

アドバンス・シミュレーション 第7回 ・セミナー 2022

2022年11月25日(金) 離

プログラム

1. アドバンスソフト株式会社のご紹介 主催者あいさつ 1
- 招待講演
2. 「機械学習原子間ポテンシャルを用いた材料研究：事例と機能高度化の試み」 3
東京大学大学院 工学系研究科 マテリアル工学専攻
教授 渡邊 聡 様
3. アドバンスソフトからの情報提供 25

講演概要

「機械学習原子間ポテンシャルを用いた材料研究：事例と機能高度化の試み」

東京大学大学院 工学系研究科 マテリアル工学専攻
教授 渡邊 聡 様

第一原理計算に匹敵する予測精度と比較的軽い計算負荷の両立が見込める機械学習原子間ポテンシャルの可能性に我々は以前から注目し、機械学習ポテンシャルの一種であるニューラルネットワークポテンシャルを用いて固体中のイオン伝導や熱伝導特性等の解析に取り組んできた。また、電場中でのイオン挙動や欠陥の荷電状態による振動挙動の違い等、標準的な方法では扱えない問題に適用できるように機械学習ポテンシャルの機能高度化する研究にも取り組んできた。

本講演ではこれらの事例について紹介すると共に、他グループの最近の研究にも言及しつつ今後の展望を述べたい。



アドバンスソフト株式会社 セミナー事務局

〒101-0062 東京都千代田区神田駿河台四丁目3番地 新お茶の水ビルディング 17階西

TEL: 03-6826-3971 FAX: 03-5283-6580

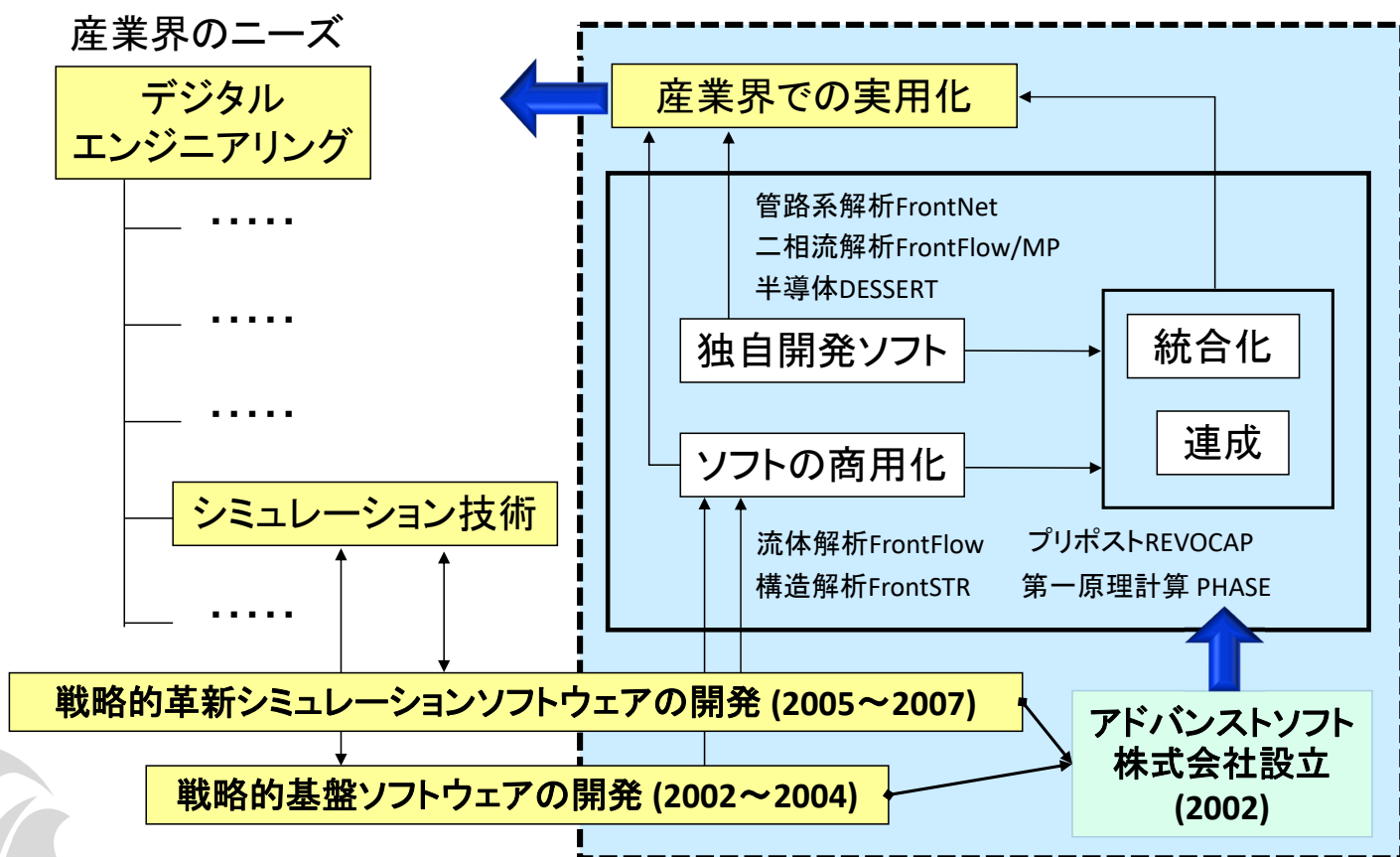
URL: <http://www.advancesoft.jp/> E-mail: office@advancesoft.jp

アドバンスソフト株式会社のご紹介

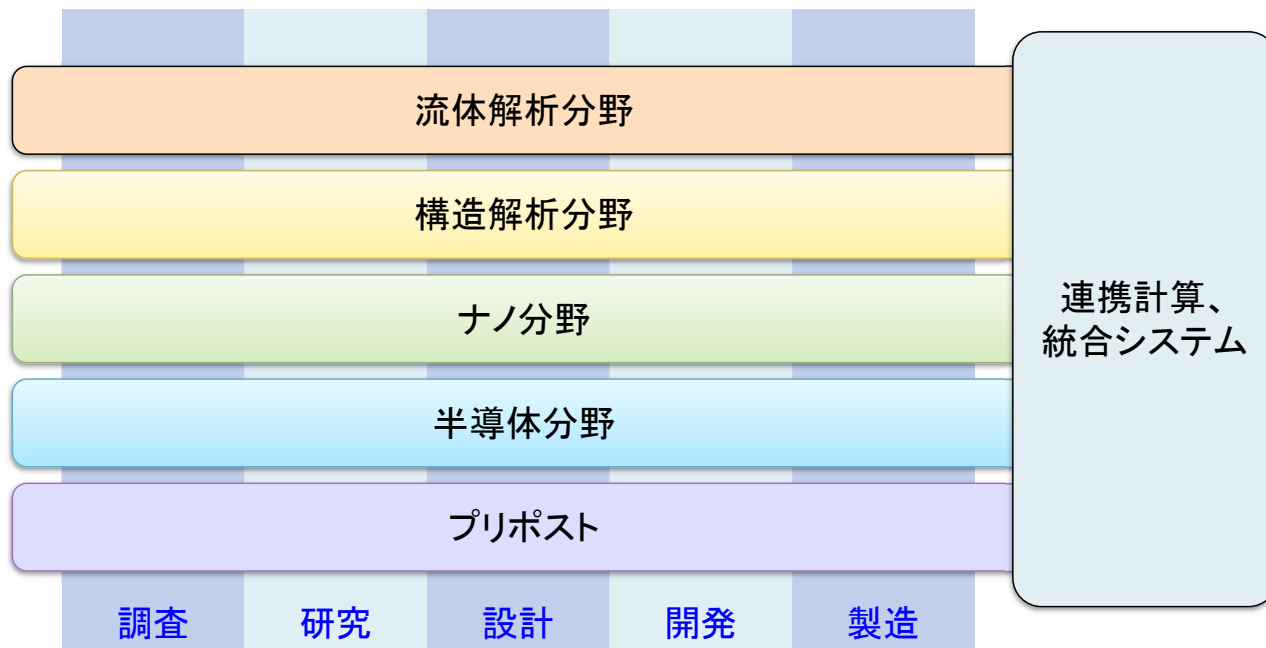
第7回 アドバンス・シミュレーション・セミナー
(東京大学大学院 工学系研究科 渡邊 聡 教授 ご講演回)

