

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 6 月 7 日現在

機関番号：82108

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K17752

研究課題名（和文）革新的信頼性を持つニューラルネットワーク力場の作成とその2次元層状物質への応用

研究課題名（英文）Development of Neural Network Force Fields with Innovative Reliability and Their Application to 2D Layered Materials

研究代表者

中野 晃佑（NAKANO, Kosuke）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・マテリアル基盤研究センター・独立研究者

研究者番号：50870903

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、多体シュレーディンガー方程式を厳密に解く第一原理量子モンテカルロ法の応用に関して、複数の空間スケールを跨ぐ「マルチスケール計算」にまで視野を広げ、申請者が追究してきた電子階層での厳密性が、より大きな空間スケールにおいても重要な役割を果たすことを明らかにする。研究期間を通して、第一原理量子モンテカルロ法の精度を担保した分子動力学計算を可能にする機械学習の構築技術、及び、ハイスループット計算の技術を確立すると共に、高圧水素の相図計算を題材とし、当初の目的であった、電子階層での厳密性がより大きな空間スケールにおいて果たす役割を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

分子動力学計算の精度を決定づけるのは力場の精度であり、その構築には、学習データが必要である。固体周期系では、密度汎関数法を超える高精度データ生成器としては第一原理量子モンテカルロ法が唯一の選択肢であったが、その計算データを利用した分子動力学計算用の力場の構築は報告されていなかった。本研究成果は、その第一原理量子モンテカルロ法を利用して生成した信頼性の高い訓練データを利用して、機械学習力場を構築する技術を確立したものである。今後の、計算材料科学に基づく物質の性質予測の定量性向上に貢献する。

研究成果の概要（英文）：In this study, we expanded the application of the ab initio Quantum Monte Carlo method, which precisely solves the many-body Schrodinger equation, to include 'multi-scale simulations' across multiple spatial scales. This research reveals that the accuracy pursued by the applicant at the electronic structure level plays a crucial role even at larger spatial scales. Throughout the research period, I established technologies for constructing a framework for machine learning force fields that enable molecular dynamics calculations with the accuracy of the ab initio Quantum Monte Carlo method and high-throughput computation techniques. Using the phase diagram of high-pressure hydrogen as a target system, I clarified the role that accuracy at the electronic structure level plays at larger spatial scales, achieving the initial objective of the study.

研究分野：電子状態計算

キーワード：第一原理量子モンテカルロ法 機械学習力場 第一原理電子状態計算

1. 研究開始当初の背景

近年の大型計算機の発展に伴い、材料科学分野でも、数値計算を実験の代替とし、研究開発を加速させる取り組みに注目が集まっていた (e.g., マテリアルズ・インフォマティクス). 材料のミクロな物性は「電子」によって決定づけられ、シュレーディンガー方程式を解くことで予測可能であるが、厳密解を求めるのは容易でない. そのような背景の中、第一原理量子モンテカルロ法は、密度汎関数法などの手法が太刀打ちできない電子状態も扱える次世代手法として注目されていた. さらに進んで、研究開始当初から、電子階層の信頼できる計算結果を、より大きなスケールである、分子階層、連続体階層へと繋げる「マルチスケール計算」の方法論開発に注目が集まっていた. マルチスケール計算の肝は、時間/空間スケールが異なる各階層をどのように接続するか? という点である. 分子階層で利用される「分子動力学計算」は、ニュートン力学に従う系のダイナミクスを計算する手法であり、膜の破断計算などに応用される. 電子階層と分子階層をつなぐ鍵は、分子動力学計算において利用される、分子間の相互作用をモデル化する力場 (i.e., ポテンシャル関数) である. つまり、電子階層で得られた正確な原子間の相互作用をうまくモデル化する関数 (e.g., ニューラルネットワーク力場) を用意することで、電子を陽に扱うことなしに、分子階層において、より大きい時間/空間スケールでの計算が可能になる. この、電子階層と分子階層を繋ぐ肝になる力場は、これまで、いくつかの基本的な物性値に加え、標準的な第一原理電子状態計算手法である密度汎関数法を再現するように作成されてきた、一方、より信頼性の高い、第一原理量子モンテカルロ法に基づく力場は作成された例が報告されていなかった.

