

令和 6 年 6 月 17 日現在

機関番号：28003

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04630

研究課題名(和文) 計算科学と機械学習の組み合わせから紐解く永久磁石材料の電子論

研究課題名(英文) Electron theory of permanent magnet materials through the combination of computational science and machine learning

研究代表者

立津 慶幸 (Tatetsu, Yasutomi)

名桜大学・健康科学部・上級准教授

研究者番号：70833911

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：様々な電子機器の駆動部分に利用されている永久磁石は、Society5.0の実現に向け需要の拡大が予想されており、その高性能化と新たな磁石材料探索が求められている。本研究では、計算科学的手法による磁石の高性能化に焦点をおいた。成果として、永久磁石界面構造作成プログラムや計算に必要なファイル等を自動で作成・処理するためのプログラムを作成・整備できたこと、また、ニューラルネットワークの技術を用いて構成されたモデルポテンシャルを活用することで磁石のバルク物質への計算精度を検証し、第一原理計算の計算結果をよく再現することを明らかにした。今後も引き続き精度検証を行うことで、機械学習の適用可能性を探る。

研究成果の学術的意義や社会的意義

永久磁石の弱点として、高熱領域ではその性能が著しく低下することが知られているが、実験的にその要因を直接観測することは困難であるため、その詳細な理由は分かっていない。このため、計算物質科学的手法を用いて磁石内部の電子分布を調べることによって性能低下の原因を探ることができれば、材料開発の分野に大きく貢献する事が期待できる。電子分布を調べる手法の一つである第一原理計算はコスト(長時間の計算時間)がかかるため、比較的少ない計算時間で同様の結果が得られる機械学習的手法を確立することができれば、理論的な立場から実験研究への迅速なフィードバックが期待できる。本研究では、その精度の検証を進めた。

研究成果の概要(英文)： Permanent magnets, widely used in the drive systems of various electronic devices, are anticipated to see an increase in demand as we move towards Society 5.0. This necessitates the development of high-performance permanent magnets and the exploration of novel magnetic materials. This research focused on the high-performance design of magnets using computational science techniques. We have successfully developed a permanent magnet interface structure creation program and some computational programs which generate some necessary files for calculations automatically. Furthermore, we have employed a neural network-based model potential to enhance the computational accuracy of bulk magnetic materials. This approach has demonstrated remarkable agreement with first-principles calculations, establishing its validity for predicting the properties of permanent magnets. We will thoroughly evaluate the model's accuracy and integrate machine learning techniques to drive further research.

研究分野：第一原理計算

キーワード：第一原理計算 永久磁石 機械学習 新奇磁性物質

1. 研究開始当初の背景

Society5.0 の提唱にともない、クリーンなエネルギー材料を用いた自動化技術のさらなる発展に注目が集まっており、ロボットやハイブリッド車の普及が一層高まることが予想される。これら電子機器の駆動部分の多くはモーターが搭載されているため、その基盤である希土類永久磁石の高性能化は、今後の需要拡大に応えるためにも、必要不可欠な研究課題である。

希土類永久磁石の弱点として、高温領域における性能低下が長年議論されており、その中でも磁石の性能指数である保磁力向上を達成するための物理的機構を明らかにすることは、課題解決に向けた大きな指針となる。一般に、物質の物理的機構の理解には着目する物質内部の電子状態を明らかにする必要があるが、磁石は金属間化合物であることから内部は複雑な構造を有する材料特有の問題も絡み、実験的な電子の直接観測は困難である。したがって、希土類永久磁石の高性能化の理解を深めるためには、量子力学を考慮した物理的コンピューターシミュレーションによる電子論的研究が保磁力機構を理解するうえで非常に有効である。

我々はこれまで、物質内部の電子状態を高精度に計算する手法の一つである第一原理計算を用いることで、希土類永久磁石内部の電子構造を明らかにしてきた。特に、永久磁石内部で必然的に発生する主相(希土類磁性化合物)・副相(アモルファスまたは規則合金)界面のモデル構造を仮定し、界面近傍の電子状態を解析することで、保磁力低下の原因となる要因をいくつか割り出すことに成功した(Phys. Rev. Appl. 6, 064029, 2016)。また、希土類永久磁石の代表であるネオジウム磁石に関し、その主相における B(Boron)の役割を電子論的に考察した。その結果、B は磁気特性を上げる効果はなく、むしろ $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ という構造を安定化させるために重要な元素であることを明らかにした (Phys. Rev. Mater. 2, 0744100, 2018)。この成果により、計算科学的手法による永久磁石材料の電子論の重要性を確認することができた。また、合金の不規則性を再現するための計算手法である Special quasirandom structures(SQS)を用いることにより、磁性元素を含んだ合金の安定性に関しても研究を進めた(Apl. Phys. Express 13, 017006, 2020)。

