

平成 29 年 5 月 29 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2016

課題番号：15K14122

研究課題名(和文) 神経回路数理モデルによる高精度原子間ポテンシャル開発とセラミックスへの応用

研究課題名(英文) Development of atomic neural network potentials and their application to ceramics

研究代表者

松永 克志 (Matsunaga, Katsuyuki)

名古屋大学・工学研究科・教授

研究者番号：20334310

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、セラミックスの構造と機能に関する原子シミュレーションを格段に高い計算精度で行うため、ニューラルネットワークに基づく原子間ポテンシャルの開発を目指した。学習の際にニューロン間の結合強度を最適化するため、本研究では共役勾配法の適用を検討した。第一原理計算により異なる種類の多様な構造の計算を多数行い、それらの全エネルギーを学習データもしくはテストデータとした。検討の結果、共役勾配法のみではエネルギー精度を10meV/atom以下にすることができなかつたため、共役勾配法に焼きなまし法を加えたアルゴリズムを用いて検討したところ、約10meV/atom以下のエネルギー精度を達成できた。

研究成果の概要(英文)：In this study, we tried to develop atomic neural network potentials, to realize atomistic simulations of ceramic materials with higher accuracy than ever. In order to optimize weights and biases in the neural network, we used the conjugate gradient method. At the same time, we calculated total energies of reference materials by first-principles calculations to generate training and test data. It was found that the conjugate gradient method can efficiently reduce mean square errors and yet cannot achieve a total-energy accuracy of mean square error of 10 meV/atom. Then we also applied the simulated annealing method combined with the conjugate gradient method, and finally attained a total-energy accuracy of less than 10 meV/atom.

研究分野：計算材料学

キーワード：原子間ポテンシャル ニューラルネットワーク 第一原理計算

### 1. 研究開始当初の背景

近年、電子顕微鏡等による実験計測と第一原理計算による理論解析を連携させた材料研究が世界的に盛んとなっており、セラミックスの電子・原子レベル構造と特性との直接的な関係が解明されつつある。しかし、一般に、セラミックス特性のキーとなる粒界や界面は多様で複雑な原子配列を持つ。第一原理計算は高い計算精度を長所とするが、計算可能な原子数が高々数百原子であるため、比較的シンプルな結晶方位や原子配列からなる粒界・界面の研究に限定されるのが実情であった。一方で、分子動力学法に代表される原子シミュレーションは、第一原理計算より多数の原子を含む系を高速に計算できるという長所がある。しかし、原子間相互作用を表現する原子間ポテンシャルが必要で、そのパラメータは経験的に決められるため、計算結果の信頼性・普遍性が常に問題とされてきた。先進セラミックスの微細構造は今後さらに複雑化していくことが予測される。セラミックスの構造・機能を正確に解析・予測するためには、第一原理の長所である計算精度を保ちつつ、分子動力学のように大規模系の計算が可能となる研究手法の開発が必要と考え、本内容を提案するに至った。

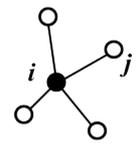
### 2. 研究の目的

本研究では、高速で高精度なセラミックス計算設計を実現する新しい手法として、情報科学を活用した原子間ポテンシャルの開発を目指す。パターン認識等で用いられる脳神経系の情報処理機構を模した数理モデル(ニューラルネットワーク)に基づき、第一原理計算と同精度の原子シミュレーションを実現する、高精度な原子間ポテンシャルの開発に挑戦する。本研究の原子間ポテンシャルを、分子動力学などの原子シミュレーションに組み込むことで、第一原理計算の精度を保ったままで高速に大規模系の計算解析が可能となる。その結果、信頼性が高く、具体的な材料設計指針として新材料開発を触発するなど、産業界への大きな波及効果も期待できる。

### 3. 研究の方法

一般に原子シミュレーションでは(図1)注目する原子( $i$ )について、それに配位するすべての周辺原子( $j$ )との相互作用エネルギー( $E_{ij}$ )を原子間ポテンシャルに基づき計算し、その和を取る( $E_i$ )。次に、同様な手続きを全原子に対し行い、結合の重複が無いように全原子のエネルギーを積算することで系の全エネルギー( $E_T$ )を求める。この考え方を継承し、本研究では図2に示すようなニューラルネットワークを検討する。ここでは、結晶やクラスター等における各原子の位置・配位状態などの“構造情報”を入力値とし、ニューラルネットワークを通して各原子のエネルギー値を出力させ、その和が最終出

