において大きな人的資源の無駄であるため、解決が必要である。このため、近年、計算第一原理計算を中心とした物性物理学においてワークフローの統一化を行う枠組み (AiiDA) が注目を集めている。AiiDA を用いた計算の自動化を行うことで、例えば、富岳と HPCI 計算機間で計算サーバー間を意識しないワークフロー実行、更に作成したデータをそのまま用いた公開が可能となる利点を持つ。一方、AiiDA は開発者およびユーザーの学習コストが高く特に日本製ソフトは AiiDA 利用が進まず、たとえ優秀なソフトであっても、国際的な共通化枠

組みを用いた自動計算，そして AiiDA ユーザーによるソフトの利用促進において大きな後塵を拝しているのが実情である。

本プロジェクトでは構造探索を行う CrySPY, 格子振動物性値を評価する Alamode, 電子由来物性評価を行う第一原理計算ソフト AkaiKKR に対して AiiDA により連携した自動計算を行うためのコードを開発，もしくは改良し，公開している[A]。図 7 は AkaiKKR において，cif ファイルの構造から，計算サーバーで複数回（二度）の電子状態の収束過程を実行し，直道転移温度，交換総合作用，バンド分散（ブロッホスペクトル関数）を評価した全過程の実績グラフを例として示す。

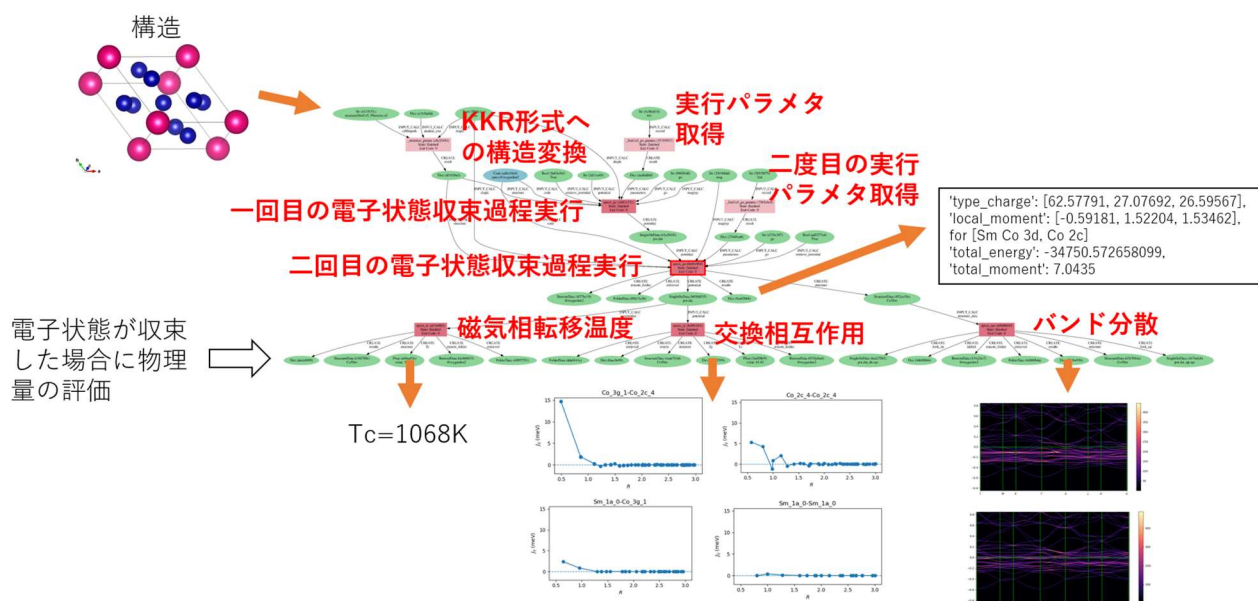


図 7 : SmCo5 構造に対する AiiDA を用いた自動計算過程（実績グラフ）を示す。

[A] [https://github.com/nim-hrkn/aiida\\_cryspy](https://github.com/nim-hrkn/aiida_cryspy), <https://github.com/nim-hrkn/aiida-alamode>, <https://github.com/nim-hrkn/aiida-akaikkr>

(iii) 幅広い磁性材料に対して系統的な第一原理計算を実行し，電子状態，磁気特性，伝導特性のデータを蓄積する。第一原理計算の結果に基づいた磁化反転シミュレーションを実行し，保磁力の界面構造依存性を調べる。

協力機関（再委託先）：国立研究開発法人東京大学物性研究所、協力機関代表者：福島鉄也

（総括）

Korringa-Kohn-Rostoker (KKR) + コヒーレントポテンシャル近似 (CPA) 法に立脚した，磁性合金材料を対象とする基盤的シミュレーションコードの開発を行った。希土類永久磁石材料の物性を精査するために，フルポテンシャル KKR パッケージに自己相互作用補正(SIC)法を組み込んだ。それらを 1-5 系 NdCo<sub>5</sub> と SmCo<sub>5</sub> に適用することで電子状態密度の高精度計算を実施した。不規則系を有する磁性材料の有限温度特性を自動網羅的に計算可能にするため，「AkaiKKR」パッケージの拡張を実施した。パッケージのユーザビリティ向上により，ターゲットとなる温度を指定するだけで，経験的パラメーターを一切用いることなくマグノン +

フォノンを考慮した有限温度電子状態計算が可能になっている。さらに、5元高エントロピー合金を対象に「富岳」を用いた自動網羅計算を適用し、979,169件に上る電子・磁気・伝導特性を含む物性データの創出に成功した

(a) フルポテンシャル KKR + SIC 法の開発

高性能材料を探索するためには、電子状態を精度良く計算できることが重要である。電子系の多体効果を完璧に取り込むことは現状不可能であるが、実験で得られる情報と比較しながら注意深く探索を進める必要がある。希土類・遷移金属元素を含む磁性材料群をターゲットとする際、よく使用される局所密度近似 (LDA) で電子状態を記述すると実験と剥離した結果を導くことがある。これらの系に対して、LDA のエラーを克服し、より現実に近い電子状態をシミュレートするため、小倉昌子氏 (ミュンヘン大学) が開発しているフルポテンシャル KKR パッケージに、価電子状態に対する自己相互作用補正 (SIC) を組み込んだ。

同一軌道間の静電相互作用と交換相互作用 (自己相互作用) は当然打ち消しあってゼロになる。しかし LDA では、それが満たされておらず、d 電子系や f 電子系のような強相関物質で問題となることが多い。その解決策の一つとして SIC がある。本研究では、KKR グリーン関数法で得られるグリーン関数から 4f 状態の球対称電荷密度を抽出し、SIC ポテンシャルの球対称成分を計算した。すなわち、SIC ポテンシャルはフルポテンシャルになっていない (4f 軌道が持つ幾何学的形状を反映させ軌道分裂等を正確に表現するにはフルポテンシャル SIC が必要となる)。なお、Moruzzi、Janak、Williams らによる交換相関ポテンシャルを使用して SIC ポテンシャルを構成した。

以下、SIC ポテンシャルと SIC エネルギーの計算方法を述べる。フルポテンシャル KKR 法で得られるグリーン関数から、f 状態の電子密度の球対称成分を抽出する。多中心展開された結晶のグリーン関数は

$$\begin{aligned} G(\mathbf{r} + \mathbf{R}^n, \mathbf{r}' + \mathbf{R}^{n'}; E) &= \delta_{nn'} \sqrt{E} \sum_L [R_L^n(\mathbf{r}; E) H_L^n(\mathbf{r}'; E) \theta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}) + H_L^n(\mathbf{r}; E) R_L^n(\mathbf{r}'; E) \theta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')] \\ &+ \sum_{LL'} R_L^n(\mathbf{r}; E) G_{LL'}^{nn'}(E) R_{L'}^{n'}(\mathbf{r}'; E) \end{aligned}$$

