

# 研 究 報 告 書

## 「有効模型化を利用したマテリアルズインフォマティクス」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2015 年 12 月～2019 年 3 月

研 究 者: 是常 隆

### 1. 研究のねらい

本研究では、第一原理計算に基づく物質の有効模型化を利用した機能性物質設計を目指す。具体的には、物質構造データベースから有効模型のモデルパラメータに対するデータベースを作成し、この有効模型データベースを軸として実験データと有効模型、および物質構造と有効模型のデータ間の関連をデータ科学的手法を用いて解析する。これにより、古くから物性理論研究で行われてきた物質を有効模型で近似して実験データを解析するという手法と、データ科学の手法を融合した、新しい物質設計の道筋を確立することを目指す。

一般に物質設計を考えるには、物質構造から出発し、非経験的な手法を用いて物性を定量的に再現できることが重要となる。しかし、電子やスピンの物性を議論する際、第一原理計算のエネルギースケールで全てを扱うことは極めて難しい。例えば一般に物質のバンド構造は数十 eV 程度の範囲で多様な構造を持つが、室温以下の温度で実際に重要になるのはそのうち Fermi 面近傍わずか数十 meV 程度である。そのため近年このような低エネルギーの情報を正しく取り込んだ有効模型や有効パラメータの導出を行い、それにより物性を議論するということが盛んに行われている。さらに、新しい有効模型導出などの手法開発により第一原理計算をベースとして議論できる物性も次々拡張されてきている。このような状況下において、物質構造のデータベースや実験データなどの多量のデータをうまく活用した物質開発を目指すのであれば、まだ個別の物質にしか適用されていない有効模型化を様々な物質に適用し、有効模型のデータベースを作成しておくことは必要不可欠であるといえる。そこで、本研究では、まずこの有効模型データベースの作成を目指す。具体的には、既存の手法をベースに自動的に有効模型化するコードを開発し、さらに個々の物性に合わせた、新しい有効模型化の手法開発を進める。このような有効模型のデータベースを作成、整理し公開していくことは、今後の日本における物質設計研究の発展にも重要な役割を果たすと考えている。この有効模型データベースを軸にデータ科学の手法を適用して物質設計を目指すとともに、物質計算科学とデータ科学の融合による新分野開拓を進めていくことが本研究のねらいである。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

物質の電子状態を表現する有効模型のデータベースを作成するため、結晶構造データベースを元にバンドを表現するタイトバインディング模型、磁気的な性質を表す有効模型、電子格子相互作用の大きさを表すパラメータなどの自動生成環境を構築し、それらのデータベース化を行った。また、それらをもとに、超伝導転移温度、ジャロシンスキー守谷相互作用、異常ホール効果といった物性のデータベース構築も行い、実験グループと共同して物質探索を進めた。さらに、得られたタイトバインディング模型のデータから結晶中のスピン軌道相互作用

用の大きさの傾向を明らかにするなど、データ科学的な側面から有効模型データベースを活用し、物性の議論につなげるための研究も進めた。

## (2) 詳細

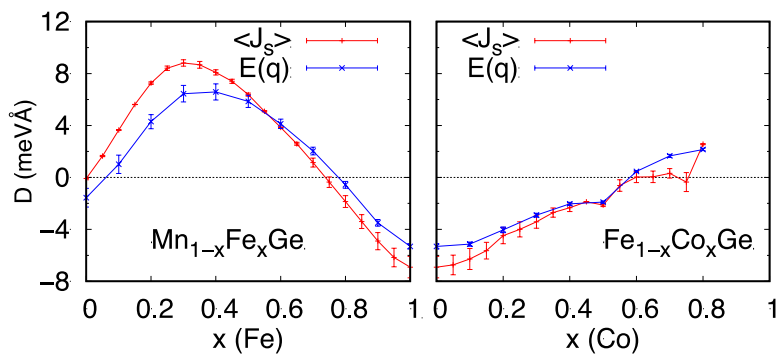
### 研究テーマA「第一原理計算に基づくタイトバインディング模型構築の自動化」