2022年11月25日 (金) 開催
アドバンスソフト株式会社

アドバンスソフトとは



事業分野



産業の主要な分野のあらゆるフェーズで直面する課題に対し、科学技術計算によるソリューションをご提供します。

ソフトウェアご紹介

<p>第一原理計算ソフトウェア Advance/PHASE</p> <p>密度汎関数理論に基づき、物質の性質を原子・分子レベルから解析する第一原理計算ソフトウェアです。</p> <p>ナノ材料 GUI 付属</p>	<p>ナノ材料解析統合 GUI Advance/NanoLabo</p> <p>材料解析ソフトウェア QuantumESPRESSO と LAMMPS に対応した統合 GUI です。</p> <p>ナノ材料 プリポスト</p>	<p>流体解析ソフトウェア Advance/FrontFlow/red</p> <p>非圧縮性から圧縮性流れまで、広範囲で複雑な流れに対応した汎用 3次元流体解析ソフトウェアです。</p> <p>流体</p>	<p>圧縮性流体解析ソルバー Advance/FOCUS-i</p> <p>非構造格子に対応した圧縮性流体解析ソルバーです。特に超音速や超音速の流れに適しており、高い並列化効率で計算出来ます。</p> <p>流体</p>
<p>大規模 3次元 TCAD システム Advance/TCAD</p> <p>超微細半導体デバイスからパワーデバイスまで、高度な機能と使いやすい GUI を備えた 3次元 TCAD システムです。</p> <p>半導体デバイス GUI 付属</p>	<p>ニューラルネットワーク分子動力学システム Advance/NeuralMD</p> <p>Neural Network Potential に基づいた分子動力学のソフトウェアです。第一原理計算の結果を教師データとして分子力場を作成します。</p> <p>ナノ材料 AI・機械学習</p>	<p>気液二相解析ソフトウェア Advance/FrontFlow/MP</p> <p>沸騰と凝縮を伴う気液二相流の流動特性や伝熱特性を 3次元で解析するソフトウェアです。</p> <p>流体</p>	<p>管路系流体過渡解析ソフトウェア Advance/FrontNet</p> <p>配管や流体機器から成る管路系内流体に対する 1次元過渡解析の実用的なソフトウェアです。</p> <p>流体 GUI 付属</p>
<p>大規模電磁波解析ソフトウェア Advance/ParallelWave</p> <p>マクスウェル方程式を FDTD 法で 3次元的に解く電磁波解析ソフトウェアです。アンテナの電波解析から光の干渉や回折を考慮した光波解析まで幅広く適用できます。</p> <p>光波・電磁波</p>	<p>構造解析ソフトウェア Advance/FrontSTR</p> <p>固体の変形や熱伝導を、有限要素法を用いた 3次元で解析するソフトウェアです。</p> <p>構造</p>	<p>大気拡散影響予測システム Advance/Emerg</p> <p>大気拡散物質の挙動予測と影響評価のためのソフトウェアシステムです。</p> <p>流体 GUI 付属</p>	<p>深層学習用ツール Advance/iMacle</p> <p>機械学習のうち、ニューラルネットワークによる深層学習に特化、最小限度の機能に絞り込んだ比較的軽いツールです。</p> <p>AI・機械学習</p>
<p>汎用プリポストプロセッサ Advance/REVOCAP</p> <p>解析の一連の流れをスムーズに行う事を実現した汎用プリポストプロセッサです。</p> <p>プリポスト</p>	<p>音響解析ソフトウェア Advance/FrontNoise</p> <p>環境騒音、機器内の共振等における音場を有限要素法を用いた 3次元で解析するソフトウェアです。</p> <p>音響</p>	<p>自社による開発 (国プロ含む) 開発チームによる質の高いサポートサービス カスタマイズや機能追加も応相談 並列数無制限 (追加料金なし)</p>	

機械学習原子間ポテンシャルを用いた 材料研究: 事例と機能高度化の試み

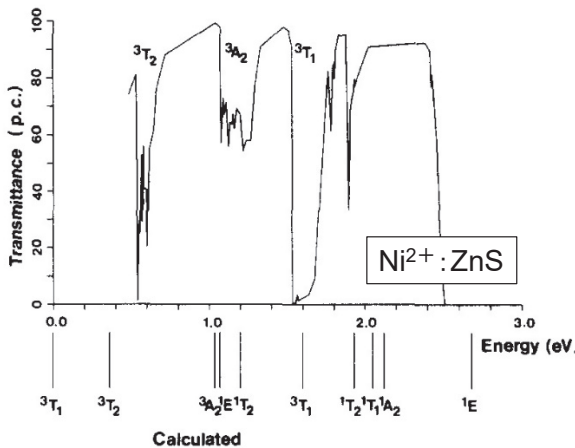
渡邊 聡

東京大学大学院工学系研究科マテリアル工学専攻

1

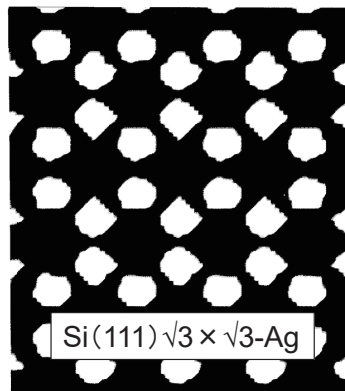
自己紹介: これまでの研究(1)

大学院(~1989、東大・理・物理)
半導体中の遷移金属不純物
電子状態、光吸収スペクトル



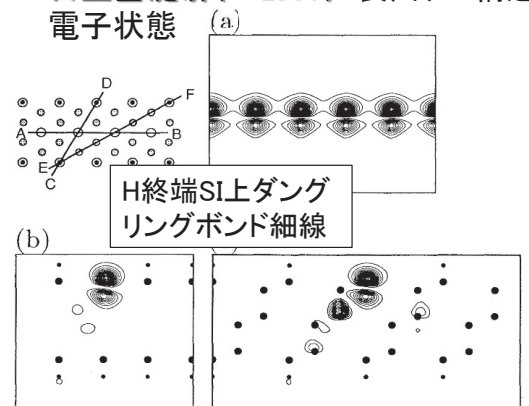
SW and Kamimura, Mater. Sci. Eng.
B 3 (1989) 313.

ERATO青野プロジェクト(~1994)
STM像シミュレーション

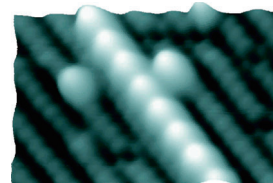


SW, Tsukada, & Aono,
Phys. Rev. B 44 (1991)
8330

日立基礎研(~1997): 表面ナノ構造
電子状態



SW, Hashizume, Tsukada, et al., Phys.
Rev. B 52 (1995)10768



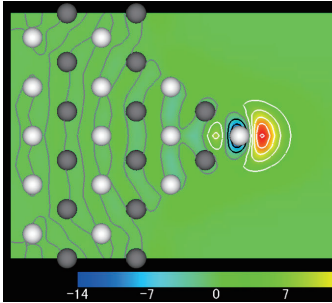
Hitosugi, Hashizume,
SW et al., Phys. Rev.
Lett. 82 (1997) 4034.

2

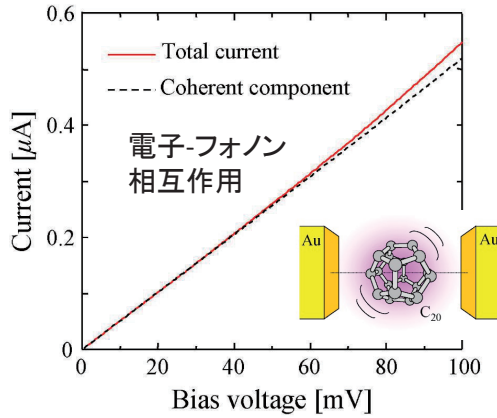
自己紹介:これまでの研究(2)

東大・工・マテリアル(1997~):
ナノ構造での電子伝導

電界電子放出



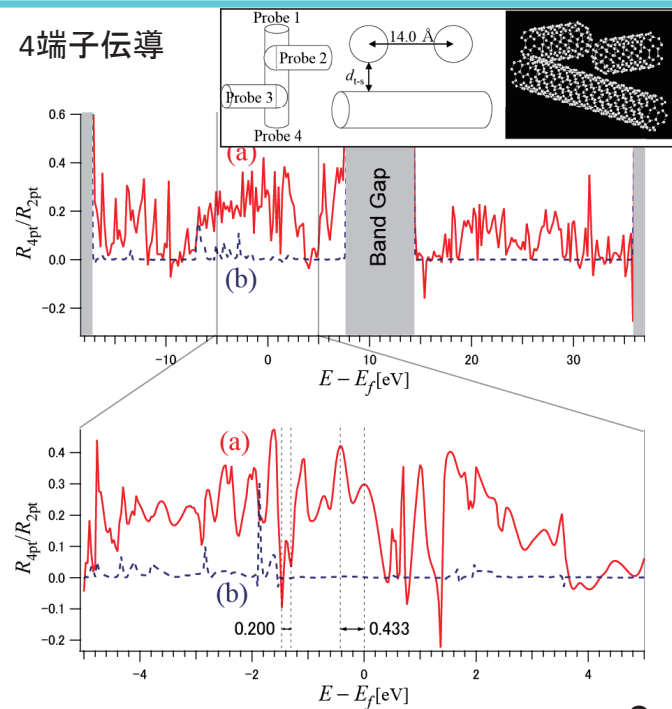
分子架橋



Gohda, SW, et al., Phys.
Rev. Lett. 87 (2001)
177601

Yamamoto, K. Watanabe, SW,
Phys. Rev. Lett. 95 (2005) 065501

4端子伝導



Terasawa, SW et al., PRB 79 (2009) 195436.