と書ける。 $R_L^n(\mathbf{r}; E)$  と  $H_L^n(\mathbf{r}; E)$  は、それぞれ単一ポテンシャルに対するシュレディンガー方程式の正則解と非正則解 (原点で発散) であり、 $G_{LL'}^{nn'}(E)$  は KKR 構造定数である。これから、状態  $\alpha$  の成分として、

$$\begin{aligned} G_\alpha(\mathbf{r} + \mathbf{R}^n, \mathbf{r}' + \mathbf{R}^{n'}; E) &= \delta_{nn'} \sqrt{E} \sum_L [R_\alpha^n(\mathbf{r}; E) H_\alpha^n(\mathbf{r}'; E) \theta(\mathbf{r}' - \mathbf{r}) + H_\alpha^n(\mathbf{r}; E) R_\alpha^n(\mathbf{r}'; E) \theta(\mathbf{r} - \mathbf{r}')] \\ &+ \sum_{LL'} R_\alpha^n(\mathbf{r}; E) G_{\alpha L'}^{nn'}(E) R_{L'}^{n'}(\mathbf{r}'; E) \end{aligned}$$

を取り出す。 $G_\alpha(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E)$  を球面調和関数で展開すると、

$$G_\alpha(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) = \sum_{LL'} Y_L(\hat{\mathbf{r}}) G_{\alpha L'}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; E) Y_{L'}^*(\hat{\mathbf{r}}')$$

であり、密度の球対称成分は、

$$\hat{\rho}_\alpha(\mathbf{r}; E) = \rho_{\alpha(0,0)}(\mathbf{r}; E) Y_{(0,0)}(\hat{\mathbf{r}}) = \frac{1}{4\pi} \rho_{\alpha(0,0)}(\mathbf{r}; E)$$

となる。 $\rho_{\alpha(0,0)}$ は Gaunt 数( $C_{L'L''L''}$ )を用いて表せて

$$\rho_{\alpha(0,0)}(\mathbf{r}; E) = \sum_{L'L''} C_{L'(0,0)L''} G_{\alpha L'L''}(\mathbf{r}, \mathbf{r}; E)$$

である。エネルギー積分を実施することで位置 $\mathbf{r}$ における電荷密度 $\hat{\rho}_{\alpha}(\mathbf{r})$ を求めることができる。

$$\hat{\rho}_{\alpha}(\mathbf{r}) = -\frac{1}{\pi} \Im \int \hat{\rho}_{\alpha}(\mathbf{r}; E) dE$$

最終的に、規格化した $\hat{\rho}_{\alpha}(\mathbf{r})$

$$\tilde{\rho}_{\alpha}(\mathbf{r}) = \frac{1}{N_{\alpha}} \hat{\rho}_{\alpha}(\mathbf{r}), \quad N_{\alpha} = \int \hat{\rho}_{\alpha}(\mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

を用いて、SIC ポテンシャルとエネルギーは、それぞれ

$$V_{\alpha}^{\text{SIC}} = a_{\text{SIC}} N_{\alpha} (u[\tilde{\rho}_{\alpha}] + v_{\text{XC}}[\tilde{\rho}_{\alpha}])$$

$$E_{\text{SIC}} = - \sum_{\alpha} N_{\alpha} \int d\mathbf{r} \left\{ a_{\text{SIC}} N_{\alpha} \tilde{\rho}_{\alpha} \left( \frac{1}{2} u[\tilde{\rho}_{\alpha}] + \epsilon_{\text{XC}}[\tilde{\rho}_{\alpha}] \right) - \rho_{\alpha} V_{\alpha}^{\text{SIC}} \right\}$$

と書ける。ここで、 $u[\tilde{\rho}_{\alpha}]$ はハートリーポテンシャル、 $v_{\text{XC}}[\tilde{\rho}_{\alpha}]$ は交換相関ポテンシャルである。 $a_{\text{SIC}}$ はパラメーターであるが材料に依存するものではない。

図 8 は、フルポテンシャル KKR + SIC による計算結果である。対象は SmCo<sub>5</sub> と NdCo<sub>5</sub> であり、計算には空間群  $P6/mmm$  を仮定した。格子定数は  $a=9.90533$  bohr,  $c/a=0.7900$  (NdCo<sub>5</sub>)、 $a=9.41460$  bohr,  $c/a=0.7979$  (SmCo<sub>5</sub>) を用いている。電子相関効果によって非占有準位と占有準位が分裂するはずであるが、LDA では電子相関効果を考慮できず、セルフコンシステント計算により局在した 4f 軌道がフェルミ準位上にトラップされてしまう (図 8 (a, c))。そのため、凝集エネルギーが異様に高くなるなど非現実的な計算結果を導いてしまう。このような欠点を克服するために、よく LDA + U 法を用いることで、実験事実を再現する試みが行われるが、オンサイトクーロンエネルギー (U) の値は経験的パラメータであり、未知の材料探索にはふさわしくない。図 8 (b, d) は、SmCo<sub>5</sub>、NdCo<sub>5</sub> に対するフルポテンシャル KKR グリーン関数法+SIC の結果である。図より 4f 軌道における非占有準位と占有準位の分裂が再現できているのがわかる。本手法は材料に依存した経験的パラメーターは存在せず未知材料の探索に際しても対応が可能である。

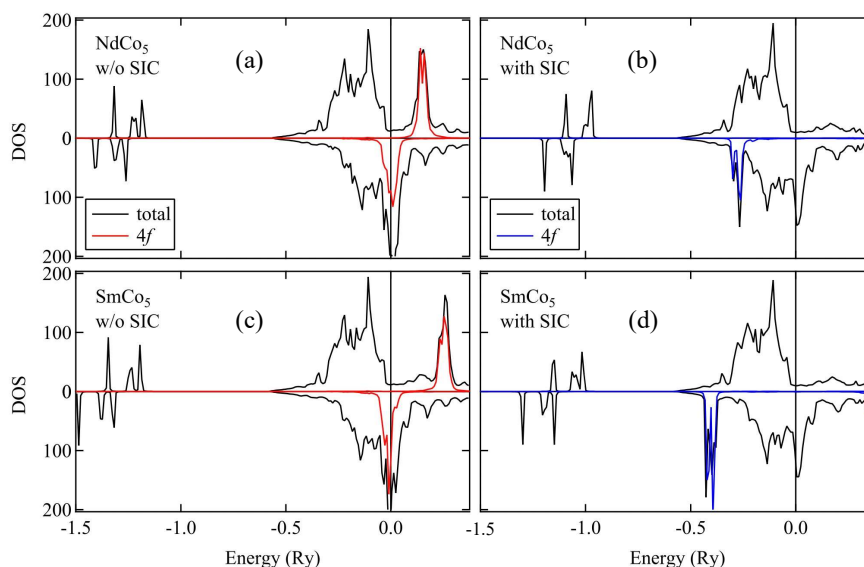


図 8 : フルポテンシャル KKR グリーン関数法+SIC によって計算された電子状態密度。黒線は全状態密度、赤線もしくは青線は 4f 軌道の部分状態密度である。(a,b) NdCo<sub>5</sub> に対する LDA と SIC の結果、(c,d) SmCo<sub>5</sub> に対する LDA と SIC の結果。