第一原理計算の結果を利用して、タイトバインディング模型を作るコードに wannier90 と呼ばれるコードがある。このコードを改良し、スピン軌道相互作用がある場合でも一般の擬ポテンシャルを利用できるようにすることで、任意の物質の計算に対応した。この wannier90 に関しては、他にも対称性を考慮したコードを実装するなどの開発に関わり、現在その成果が取り込まれた wannier90-2.1 がリリースされている。加えて、第一原理計算から wannier90 を利用するまでの流れを自動化することで、ハイスループットのタイトバインディング模型構築技術を確立した。その技術をもとに、結晶構造データベースからタイトバインディング模型のデータベースを構築した。その精度検証方法も用意し、精度的に問題ないデータとして現在、非磁性体で約 6000 個、強磁性体で約 2000 個のタイトバインディング模型が得られている。これは下記に上げる研究テーマや現在進めている様々な研究の基盤データになっている。

### 研究テーマB「ジャロシンスキー守谷相互作用の計算手法開発」

磁性体の有効模型として、交換相互作用を求める手法は様々な研究が行われているが、ジャロシンスキー守谷 (DM) 相互作用を求める手法に関しては、研究も少なく、系統的に様々な物質に適用できる状況ではなかった。そこで DM 相互作用を利用したスキルミオンを発現する物質探索を念頭に、この DM 相互作用の計算手法の開発を行った。得られた手法は、DM 相互作用が系のスピン流そのもので表される、という物理的に明快な意味を持ち、また、実験による DM 相互作用の符号変化を非常によく再現することが分かった (論文 2,5)。図は、スキルミオンが実現する物質として有名なカイラル強磁性体 FeGe の Fe を Mn あるいは Co に置換したときの DM 相互作用を表している。実験的には  $\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Ge}$  の  $x=0.8$  および  $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Ge}$  の  $x=0.6$  で DM 相互作用の符号が反転することが分かっており、実験を非常によく再現していることが分かる。また、 $\text{Co}_8\text{Zn}_8\text{Mn}_4$  に Fe をドーブした系についても実験的に観測された符号反転が理論的に再現できることが分かった。

この手法を用いると研究テーマAで得られたタイトバインディング模型から簡単に DM 相互作用が計算可能であるため、得られたタイトバインディング模型データベースに適用して DM 相互作用のデータベースを構築した。このデータベースは実験グループとも共有し、新しいスキルミオンを実現する物質の探索を進めている。



#### 研究テーマC「電子格子相互作用の効率的な計算手法開発」

フォノン媒介の超伝導の性質を定量的に議論するためには、電子格子相互作用を第一原理的に計算する必要がある。しかし、この電子格子相互作用の計算は一般に計算コストが非常にかかる上に、計算精度を得るための収束条件が厳しく、系統的な計算の適用が難しいという状況にあった。そこで、この問題を解決する効率的な電子格子相互作用の計算手法を開発した(論文 3)。この手法は個々の物質の計算も効率化するものであり、実際、計算コストの問題で収束が確認できなかった  $\text{LaO}_{0.5}\text{F}_{0.5}\text{BiS}_2$  という物質に本手法を適用することで、電子格子相互作用の値を見積もることが可能となった。さらに、この手法をデータベース上の物質に適用することで、電子格子相互作用のデータベース構築も進めている。

#### 研究テーマD「結晶中のスピン軌道相互作用の大きさ」

有効模型からスピン軌道相互作用の大きさを抽出することにより、各元素のスピン軌道相互作用が結晶中でどう変化するかを明らかにした。

結晶中におけるスピン軌道相互作用は、縮退していた状態の分裂や、ラッシュバ型のバンド構造の形成などバンド構造にも重要な寄与を与える。しかし、分裂の大きさといったバンド構造の詳細は、多くの場合、結晶場の大きさなどとの複合的な要因によって決まるため、バンド構造からスピン軌道相互作用そのものを求めることは難しい。今回、有効模型から系統的に結晶中のスピン軌道相互作用を求めることで、その値の大きさそのものと、それが何で決まっているのかという基本的な事柄が明らかになった。

### 3. 今後の展開

磁性体に関しては、現在データベース化した物質の中にも実際に調べられていないものが多くあり、実験グループとの共同研究による検証によって、さらなる物質開発が期待される。また、対象を強磁性体だけでなく反強磁性体にまで探索を広げるために、現在、反強磁性体のデータベース生成もさきがけ内共同研究として進めており、その成果を今回の有効模型データベース構築技術と連携することで、さらなる物質開発につながると考えている。一方、超伝導体に関しては、電子格子相互作用を計算可能な物質の数が限られており、機械学習による virtual screening がより重要になると考えている。いずれの場合にせよ、対象となる物質を限定せずに機械学習を行うには、背後にある物理を想定した上での特徴量の選択が極めて重要であり、そのためには有効模型のデータを学習の対象および特徴量生成の両面で最大限に活用すること