2. 研究の目的

本研究では、複数の空間スケールを跨ぐ「マルチスケール計算」にまで第一原理量子モンテカルロ法の適用視野を広げ、1) 第一原理量子モンテカルロ法に基づく分子動力学力場の構築方法を確立すること 2) 申請者が追究してきた電子階層での厳密性が、より大きな空間スケール (e.g., 分子階層) において果たす役割を明らかにすることを目的とした.

3. 研究の方法

申請者は、多体シュレーディンガー方程式を厳密に解く第一原理量子モンテカルロ法のオリジナルな計算コード TurboRVB を、世界中の研究者と共同で開発し [1] 従前法では太刀打ちできない物質の電子状態を研究してきた. 本研究においても、その第一原理量子モンテカルロ法による第一原理計算は、TurboRVB を用いて行った. 機械学習力場のフレームワークとしては、当初、ニューラルネットワーク力場を実装する n2p2[2] を利用していたが、下記に記載した通り、ニューラルネットワークに基づく力場では所望の精度が達成できなかったため、SOAP カーネルに基づく機械学習力場を構築する手法を採用した[3]. また、機械学習力場構築には、大量の第一原理量子モンテカルロ計算が必要になる. 第一原理量子モンテカルロ法のハイスループット計算を実現するためのソフトとして、TurboGenius を本研究の過程で開発し[4]、それを応用して、本研究課題の第一原理量子モンテカルロ計算を行った.

4. 研究成果

液体金属水素における機械学習力場構築の研究結果から述べる. 液体金属の温度-圧力相図を計算するためには、電子状態計算を超えて、分子動力学計算が必要であるが、第一原理量子モンテカルロ法によって求めた原子に働く力を直接利用する分子動力学計算は、可能ではあるものの、その計算コストの大きさから長時間、大規模系の計算は現実的に不可能である. 高圧水素の相図計算(液相-液相転移)を題材として、研究当初想定していた、既存のニューラルネットワークを利用する機械学習力場のフレームワークを利用し、第一原理量子モンテカルロ法を分子動力学法に橋渡しすることに挑戦したが、この試みは失敗し、必要な精度が確保できなかった. これは、微小な力の予測量の変化が最終的な温度-圧力相図の計算に与える影響が大きく、精度の機械学習力場が必要であることが明らかになったからである (e.g., 第一原理量子モンテカルロ法と密度汎関数計算で得られる水素原子に働く力の差は、 $\sim 5\text{mHa/Bohr}$ 程度である). そこで、Smooth Overlap of Atomic Positions (SOAP)カーネルに基づく独自の機械学習力場構築のフレームワークを開発した[3]. カーネル法は、学習や予測にかかる計算コストは一般的にニューラルネットワークよりも大きい、精度も高く、第一原理量子モンテカルロ法の結果を学習させるのに適する手法である. この独自手法の開発過程において、本研究で明らかになったのは、 Δ 学習と呼ばれる手法の重要性である[3]. 機械学習力場には、第一原理量子モンテカルロ法計算で得られたポテンシャルエネルギー曲線そのものを学習させるのではなく、密度汎関数法で得られた

ポテンシャルエネルギーと第一原理量子モンテカルロ法で得られたポテンシャルエネルギーの差 (Δ) を学習させるという手法である. この手法は, 力場利用時もベースライン(密度汎関数法による計算)は常に必要になるというデメリットはあるものの, 第一原理量子モンテカルロ法を行うことに比べると計算コストをかなり抑えることに成功した. この開発した手法を高圧水素液体の液相-液相転移の再現に応用した. 我々の機械学習力場によって得られた圧力-温度相図は, 以前, かなりの計算資源を消費して, 第一原理量子モンテカルロ法をフルに利用した分子動力学計算から得られた相図と一致することが明らかになった[3]. つまり, 機械学習力場により, 厳密な計算を再現することに成功した (図 1). 研究目的であった, 第一原理量子モンテカルロ法に基づく分子動力学力場の構築方法を確立することを達成したと言える.

