

令和 4 年 6 月 2 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02419

研究課題名(和文) 第一原理計算と機械学習による材料計算技術の構築

研究課題名(英文) Materials design using first principles calculations and machine learning

研究代表者

世古 敦人 (Seko, Atsuto)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号：10452319

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、最先端の機械学習を導入し、第一原理計算の多重実行に基づいた材料に対する高度な応用計算手法の基盤技術を構築した。基礎的な第一原理計算を除く第一原理計算に基づく応用研究は、分子動力学法などを用いた原子シミュレーション、結晶構造探索、材料物性計算の3つにほぼ分類される。本研究では、機械学習ポテンシャルや大域的構造探索手法など、これらの応用に有効である第一原理計算に基づく方法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

基礎的な第一原理計算は、系の元素・結晶構造をもとに、エネルギーや電子状態を計算するものであり、材料研究に広く用いられている。しかし、実際の材料の物性や現象に対しては、非常に単純なモデルを導入し第一原理計算を行う以外なく、その精度を確かめる手段すらない。そのような状況において、本研究は、第一原理計算の精度で、実際の材料物性や現象を取り扱う方法を構築することで、材料研究を大幅に進展させるものである。

研究成果の概要(英文)：The machine-learning potential (MLP) providing an accurate description of the relationship between the energy and the crystal structure and its potential applications are of growing interest. Such an approach is a framework of polynomial MLP, in which the introduction of group-theoretical high-order rotational polynomial invariants contributes to systematically derive MLPs with high predictive power for a wide range of structures, including extreme structures. This approach successfully constructs accurate and efficient MLPs in a variety of elemental metals and alloys. The Pareto optimal polynomial MLPs with different trade-offs between accuracy and computational efficiency for various systems are distributed in Polynomial Machine Learning Potential Repository with our implementation (polymlp-package) that enables us to use the polynomial MLPs in the LAMMPS code.

研究分野：計算材料科学

キーワード：機械学習 第一原理計算 結晶構造探索

1. 研究開始当初の背景

第一原理計算は、量子力学に基づき、系の元素・結晶構造の情報のみからエネルギーや電子状態を求めるものである。経験的なパラメータを必要とせず、高精度な計算が可能であるため、材料研究において、エネルギー、基礎的な物性、電子・原子レベルでの現象の解釈を得る手段として不可欠なものとなっている。また、近年の計算機や計算技術の進歩により、第一原理計算の多重実行に基づいた材料スクリーニング、結晶構造探索、熱力学計算、格子振動計算、分子動力学計算など材料に対する多種多様な応用計算ができるようになってきている。申請者もこのような計算技術構築に関する研究を長く行ってきたが、基礎的な第一原理計算に比べると、計算に必要なコストは膨大で、実行可能な構造スケール、時間スケール、自由度スケールは非常に限定的である。そのため、単純な近似やモデルを導入する以外に選択肢はなく、実際の材料現象の計算とはかけ離れている場合が多い。実際の材料現象を模倣する計算や、材料探索・物性予測などの高度な応用計算を第一原理計算の精度で行うためには、第一原理計算の精度を維持した上で高速化させる手段が必要である。

2. 研究の目的

本研究では、第一原理計算の多重実行に基づく高度な応用計算を高速化させる手段として、機械学習を導入する。機械学習とは、人間の学習能力と同様の機能を計算機で実現しようとする技術・手法の総称である。元来、材料科学において、最小二乗法を含む回帰分析、行列分解、最大エントロピー法など機械学習は多岐に渡って利用されており、むしろ馴染み深いものである。一方で、最先端の機械学習では、さらに高性能な方法が多く存在する。本研究では、最先端の機械学習を積極的に導入し、第一原理計算の多重実行に基づいた材料に対する高度な応用計算手法の基盤技術を構築する。基礎的な第一原理計算を除く第一原理計算に基づく応用研究は、分子動力学法などを用いた原子シミュレーション、結晶構造探索、材料物性計算の3つにほぼ分類される。本研究では、これらの応用に有効である第一原理計算に基づく方法を開発する。