3

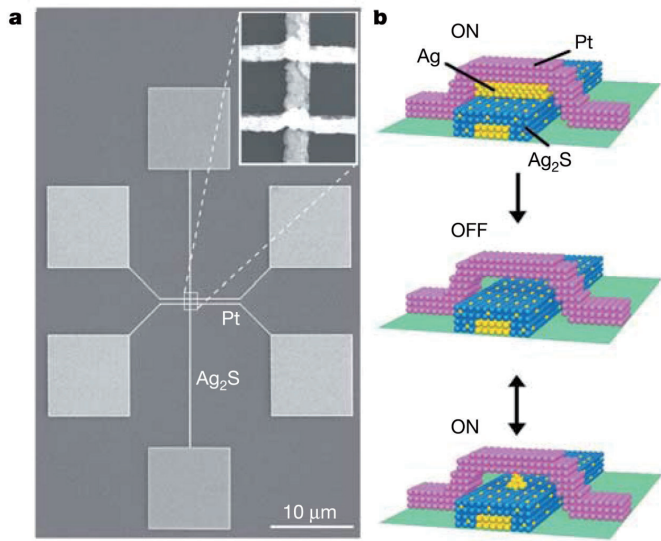
本日の講演のアウトライン

1. 自己紹介:これまでの研究
2. 動機:電子伝導からイオン移動へ
3. 機械学習ポテンシャルの概要など
4. 研究事例紹介:
アモルファス中の伝導、合金相図、熱伝導
5. 独自機能の実装:
欠陥の荷電状態、印加電場
6. 現状と展望についての私見

4

電気伝導からイオン伝導へ：背景

原子スイッチの研究プロジェクトに参加

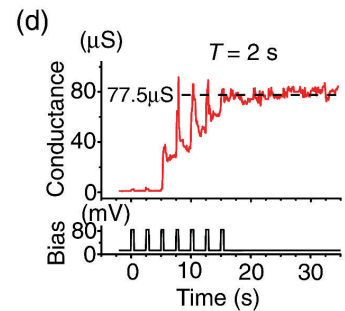
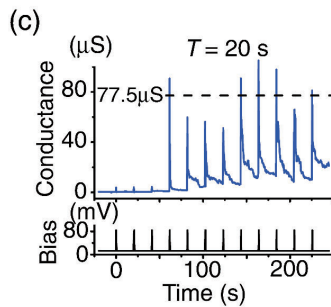


K. Terabe et al., Nature 433, 47 (2005).

- ✓ 不揮発記憶素子、書換可能回路のスイッチとして期待
- ✓ 最近では脳型計算素子としても注目

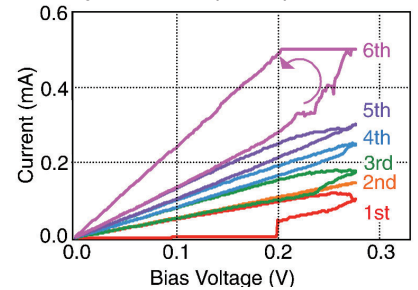
シナプスの動作

T. Ohno et al., Nat. Mater. 10 (2011) 591.



メモrista動作

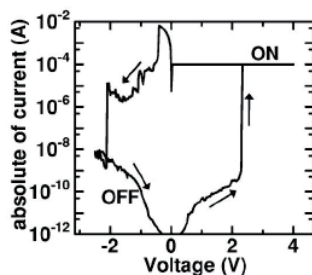
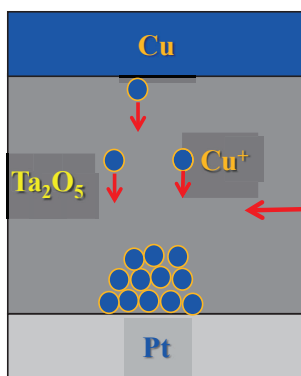
T. Hasegawa et al., Appl. Phys. A 102 (2011) 811.



アモルファス酸化タンタルによるスイッチ素子

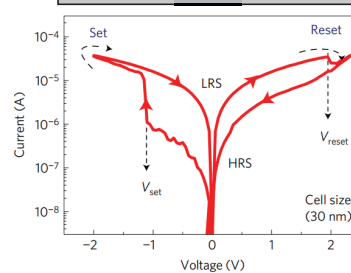
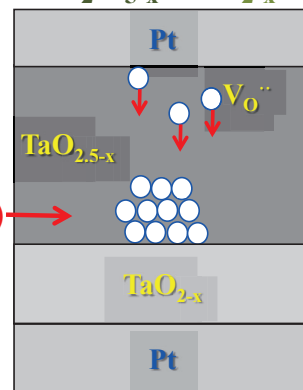
原子スイッチ

Cu/Ta₂O₅/Pt



Sakamoto et al., Appl. Phys. Lett. 91, 92110 (2007).