が大切になってくると考えている。結晶中におけるスピン軌道相互作用の傾向を明らかにしたのは、その第一歩であり、今後さらにそのような研究を進めていく予定である。このような物理的洞察をもとにした機械学習の精度向上とそれによる virtual screening により、探索範囲を広げ、新物質開発を加速させていきたい。

#### 4. 自己評価

有効模型データベースを構築するという当初の目的は概ね達成され、それを活用した研究も、まだ公開段階にはないものの様々な研究が現在進行形で進んでいる。なかでも、強磁性体データベースを活用することにより、室温で利用可能という実用上の制約のなかで、有用な物質の発見につながるなど物質設計としての成果もあがってきている。また、有効模型のハイスループット構築技術は個々の物質に対する研究の効率化にもなり、多くの重要な実験との共同研究にもつながるという利点もあった。一方、データ科学的手法の活用という意味では、まだ大きなインパクトを与えるような結果にまでは至っていない。データ科学的な結果をどの段階で成果として発表するか、という点に難しさもあった。ただ、現在手元に得られてきているデータは物理的に非常に重要なものばかりであり、現在公開準備中のものを含め、今後予想される成果は物質探索を大きく促進させる重要なものになると考えている。

#### 5. 主な研究成果リスト

##### (1) 論文(原著論文)発表

- |  |
|--|
| 1. W. Sano, T. Koretsune, T. Tadano, R. Akashi, and R. Arita, Effect of Van Hove singularities on high- $T_c$ superconductivity in H <sub>3</sub> S, Phys. Rev. B 2016, 93 094525-1 – 094525-16                                |
| 2. T. Kikuchi, T. Koretsune, R. Arita, G. Tatara, Dzyaloshinskii-Moriya Interaction as a consequence of a Doppler shift due to spin-orbit-induced intrinsic spin current, Phys. Rev. Lett. 2016, 116, 247201-1 – 247201-6      |
| 3. T. Koretsune, R. Arita, Efficient method to calculate the electron-phonon coupling constant and superconducting transition temperature, Comp. Phys. Comm. 2017, 220, 239-242  |
| 4. M. Ikhlās, T. Tomita, T. Koretsune, M.-T. Suzuki, D. Nishio-Hamane, R. Arita, Y. Otani and S. Nakatsuji, Large anomalous Nernst effect at room temperature in a chiral antiferromagnet, Nature Physics, 2017, 13, 1085-1090 |
| 5. T. Koretsune, T. Kikuchi, R. Arita, First-principles evaluation of the Dzyaloshinskii-Moriya Interaction, J. Phys. Soc. Jpn., 2018, 87 041011-1 – 041011-8  |

##### (2) 特許出願

研究期間累積件数: 0 件 (公開前の出願件名については件数のみ記載)

##### (3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

主要な学会発表(招待講演)

1. "First-principles study of Dzyaloshinskii-Moriya interaction", EU-JAPAN Workshop on Computational Materials Design and Realization for Spintronics, Moltronics, Quantronics,

Superconductivity and Topotronics, Jülich, Germany, 2016. 9. 20

2. "Ab-initio Eliashberg Approach for Superconductivity in Sulfur Hydrides", ICCPX, Macao, China, 2017. 1. 18

3. "First-principles calculation of Dzyaloshinskii-Moriya interaction", International workshop on computational science 2017, Kanazawa, 2017. 2. 17

4. 「分子性固体における第一原理計算の基礎と応用」有機固体若手の会冬の学校, 湯河原, 2017. 3. 9

5. "First-principles study of Dzyaloshinskii-Moriya interaction", CEMS Topical Meeting on Emergent 2D Materials, RIKEN Jul. 20 2017

#### 著作物

是常 隆、菊池 徹、有田 亮太郎、「ジャロシンスキー守谷相互作用の第一原理計算」固体物理 Vol. 52 No. 11 (2017) 671-681