

研究終了報告書

「多極子理論とデータ科学の融合による物質設計」

研究期間: 2017 年 10 月～2021 年 3 月

研究者: 鈴木 通人

1. 研究のねらい

本研究のねらいは、多極子理論と群論を応用した磁気構造解析手法であるクラスター多極子法(Suzuki *et al.*, *Phys. Rev. B* (2017))とデータ科学手法を融合させた研究手法の開発により、磁性体の新しい物質設計手法の枠組みを構築することにある。結晶に対称性の観点から適合する磁気構造を生成する理論を発展させ、それら生成磁気構造を第一原理計算の全エネルギー評価によってスクリーニングすることで、結晶構造データベースと連携した第一原理計算による安定磁気構造のデータベース化に取り組む。クラスター多極子が磁性に由来するマクロ物性を特徴づける量となっている点を活用し、構築した磁気構造データベースをもとに、第一原理計算による伝導・分極の計算からクラスター多極子と諸物性の相関データを蓄積し、磁気構造・物性データベースを活用したマテリアルズ・インフォマティクスに基づく新しい物質設計手法を構築する。

2. 研究成果

(1) 概要

磁気構造の多極子展開による解析手法であるクラスター多極子法(M.-T. Suzuki *et al.*, *Phys. Rev. B* **95**, 094406 (2017))を一般化することで、結晶構造に対称性の観点から適合する磁気構造を自動生成する理論を発展させた[1]。この磁気構造生成手法と第一原理計算の全エネルギー評価による安定磁気構造のスクリーニングを活用し、実験的に磁気構造が確定しない組成を多く持つアンチペロブスカイトマンガン窒化物 Mn_3AN の反強磁性相の異常ホール効果の解析を実施し、これらの化合物において異常ホール伝導度を増強する要因を明らかにしている[2]。また、中性子散乱実験によって同定された磁気構造のデータベースであるMAGNDATA上の磁気構造データと第一原理計算によって得られる安定・準安定磁気構造を系統的に比較解析することで、第一原理計算の基本近似に基づく磁気構造スクリーニングのベンチマーク計算を実施し、磁気構造の予測性能などを議論している[3]。

さらに磁気構造データベースの構築手法として、上述の磁気構造のスクリーニング手法をジョブスケジューリングの自動化ライブラリ、エラーハンドリングライブラリ、物性解析ライブラリなど、最新のPythonライブラリを活用して管理・実行し、自由度の高いデータ設計が可能なNoSQLデータベース(MongoDB)のもとでデータを蓄積する、磁気構造のハイスループット第一原理計算システムを開発した。

(2) 詳細

研究テーマ A 「磁気構造の表現基底データベースの作成」

本研究では、結晶構造に
対称性の観点から適合する
磁気構造を自動的に生成す
るクラスター多極子法によ
って物質構造データベースの
結晶構造を解析していき、そ
れぞれの結晶構造上で独立
な磁気構造基底を生成する
理論の構築をもとにそのデ
ータベース化に取り組んだ。
クラスター多極子法による磁
気構造生成の理論基盤を整