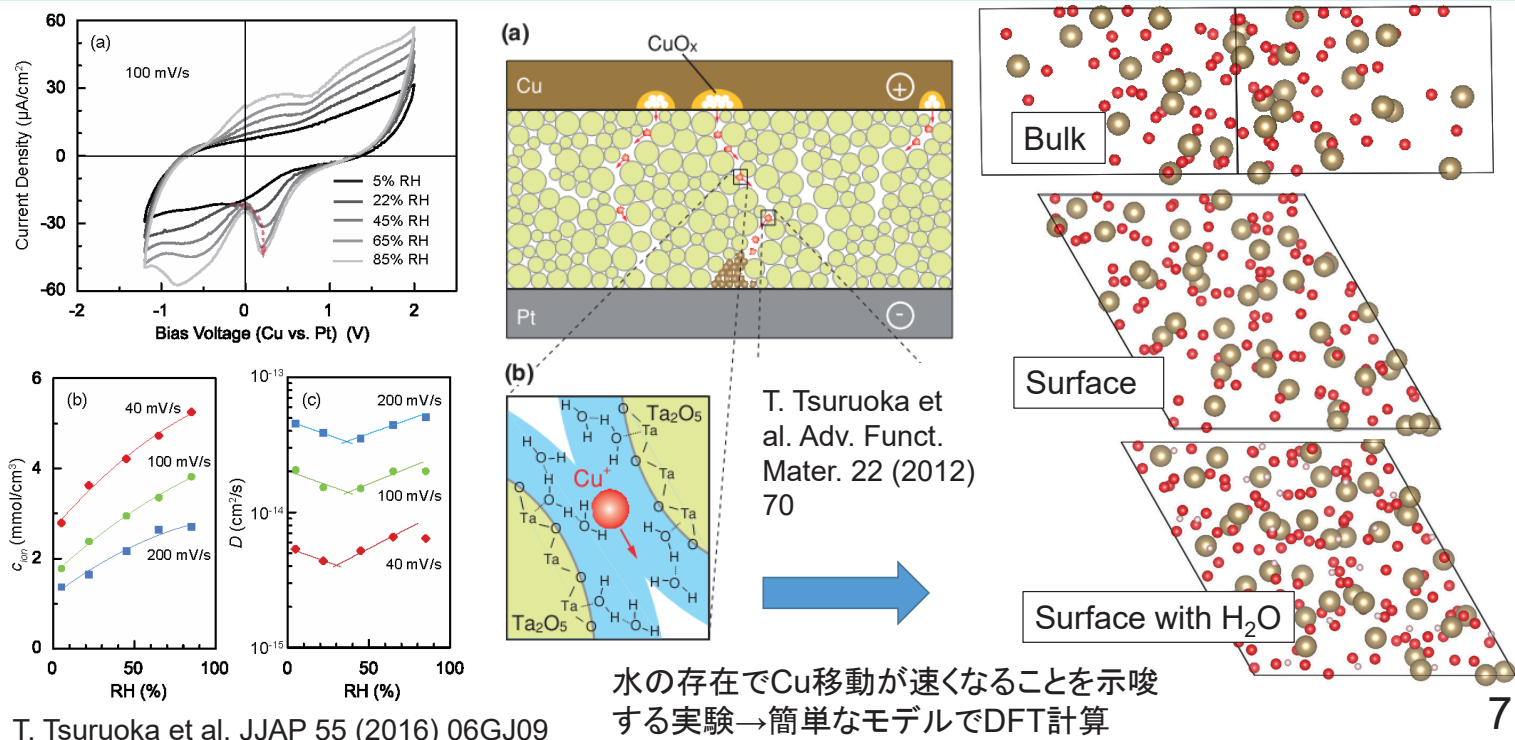
Pt/Ta₂O_{5-x}/TaO_{2-x}/Pt



抵抗変化素子

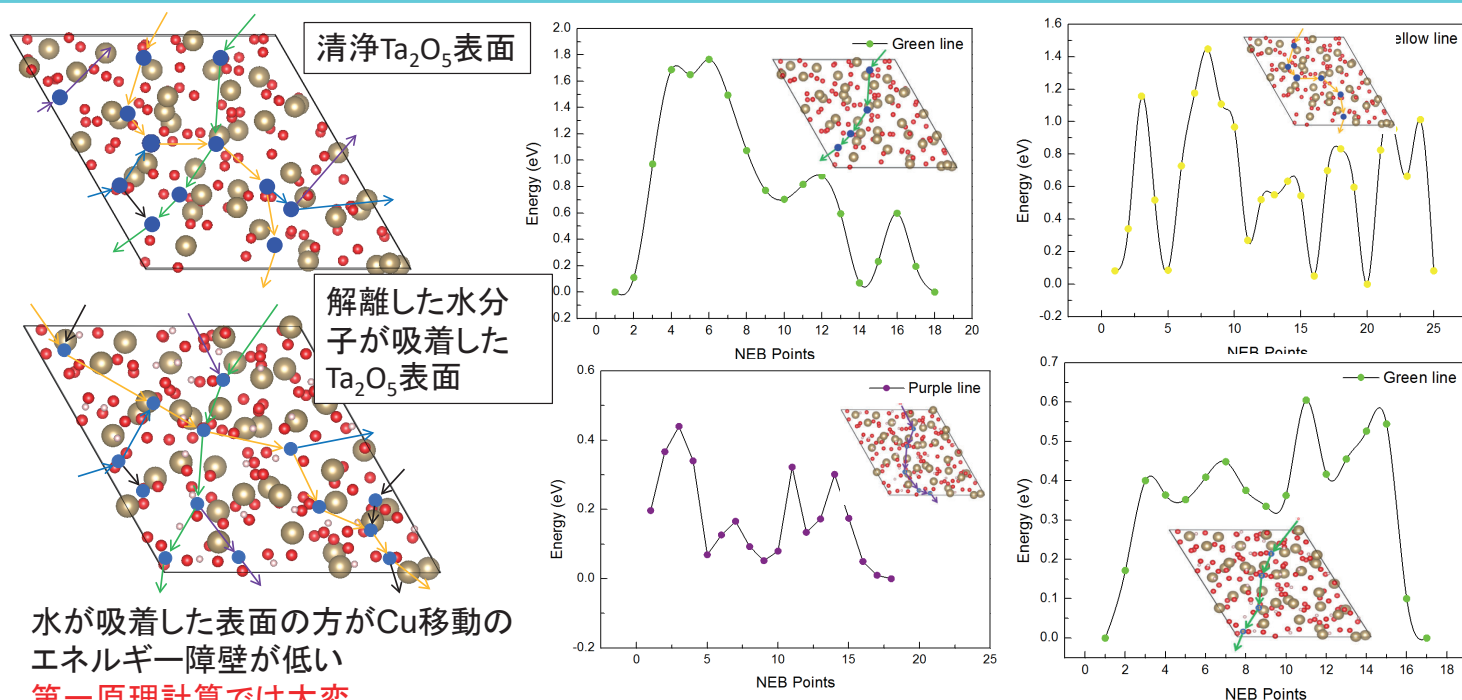
M. J. Lee, et al., Nat. Mater., 10, 625 (2011)

原子スイッチー水分子の影響(1)



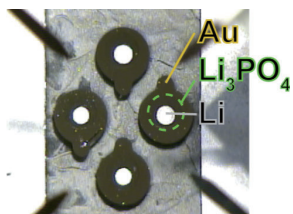
7

原子スイッチー水分子の影響(2)



8

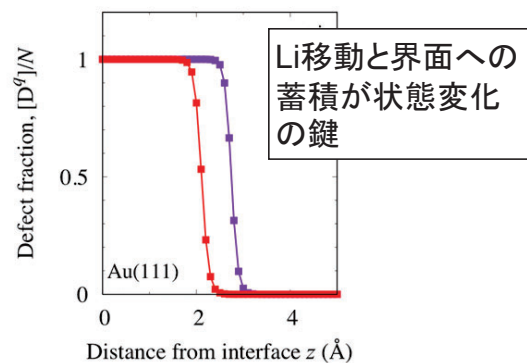
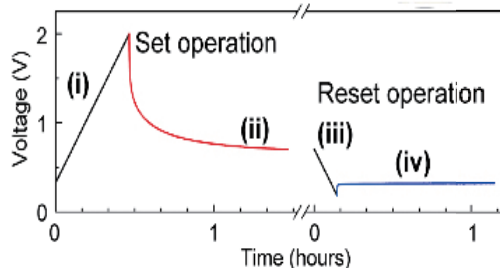
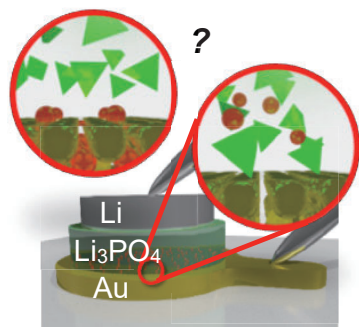
別のターゲット: アモルファス Li_3PO_4 による新規素子



電圧印加により2つの開回路電圧状態をスイッチする素子 (VolRAM)

- ◎ 低消費電力
- ◎ 単純な構造
- * $\text{Au} \rightarrow \text{Ni}$ とすると3状態

この系も複雑
第一原理計算では大変



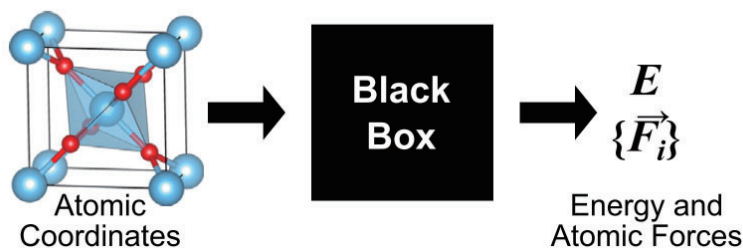
I. Sugiyama et al., APL Materials 5, 046105 (2017).