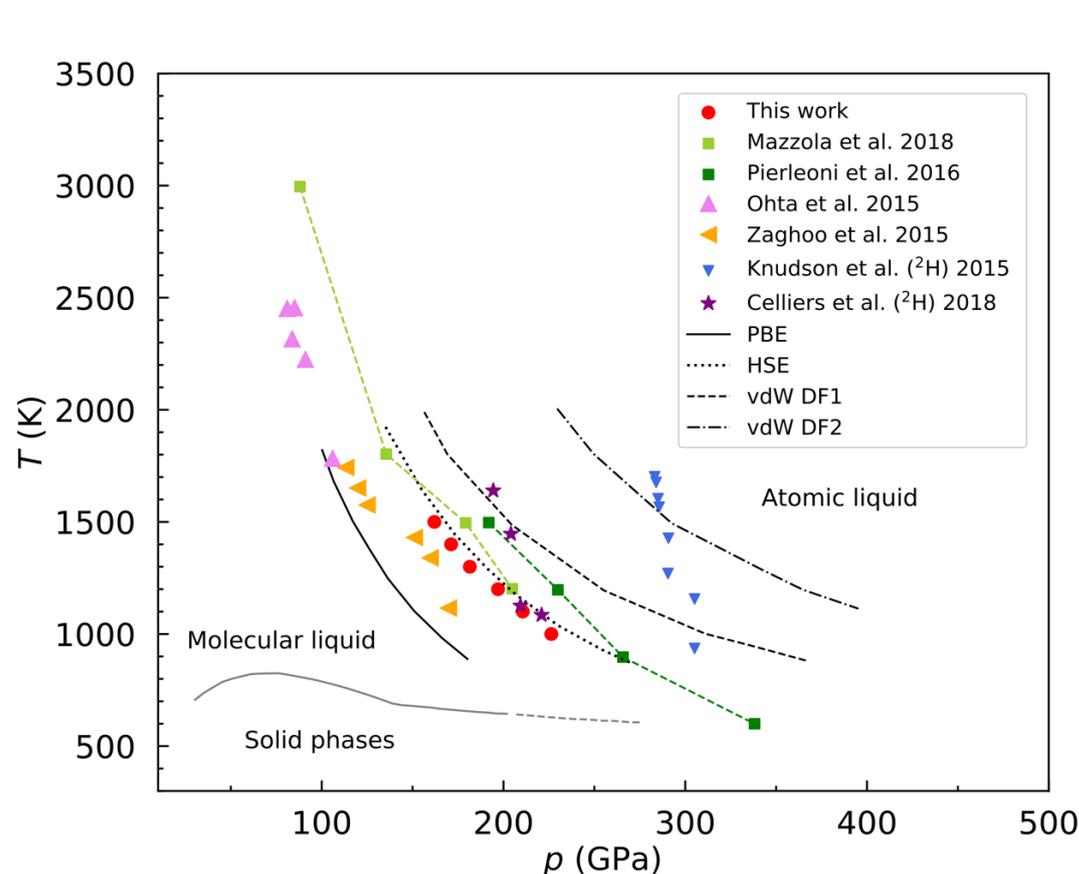


図 1 液体水素の温度-圧力相図. 図は文献[3]より引用. 図の左側が分子液体相の領域 (絶縁相), 図の右側が原子液体相の領域 (金属相) となっている. それぞれの線は, 計算で得られたこれら 2 つの相境界を示す. 今回, 第一原理量子モンテカルロ計算の結果を学習させた機械学習力場を用いた計算結果は, 赤点で示してある. その他の引用元については, 文献[3]参照のこと.