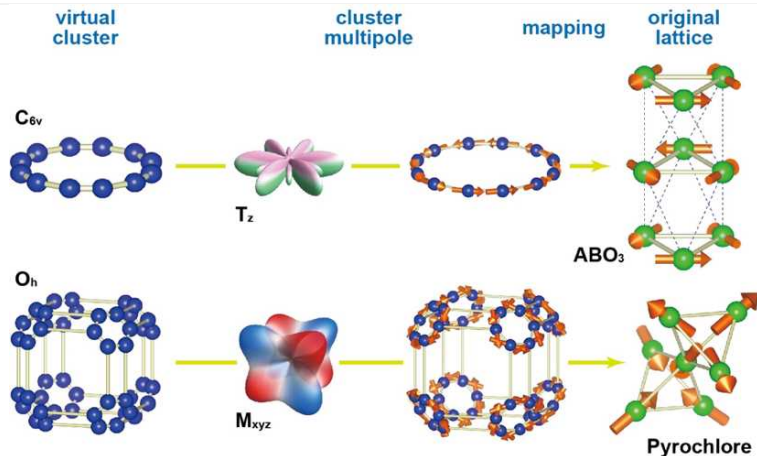


図 1 クラスター多極子法による磁気構造生成

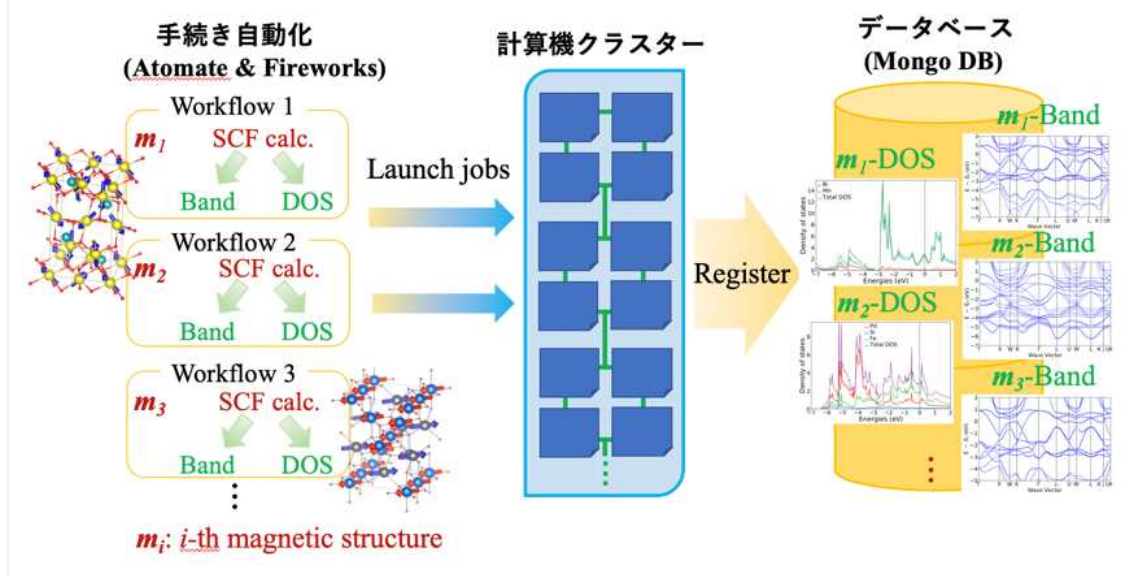
理し(図1)、その具体的な生成手法を論文としてまとめている[1]。本論文は、Physical Review B の Editors' Suggestion に選ばれている。本研究プロジェクトでは本理論をさらに拡張し、有限の波数ベクトルによって特徴づけられる、結晶周期よりも長い周期の結晶適合磁気構造の生成理論へと拡張することに成功し、そのためのプログラムも開発している。この磁気構造生成プログラムをもとに、結晶構造データベース(ICSD)による結晶構造情報の取得から高対称磁気構造の生成を自動化する、磁気構造基底の生成システムを構築している。また、有限秩序ベクトルによる磁気構造生成理論を発展させ、より複雑な磁気構造の解析を可能にしている。

研究テーマ B 「安定・準安定磁気構造データベースの作成」

クラスター多極子法によって生成された磁気構造基底の線形結合から高対称な磁気構造を網羅的に生成し、第一原理計算の全エネルギー評価に基づいて安定・準安定磁気構造をスクリーニングするシステムの開発に取り組んだ。この第一原理計算による磁気構造のスクリーニング手法をもとに、アンチペロブスカイトマンガン窒化物 Mn_3AN ($A=Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, Pd, In, Sn, Ir, Pt$) の安定磁気構造と反強磁性異常ホール効果について解析を行い、いくつかの物質において異常ホール効果を発現する磁気構造が安定化することを示し、その磁気秩序下において有限となる異常ホール伝導度の系統的な解析によって、これらの化合物・磁気構造で異常ホール伝導度を増強する要因を明らかにした[2]。また、中性子散乱実験によって同定された磁気構造のデータベースである MAGNDATA の磁気構造データと磁気構造スクリーニングから得られる安定・準安定磁気構造の系統的な比較・解析をもとに、磁気構造の周期が結晶周期を破らない磁気秩序を対象に、第一原理計算の基本近似である一般化勾配近似(Generalized Gradient Approximation, GGA)による磁気構造の予測性能のベンチマーク計算を実施し、磁気構造に対する予測性能を評価している[3]。本研究ではさらに、このハイスループット第一原理計算システムをジョブスケジューリングの自動化ライブラリ(Atomate, Fireworks)、エラーハンドリングライブラリ(Custodian)、物性解析ライブラリ(Pymatgen, Spglib)などの最新の Python ライブラリを活用してシステム化し、柔軟なデータ設計が可能な NoSQL データベース(MongoDB)におけるデータ蓄積を自動化した、磁性体のハイスループット第一原理計算システムを開発している。