K. Shimizu et al., Phys. Rev. Mater. 4 (2020) 015402.

9

原子ダイナミクスシミュレーションの鍵

Relation between atomic arrangement and energy/forces

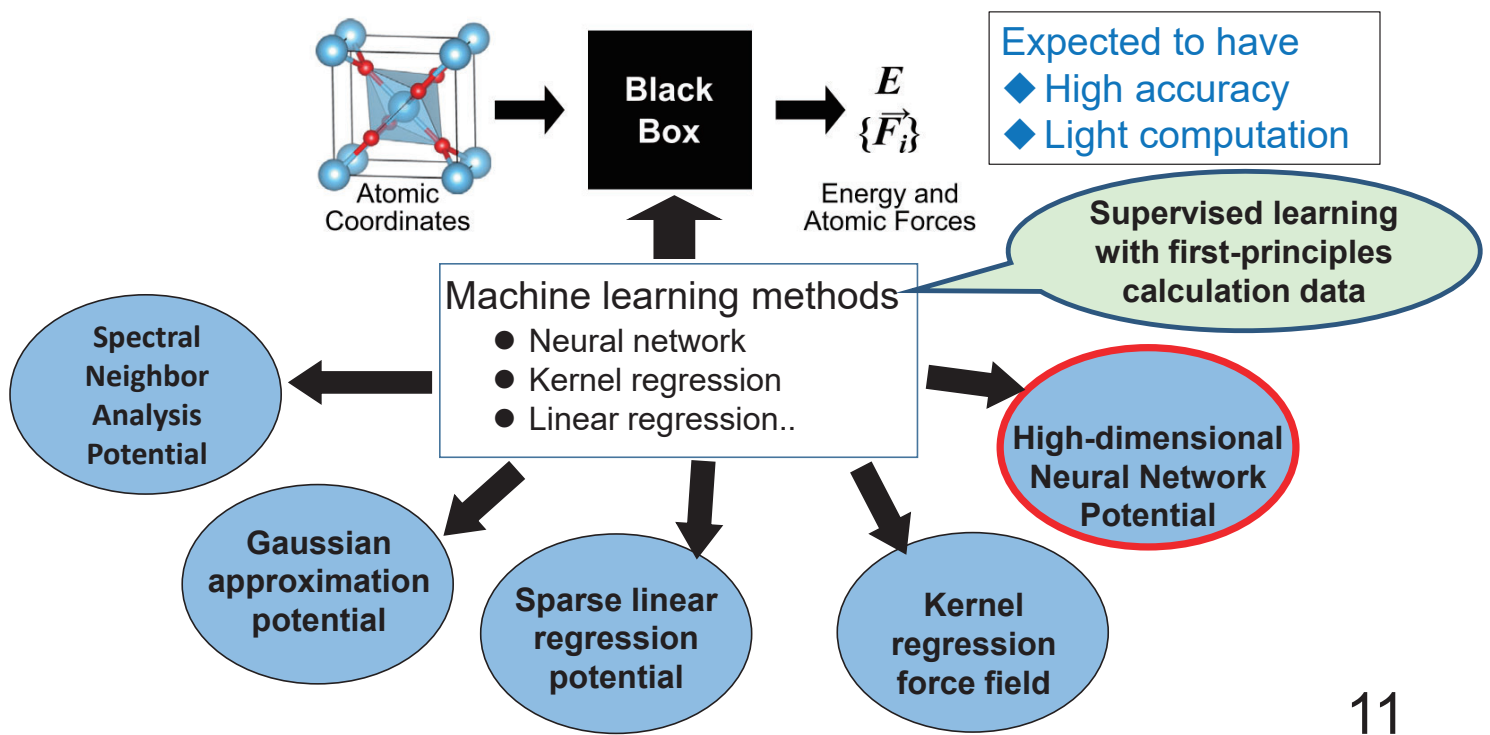


Various approaches are available to get this relation

- ◆ First-principles: reliable but heavy computational costs
- ◆ Empirical force field: light computation but often poorly reliable. To get good functional form and parameters are often tedious task.

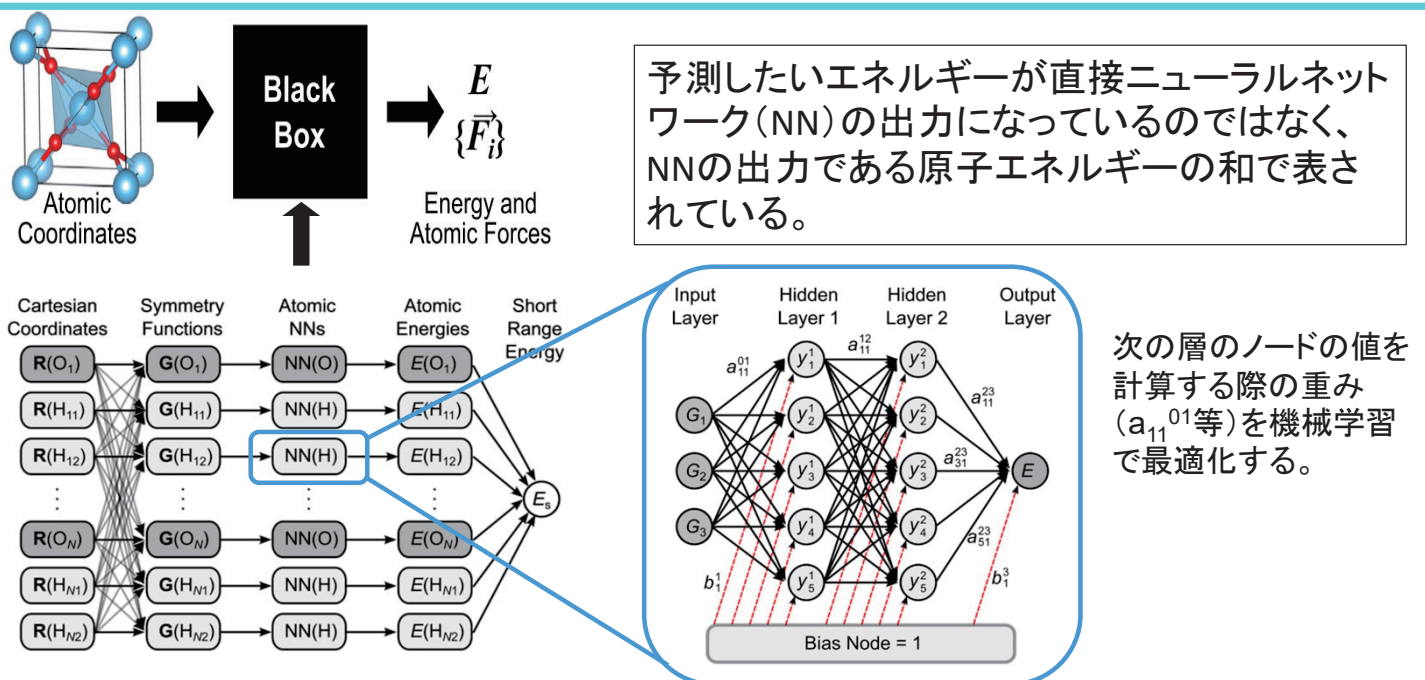
10

機械学習を用いた原子間ポテンシャル



11

高次元ニューラルネットワークポテンシャル



J. Behler, Int. J. Quant. Chem. 115, 1032-1050 (2015).

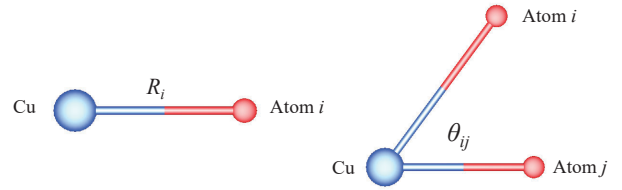
12

Symmetry function (対称性関数): 原子配置の記述子

Behler and Parrinello, PRL 98, 146401

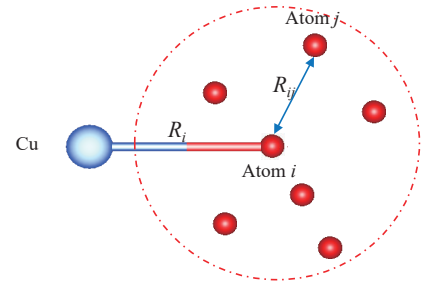
- ✓ 注目する原子の周囲の原子配置を記述
- ✓ 座標値をそのままNNの入力にすると、系全体の回転等に対するエネルギー値の不変性等が保証されない。対称性関数ならOK。
- ✓ カットオフ半径や λ 、 η 、 ζ 等は機械学習の前に決めるべきハイパーパラメータ
- ✓ 対称性関数が唯一の方法ではない。回転、並進、置換(同種粒子のラベルの付け替え)に対する不変性が担保されればよい。
他の例: Smooth overlap of atomic positions (SOAP), bispectrum, Chebyshev radial function, etc.

$$G^1 = \sum_i^{\text{all}} e^{-\eta R_i^2} f_c(R_i).$$



$$G^2 = 2^{1-\zeta} \sum_i^{\text{all}} \sum_{j \neq i}^{\text{all}} (1 + \lambda \cos \theta_{ij})^\zeta \times e^{-\eta(R_i^2 + R_j^2)} f_c(R_i) f_c(R_j).$$

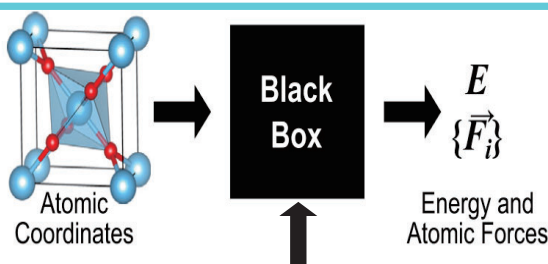
$$G^3 = \sum_i \left\{ e^{-\eta R_i^2} f_c(R_i) \cdot \left[\sum_{j \neq i} e^{-\eta R_{ij}^2} f_c(R_{ij}) \right] \right\}$$