力値の全エネルギー( $E_T$ )となる構成を考える。



原子*i*のエネルギー

$$E_i = \sum_j E_{ij}$$

全エネルギー

$$E_T = \sum_i E_i$$

原子シミュレーションによる全エネルギー

図1

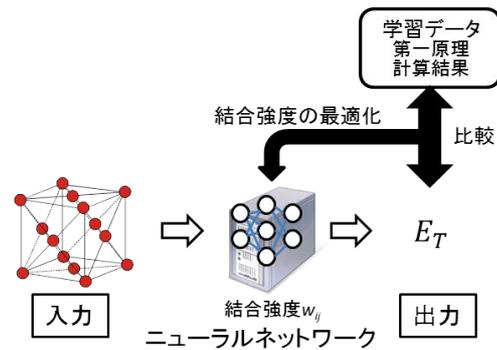


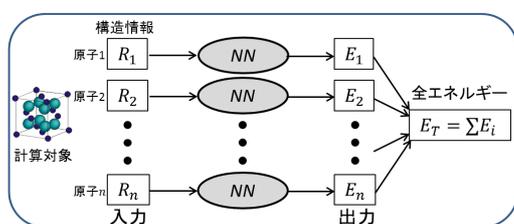
図2

従来の原子間ポテンシャルは、一般に、結合距離を変数とした解析式を使って表現されていたが、ニューラルネットワークによる原子間ポテンシャルはそれとは全く異なる形式であることがわかる。ある原子がどのような配位環境(構造情報)にあれば、どのようなエネルギー状態にあるかを定量的に対応させるのがニューラルネットワークによる原子間ポテンシャルである。また、従来の原子間ポテンシャルと異なり、対象とする原子間の化学結合状態や結合強さに関する予備的知識や実験値などを全く必要としないところが特徴である(図2)。

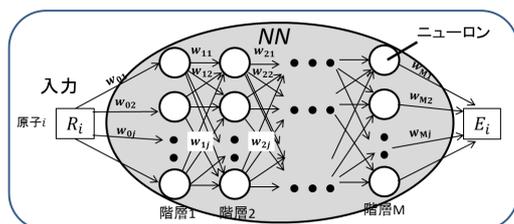
ニューラルネットワークの構成要素はニューロンであり(図3)ある入力値に結合強度( $w_j$ )を掛け、それらを伝達関数という非線形関数に引き渡し、出力値を与えるという働きをする。ニューラルネットワークとは、このニューロンを多数結合した回路である。所定の入力データに対して一定の出力を与えるように各ニューロンの結合強度を調整し、任意の入力に対しても適切な出力を与えるネットワークを構築する。

前述のニューラルネットワークを用いて、出力が第一原理計算の $E_T$ と同じ精度となるような原子間ポテンシャルを開発するため、ニューロンの結合強度の調整を行う。ニューラルネットワークにおける各ニューロン間を結ぶ結合強度の値は、数多くの構造に対する第一原理計算による全エネルギー値を学習データとして与え、それらすべての結果を

再現するようにコンピュータに「学習」させることで決定する。ここでいう「コンピュータによる学習」とは、各原子の構造情報に対し、結合強度  $w_{ij}$  と伝達関数を介して全エネルギー  $E_T$  を出力させ、それが第一原理計算の全エネルギーと一致するように  $w_{ij}$  を調整することである。ネットワーク自体が、より多くの学習データに対し調整された結合強度を持つほど、さらには、学習データの結晶構造や原子配列のバリエーションが多いほど、“多様な結晶構造や原子配列に対応した汎用性の高い高精度な原子間ポテンシャル”であると判断できる。通常、ニューラルネットワークに使用される学習データ数は数千個から1万個程度である。以上のような結合強度の調整を行うプログラムを作成し、結合強度の調整を行う。目標とするニューラルネットワークの計算精度は、第一原理計算のそれ ( $1 \times 10^{-3}$  eV/atom) と同じオーダーとする。



ニューラルネットワークによる原子間ポテンシャル計算の流れ



階層型ニューラルネットワーク内部構造

図3

上述の学習データを用いた結合強度の最適化後、学習データとは別のテストデータとなる構造を多数用意し、それらに対しニューラルネットワークにより全エネルギーを予測する。その結果と第一原理計算結果との差を評価し、目標精度に達しない場合は、学習データをさらに増やして再度結合強度を調整する。

上で述べたように、性能のよいニューラルネットワークの構築には、学習データおよびテストデータとなる数多くの第一原理計算データを準備する必要がある。本研究では、各種元素からなる純物質、結晶相の化合物、原子・分子・クラスターなどを網羅的に第一原理計算し、それらの結果を学習データとして保存する。

#### 4. 研究成果

まずニューラルネットワークの構築に当たり、第一原理計算による学習データを準備

する必要がある。本研究では、第一原理平面波基底 PAW 法を用い、対象とする元素からなる単体のさまざまな結晶構造を網羅的に計算し、学習データとした。例えば、Al の場合、単体金属の最安定構造は FCC 構造であるが、これに限らず BCC 構造、HCP 構造、ダイヤモンド構造などの結晶構造について、格子定数を  $\pm 15\%$  の範囲で変化させた多数の構造の計算を行った。また、より対称性の低い構造の表現にも対応するため、FCC 構造、BCC 構造の各結晶軸間の角度も変化させた構造についても第一原理計算し、学習データに加えた。第一原理計算には、平面波カットオフエネルギーや k 点数などの計算条件を検討する必要があるが、本研究ではすべての計算構造の計算精度が約 1meV/atom 以下となるように第一原理計算条件を設定した。