#### (b) 有限温度特性の自動網羅計算を可能にするプログラムの開発

社会実装を念頭に高性能磁石材料を探索するためには、有限温度における磁気特性の評価が必要となる。現在の第一原理計算手法は絶対零度での物性評価をターゲットとしており、有限温度特性を第一原理的に計算するのは非常に困難であると考えられてきた。磁性材料探索において、使用環境で生じる主な励起はフォノンとマグノンである。我々は、コヒーレントポテンシャル近似のもと、静的・鞍点近似により電子-フォノン散乱と電子マグノン散乱を統合的に取り扱える手法を提案し、実際に「AkaiKKR」パッケージに実装を行ってきた。本年度は、不規則系を含む磁性材料の有限温度特性を自動網羅的に計算可能にするため、「AkaiKKR」パッケージの拡張を実施した。

フォノンに関しては、プログラムに内蔵されているデバイ温度のデータベースから、与えられた温度に対応する各構成原子（不規則系の場合は全ての構成原子を考える、すなわち AB 合金の場合は A 原子と B 原子）の平均二乗変位を評価し、有効ポテンシャルを変位させフォノンの効果を電子のグリーン関数に取り込む。

マグノンに関しては、はじめにあるマグノン励起の数を初期値として設定し、電子系のセルフコンシステント計算を行い収束させる。その後、与えられた温度に対して Liechtenstein 法 + 平均場近似により計算されたワイス場からマグノン励起の数を推定する。具体的には Local moment disorder (LMD) 状態を考え、正の磁気モーメントを持つ磁性イオン、負の磁気モーメントを持つ磁性イオンのそれぞれのワイス場から磁気モーメントを計算する。この磁気モーメントの差がマグノン励起によって縮んだ磁気モーメントを与える。そして、仮定したマグノン励起の数と得られたマグノン励起の数がセルフコンシステントになるように計算を収束させることで、マグノンの効果を取り入れた電子系のグリーン関数を得ることができる。フォノンとマグノンの両方を効力する時は、電子系のセルフコンシステント計算の際にフォノンを取り入れ、マグノンに対するセルフコンシステント計算を実行すればよい。

上記のように有限温度特性を計算するには、非常に複雑なステップを踏む必要がある。そこで、我々は「AkaiKKR」パッケージのユーザビリティ向上を行った。ユーザーは、規則系・不規則系に対する従来のインプットファイルをそのまま利用でき、ターゲットとなる温度を指定するだけで、マグノン + フォノン を考慮した有限温度計算が可能になっている。

計算例として、BCC 構造を有する  $\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}$  と  $\text{Fe}_{0.8}\text{Cr}_{0.2}$  における、マグノンとフォノン励起を取り入れた磁化曲線の計算結果を図 9 に示す。磁化がゼロになる温度が磁氣的臨界点（キュリー温度）に対応するが、先行研究[C. Takahashi et al., J. Phys.: Condens. Matter **19** 365233 (2007).]と比較することで、これらの系ではマグノンとフォノン励起はキュリー温度を下げる傾向にあることが判明した。磁気モーメントが温度によって急峻に下がる領域、または磁氣的臨界点近傍においては、マグノン励起数がセルフコンシステントに至るまでの反復回数が多くなってしまいうため注意が必要となる。

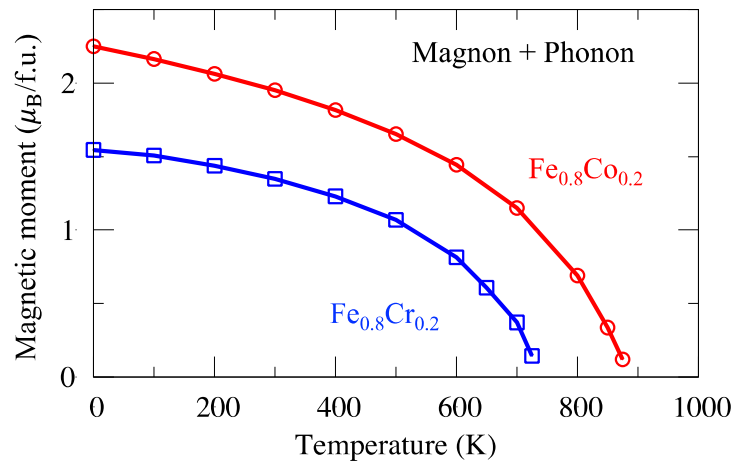


図 9 : マグノンとフォノン励起を考慮した有限温度磁性の評価。対象は  $\text{Fe}_{0.8}\text{Co}_{0.2}$  (赤線)、 $\text{Fe}_{0.8}\text{Cr}_{0.2}$  (青線)。

(c) 5 元高エントロピー合金を対象とした自動網羅計算とデータベース構築

前年度から引き続き、不規則系磁性材料を対象に「富岳」を用いた自動網羅計算を実行することで、大規模物性データベースの構築を実施した。本研究には、KKR グリーン関数法に基づく「AkaiKKR」パッケージを利用している。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。

ターゲットとなる材料空間は 5 元高エントロピー合金である。Al、Si、Sc、Ti、V、Cr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Ga、Ge、Y、Zr、Nb、Mo、Tc、Ru、Rh、Pd、Ag、Cd、In、Sn、Hf、Ta、W、Re、Os、Ir、Pt、Au、Hg、Tl、Pb、Bi 原子から 5 つの原子を選択し、BCC 構造または FCC 構造を有する 5 元合金を構成する。各原子は格子位置にランダムに分布していると考え、短距離秩序と格子緩和の影響は考慮していない。この配置不規則性はシングルサイト近似である CPA を利用して取り扱う。

計算する物理量は電子状態、磁化、キュリー温度、残留抵抗率である。キュリー温度は Liechtenstein 法と平均場近似、電気伝導率は Kubo-Greenwood の公式から評価する。線型応答の範囲内であれば、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。Kubo-Greenwood では、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起因とした電流-電流相関関数を直接計算するため、緩和時間近似は必要としない。

図 10 は「AkaiKKR」パッケージと「富岳」を用いた自動網羅計算の結果であり、5 元高エントロピー合金の磁化、キュリー温度、電気抵抗率を変数とした散布図行列を示している。今年度は 979,169 件のデータの創出に成功した。図では  $0.01\mu_B$  以上の局所磁気モーメントを持つ系のみ (441,599 件) 抽出している。図から MnFeCoXY、MnFeNiXY、FeCoNiXY、MnFeCoNiX が高磁気性能を持っているのが分かる。特に大きなキュリー温度実現には Fe と Co 原子が同時に含まれる必要があり、大きな磁化を有するには Mn と Fe 原子の磁気モーメントが平行に並ぶことで大きな磁化に貢献している。前年度、我々は「富岳」によって創出したデータをマイニングすることで、4 元合金の伝導特性においては、周期表で構成原子が位置する族の平均と標準偏差が良い記述子になっていることを示した。今後、5 元系においても得られた物性データを基に同様の法則性が成り立つのか調査する予定である。