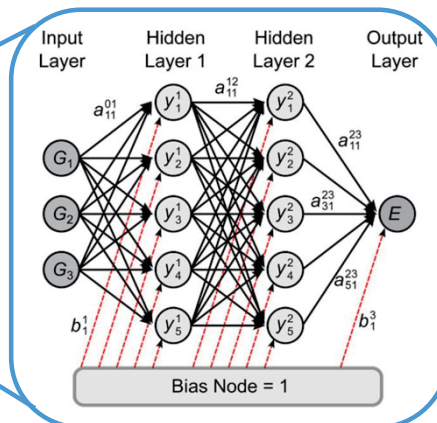
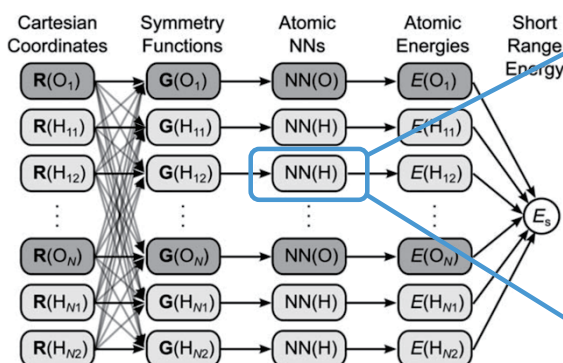
$$f_c = \begin{cases} 0.5 \times \left[\cos\left(\frac{\pi R_i}{R_c}\right) + 1 \right] & \text{for } R_i \leq R_c \\ 0 & \text{for } R_i > R_c \end{cases}$$

13

高次元ニューラルネットワークポテンシャル



- ① 対称性関数: 回転、並進に対する不変性
- ② 原子NNの和で表現(同種粒子には同じNNを使用): 同種粒子の置換に対する不変性 & 機械学習時と異なる粒子数への対応



J. Behler, Int. J. Quant. Chem. 115, 1032-1050 (2015).

14

事例紹介の序：我々の研究方針

従来の経験的ポテンシャル(力場)には難易度が高そうな問題でNNPの有効性を検証する

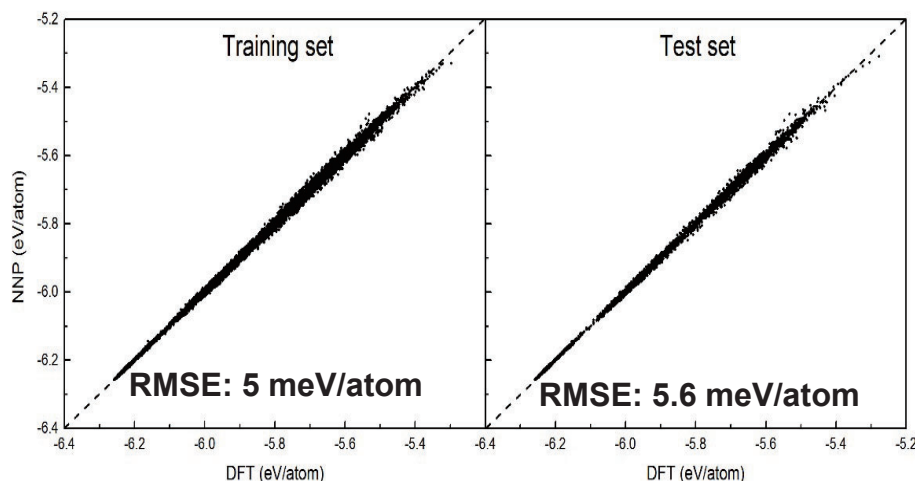
1. アモルファス固体中のイオン伝導：
多様な原子環境に対する学習・予測が必要
2. 微妙なエネルギー差で決まる合金相図：
広範囲の組成比への対応と高い予測精度が必要
3. 熱伝導：
エネルギーの高次微分の高精度予測が必要

解説論文: S. Watanabe et al., J. Phys. Energy 3 (2021) 012003.
安藤康伸 (AIST)、Seungwu Han (SNU)グループの研究も含む。

15

事例(1)アモルファス Li_3PO_4 中のLi拡散

- ✓ Training data: 30,874 (molecular dynamics (MD) for perfect cells (up to 64 atoms) + MD for cells with missing Li or Li_2O + transition states)
- ✓ HDNNP structure: 156-15-15-1 ←入力ノード数-隠れ層のノード数(2層分)-出力
- ✓ Test data: 7,718
- ✓ Target property (in training): total energy

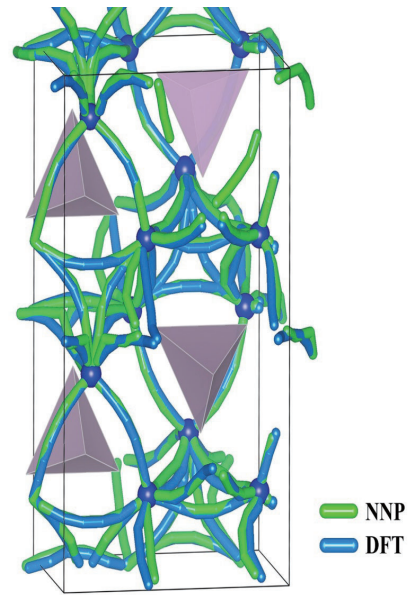
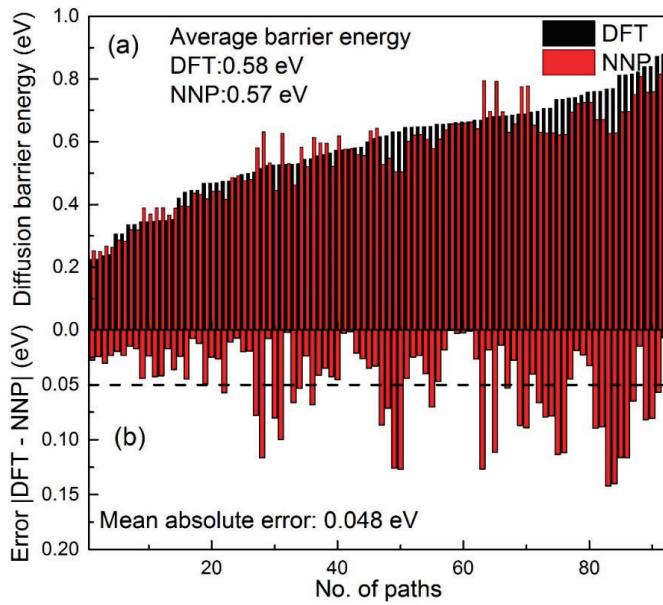


RMSE:
Root mean square error

W. Li et al., J. Chem. Phys.
147 (2017) 214106

16

拡散経路の網羅的調査



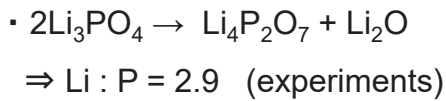
46 diffusion paths in the amorphous Li_3PO_4 structure

W. Li et al., J. Chem. Phys. 147 (2017) 214106

17

小さなモデルで機械学習したHDNNPの大きなモデルへの適用

[W. Li et al., J. Chem. Phys. 147 (2017) 214106]

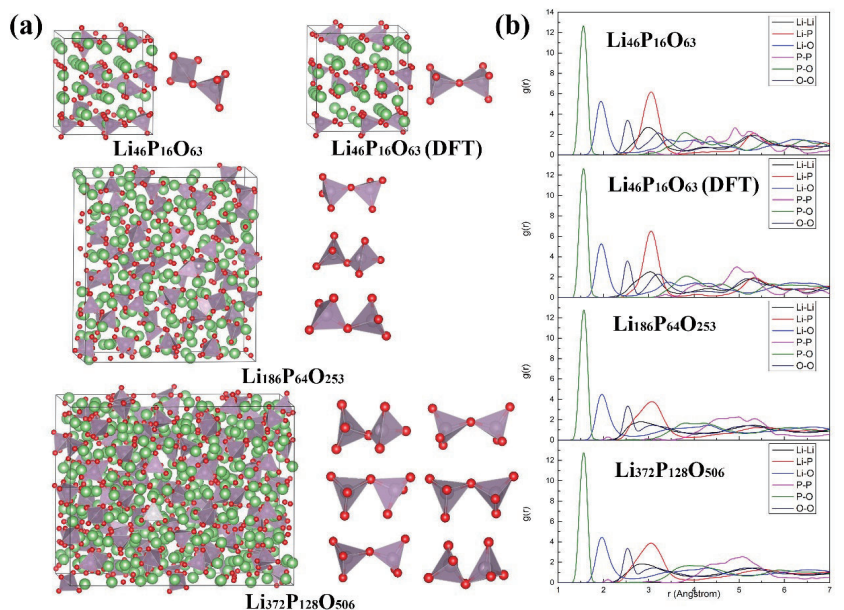


• Nearly the same ratio was set in calc.