2. 研究の目的

本研究では、永久磁石内部の複雑な主相・副相界面に対し第一原理計算を実行し、界面近傍の構造、保磁力、磁気異方性などの詳細な解析を進めることで、理論的な立場から電子状態を明らかにすることを目的とする。第一原理計算を用いた界面計算は比較的大規模な系となることから、計算の収束に最適なパラメーター決定を網羅的に実施する。また、これまでに見つかっていない磁性物質の探索を実施するほか、コンピュータープログラム開発を行うことで、効率的な界面構造の作成や、解析プログラムの整備を目指すとともに、近年物理学の分野でも応用が期待される機械学習的手法の有用性も同時に検証したい。

3. 研究の方法

希土類永久磁石の中でも、現時点で最強のネオジウム磁石を主な対象物質として研究を進める。ネオジウム磁石の界面は、主相である磁性化合物とアモルファスまたは結晶合金である副相で構成される異相界面であり、複雑な構造である。異相界面を構築するためのコンピュータープログラムはインターネット上に公開されていないため、独自に作成し研究を進める。また、考慮する界面系の計算は、研究室のクラスターマシンでは対応できない計算規模であるため、東京大学物性研究所スーパーコンピュータの共同利用も活用するとともに、大規模系で高速計算が可能な Order (M)法を用いて系の収束性を確かめる。その他、新しい磁性化合物の安定性に関する解析も同時に進めることで、磁石材料の電子論的考察を行う。

4. 研究成果

< 永久磁石研究に対する計算プログラムの整備 >

研究を効率的に実施するため、異相界面を構築するコンピュータープログラムの開発を進めた。異なる物質で構成される異相界面においては、格子のミスマッチに注意を払う必要があるが、格子のミスマッチを小さくした場合、モデル構造が有するユニットセル内の原子数が非常に大きくなる可能性が有り得る。そこで、構築したプログラムでは、閾値となる格子ミスマッチの値を設定し、閾値以下であれば異なる原子数を有するいくつかのモデル構造を全て出力できるようにした。このように設定することで、可能な限り少ない原子数で構成される界面構造の計算を実施できるほか、異なる界面構造間における磁気異方性を比較することが可能となった。Order (M)法を用いた際の適切なパラメーターを決めるため、主相のみのケースでは比較的適切と思われるパラメーターをいくつか設定することができたが、同様のパラメーターを異相界面に適用した場合、計算規模の関係と界面という複雑な構造を反映しているためか、系の収束性がかなり悪いことが確認された。特に、界面近傍の磁気モーメントの値が収束に影響を与えているケースが多いことが理解されたが、最終的に安定な構造を複数得るには至っていないため、今後の研究により詳細を明らかにしていく。

<新規磁性物質の構造安定性>

近年、比較的安価な元素を活用した新しい磁性物質の探索が理論・実験の双方向から盛んに研究されている。その理由として、主に産業応用で活用される希土類永久磁石は、海外に偏在する希少金属を活用しているため地政学的な影響を受けやすいことが挙げられる。ほかにも、熱力学的安定相のみならず準安定相まで含めた新規材料探索にも注目が集まっており、化学合成プロセス技術の進歩も重なって、ナノスケールレベルで原子をコントロールすることにより新奇相を見出す材料研究がここ数年発展してきている。本研究では、希土類永久磁石の内部構造に関する研究以外にも、新たな磁性物質探索に関する研究を進めた。共同研究を進めている京都大学の実験グループでは、 $L1_2$ 型構造を持つ Fe-Pd 二元合金ナノ粒子に対し元素間相溶性を考慮した第三元素である In を微量に添加することで非平衡の Z3 型構造の形成が見いだされた。この新奇合成された磁性ナノ粒子合金安定性を解明するため、SQS の手法により得られた異なる添加量の構造に対し第一原理計算を進めた結果、実験結果を合理的に説明する結果が得られ論文として発表した(Nature Commun., 13, 1047, 2022)。第三元素である In 以外にも、Z3 型構造を安定化する元素を調べるため、12~14 属の金属元素(Zn, Ga, Ge, Cd, Sn, Hg, Tl, Pb)を $L1_2$ 型と Z3 型構造にそれぞれ導入し、形成エネルギーを比較した。この結果、Cd, Hg, Tl, Pb を微量に導入したときは Z3 型構造がより安定になることが理解された(図 1 参照)。