次に, 確立した機械学習力場構築のフレームワークを利用して, 高圧水素の相図において, Hugoniot 領域という実験的に値が求められている領域の計算を行い, 実験値, 及び, 密度汎関数法によって計算された値との比較を行った[5]. 図 2 には, 150GPa 以下の圧力に対するいくつかの実験値と共に, 我々の計算結果を示した. また, PBE 汎関数を利用した密度汎関数法を直接用いて得られた Hugoniot 曲線と, 文献[6]の電子-イオン結合モンテカルロ法 (CEIMC) の一部圧力結果も記載してある. 高温高圧下における水素の物性計算では密度汎関数法において利用される交換相関汎関数の信頼性が保証されないため, 本研究のように第一原理量子モンテカルロ法が用いることが推奨されていたが, これまでのところ, 第一原理量子モンテカルロ法が, 高温高圧領域で得られた密度汎関数法の結果とどの程度乖離するかについて, 詳細な検討は報告されていなかった. 我々の研究は, 私たちの知る限り初めて, 第一原理量子モンテカルロ法に基づき, 高圧水素の Hugoniot 全領域における状態方程式を計算することに成功した例である. 図 2 は, 変分量子モンテカルロ法 (VMC) と拡散量子モンテカルロ法 (DMC) のデータを学習して構築した機械学習ポテンシャルを使った分子動力学計算は, 両方とも, 考慮した圧力の全範囲において, 密度汎関数法の結果よりも右側にシフトしていることがわかる. この結果は, 文献[6]で報告された CEIMC の結果 (一部領域) と一致している. つまりこの結果は, 電子状態計算の結果が, 状態方程式というマクロな量に対しても影響を与えることを示唆している. 研究目的であった, 申請者が追究してきた電子階層での厳密性が, より大きな空間スケール (e.g., 分子階層) においても重要な役割を果たすことを明らかにすること, を達成したと言える. 得られた結果は, 実験値とも概ね一致しているが, 実験値が大きなエラーバーを有するため, 今後, 実験側でエラーバーを

減らす試みがなされることを期待する.