• **Training: supercells having 15-16, 29-32 and 61-64 atoms**

Amorphous features:
 Reproduced well in larger cells

Existence of P_2O_7 :
 Agree with NMR



18

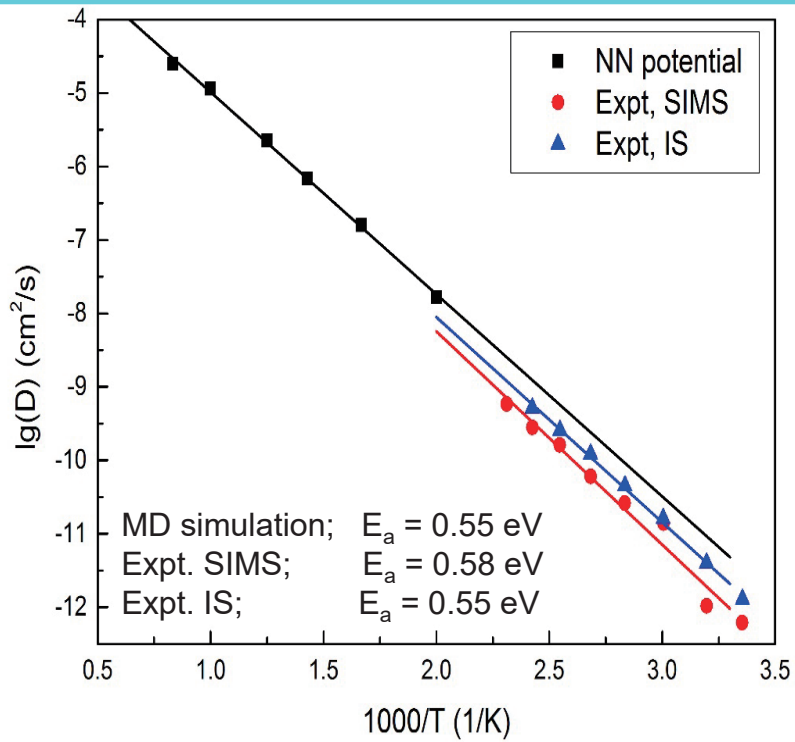
Li 拡散係数

[W. Li et al., J. Chem. Phys. 147 (2017) 214106]

Exp:

Kuwata, et. al, Solid State Ionics 294, 59 (2016);
J. Electrochem. Soc. 157, A521 (2010).

Training: supercells having 15-16, 29-32 and 61-64 atoms
⇒ applied to MD with ~1000-atom cell (Li₃₇₂P₁₂₈O₅₀₆)

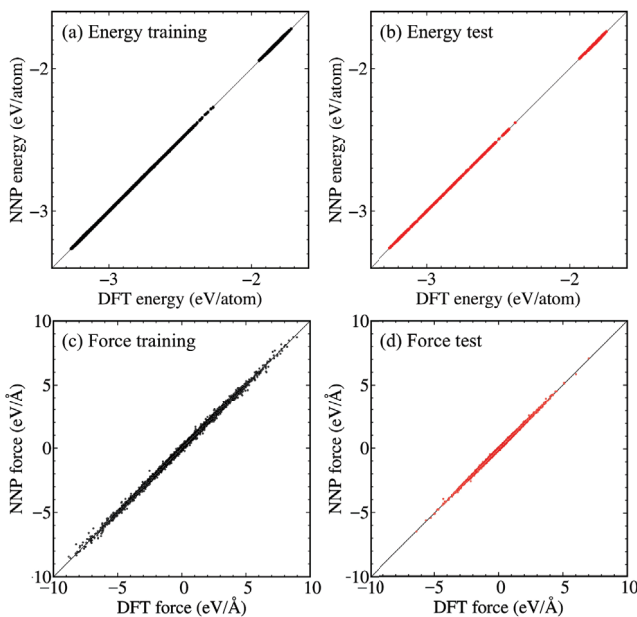


19

事例(2) Au-Li合金系

K. Shimizu et al., Phys. Rev. B **103**, 094112 (2021).

NNP予測値 vs. DFT値



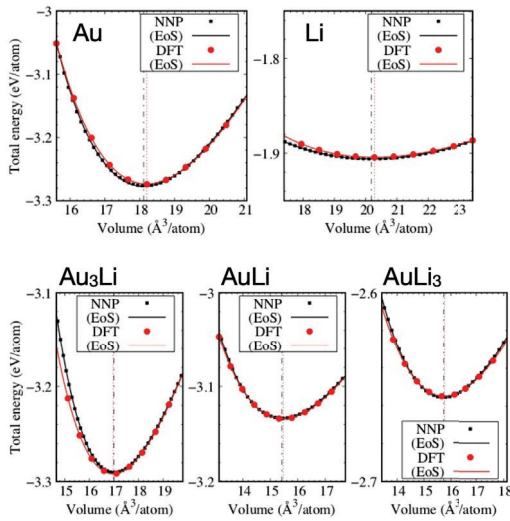
- 計9285構造に対しエネルギーと力のDFT計算.
- 無作為に選出した10%を検証データとしてNNPを作成.
- 誤差関数にはエネルギーと力の二乗平均誤差を使用.
- ネットワーク構造:[66-10-10-1] (対称性関数:2体×6, 3体×18)
- 二乗平均平方根誤差 (RMSE)

	RMSE	E (meV/atom)	F (meV/Å)
Training (90%)		1.53	23.1
Test (10%)		1.46	22.9

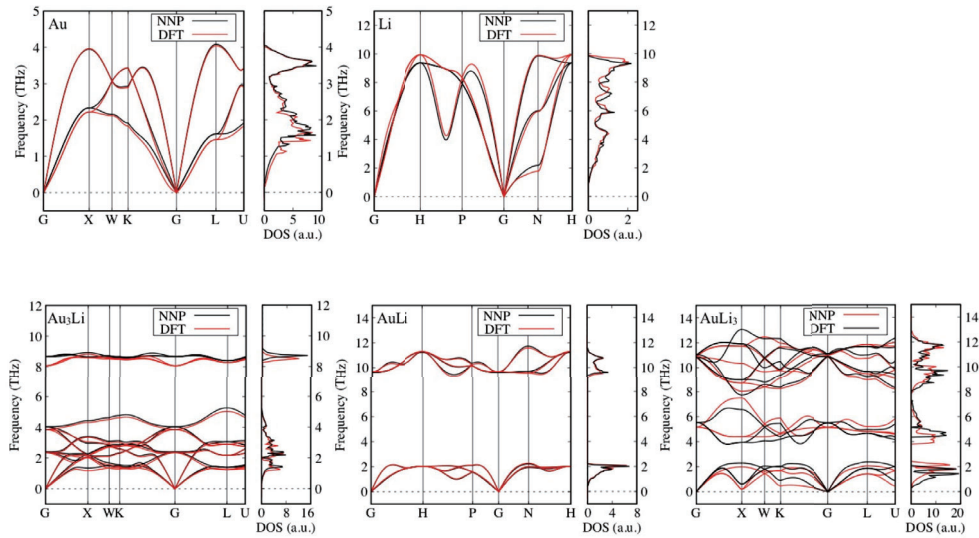
- 学習曲線から過学習が起きていないことを確認.