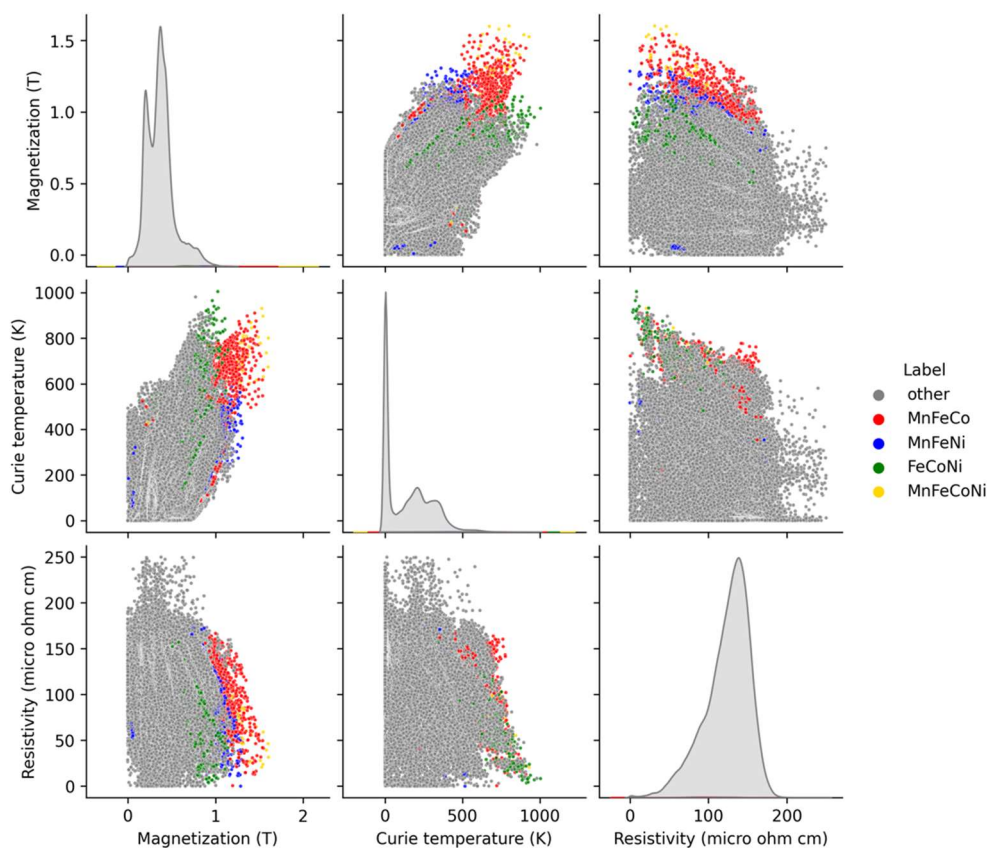


図 10 : 「富岳」を用いた自動網羅計算の結果。5 元高エントロピー合金の各物理量を変数とした散布図行列であり、MnFeCoXY、MnFeNiXY、FeCoNiXY、MnFeCoNiX に対応する点は色でラベリングされている。

(iv) 希土類磁石化合物等の第一原理計算を実行する。物性や省希少元素の観点から主相候補を提示する。

協力機関(再委託先)：なし

(総括)

希土類磁石化合物等の第一原理計算を実行し、物性や省希少元素の観点から主相候補を提示した。具体的には、 $RFe_{12}$ 型化合物を対象として、磁化、キュリー温度、原料価格の観点から組成最適化を実行した。その結果、キュリー温度の上昇と原料価格の低減を両立するには、Dy 濃度を減らすと同時に Co 濃度を増加することが有効であることを見出した。

(実施・検討内容)

(a) 磁性と原料価格を考慮した組成最適化

$ThMn_{12}$ 型構造を有する  $RFe_{12}$ 型化合物は、鉄濃度が高いため高い飽和磁化が期待でき、新規磁石の主相化合物として期待されている。磁気物性に優れ、かつ、希土類の資源リスクを考慮した組成最適化が課題となってきた。これまで、元素戦略プロジェクト<研究拠点形成型>やポスト「京」重点課題プロジェクト⑦などで、Co, Ti 等の添加や希土類元素の選択が検討されてきた。本研究では、 $(R,Z)(Fe,Co,Ti)_{12}$ が ( $R=Nd,Sm,Y; Z=Dy,Zr$ )を対象とし、R 元素、Z 元素、R 濃度、Co 濃度、Ti 濃度の 5 変数を変えた全 3630 組成の中から磁化、キュリー温度、原料価格の観点から優れた組成を決定する問題に取り組んだ (T. Fukazawa et al., *J. Phys. Soc. Jpn.* **92**, 014801 (2023))。まず、パレートフロントを求め、3630 組成からパレートフロントを構成する 253 組成を抽出した。この 253 データを用いて、平行座標プロットにより相関を解析したところ、磁化とキュリー温度には負の相関が見られた。すなわち、高磁化と高キュリー温度を両立することは一般的には難しいことがわかった。一方、原料価格と磁化、あるいはキュリー温度の間の相関は弱く、原料価格と磁化、あるいは原料価格とキュリー温度の同時最適化は可能であることがわかった。

次に、パレートフロント上での最適化のため、最小二乗回帰 (PLS) を用いた解析を実行した (図 11)。**Y-weight 1** をみると、磁化と原料価格を犠牲にしてキュリー温度を上げることが可能で、そのためには Co 濃度を増やすことが有効であることが **X-weight 1** からわかる。次に **Y-weight 2** をみると、キュリー温度と原料価格を犠牲にして磁化を上げることが可能で、そのためには Z 元素として Dy を選び、その濃度を上げ、同時に Co 濃度を減らすことが有効であることが **X-weight 2** から読み取れる。これは直感からは導かれなかった結論である。



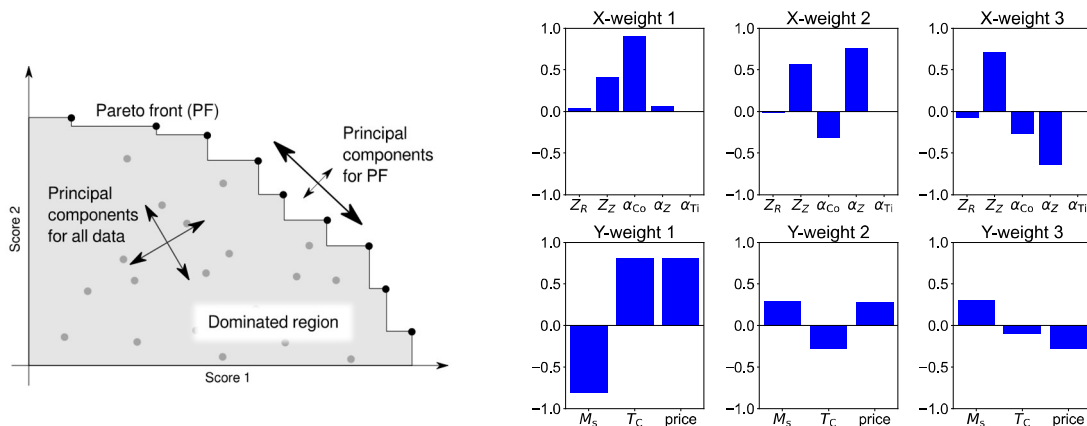


図 11：部分的最小二乗回帰による解析。パレートフロント上で、3 個の目的変数を最適化するため、変化させるべき 5 個の説明変数の線型結合を解析。

#### (b) 安定性の解析

ThMn<sub>12</sub> 型構造の RFe<sub>12</sub> は不安定で、バルクの安定相を形成するためには Ti 等の安定化元素を導入する必要がある。良い安定化元素の選択とその濃度を調べるため、SmFe<sub>12-αβ</sub>X<sub>α</sub>Y<sub>β</sub> を対象として調べた。ここで、X,Y={Mo, Zn, Co, Cu, Ti, Al, Ga}で、全 3024 組成の中から生成エネルギーの低い組成を探索する問題に取り組んだ (D.-N. Nguyen et al., MRS Bulletin 48, 1 (2023))。生成エネルギーの計算には、第一原理計算を用いた。1 ステップあたり、予測能力を改善するためのデータ 40 個と予測能力を確かめるためのデータ 60 個をサンプルし、探索効率を調べた。記述子には軌道場行列を用いた。その結果、予測能力を改善するためのデータとして、不確実性が大きなものや、ランダムサンプリングよりも、生成エネルギーの期待値が低いものを重点的に選んだ方が効率が高いことがわかった。また、メトリックラーニングにより、記述子の次元を削減すると探索効率が上がることもわかった。

(v) データ駆動手法を用いて第一原理計算や実験・計測データをデータマイニングすることにより、磁性に関する構造などの予測モデルを構築し、データ取得の効率化や構造理解を加速する。

