汎用原子 レベルシミュレータ を用いた物性予測と 材料探索

Property Prediction and Materials Discovery Using a General-purpose Atomic-level Simulator

Key-words: Materials discovery, Machine learning potential, Lattice thermal conductivity. Crystal structure prediction

篠原 航平

Kohei SHINOHARA (Preferred Networks, Inc.)

1. はじめに

Preferred Networks(PFN)では、チップ・計算基盤・基盤モデル・製品まで、AI技術のバリューチェーンを垂直統合し、ソフトウェアとハードウェアを高度に融合することで、競争力の高い技術の開発および産業応用を進めている。その中でも、素材・化学分野では、持続可能な未来を実現する新しい電池材料、半導体、合成燃料向け触媒、潤滑剤などの新素材の探索を従来の1万倍以上高速化する汎用原子レベルシミュレーター Matlantis $^{\text{TM}}$ を ENEOS と共同で開発している。共同出資会社 Preferred Computational Chemistry (PFCC)を通して、Matlantis $^{\text{TM}}$ をクラウドサービスとして国内外 100 以上の企業・団体に提供している。

筆者の所属する PFN の材料探索チームでは、MatlantisTM のコア技術となっている汎用機械学習ポテンシャル PFP $^{1)\sim 3)$ を中心として、計算化学分野と AI 技術を融合させた研究開発を行っている。本稿では、計算材料科学やマテリアルズ・インフォマティクスの適用事例として、PFP を用いた物性予測と材料探索の事例を 2 件紹介する。

2. PFP を用いた格子熱伝導率計算による予測 精度の検証

PFPを用いた研究開発を行っていくうえで、その 予測精度をさまざまな計算対象で検証することは重要 な取り組みである。ここでは、近年公開された汎用機 械学習ポテンシャルに対する格子熱伝導率のベンチマー クを用いて PFP の精度検証を行った事例を紹介する(会 社ブログ⁴⁾ の内容を元にしている).

機械学習の発展に伴い、DFT 計算と同等の高精度 とスケーラビリティの両立を目指した機械学習ポテン シャルが活発に開発されている。特に、元素によらず にさまざまな材料に適用可能な汎用機械学習ポテンシャ ル (Universal Machine Learning Potential, UMLP) が近年急速に実現されてきた。2025年現在、学術機 関だけでなく、DeepMind (GNoME⁵⁾)、Microsoft (MatterSim⁶⁾), Meta (EquiformerV2-OMat24⁷⁾) な どの企業も、開発した UMLP を次々と発表している. しかし、これら UMLP のベンチマークとして広く使 われている Matbench Discovery 9) のリーダーボード は飽和状態になりつつあり、多くの UMLP が当初か らのベンチマーク⁸⁾ に過適合しているのではないか という懸念がある. このベンチマークでは、結晶構造 のポテンシャルエネルギーの局所安定点での値のみを 評価するが、格子の振動・拡散・化学反応などの多く の材料特性はポテンシャルエネルギーのより広い範囲 でのふるまいに依存する.

そこで、格子熱伝導率(Lattice Thermal Conductivity, LTC)の計算に特化した新たなベンチマークとして、 k_SRME が近年提案されている $^{10),11)}$. LTC は工学的に重要な熱特性であるだけでなく、ポテンシャルエネルギー局面の高次微分を必要とする。そのため、安定構造付近のポテンシャルエネルギー曲面の滑らかさが要求され、UMLP をより厳しく評価することができる.

ここでは、 k_SRME を用いて、PFP v6 の性能を評価した結果を紹介する。なお、PFP v6 は k_SRME の公開前である 2024 年 4 月にリリースされたモデルであり、今回の用途でファインチューニングされたものではない。

まず、k_SRME における LTC 計算方法とデータセットの概要を説明する。LTC の計算には phono3py を使用し、緩和時間近似に基づいて LTC を求める $^{12)\sim14}$. フォノン - フォノン相互作用は、有限変位を伴うスーパーセル法により求められた 2 次および 3 次の力の定数から計算される。その後、LTC 予測値を、PhononDB $^{15)}$ と同様の 103 種類の二元化合物を含むPhononDB-PBE データセットの DFT 計算結果と比較する。

LTC の計算には、基本的にデフォルト設定の計算 条件を使用した. 具体的には、FIRE による 2 段階の 構造緩和計算で、Frechet Cell Filter、fmax = 10⁻⁴、 max_steps = 300 を指定した、注目すべき点として、 UMLP による LTC 計算では、力の定数計算時の変位 距離 (distance) が結果に大きく影響することがわかった. そこで、変位距離 0.03 Å (デフォルト)・0.05 Å・0.1 Å 0.3 種類で評価を行った.