図4に、Alのニューラルネットワークによる原子間ポテンシャルに関する計算結果を示す。ここでは、全エネルギーの学習データ数を500とし、隠れ層を2層、各層に20個のニューロンを持つニューラルネットワークを用いた。ニューロン同士の結合強度を求めため、計算前に一樣乱数を使って結合強度の初期値とした。

学習データを再現するように結合強度を調整する方法として、最急降下法が知られている。しかし、最急降下法は収束が遅く、また初期の乱数値に強く依存することが従来から指摘されている。そこで本研究では、多変数の最適化問題に用いられる共役勾配法および焼きなまし法の適用を試みた。

図4に、ニューラルネットワークによるAl原子間ポテンシャルについて、全エネルギーに関する平均2乗誤差の(共役勾配法による)学習回数依存性を示す。学習回数とは、各学習データに合うように結合強度を共役勾配法で最適化していくときの、共役勾配法での最適化サイクルの回数を意味する。

共役勾配法のみを用いたとき(焼きなまし法の回数0回)、学習開始からしばらくは速やかに平均2乗誤差が小さくなるが、その後5000回程度で平均2乗誤差が約15meV/atomに達した後、それ以上の学習回数ではほぼ一定となった。そこで、共役勾配法で収束した時点で焼きなまし法を適用し、その後さらに共役勾配法+焼きなまし法を繰り返し適用したときの平均2乗誤差を調べた。共役勾配法+焼きなまし法のサイクルを繰り返す毎に、平均2乗誤差が低下することがわかる。今回の検討では、共役勾配法+焼きなまし法のサイクルを40回程度行うことにより、約5meV/atomまで誤差を低下させることができた。したがって、共役勾配法と焼きなまし法を併用することが、結合重みの最適化に有効であることがわかった。

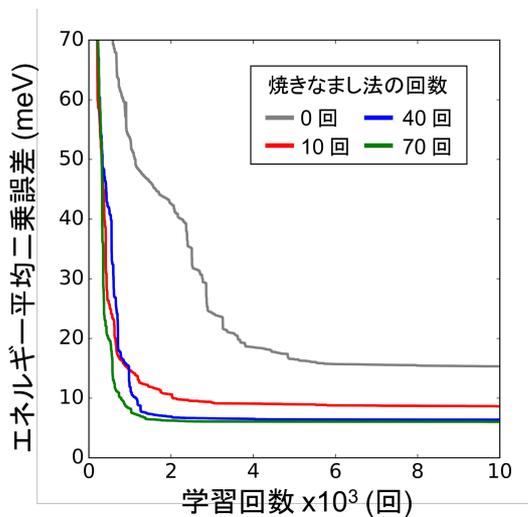


図 4

次に、全エネルギーの学習データ数を 200 から 1000 に増やしたときの、平均 2 乗誤差の変化を図 5 に示す。ここでは、学習データ 200 で共役勾配法 + 焼きなまし法で最適化した後、その結合強度を使って学習データを順次増やしたときの結果である。横軸には、焼きなまし法の適用回数をとっている。学習データ数が増加すると、ニューラルネットワークで表現する結晶構造や全エネルギーのバリエーションが大きくなるため、結合強度の最適化もより困難になり、焼きなまし法の適用回数も多くなることが予測される。しかし、数十回の焼きなまし法の適用により、学習データ数に関係なく約 5meV/atom まで平均 2 乗誤差を低下させることができることがわかった。

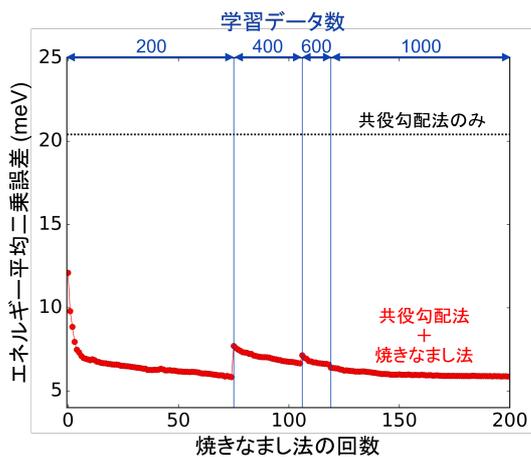


図 5

以上の結果は、AI のみならず Ti などでも同様な傾向がみられた。ただし、学習データの中に、全エネルギーに加え各原子に働く力を取り込んだところ、全エネルギーおよび力の平均 2 乗誤差をそれぞれ数 meV/atom、数十 meV/Å/atom 程度まで下げるには、より多数回の共役勾配法 + 焼きなまし法による学

習が必要であった。また、単体だけでなく酸化物の原子間ポテンシャルのニューラルネットワークによる表現でも同様な結果が予測されるため、セラミックスの複雑構造への適用を達成するには、より効率的な結合強度の最適化法探索が必要である。

## 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕  
ホームページ等

## 6 . 研究組織

### (1) 研究代表者

松永克志 (MATSUNAGA, Katsuyuki)  
名古屋大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：20334310

### (2) 研究分担者

( )

研究者番号：

### (3) 連携研究者

( )

研究者番号：

### (4) 研究協力者

( )