協力機関 (再委託先)：国立大学法人東京大学総合文化研究科、協力機関代表者：福島孝治

(総括) データ駆動手法を用いて第一原理計算や実験・計測データをデータマイニングすることにより、磁性に関する構造などの予測モデルを構築し、マルコフ連鎖モンテカルロ法の活用により構造理解を行った。

(実施・検討内容)

#### (a) CaCu<sub>5</sub> 型構造クラスター展開モデルのマルコフ連鎖モンテカルロ法による安定構造探索

CaCu<sub>5</sub> 型の結晶構造である六方晶に対して、その格子点に R と T ダンベルの二種類の「原子」を配置する構造探索問題を扱った。ダンベルの割合と配置を設定した第一原理計算によられた形成エネルギーを 4 体項までに制限されたクラスター展開モデルで回帰した有効モデルは本プロジェクトで得られてお

り、そのモデルについてマルコフ連鎖モンテカルロ法を用いて、より大きなセルでの構造探索を行った。**SmFe** と **SmCo** の二種類の合金の計算では、どちらもダンベル密度  $x=1/2$  において、**ThMn<sub>12</sub>** 型構造が最安定構造であることがわかった。また、**SmCo** では、準安定状態として  $x=1/3$  近傍に非自明な構造が現れることを見出した。この構造はサイズの大きくなると顕著であり、かつ不規則な構造であり、乱れを含む安定化構造の存在が示唆される。

(b) 統計的機械学習の方法の進展と実験計測への応用

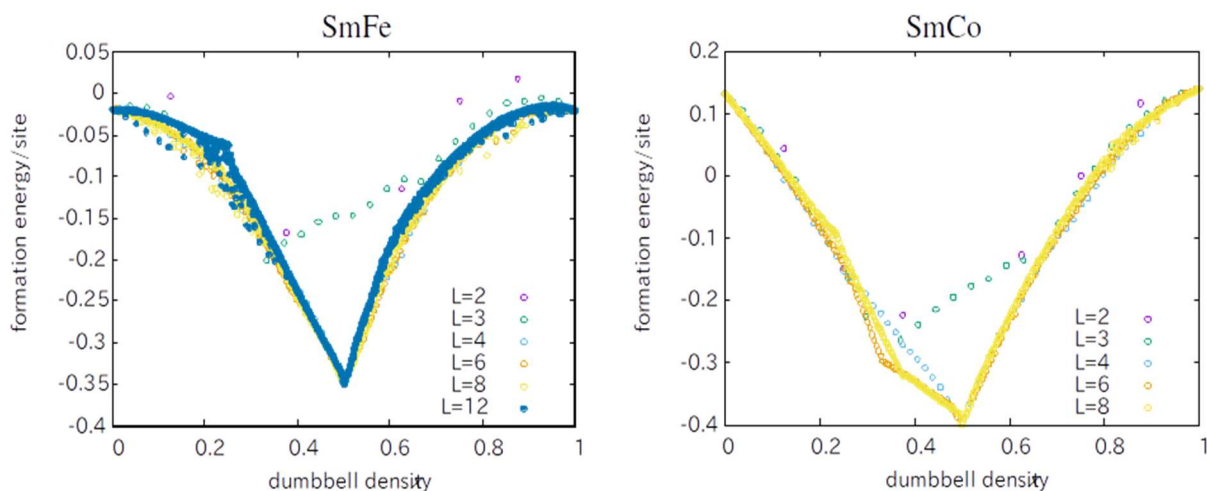


図 11 : **SmFe** (左) と **SmCo** (右) のサイズ  $L$  のクラスターにおける形成エネルギーのダンベル密度依存性。

統計的機械学習の様々な方法はデータ解析の要素技術として活用されている。その一つのスパースモデリングは実験計測の加速や重要変数の抽出に用いられている。標準的に利用される  $L1$  正則化に基づく LASSO は推定する際に誤検知の問題が本質的に内在することが指摘されてきた。ここでは馬蹄型事前分布を用いる方法により誤検知が改善し、ベイズ最適性に近い性能をしめすことが明らかになった。また、計測データの解析に関してベイズ統計とマルコフ連鎖モンテカルロ法の組み合わせによる応用研究を行った。(1)量子スピン系 **KCuPO** の磁化測定の結果から磁気的相互作用の大きさを評価することができた。特に、観測ノイズを適切に評価することにより、推定誤差も評価できたことは強調しておきたい。(2)回折データから表面構造を解析するソフト(2DMAT)を陽電子回折データに適用し、**SiC** 上の **SiON** の二次元表面の積層構造を決定した。(3)薄膜物質に対する X 線ラウエ振動と X 線透過率測定の結果を統合するベイズモデルにより膜厚などの基礎物性値を高精度で推定する枠組みを構築し、**FeSe** 薄膜に応用した。

(2) アプリケーションの普及

(i) 「MateriApps」の運用・整備

協力機関 (再委託先) : 国立大学法人東京大学物性研究所、協力機関代表者 : 福島鉄也

(総括)

「MateriApps」の運用・改善を行い、アプリケーションの効率的な開発および活用を促した。2022 年度、ポータルサイトは約 6,400 ユーザー/月のアクセス、約 18,000 件/月のページビューの実績を達成した。

「MateriApps」に加え、アプリケーションの公開を促進するため「MateriApps LIVE!」を提供している。さらに、Docker 利用により「MateriApps LIVE!」が最新版 Macintosh (M1、M2) においても動作するようにアップデートした。

(ii) コンピュータショナル・マテリアルズ・デザイン ワークショップ (CMD-WS) 等の開催

協力機関 (再委託先) : 国立大学法人大阪大学、協力機関代表者 : 佐藤和則

(総括)

第 41 回 CMD-WS (参加者 62 名) を令和 4 年 9 月 5 日から 9 月 9 日に、第 42 回 CMD-WS (参加者 42 名) を令和 5 年 2 月 20 日から 2 月 24 日までオンラインで実施し、アプリケーションの普及を行った。また、ベトナム Thu Dau Mot 大学 (2022 年 4 月 14~16 日、オンライン)、Malaysia Putra 大学 (2022 年 7 月 27~30 日、オンライン)、ベトナム Phenikaa 大学 (2022 年 11 月 9~12 日、ハノイ) で開催された Asia CMD Workshop では、計算機マテリアルデザインの基礎と最近の成果についてセミナーを行い、アプリケーションの普及を行った。

(実施・検討内容)

「アプリケーションの広報および維持・普及活動」として、阪大のグループを中心に、コンピュータショナル・マテリアルズ・デザイン (CMD) ワークショップを令和 4 年度中に 2 回開催した。オンライン開催のメリット (旅費など経済的な負担が少ない、遠方からの参加が容易) から、前年度に引き続きオンライン開催とした。Linux 環境に慣れている参加者に限定することで、計算環境の設定の不備による初歩的なつまづきをすくなくし、ハンズオンにできるだけ集中できるよう実施の工夫を行なった。当面の間継続する予定である。第 42 回で CMD ワークショップ開催 21 年となり、これまでの延参加人数は 2035 名となっている。以下に CMD41、42 について詳細を報告する。