研究テーマC「機械学習による伝導・分極現象の物質設計フレームワークの構築」

磁気構造データベースを活用した機械学習による伝導・分極現象の物質設計のフレームワークを構築するため、磁気構造の多極子表現手法による特徴量の設計や教師データとして用いる輸送係数・応答関数の計算の自動化に取り組んだ。有限の秩序ベクトルによって特徴づけられる磁気構造のような、複雑な磁気構造を多極子展開によって表現するにあたり、結晶軸の取り方や結晶中の原点の選び方が異なる等価な磁気構造を正しく表すデータ表現手法の必要性など、技術的な問題に直面したが、本プロジェクトの研究を通してそれらの問題に解決方法を見いだしている。また、第一原理計算をもとに異常ホール伝導度や熱伝導度などの線形応答関数を計算するため、本さがけ領域の是常隆氏（東北大）との共同研究によって、ハイスループット計算の枠組みに有効タイトバインディング模型の自動構築手法を組み込むなど、磁性体の磁気構造解析から物性解析を自動化するシステムを構築している。



3. 今後の展開

本研究プロジェクトにおける研究を通して開発した磁気構造のハイスループット第一原理計算システムは、磁気構造が実験的に定まっていない磁性体を含めた物質探索を可能にする革新的な理論ツールであると考えます。今後はこの第一原理ハイスループット計算をもとに、磁気構造・物性現象・トポロジーなど、各種物性の解析に適した磁気構造データベースの構築をもとに、大規模データを活用した研究を展開していく予定である。また、本研究プロジェクトにおける機械学習の試行段階で、磁性体の物性を支配する磁気構造を記述子化するにあたって、結晶中に起因する磁気構造の表現方法の不定性をうまく取り込んだデータ表現手法が必要であることが明らかになったため、今後の研究で、磁気構造のデータ表現手法の理論進展を目指した理論研究を発展させる。

4. 自己評価

本研究プロジェクトの当初目標として、磁気構造生成と第一原理計算による磁気構造データベースの構築とクラスター多極子を記述子とする機械学習による磁性体の物質設計手法の開発を挙げていた。

磁気構造データベースの構築に関しては、独自の磁気構造生成手法に関する理論、また、その磁気構造生成理論と第一原理計算による磁気構造スクリーニング手法を応用した物性研究や第一原理計算手法の研究などで論文を出版し、研究の蓄積を通して得られた経験をもとに、現代的なジョブ管理ライブラリのもとでシステム化した、磁気構造のハイスループット第一原理計算システムを開発するなど、その目的の多くを達成することができたと考えている。磁気構造データベースの公開も目標としていたが、理論とプログラムの構築に予想以上の時間がかかり、研究期間内の達成が困難となった点については、当初の研究計画に甘さがあったと考える。機械学習による磁性体の物質設計手法については、マテリアルズインフォマティクス研究領域における共同研究を通して、上記のハイスループット第一原理計算に有効タイトバインディングモデルの自動生成を組み込むなど、一定の進捗が得られているが、磁気構造の記述子化において、結晶構造の周期性に由来するデータ表現法の不定性などの技術的な問題に直面し、進捗が遅れている。この点に関しては理論面での進展を得ており、今後も継続して研究に取り組む。

本研究プロジェクトの研究を通して、磁気構造生成理論の発展やハイスループット第一原理計算システムの開発など、多くの研究資産を獲得することができた。ハイスループット第一原理計算システムの開発過程では、多くの共同研究者の参画を得たため、今後継続的に取り組む予定である、磁性体のマテリアルズ・インフォマティクス研究を発展させるための盤石な研究体制を築くことができたと考えている。これらの研究の進展状況を勘案し、自身として、大きな研究資産とマテリアルズ・インフォマティクス研究の盤石な研究体制を築けたことは高く評価できる。一方で、機械学習による物質設計の研究はプロジェクト期間中に出版などの形をとることを目標としていたが未達の状態にあり、当初研究計画における進展は遅れた。この点、期間中に構築した研究体制のもとで、今後も継続的に研究を発展させ、研究成果として形にすることを目指す。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 8件