3. 研究の方法

機械学習ポテンシャルの構築

機械学習ポテンシャルとは、与えられた結晶構造集合に対する網羅的な第一原理計算の結果に基づき、機械学習手法により原子間相互作用を推定するものである。機械学習ポテンシャルでは、隣接原子分布を表現する「構造特徴量」を定義し、結晶構造のポテンシャルエネルギーと構造特徴量の関係をガウス過程モデル、ニューラルネットワークモデル、多項式モデルなどの機械学習モデルにより記述する。このような機械学習ポテンシャルは、多数の構造特徴量と柔軟な機械学習モデルを用いるため、第一原理計算に近い精度での予測が、経験的ポテンシャルと同じような計算コストにより可能となる。本研究では、球面調和関数に基づいた多項式回転不変量を群論的手法により系統的に生成し、構造特徴量として用いた。また、ポテンシャルエネルギーと構造特徴量の関係を多項式により記述した。それぞれの系について、ICSDのプロトタイプ構造から生成された1万から3万程度の結晶構造に対して第一原理計算を行い、得られたエネルギーや原子に働く力に基づき、線形リッジ回帰を用いてポテンシャルエネルギーモデルを推定した。

機械学習ポテンシャルによる大域的構造探索

構築された機械学習ポテンシャルは、多くの結晶構造に対して高精度なエネルギー予測が可能である。その対象は、経験的ポテンシャルの予測精度が高い構造だけでなく、経験的ポテンシャルでは精度が足りない多くの構造を含む。この特徴を利用し、膨大な数の結晶構造について、機械学習ポテンシャルによるエネルギー計算をすることにより、化学組成とポテンシャルのみを入力とする探索範囲の広い効率的な大域的構造探索や準安定構造の列挙を行った。

4. 研究成果

機械学習ポテンシャルの構築

ポテンシャル構築に関する結果の一例として、図1にアルミニウム(Al)における様々なポテンシャルモデルの予測誤差と計算コストの関係を示す。図1より、パレート最適なポテンシャルよりも、予測精度と計算コストの両方が向上するポテンシャルは存在しないことがわかる。また、Alにおいては、予測誤差が非常に小さいポテンシャルが複数存在し、これらポテンシャルのエネルギーや力の計算に必要な時間は、 $10^{-4} \sim 10^{-2}$ (s/atom/step) 程度である。広く利用されているEAMポテンシャルと比べると計算コストは10倍から1,000倍程度高くなるものの、高精度予測が可能な構造や物性は大幅に増加する。

このような方法で網羅的に構築されたパレート最適な機械学習ポテンシャルは、様々な単体や合金について、ウェブサイトにて公開中 (Machine Learning Potential Repository at Kyoto University)であり、継続的にポテンシャルが追加される予定である。これらの機械学習ポテンシャルは、世界中で広く用いられている分子動力学計算ソフトウェアLAMMPSにて利用可能な形式であり、LAMMPSにて用いるためのパッケージも併せて公開している。また、それぞれのパレート最適なポテンシャルにより予測された多様な結晶構造に対する凝集エネルギー、エネルギー体積曲線、フォノン状態密度、弾性定数、格子定数などが併せて閲覧できるようになっており、パレート最適なポテンシャルの中から、目的に応じて適切なポテンシャルを選択することが可能である。

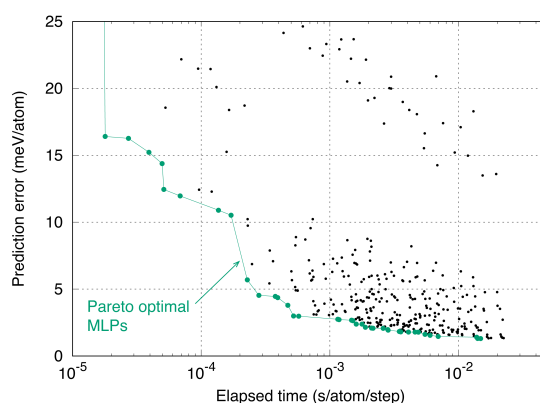


図1 アルミニウム(Al)における機械学習ポテンシャルの予測誤差と計算コストの関係。

機械学習ポテンシャルによる大域的構造探索

図2は、決定論的大域的最適化手法の一つであるDIRECT法により、Ti-Al系の安定構造および準安定構造列挙を行ったものである。DIRECT法では、解の存在する可能性の高い探索領域を分割し、分割した部分探索領域の中央に該当する構造のエネルギーを計算する。解の存在する可能