第 41 回 CMD ワークショップは、令和 4 年 9 月 5 日から 9 月 9 日の日程でオンラインで実施した。今回はビギナーズコース (ABCAP、Machikaneyama、STATE-Senri) 33 名、アドバンストコース (A 群 [HiLAPW、RSPACE、Naniwa]、B 群 [Machikaneyama、ES-OPT、Salmon]、A、B 群からそれぞれ 1 つずつ選択) 8 名、スパコンコース (STATE-Senri) 9 名、スピントロニクスコース (講義 10 コマと上記アドバンストコースの B 群から 1 つ選択したコードについての実習) 4 名、マテリアルズインフォマティクスコース (CrySPY、LIDG) 8 名の参加者に対して講義と演習を行なった。全体講義は Webex を、コース毎の講義と実習は Zoom または Teams を用いて実施した。受講生からの質問やトラブル対応のためのコミュニケーションツールとして Slack を用いた。また、先端研究事例講師として、新屋ひかり (東北大通研助教)、Nguyen Thi Phuong Thao (阪大特任研究員)、榊原寛史 (鳥取大准教授)、江原正博 (分子研教授) の先生方を招待し講演していただいた。

第 42 回 CMD ワークショップは、令和 5 年 2 月 20 から 2 月 24 日の日程でオンラインで実施した。今回はビギナーズコース (ABCAP、STATE-Senri、Machikaneyama) 28 名、アドバンストコース (A 群 [HiLAPW、Naniwa-Series、FPSEID、RSPACE]、B 群 [Machikaneyama、Salmon、ES-OPT]、A、B 群からそれぞれ 1 つずつ選択) 3 名、スパコンコース (RSPACE) 3 名、スピントロニクスコース (講義 10 コマと上記アドバンストコースの B 群から 1 つ選択したコードについての実習) 4 名、マテリアルズインフォマティクスコース (CrySPY、LIDG) 2 名、エキスパートコース (受講生が研究課題を持ち寄りそれについての計算を CMD 期間中に実施する) 2 名の参加者に対して講義と演習を行なった。受講生の出席チェックや各自の実習状況

の把握は Slack を活用して行なった。今回は先端研究事例講師として、山内邦彦（阪大特任助教）、赤木和人（東北大 WPI 准教授）、宮崎剛（物材機構 MANA 主任研究者）の先生方を招待し講演していただいた。海外の大学および研究機関へのアプリケーションの広報・維持活動として、ベトナム Thu Dau Mot 大学（2022 年 4 月 14~16 日、オンライン）、Malaysia Putra 大学（2022 年 7 月 27~30 日、オンライン）、ベトナム Phenikaa 大学（2022 年 11 月 9~12 日、ハノイ）での Asia CMD Workshop に参加し、Machikaneyama、STATE-Senri、HiLAPW の基礎と最近の研究成果およびハンズオンコースを実施し、CMD についての情報発信を通してアプリケーションの普及活動を行なった。Phenikaa 大学での ACMD は対面での開催であった。

### (3) プロジェクトの全体推進

本事業（「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」、略称：DPMSD）の実施体制は図 12 の通りである。

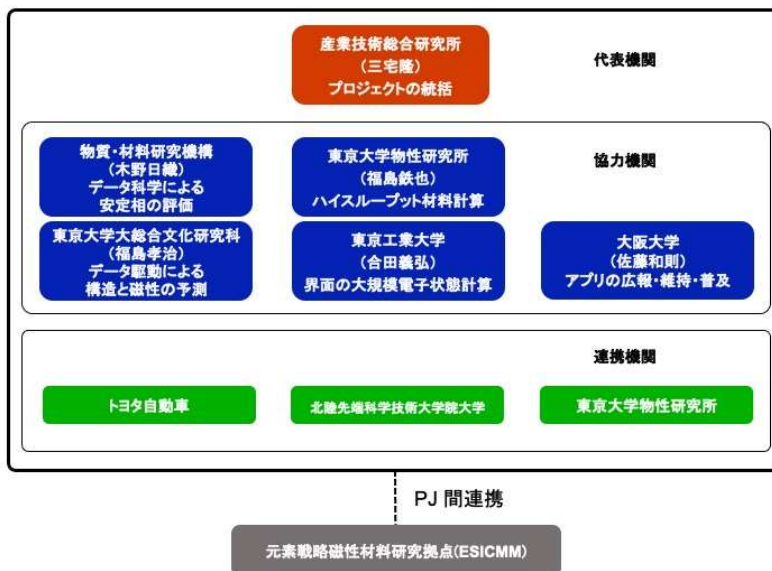


図 12：プロジェクトの実施体制。

事業を効率的に推進するため、プロジェクトの運営委員会を設置した。

<DPMSD 運営委員会メンバー>

研究開発課題責任者 三宅隆（産総研）

協力機関代表者 合田義弘（東工大）

協力機関代表者 木野日織（NIMS）

協力機関代表者 福島鉄也（東大物性研）

協力機関代表者 福島孝治（東大総合文化）

協力機関代表者 佐藤和則（阪大）

産学官連携担当 庄司哲也（トヨタ自動車）

アプリ普及担当 藤堂眞治（東大）

アドバイザー 赤井久純（東大物性研）

運営委員会を令和4年8月29日（火）、また、成果報告を第15回材料系ワークショップ（令和5年.2.26）、および令和4年度「富岳」成果創出加速プログラム研究交流会（令和5年.3.8）で行い、プロジェクト全体の管理・調整、全サブテーマに共通的な課題の推進支援を行った。また、データ創出・活用型マテリアル研究開発プロジェクト磁性課題（DXMag）理論計算グループと合同で進捗会を9回開催した（5/9, 6/6, 7/4, 8/1, 10/3, 11/7, 12/5, 2/6, 3/13）。

### 2-3. 活動（研究会の活動等）

〈成果報告会〉

令和4年8月29日（月）にオンライン開催。口頭発表6件、参加人数30名。

〈アプリケーションの普及〉

「2-2 実施内容（成果）（2）」に記載の通り、CMDワークショップの開催、および「MateriApps」の運用・整備を実施した。

- ・第41回CMD-WS（オンライン開催）：令和4年9月5日（月）-9月9日（金）（参加者62名）
- ・第42回CMD-WS（オンライン開催）：令和5年2月20日（月）-24日（金）（参加者42名）
- ・CMD広報および普及活動：ベトナム Thu Dau Mot 大学（2022年4月14~16日、オンライン）、Malaysia Putra 大学（2022年7月27~30日、オンライン）、ベトナム Phenikaa 大学（2022年11月9~12日、ハノイ）で開催された Asia CMD Workshop において Machikaneyama、STATE-Senri、HiLAPW の基礎と最近の研究成果についてのセミナー開催

〈ワークショップの共催・後援〉

材料系ワークショップ（RIST 主催）を共催した。

- ・第14回材料系ワークショップ（オンライン開催）：令和4年10月26日（水）
- ・第15回材料系ワークショップ（オンライン開催）：令和5年2月16日（木）

### 2-4. 実施体制

| 業務項目 | 担当機関 | 担当責任者 |
|------|------|-------|
|------|------|-------|

|                                    |   |       |
|------------------------------------|---|-------|
| (1) シミュレーションとデータ駆動手法による永久磁石研究(i)   | 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1<br>国立研究開発法人産業技術総合研究所<br>機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター | 三宅 隆  |
|                                    | 〒226-8502 神奈川県横浜市緑区長津田町 4259<br>国立大学法人 東京工業大学 物質理工学院                        | 合田 義弘 |
| (1) シミュレーションとデータ駆動手法による永久磁石研究(ii)  | 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1<br>国立研究開発法人産業技術総合研究所 機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター    | 三宅 隆  |
|                                    | 〒305-0044 茨城県つくば市並木 1-1<br>国立研究開発法人 物質・材料研究機構 統合型材料開発・情報基盤部門                | 木野 日織 |
| (1) シミュレーションとデータ駆動手法による永久磁石研究(iii) | 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1<br>国立研究開発法人産業技術総合研究所 機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター    | 三宅 隆  |
|                                    | 〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5<br>国立大学法人 東京大学 物性研究所                               | 福島 鉄也 |
| (1) シミュレーションとデータ駆動手法による永久磁石研究(iv)  | 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1<br>国立研究開発法人産業技術総合研究所 機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター    | 三宅 隆  |
| (1) シミュレーションとデータ駆動手法による永久磁石研究(v)   | 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1<br>国立研究開発法人産業技術総合研究所 機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター    | 三宅 隆  |
|                                    | 〒153-8902 東京都目黒区駒場 3-8-1<br>国立大学法人 東京大学 大学院総合文化研究科                          | 福島 孝治 |
| (2) アプリケーションの普及(i)                 | 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1<br>国立研究開発法人産業技術総合研究所 機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター    | 三宅 隆  |
|                                    | 〒277-8581 千葉県柏市柏の葉 5-1-5<br>国立大学法人 東京大学 物性研究所                               | 福島 鉄也 |
| (2) アプリケーションの普及(ii)                | 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1<br>国立研究開発法人産業技術総合研究所 機能材料コンピューテーショナルデザイン研究センター    | 三宅 隆  |