表 1 に、PhononDB-PBE データセットにおける、PFP v6 と 他 の UMLP (MACE-MPA-0³³⁾、MatterSim-v1⁶⁾)の LTC 計算誤差を示す、誤差は、LTC の mean Symmetric Relative error(mSRE)と各フォノンの mean Symmetric Relative Mean Error(mSRME)で定量化されている ¹⁰⁾、まず、MACE-MPA-0、MatterSim-v1 に対して再現実験を行ったが、変位距離 0.03 Å の結果は元の結果と同程度である.

表1 PhononDB-PBE データセットにおける格子熱伝導度 の予測誤差

| | mSRE (↓) | mSRME (\ \) |
|--------------------------------|-------------|---------------|
| PFP-v6 (distance = 0.03) | 0.530 | 0.656 |
| PFP-v6 (distance = 0.05) | 0.365 | 0.502 |
| PFP-v6 (distance = 0.1) | 0.245 | 0.374 |
| MACE-MPA-0 (distance = 0.03) | 0.205 | 0.412 |
| MACE-MPA-0 (distance = 0.05) | 0.204 | 0.411 |
| MACE-MPA-0 (distance = 0.1) | 0.206 | 0.412 |
| MatterSim-v1 (distance = 0.03) | 0.413 | 0.575 |
| MatterSim-v1 (distance = 0.05) | 0.403 | 0.566 |
| MatterSim-v1 (distance = 0.1) | 0.366 | 0.541 |
| MACE-MPA-0 ¹¹⁾ | 0.205 | 0.412 |
| MatterSim-v1 ¹¹⁾ | 0.413 | 0.575 |

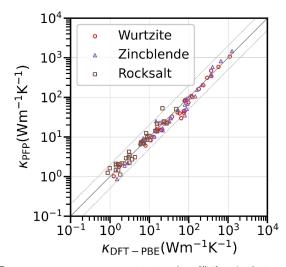


図1 PhononDB-PBE データセットの構造における,300 KでのLTCの、PFP v6とDFT-PBEの比較、マーカー の形状と色は、化合物の代表構造(岩塩、閃亜鉛鉱、 ウルツ鉱のいずれか)を示す、破線は、完全一致(対 数プロット上の直線)からのずれが50%と200%まで の範囲を示す。

また、変位距離が大きい (0.1 Å) 方が、UMLPのLTC計算結果が向上する傾向があり、特に PFP v6ではその効果が顕著である。変位距離 0.1 Åの PFP v6は、他の UMLP よりも優れた性能(mSRME 0.374)を発揮していることが分かる。図 1 は、PFP v6(変位距離 0.1 Å) と DFT-PBE による LTC の比較を、対数プロットで示している。PFP v6は、103種類の化合物のうち 100種類で、LTC を 2 倍以内の精度で予測できている。

以上、PFP v6 は、格子熱伝導率予測のベンチマークにおいて、現在の最高精度を実現することを示した。また、通常 DFT 計算で使われる値と比べて変位距離 0.1 Å というのは大きい値であるが、多くの UMLP は、予測精度の面ではこのような大きな変位距離を好む傾向があることをみた。参考までに、最近では他の研究グループから LTC 計算を意識したモデルが発表されており、UMLP を用いた大規模 LTC 計算の事例も出てきている $^{16).17}$.

3. PFP を用いた結晶構造探索と自由エネルギー 計算

次に PFP を用いた結晶構造探索および熱物性計算の事例について述べる.

結晶構造予測(Crystal Structure Prediction, CSP)は、特定の元素種内で安定した結晶構造を予測する重要な問題である ¹⁸⁾. 従来,CSP 手法は密度汎関数理論(Density Functional Theory, DFT)に基づく第一原理計算と組み合わせて候補構造の形成エネルギーを評価するのが主であった ¹⁹⁾. しかし,大規模な DFT 計算は時間がかかるため,多数の候補構造を網羅的に探索することが難しくなる。また,特定の組成に対するCSP 手法は良く研究されているが,三元系以上の多元系で全組成空間を探索したり,有限温度での自由エネルギーに拡張したりすることには未だ課題がある.