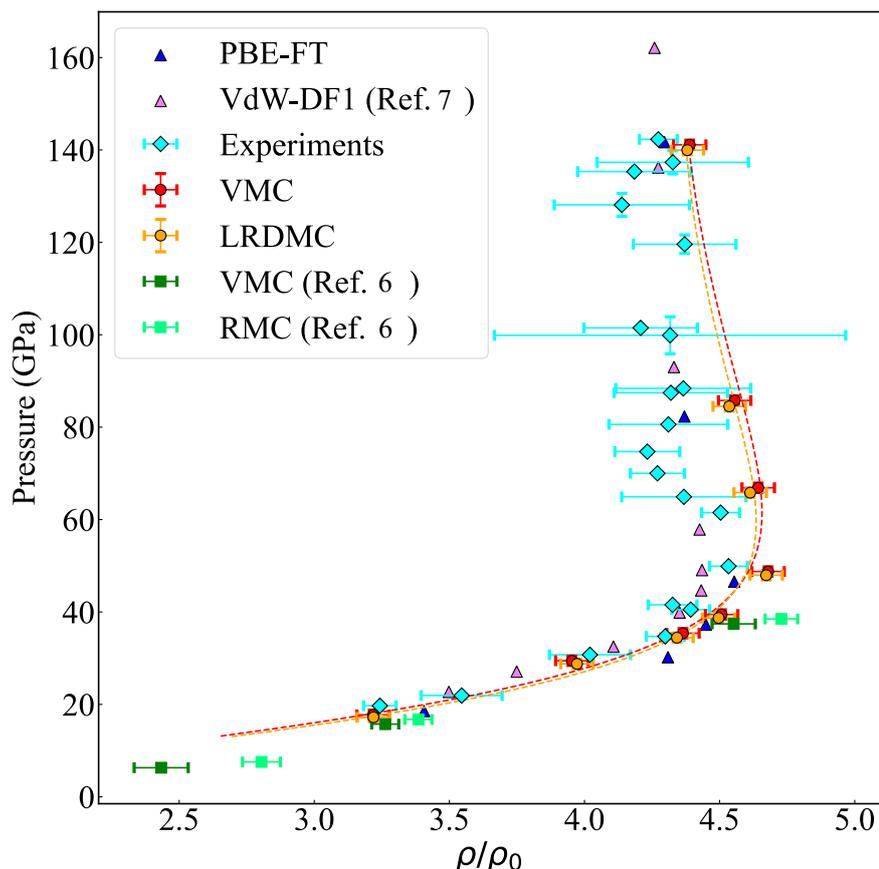


図 2 今回の第一原理量子モンテカルロ計算 + 機械学習力場による分子動力学計算によって得られた、Hugoniot 領域の水素の状態方程式 (赤:VMC, 及び橙:DMC). 図は文献[5]より引用. PBE 汎関数や vDW-DF1 を利用した密度汎関数法によって得られた曲線, また, 実験より得られた曲線もプロットしている. PBE は我々が計算した値である (青三角). vdw-DF1 の結果は文献[7]より引用した. 実験値は文献 [7,8,9]より引用した (cyan 菱形). 他グループによる VMC, RMC の結果は文献[6]より引用した (薄緑四角, 濃緑四角).

その他, 本研究においては, この確立した機械学習力場の構築技術の応用展開を見据えて, 力場構築に係る学習データ生成に役立つ, 対称性を考慮した配置の生成方法の考案 [10], 層状物質への第一原理量子モンテカルロ法の適用とその従前法との定量的差異の解明 [11,12], 力場構築をより高精度に行うための第一原理量子モンテカルロ法によるバイアスのないフォースの計算の手法確立[13]に成功した. これら技術を応用していくことで, 今後, 第一原理量子モンテカルロ法に基づく力場構築と応用をさらに進めていく計画である.

参考文献

- [1] K. Nakano et al., J. Chem. Phys. 152, 204121 (2020).
- [2] A. Singraber, et al., J. Chem. Theory Comput. 15, 1827–1840 (2019).
- [3] A. Tirelli., Phys. Rev. B 106, L041105 (2021).
- [4] K. Nakano. et al., J. Chem. Phys. 159, 224801 (2023).
- [5] G. Tenti et al., arXiv:2301.03570 (2024).
- [6] M. Ruggeri, et al., Phys. Rev. B 102, 144108 (2020).
- [7] M. D. Knudson and M. P. Desjarlais, Phys. Rev. Lett. 118, 1 (2017).
- [8] M. D. Knudson, et al, Phys. Rev. B 69, 144209 (2004).
- [9] A.Fernandez-Pañella et al., Phys. Rev. Lett. 122, 255702 (2019).
- [10] G.I. Prayogo et al., Chem. Inf. Model. 62, 2909–2915 (2022).
- [11] Y. Nikaïdo et al., J. Phys. Chem. C 126, 6000–6007 (2022).
- [12] L. Monacelli, et al., Nat. Phys. 19, 845–850 (2023).
- [13] K. Nakano, et al., Phys. Rev. B 109, 205151 (2024).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 10件 / うちオープンアクセス 9件）

1. 著者名 Tirelli Andrea, Tenti Giacomo, Nakano Kousuke, Sorella Sandro	4. 巻 106
2. 論文標題 High-pressure hydrogen by machine learning and quantum Monte Carlo	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L041105
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.L041105	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 該当する
1. 著者名 Nikaido Yutaka, Ichibha Tom, Hongo Kenta, Reboredo Fernando A., Kumar K. C. Hari, Mahadevan Priya, Maezono Ryo, Nakano Kousuke	4. 巻 126
2. 論文標題 Diffusion Monte Carlo Study on Relative Stabilities of Boron Nitride Polymorphs	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 6000 ~ 6007
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.1c10943	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 該当する
1. 著者名 Prayogo Genki Imam, Tirelli Andrea, Utimula Keishu, Hongo Kenta, Maezono Ryo, Nakano Kousuke	4. 巻 62
2. 論文標題 SHRY: Application of Canonical Augmentation to the Atomic Substitution Problem	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Information and Modeling	6. 最初と最後の頁 2909 ~ 2915
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jcim.2c00389	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 該当する
1. 著者名 Hanindriyo Adie Tri, Yadav Amit Kumar Singh, Ichibha Tom, Maezono Ryo, Nakano Kousuke, Hongo Kenta	4. 巻 24
2. 論文標題 Diffusion Monte Carlo evaluation of disiloxane linearisation barrier	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Chemistry Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 3761 ~ 3769
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1CP01471D	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 該当する