|                     |  |       |
|---------------------|--|-------|
|                     | 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1<br>国立大学法人 大阪大学 工学研究科マテリアル<br>生産科学専攻                  | 佐藤 和則 |
| (3) プロジェクトの全体推<br>進 | 〒305-8568 茨城県つくば市梅園 1-1-1<br>国立研究開発法人産業技術総合研究所 機能材料<br>コンピューテーショナルデザイン研究センター | 三宅 隆  |

## 別添 1 学会等発表実績

### 【論文（査読有）】

1) A first-principles study on the electrical conductivity of  $\text{Ag}_2\text{S}_{1-x}\text{Se}_x$  ( $x=0, 0.25, 0.5$ ): Electron-phonon coupling

H. N. Nam, K. Suzuki, A. Masago, T. Q. Nguyen, H. Shinya, T. Fukushima, and K. Sato

Applied Physics Letters **120**, 143903/1~6 (2022).

DOI: 10.1063/5.0086703

2) Explainable active learning in investigating structure-stability of  $\text{SmFe}_{12-a}\text{bXaYb}$  structures X, Y= {Mo, Zn, Co, Cu, Ti, Al, Ga}

Duong-Nguyen Nguyen, Hiori Kino, Takashi Miyake and Hieu-Chi Dam

MRS Bulletin **48**, 1-13 (2022).

DOI: 10.1557/s43577-022-00372-9

3) Direct and inverse magnetocaloric effects in FeRh alloy: A theoretical study

H. B. Tran, T. Fukushima, H. Momida, K. Sato, and T. Oguchi

Journal of Alloys and Compounds **926**, 166718/1~8 (2022).

DOI: 10.1016/j.jallcom.2022.166718

4) Pareto front analysis and multi-objective Bayesian optimization for  $(\text{R},\text{Z})(\text{Fe},\text{Co},\text{Ti})_{12}$  (R=Y, Nd, Sm; Z=Zr, Dy)

Taro Fukazawa and Takashi Miyake

J. Phys. Soc. Jpn. **92**, 014801-1~ 5 (2022).

DOI: 10.7566/JPSJ.92.014801

5) Prediction model of elastic constants of BCC high-entropy alloys based on first-principles calculations and machine learning techniques

G. Hayashi, K. Suzuki, T. Terai, H. Fujii, M. Ogura, K. Sato

Sci. Tech. Adv. Mat.: Methods **2**, 1, 381~391 (2022).

DOI: 10.1080/27660400.2022.2125853

6) Computational Materials Design (CMD®) Workshop: A Hands-on workshop of first-principles calculations online

Masaaki Geshi

Journal of Materials Education **44**, 3-4, 57-66 (2022).

7) Statistical-mechanical Study of Deep Boltzmann Machine Given Weight Parameters after Training by Singular Value Decomposition



Yuma Ichikawa and Koji Hukushima

Journal of Physical Society of Japan **91**, 11, 114001-1~ 13 (2022).

DOI: 10.7566/JPSJ.91.114001

8) Phase transition in compressed sensing with horseshoe prior

Yasushi Nagano and Koji Hukushima

Physical Review E **107**, 3, 034126-1~ 9 (2023).

DOI: <https://doi-org.utokyo.idm.oclc.org/10.1103/PhysRevE.107.034126>

9) Physics-informed machine learning combining experiment and simulation for the design of neodymium-iron-boron permanent magnets with reduced critical-elements content

A. Kovacs, J. Fischbacher, H. Oezelt, A. Kornell, Q. Ali, M. Gusenbauer, M. Yano, N Sakuma, A. Kinoshita, T. Shoji, A. Kato, Y. Hong, S. Grenier, T. Devillers, N. Dempsey, T. Fukushima, H. Akai, N. Kawashima, T. Miyake, and T. Schrefl

Frontiers in Materials **9**, 1094055/1~19 (2023).

DOI: 10.3389/fmats.2022.1094055

10) The role of electron-phonon scattering on thermoelectric properties of intermetallic compounds XSi (X = Co, Rh)

H. N. Nam, K. Suzuki, A. Masago, H. Shinya, T. Fukushima, K. Sato

Japanese Journal of Applied Physics **62**, 020904/1~6 (2023).

DOI: 10.35848/1347-4065/acb97a

11) Evidence-based data mining method to reveal similarities between materials based on physical mechanisms

Minh-Quyet Ha, Duong-Nguyen Nguyen, Hiori Kino, Yasunobu Ando, Takashi Miyake, Thierry Dencœux, Van-Nam Huynh, and Hieu-Chi Dam

J. Appl. Phys. **133**, 053904-1~13 (2023).

DOI: 10.1063/5.0134999

12) First-principles phonon calculations of neodymium-magnet compounds

Shunsuke Tsuna and Yoshihiro Gohda

Journal of Applied Physics **133**, 115103 (2023).

DOI: 10.1063/5.0142945

13) Structures of Sm-Cu intermetallics with Fe as subphase candidates in SmFe<sub>12</sub>-based permanent magnets studied by first-principles thermodynamics

S. Nishino and Y. Gohda

Japanese Journal of Applied Physics **62**, 3, 030902 (2023).

DOI: 10.35848/1347-4065/acc0b8

14) First-principles study on the stability of (R, Zr)(Fe, Co, Ti)<sub>12</sub> against 2-17 and unary phases (R=Y, Nd, Sm)

Taro Fukazawa, Yosuke Harashima, and Takashi Miyake

Phys. Rev. Mater. **6**, 054404 (2022).

DOI: 10.1103/PhysRevMaterials.6.054404

【論文（査読無）】

15) Computational materials design of high-entropy alloys based on FPKKR-CPA calculations and machine learning techniques

K. Sato, G. Hayashi, K. Ogushi, S. Okabe, K. Suzuki

accepted in Materials Transaction

16) Function Decomposition Tree with Causality-First Perspective and Systematic Description of Problems in Materials Informatics

Hiori Kino, Hieu-Chi Dam, Takashi Miyake, Riichiro Mizoguchi

arxiv.org **22**, 5, 00829-1~ 41

DOI: 10.48550/arXiv.2205.00829

【学位論文】

（修士）

17) 「ネオジム系磁石化合物におけるフォノン特性の第一原理計算による評価」

綱 駿介

東京工業大学（2023）

（博士）

18) 「馬蹄型事前分布を用いた圧縮センシングにおける信号復元相転移の統計物理学的解析」

長野 泰志

東京大学（2023）

19) 「テンソルくりこみ群の手法による古典フラストレート系の数値的研究」

吉山 幸太

東京大学（2023）

【口頭発表（招待講演）】

20) 「富岳」を用いた磁性材料の探索とデータ解析

福島鉄也

第2回「先読みシミュレーション工学」フォーラム「データサイエンスを活用した工学シミュレーション」

2022/4/1

21) Data-driven approach for predicting stability and magnetism of transition-metal alloys