近年、UMLPの最近の大きな進展が、この課題に対する有望な解決策として上がっている。結晶構造間のエネルギー差を区別できるような UMLP を用いることで、迅速かつ正確なエネルギー評価を提供でき、CSP を効率的に解くことが期待できる。

そこで我々は PFP を用いて組成・結晶構造の両方を探索する CSP 手法を開発した ²⁰⁾. 候補となる結晶構造はランダム生成 ^{21),22)} と遺伝的アルゴリズム ²³⁾ による突然変異・交叉によって生成する。そして、生成した結晶構造を用いてエネルギー計算する結晶構造をサンプリングする。このとき、多目的最適化の分野で使われる NSGA-III アルゴリズム ²⁴⁾ を拡張して、

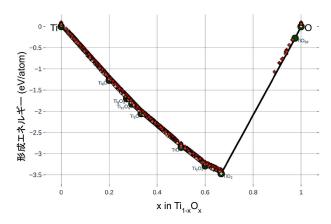


図2 CSP 探索で得られた Ti-O 系 0 K 相図. 緑色の丸は convex hull 上の構造を示す. 赤色の四角は convex hull から 50 meV/atom までの範囲の構造を示す.

多様性を保ちつつ形成エネルギーの低い結晶構造を選抜する. 提案手法の詳細については文献²⁰⁾ を参照いただきたい.

提案手法を用いて Ti-O 系で合計 10000 構造をサンプリングした CSP 探索結果を図 2 に示す. TiO_2 組成では、形成エネルギーの低い順の 3 構造として、mp-554278 ($TiO_2(B)$)、mp-34688 (anatase)、mp-2420244 (Pnma) が得られた. ここでは、CSP 探索で得られた構造が Materials Project $^{25)}$ に掲載されている構造とどれも一致していたため、material idで呼称している。 CSP 探索にはプロトタイプ構造などの事前情報は含まれていないが、 TiO_2 組成の形成エネルギーの低い 10 構造の中にはいくつかの実験的に知られている多形($TiO_2(B)$ 、anatase、columbite、rutile) $^{26)}$ が再現されていた.

次のステップでは、0 K σ convex hull σ 近くにある構造に対して自由エネルギー計算を行い、有限温度での自由エネルギーを計算する。自由エネルギー計算には、熱力学的積分を用いる σ 000 そして、圧力一定下での自由エネルギーの温度依存性は、異なる温度でのエンタルピーを積分することで計算する σ 000 に

Ti-O 系の CSP 探索で得られた TiO_2 構造下位 10 構造について、0 圧力下での自由エネルギーを計算し、温度ごとに自由エネルギーが最小の構造を取った結果を図 3 に示す。また、液相の自由エネルギー計算も行い、固相と比較することで融点計算も行っている。

 $0 \text{ K convex hull } における上位 3 構造 (TiO_2(B),$ anatase, Pnma 構造) が固相としては安定という結果だが、実験的には大気圧下で安定な TiO_2 構造は rutile である。ここでは有限温度効果を古典統計の方法で出来る限り扱っているが、固相間の自由エネルギー

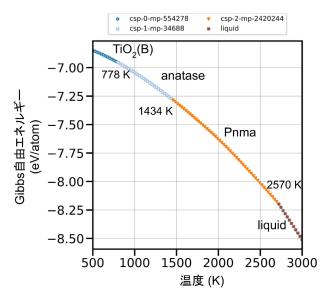


図3 温度ごとの自由エネルギー最小 TiO₂構造

差は非常に微妙 $^{31)}$ で、実験で得られる相を再現するには精度が不十分であると考えられる。これら酸化物の多形を比較するためには、実験で得られた形成エンタルピーを元にした補正 $^{32)}$ やより正確な DFT 汎関数での訓練がさらに必要であると考えられる。

以上、PFP と遺伝的アルゴリズムに基づいた手法を用いて、組成空間全体で CSP 探索をする例を示した。そして、PFP と遺伝的アルゴリズムを組み合わせた本手法で見つけた TiO_2 構造に対しても自由エネルギー計算を適用し、融点と各温度における自由エネルギーが最小の構造を求めた。