性の高い探索領域の判定, 探索領域の分割およびエネルギー計算を繰り返すことで, 大域的に最安定な構造を探索する. また, その過程で得られるエネルギー計算を行った構造集合には低いエネルギーを持つ準安定な構造が含まれている. 図2のデータ点は, 12原子以下の組成を対象に DIRECT 法を行い, エネルギー計算を行った構造集合から取り出した代表構造について局所最適化を行ったものである. 機械学習ポテンシャルによる合計 10^9 回程度のエネルギー評価の結果, 六方最密充填構造置換の Ni_3Sn 型 (D0_{19}) 構造や面心立方構造置換の AuCu 型 (L1_0) 構造などが, 凸包上に安定構造として現れている. また, それと同時に, AlB_2 型 (C32), Cu_3Au 型 (L1_2), AuCd 型 (B19), Cu_2Mg -Laves 型 (C15) 構造など, 様々な準安定構造が DIRECT 法の結果として求まった.

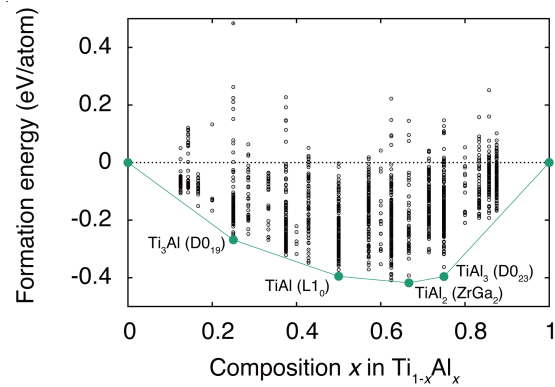


図2 機械学習ポテンシャルを用いた大域的最適化手法(DIRECT法)により予測された Ti-Al系における形成エネルギーと安定構造.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7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 Seko Atsuto, Ishiwata Shintaro	4. 巻 101
2. 論文標題 Prediction of perovskite-related structures in $ACuO_{3-x}$ ($A = Ca, Sr, Ba, Sc, Y, La$) using density functional theory and Bayesian optimization	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 134101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.134101	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 Shinohara Kohei, Seko Atsuto, Horiyama Takashi, Ishihata Masakazu, Honda Junya, Tanaka Isao	4. 巻 153
2. 論文標題 Enumeration of nonequivalent substitutional structures using advanced data structure of binary decision diagram	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 104109 ~ 104109
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0021663	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 Nishiyama Takayuki, Seko Atsuto, Tanaka Isao	4. 巻 4
2. 論文標題 Application of machine learning potentials to predict grain boundary properties in fcc elemental metals	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 123607
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.4.123607	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 Seko Atsuto	4. 巻 102
2. 論文標題 Machine learning potentials for multicomponent systems: The Ti-Al binary system	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174104
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.174104	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 Seko Atsuto, Togo Atsushi, Tanaka Isao	4. 巻 99
2. 論文標題 Group-theoretical high-order rotational invariants for structural representations: Application to linearized machine learning interatomic potential	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214108
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.99.214108	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 Shinohara Kohei, Seko Atsuto, Horiyama Takashi, Tanaka Isao	4. 巻 5
2. 論文標題 Finding well-optimized special quasirandom structures with decision diagram	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 113803
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevMaterials.5.113803	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 Fujii Susumu, Seko Atsuto	4. 巻 204
2. 論文標題 Structure and lattice thermal conductivity of grain boundaries in silicon by using machine learning potential and molecular dynamics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 111137 ~ 111137
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2021.111137	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6件 (うち招待講演 6件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 世古敦人
2. 発表標題 第一原理計算と機械学習による原子間ポテンシャルおよび結晶構造探索
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第33回秋季シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Atsuto SEKO
2. 発表標題 Group-theoretical high-order rotational invariants: Application to linearized machine learning interatomic potential
3. 学会等名 ICMAT 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 世古敦人
2. 発表標題 第一原理計算・統計力学計算・機械学習による材料物性予測
3. 学会等名 固体イオニクス討論会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 世古敦人
2. 発表標題 機械学習による原子間ポテンシャルおよび結晶構造探索
3. 学会等名 レア・イベントの計算科学 第3回ワークショップ (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 世古敦人
2. 発表標題 第一原理計算と機械学習を用いた原子間相互作用のモデリングと結晶構造探索
3. 学会等名 第5回固体化学フォーラム研究会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 世古敦人
2. 発表標題 第一原理計算と機械学習を用いた原子間相互作用のモデリングと結晶構造探索
3. 学会等名 MRM Forum 2021 tutorial (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021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