Takashi Miyake

Psi-k 2022 conference (Lausanne/スイス)

2022/8/25

22) データ駆動手法がもたらす材料開発の革新と産学官連携

三宅隆

第 23 回グリーンナノフォーラム(大阪産業創造館／大阪府)

2022/9/22

23) 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

福島鉄也

日本磁気学会、第 238 回研究会

2022/10/22

24) Exploring the composition of disordered alloys

Takashi Miyake

The 23rd Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (オンライン開催)

2022/11/2

25) High-Performance Computing Infrastructure in Japan

Synge Todo

Chinese Physical Society Fall-Meeting 2022

2022/11/19

26) 材料開発のための機械学習入門

三宅隆

PCoMS 計算物質科学セミナー -計算科学とマテリアルデジタルトランスフォーメーション(DX)-(オンライン開催)

2022/12/13

27) 機械学習を活用した材料開発の現状と課題

三宅隆

PCoMS 計算物質科学セミナー -計算科学とマテリアルデジタルトランスフォーメーション(DX)-(オンライン開催)

2022/12/13

28) マテリアルイノベーションにむけた制度・拠点構築

JST-CRDS 科学技術未来戦略ワークショップ「マテリアルイノベーションを実現する先進的計算物質科学」

藤堂眞治

2023/2/4

29) 計算・実験連携によるデータ統合型磁性材料研究

三宅隆

第 16 回材料系ワークショップ(オンライン開催)

2023/2/16

【口頭発表、ポスター】

30) Magnetic Anisotropy Modulation at Co<sub>2</sub>FeSi/BaTiO<sub>3</sub> Interfaces: a First-principles Study

Amran Mahfudh Yatmeidhy, Rafael Costa-Amaral, and Yoshihiro Gohda

24th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (OIST)

2022/7/14

31) 薄膜 X 線回折と X 線反射率を組み合わせた膜厚のベイズ推定

崎下雄稀, 鍋島冬樹, 前田京剛, 福島孝治

日本物理学会 2022 年秋季大会 (東京工業大学大岡山キャンパス/東京都)

2022/9/12

32) 階層的な正則化による圧縮センシングにおける大域的分散パラメータの効果

長野泰志, 福島孝治

日本物理学会 2022 年秋季大会 (東京工業大学大岡山キャンパス/東京都)

2022/9/14

33) ランタン-ホウ素-水素系及びランタン-窒素-水素系における高圧安定相と超伝導相

石河孝洋, 三宅隆, 常行真司

第 63 回高圧討論会(立命館いばらきフューチャープラザ/大阪府)

2022/12/13

34) マテリアルズ・インフォマティクスによる磁石材料開発

三宅隆

2022 年度「富岳」成果創出加速プログラム研究交流会（オンライン開催）

2023/3/8

35) bcc 強磁性 Co<sub>3</sub>Mn 規則合金の磁気異方性及び安定性に関する第一原理計算

渡會亮太, Amran Mahfudh, Yatmeidhy, 合田義弘

日本金属学会 2023 年春期第 172 回講演大会（東京大学駒場キャンパス/東京都）

2023/3/8

36) The origin of magnetoelectric effect in BaTiO<sub>3</sub>-based multiferroic heterostructures considering the lattice domain modification.

Amran Mahfudh Yatmeidhy and Yoshihiro Gohda

日本金属学会 2023 年春期第 172 回講演大会（東京大学駒場 I キャンパス）

2023/3/9

37) 軽元素がネオジム磁石化合物のフォノン特性に及ぼす影響についての第一原理的研究

綱駿介, 合田義弘

日本金属学会 2023 年春期講演大会（東京大学駒場 I キャンパス/東京都）

2023/3/9

38) SmFe<sub>12</sub> 基新磁石材料の副相候補 Sm-Cu-Fe の安定構造評価

西野 颯馬、合田 義弘

日本金属学会 2023 年春期第 172 回講演大会（東京大学駒場 I キャンパス）

2023/3/10

39) 薄膜 X 線回折と X 線反射率を組み合わせたベイズ解析

崎下雄稀, 鍋島冬樹, 前田京剛, 福島孝治

第70回応用物理学会春季学術研究会（上智大学四谷キャンパス/東京都）

2023/3/18

40) First-principles study of magnetoelectric properties enhanced by lattice-domain modifications

Amran Mahfudh Yatmeidhy and Yoshihiro Gohda

APS March Meeting 2023 (online)

2023/3/20

41) 変分オートエンコーダーの汎化性能の統計力学的解析と正則化パラメータ依存性

市川佑馬, 福島孝治

日本物理学会 2023 年春季大会（オンライン）

2023/3/22

42) 進化的アルゴリズムによるランタン-ホウ素-水素系及びランタン-窒素-水素系における超伝導相の探索

石河孝洋, 三宅隆, 常行真司

日本物理学会 2023 年春季大会(オンライン開催)

2023/3/22

43) ネオジム磁石化合物におけるフォノン特性の第一原理研究

綱駿介, 合田義弘

日本物理学会 2023 年春季大会 (オンライン)

2023/3/24

44) Effect of lattice domain shape on the magnetic anisotropy of  $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{BaTiO}_3$  (001)

Amran Mahfudh Yatmeidhy and Yoshihiro Gohda

日本物理学会 2023 年春季大会 (オンライン)

2023/3/24

45) Co-Mn 規則合金の磁気異方性及び安定構造に関する第一原理計算

渡會亮太, Amran Mahfudh, Yatmeidhy, 合田義弘

日本物理学会 2023 年春季大会 (オンライン)

46) 馬蹄型事前分布を用いた圧縮センシングにおけるダンピング項の効果

長野泰志, 福島孝治

日本物理学会 2023 年春季大会 (オンライン)

2023/3/25

(ポスター発表)

47) Electric field dependence of anisotropic magnetoresistance in  $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{BaTiO}_3$  multiferroic interfaces

Shunsuke Tsuna, R. Costa-Amaral, and Yoshihiro Gohda

24th International Colloquium on Magnetic Films and Surfaces (沖縄科学技術大学院大学/沖縄県)

2022/7/12

48) 富岳におけるベイズ推定を用いた全反射高速陽電子回折(TRHEPD)のデータ解析

木下直希, 岩本晴道, 望月出海, 吉見一慶, 本山裕一, 中野陽斗, 寺地雄真, 福島孝治, 星健夫

日本物理学会 2023 年春季大会 (オンライン)

2023/3/22

【受賞】

49) 2023 OUTSTANDING REFEREES

木野日織

American Physical Society

2023/02

【広報活動等（ワークショップ・研究会等の開催）】

50) The 12th Asia CMD workshop

Thu Dau Mot University (Vietnam, Online)

2022/4/14-16

51) The 13th Asia CMD workshop

Malaysia Putra University (Malaysia, Online)

2022/7/27-30

52) 第 41 回 CMD ワークショップ

大阪大学 豊中キャンパス(オンライン開催)

2022/9/5-9 参加人数:62 名

53) CCMS Web ハンズオン: MateriApps LIVE!を用いた Quantum Espresso 講習会 (オンライン)

2022/9/22 参加人数:50 名

54) 第 14 回材料系ワークショップ

秋葉原 UDX, Zoom (ハイブリッド開催)

2022/10/26 参加人数:257 名

55) The 14th Asia CMD workshop

Phenikaa University (Vietnam)

2022/11/9-12

56) 第 15 回材料系ワークショップ

秋葉原 UDX, Zoom (ハイブリッド開催)

2023/2/16 参加人数:464 名

57) 第 42 回 CMD ワークショップ

大阪大学 豊中キャンパス(オンライン開催)

2023/2/20-24 参加人数:46 名