4. おわりに

本稿では、Preferred Networks(PFN)が開発した汎用機械学習ポテンシャルPFPを用いた格子熱伝導率計算の精度検証と結晶構造探索について紹介した。これらの取り組みが、AI技術と計算材料科学の連携による研究開発の一例として参考にしていただけると幸いである。今後もMatlantisを通じて汎用的な技術開発を進め、材料開発を加速させるお役に立てればと考えている。

注 記 PFP v6 は、産業技術総合研究所の人工知能橋渡しクラウド(AI Bridging Cloud Infrastructure, ABCI)とPreferred Networksの自社スーパーコンピューターを使用して開発された。

文 献

- 1) S. Takamoto et al., Comput. Mater. Sci., 207, 111280 (2022).
- 2) S. Takamoto et al., Nat. Commun., 13, 2991 (2022).
- 3) R. Jacobs et al., Curr. Opin. Solid State Mater. Sci., 35,

- 101214 (2025).
- 4) https://tech.preferred.jp/ja/blog/lattice-thermal-conductivity-calculation-with-pfp/
- 5) A. Merchant et al., Nature, 624, 80 (2023).
- 6) H. Yang et al., arXiv:2405.04967 (2024).
- 7) L. Barroso-Luque et al., arXiv:2410.12771 (2024).
- 8) J. Riebesell et al., arXiv:2308.14920 (2024).
- 9) https://matbench-discovery.materialsproject.org/
- 10) B. Póta et al., arXiv:2408.00755 (2024).
- 11) https://github.com/MPA2suite/k_SRME
- 12) A. Togo et al., Phys. Rev. B, 91, 094306 (2015).
- 13) A. Togo et al., J. Phys. Condens. Matter, 35, 353001 (2023).
- 14) https://github.com/phonopy/phono3py
- 15) https://mdr.nims.go.jp/collections/7s75dk391
- 16) X. Fu et al., arXiv:2502.12147 (2025).
- 17) J. Li et al., arXiv:2503.11568 (2025).
- 18) A. R. Oganov et al., Nat. Rev. Mater., 4, 331 (2019).
- 19) A. Jain et al., Nat. Rev. Mater., 1, 15004 (2016).
- 20) T. Shibayama et al., arXiv:2503.21201 (submitted, 2025).
- 21) C. J. Pickard et al., *J. Phys.: Condens. Matter.*, **23**, 053201 (2011).
- S. Fredericks et al., Comput. Phys. Commun., 261, 107810 (2021).
- 23) A. R. Oganov et al., J. Chem. Phys., 124, 244704 (2006).
- 24) K. Deb et al., IEEE Trans. Evol. Comput., 18, 577 (2014).
- 25) A. Jain et al., APL Mater., 1, 011002 (2013).

- 26) A. Reinhardt, J. Chem. Phys., 151, 064505 (2019).
- 27) D. Frenkel et al., J. Chem. Phys., 81, 3188 (1984).
- 28) R. Freitas et al., Comput. Mater. Sci., 112, 333 (2016).
- 29) R. Paula Leite et al., J. Chem. Phys., 145, 194101 (2016).
- 30) B. Cheng et al., Phys. Rev. B, 97, 054102 (2018).
- 31) Y. Zhang et al., J. Chem. Phys., 150, 014105 (2019).
- 32) A. Wang et al., Sci. Rep., 11, 15496 (2021).
- 33) I. Batatia et al., arXiv:2401.00096 (2023).

筆者紹介



篠原 航平(しのはら こうへい)

2018年,京都大学工学部物理工学科を卒業. 学士(工学).2020年,京都大学大学院工学研究 科材料工学専攻を修了.修士(工学).2023年, 京都大学大学院工学研究科材料工学専攻を修了. 博士(工学).2023年より株式会社 Preferred Networks にリサーチャーとして勤務.専門:計 算科学に基づく結晶構造探索,計算結晶学,科学 ソフトウェア開発.

[連絡先] 〒100-0004 東京都千代田区大手町 1丁目6-1大手町ビル 株式会社 Preferred Networks

E-mail: kshinohara@preferred.jp