1. 著者名 Song Peng, Hou Zhufeng, de Castro Pedro Baptista, Nakano Kousuke, Takano Yoshihiko, Maezono Ryo, Hongo Kenta	4. 巻 5
2. 論文標題 The Systematic Study on the Stability and Superconductivity of Y Mg H Compounds under High Pressure	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Advanced Theory and Simulations	6. 最初と最後の頁 2100364 ~ 2100364
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adts.202100364	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 該当する

1. 著者名 Nakano Kousuke, Raghav Abhishek, Sorella Sandro	4. 巻 156
2. 論文標題 Space-warp coordinate transformation for efficient ionic force calculations in quantum Monte Carlo	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 034101 ~ 034101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0076302	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 該当する

1. 著者名 Raghav Abhishek, Maezono Ryo, Hongo Kenta, Sorella Sandro, Nakano Kousuke	4. 巻 19
2. 論文標題 Toward Chemical Accuracy Using the Jastrow Correlated Antisymmetrized Geminal Power Ansatz	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Chemical Theory and Computation	6. 最初と最後の頁 2222 ~ 2229
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jctc.2c01141	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 該当する

1. 著者名 Monacelli Lorenzo, Casula Michele, Nakano Kousuke, Sorella Sandro, Mauri Francesco	4. 巻 19
2. 論文標題 Quantum phase diagram of high-pressure hydrogen	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Nature Physics	6. 最初と最後の頁 845 ~ 850
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41567-023-01960-5	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 該当する

1. 著者名 Nakano Kousuke, Kohulak Oto, Raghav Abhishek, Casula Michele, Sorella Sandro	4. 巻 159
2. 論文標題 TurboGenius: Python suite for high-throughput calculations of ab initio quantum Monte Carlo methods	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 224801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0179003	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 該当する

1. 著者名 Nakano Kousuke, Casula Michele, Tenti Giacomo	4. 巻 109
2. 論文標題 Efficient calculation of unbiased atomic forces in <i>ab initio</i> variational Monte Carlo	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205151
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.109.205151	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 該当する

[学会発表] 計6件 (うち招待講演 3件 / うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Kosuke Nakano
2. 発表標題 TurboGenius: A python suite for implementing workflows with ab initio quantum Monte Carlo code TurboRVB
3. 学会等名 PSI-K CONFERENCE 2022 (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Kosuke Nakano
2. 発表標題 Turbo-Genius: A python-based workflow system for quantum Monte Carlo package
3. 学会等名 Pacifichem 2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kosuke Nakano
2. 発表標題 Recent progress in the ab-initio quantum Monte Carlo code, TurboRVB
3. 学会等名 The 24th International Annual Symposium on Computational Science and Engineering (ANSCSE24) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中野 晃佑
2. 発表標題 第一原理量子モンテカルロ計算コード「TurboRVB」の開発概況と応用事例
3. 学会等名 東京大学 物性研究所 物質設計評価施設(MDCL)セミナー (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中野 晃佑, Oto Kohulak, Abhishek Raghav, Michele Casula, Sandro Sorella
2. 発表標題 TurboGenius: 第一原理量子モンテカルロ法のハイスループット計算のためのPythonパッケージ
3. 学会等名 日本物理学会 2024年春季大会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 Kosuke Nakano
2. 発表標題 Towards the Applications of Ab Initio Quantum Monte Carlo in Materials Science.
3. 学会等名 Bridging Quantum Monte Carlo and High-Performance Simulations (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2024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			
イタリア	SISSA			
米国	Oak Ridge National Laboratory			
インド	Indian Institute of Technology Madras	Bose National Center for Basic Sciences		
フランス	CNRS			