1. M.-T. Suzuki, T. Nomoto, R. Arita, Y. Yanagi, S. Hayami, H. Kusunose, “Multipole expansion for magnetic structures: A generation scheme for symmetry-adapted orthonormal basis set in crystallographic point group”, Phys. Rev. B, 2019 年, **99**, 174407/1-10, Editors’ Suggestion に選出。

本研究課題の基盤理論として用いている、与えられた結晶構造に適合する磁気構造を自動生成する方法に関する理論(クラスター多極子法)をまとめた論文である。多極子理論と群論を応用し、対称性によって分類された磁気構造とそれに対応する秩序パラメータを系統的に生成する方法を与え、具体的な結晶構造に対する適用例を議論している。本論文は査読者からの高い評価を得て Physical Review B の Editors’ Suggestion に選出されている。

2. V. T. N. Huyen, M.-T. Suzuki, K. Yamauchi, T. Oguchi, “Topology analysis for anomalous Hall effect in the noncollinear antiferromagnetic states of Mn_3AN ($A = Ni, Cu, Zn, Ga, Ge, Pd, In, Sn, Ir, Pt$)”, Phys. Rev. B, 2019 年, **100**, 094426/1-9, 責任著者

本論文ではクラスター多極子法をもとに、多くの原子組成で磁気構造が確定していない、マンガ窒化物の反強磁性異常ホール効果に関する研究成果を報告している。本研究によっ

てマンガン窒化物の反強磁性相の磁気構造を予測し、安定化する磁気構造が異常ホール効果を発現する可能性を指摘し、詳細な電子構造とトポロジーの解析から本物質群において大きな異常ホール効果が生じる組成とそのメカニズムを明らかにしている。

3. Marie-Therese Huebsch, Takuya Nomoto, Michi-To Suzuki, Ryotaro Arita, “Benchmark for Ab Initio Prediction of Magnetic Structures based on Cluster Multipole Theory”, Phys. Rev. X , 2021 年, 11, 011031/1-25

クラスター多極子法と第一原理計算を組み合わせた磁気構造の予測スキームを構築し、実験による磁気構造データベースである MAGNDATA を対象に、予測スキームのベンチマーク計算の結果を報告している。論文ではクラスター多極子法で生成される磁気構造、第一原理計算による安定磁気構造、実験で決定された磁気構造の類似性を定量化することでデータベースの系統的な解析を行い、上記の予測スキームの高い予測性能を示している。

(2) 特許出願

該当なし

(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)

1. Journal of the Physical Society of Japan 2019 Highly Cited Article, “First-principles Theory of Magnetic Multipoles in Condensed Matter Systems”, Michi-To Suzuki, Hiroaki Ikeda, and Peter M. Oppeneer, J. Phys. Soc. Jpn. **87**, 041008 (2018)
2. 第 12 回 日本物理学会若手奨励賞(領域8), 「固体中の多極子自由度の第一原理計算による研究」(2018 年)
3. Order parameter and Topological features for Large Anomalous Hall Effect, International Conference on Topological Materials Science 2019 (Topomat2019), 2019 年 12 月 3-7 日 (発表:6 日), 京都大学(京都)
4. Multipole expansion for magnetic structures and its application to the study of anomalous Hall effect in antiferromagnets, International Conference on Strongly Correlated Electron Systems 2019 (SCES2019), 2019 年 9 月 23-28 日 (発表:28 日), 岡山コンベンションセンター(岡山)
5. Topology and multipole inducing intrinsic anomalous Hall effect in antiferromagnets, Second TMS-PKU alliance workshop, 2018 年 9 月 25-28 日 (発表:25 日), Beijing University (Beijing), 招待講演
6. 「理論計算による高効率な磁気構造予測手法の開発に成功」, 2021 年 2 月 18 日 プレスリリース