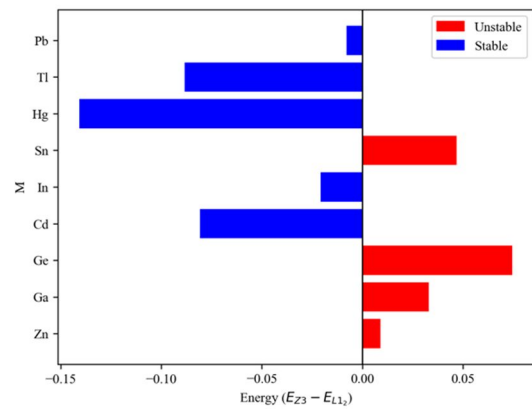


図 1 : M 元素を Z3 または $L1_2$ 型構造に微量添加した際の形成エネルギーの比較

<ニューラルネットワークポテンシャルの精度検証>

最終年度では、永久磁石材料の主相である一連の希土類化合物と、上記の共同研究グループにより実験的に合成された新奇磁性ナノ粒子に対し、ニューラルネットワークの技術を用いて構成されたモデルポテンシャルを適用し、これらの構造最適化後の形成エネルギーを計算し、安定性を調べた。第一原理計算で厳密に得られる最安定構造と、モデルポテンシャルにより得られた最安定構造に対し、各物質の形成エネルギーを求め、比較を行ったところ、モデルポテンシャルを活用した計算結果は第一原理計算の計算結果をよく再現することが明らかになった。一方、原子番号が比較的大きな元素を含む構造に対しモデルポテンシャルを適用した場合は、第一原理計算の形成エネルギーと反対の傾向が出るケースが見られることから、適用する際には第一原理計算との整合性を確認する必要があることも明らかになることができた。

モデルポテンシャルを活用した計算は、第一原理計算に比べ圧倒的に短い時間で計算ができるというメリットがある一方で、出力された結果を第一原理計算のそれと比較する際には一手間必要である。そのため、第一原理計算と直接比較検証が行えるよう、入力ファイルの自動生成プログラムや解析プログラムを独自に作成・改良を行うことで、効率的に研究を実施する環境を整備できたことは大きな成果である。本研究期間で実施した永久磁石材料界面の第一原理計算は、電子状態の収束が非常に難しい系であることが確認されたため、今後はいくつかの界面構造にモデルポテンシャルを適用し、その精度検証を行うことで、時間の大幅短縮の可能性、構造安定性を探るとともに、第一原理計算との比較検証も実施していく。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

| | |
|--|-----------------------|
| 1. 著者名 立津 慶幸, 原嶋 庸介, 三宅 隆, 合田 義弘 | 4. 巻 17 |
| 2. 論文標題 電子論で探るNd-Fe-B磁石主相における軽元素の役割 (特集 軽元素を利用した磁性材料研究の新展開) | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 まぐね(Magnetics Japan) | 6. 最初と最後の頁 102-108 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|--------------------|
| 1. 著者名 Kenshi Matsumoto, Ryota Sato, Yasutomi Tatetsu, Ryo Takahata, Seiji Yamazoe, Miho Yamauchi, Yuji Inagaki, Yoichi Horibe, Masaki Kudo, Takaaki Toriyama, Mitsunari Auchi, Mitsutaka Haruta, Hiroki Kurata, Toshiharu Teranishi | 4. 巻 13 |
| 2. 論文標題 Inter-element miscibility driven stabilization of ordered pseudo-binary alloy | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Nature Communications | 6. 最初と最後の頁 1047 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41467-022-28710-0 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である) | 国際共著 - |

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

| |
|---|
| 1. 発表者名 立津 慶幸, 松本 憲志, 佐藤 良太, 寺西 利治 |
| 2. 発表標題 Fe-Pd-In合金ナノ粒子の構造安定性に関する第一原理計算 |
| 3. 学会等名 日本金属学会2023年春季講演大会 |
| 4. 発表年 2023年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 松本憲志, 佐藤良太, 立津慶幸, 寺西利治 |
| 2. 発表標題 第三元素の固溶性を駆動力とした新規FePd3層状合金の形成 |
| 3. 学会等名 ナノ学会第19回大会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 金城伊咲, 伊良波樹乃, 立津慶幸, 眞榮平孝裕 |
| 2. 発表標題 WCの電子構造とフェルミ面 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|-------------------------------------|
| 1. 発表者名 伊良波樹乃, 金城伊咲, 立津慶幸, 眞榮平孝裕 |
| 2. 発表標題 ReO3の電子構造とフェルミ面 |
| 3. 学会等名 日本物理学会 第77回年次大会 |
| 4. 発表年 2022年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
| | | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
| | |