20

格子パラメータ



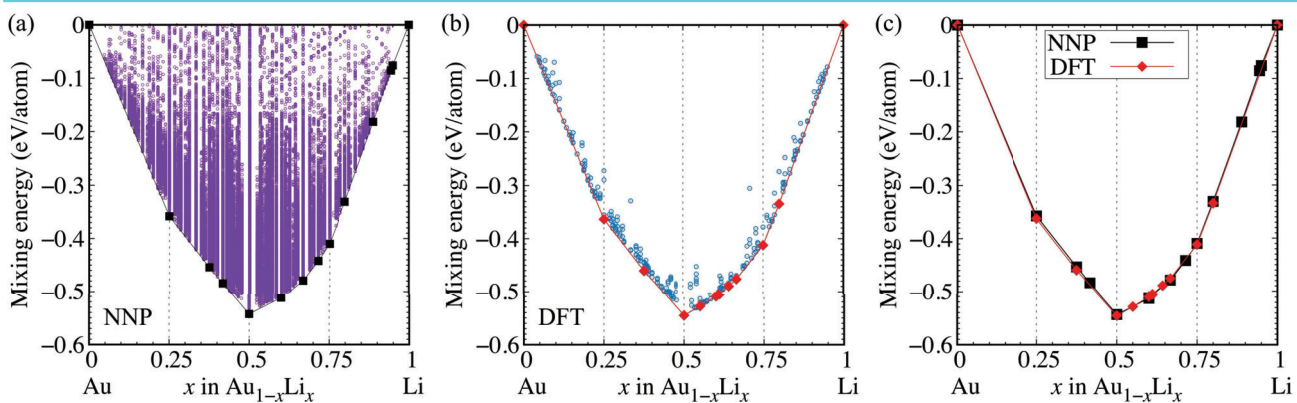
フォノン分散と状態密度



21

Au_{1-x}Li_x混合エネルギー計算

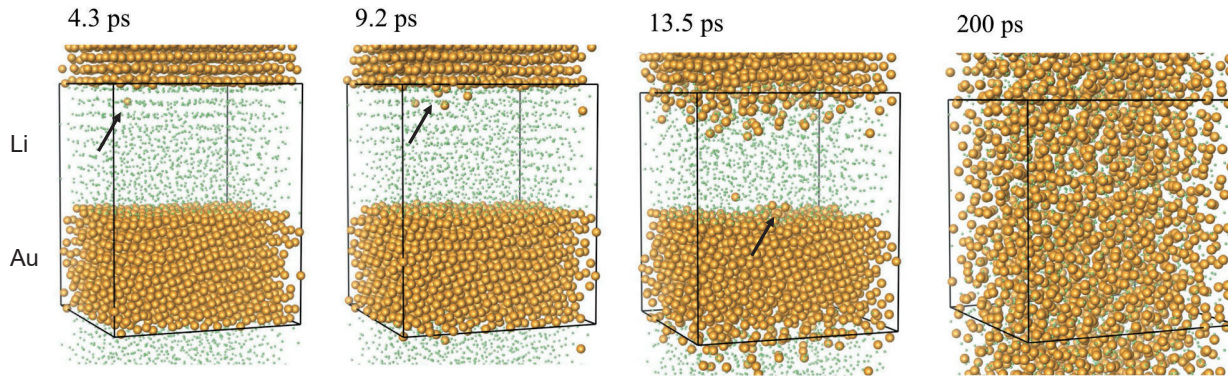
K. Shimizu et al., Phys. Rev. B **103**, 094112 (2021).
 [1] A. van de Walle et al., J. Phase Equilibria **23** (2002) 348.



- Alloy Theoretic Automated Toolkit/パッケージにより様々な構造を生成.¹⁾ それらの構造に対しNNPで構造最適化計算.
- (a) ○マーク: 775,184構造について検証. ■マーク: 凸包.
- (b) 各組成xについて, NNPによる予測エネルギーが低い5構造をDFT計算により検証.
- (c) NNPとDFT計算で得られた凸包線の比較図. 凸包点に相違はあるが凸包線はよく一致.
- DFT計算で得られた凸包点はこれまで未報告の構造を含む(x=0.55, 0.611, 0.643)

22

- 大きなAu/Li超格子構造を用いたNPT-MD ($N = 2560$, $P = 0$ GPa, $T = 500$ K) 計算.

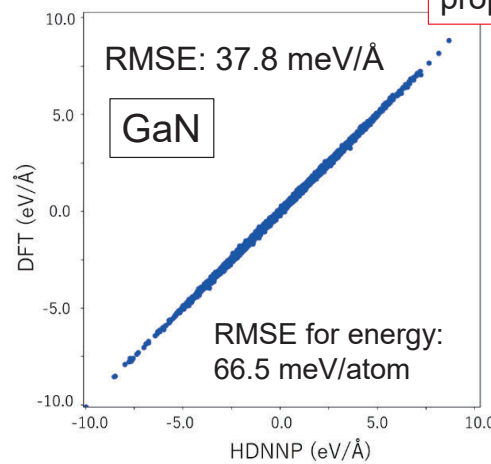
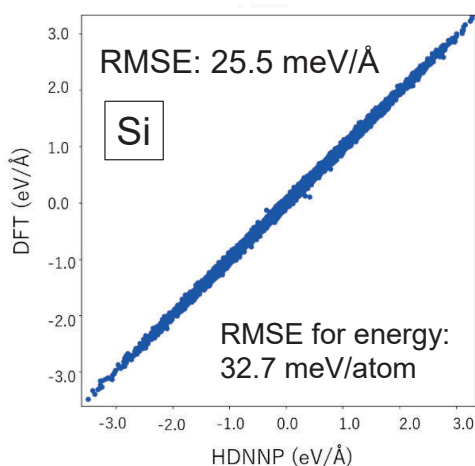


- 4.3 ps: Au原子のLiへの固溶.
- 9.2 ps: 隣接するAu原子が固溶(矢印箇所). その後, 上側界面の固溶が加速される.
- 13.5 ps: 下側界面での固溶が進行. 矢印は隣接Au原子の固溶箇所.
- 200 ps: 短時間のシミュレーションで相分離状態から完全固溶に至る.

事例(3)熱伝導

Si: 64-atom cell, 2100 structures from classical MD at 300-900K with several lattice const., 2 hidden layers (500 nodes/each) in HDNNP
 GaN: 32-atom cell, 3500 structures from classical MD at 300-2700K with several lattice const., 2 hidden layers (500 nodes/each)

Use of both energy and forces in machine learning seems necessary to generate HDNNP to study phonon and thermal properties



E. Minamitani, et al., Appl. Phys. Express **12**, 095001 (2019).

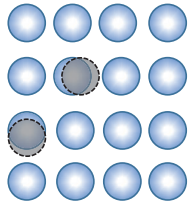
High accuracy HDNNP for phonon and thermal properties can be constructed.

Note: Shimamura et al. (J. Chem. Phys. **153** (2020) 234301) included virial tensor in NNP training.

(参考) 熱伝導率の計算

Phonon Phonopy (A. Togo and I. Tanaka, Scr. Mater., 108 (2015) 1-5)

Thermal conductivity (Lattice dynamics with Boltzmann equation)



move two atoms & evaluate forces acting on each atom
required displacement patterns : **order of several thousands or more**

third order force constants

$$\Phi_{\alpha\beta\gamma}(lb, l'b', l''b'') = \frac{\partial^3 V}{\partial u_\alpha(lb) \partial u_\beta(l'b') \partial u_\gamma(l''b'')} \Big|_0$$

$$= - \frac{\partial^2 F_\gamma(l''b'')}{\partial u_\alpha(lb) \partial u_\beta(l'b')}$$

Three phonon scattering rate

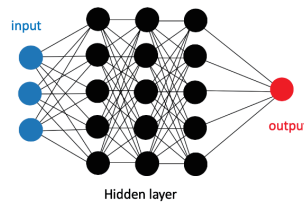
Phonon lifetime

thermal conductivity

Determine required displacement patterns by phono3py



Predict forces in each pattern



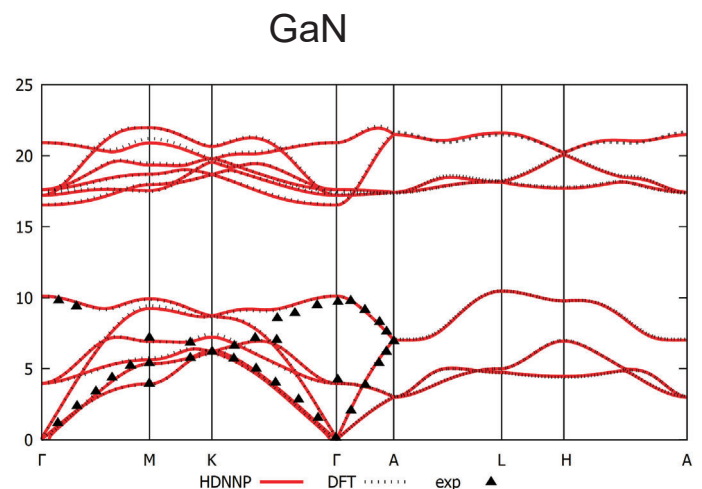
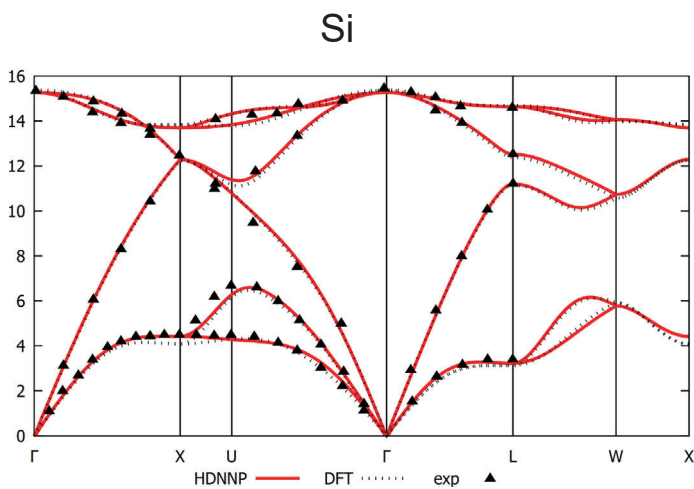
Extract force constants & evaluate thermal conductivity



(Togo et al., Phys. Rev. B, 91 (2015) 094306.)

25

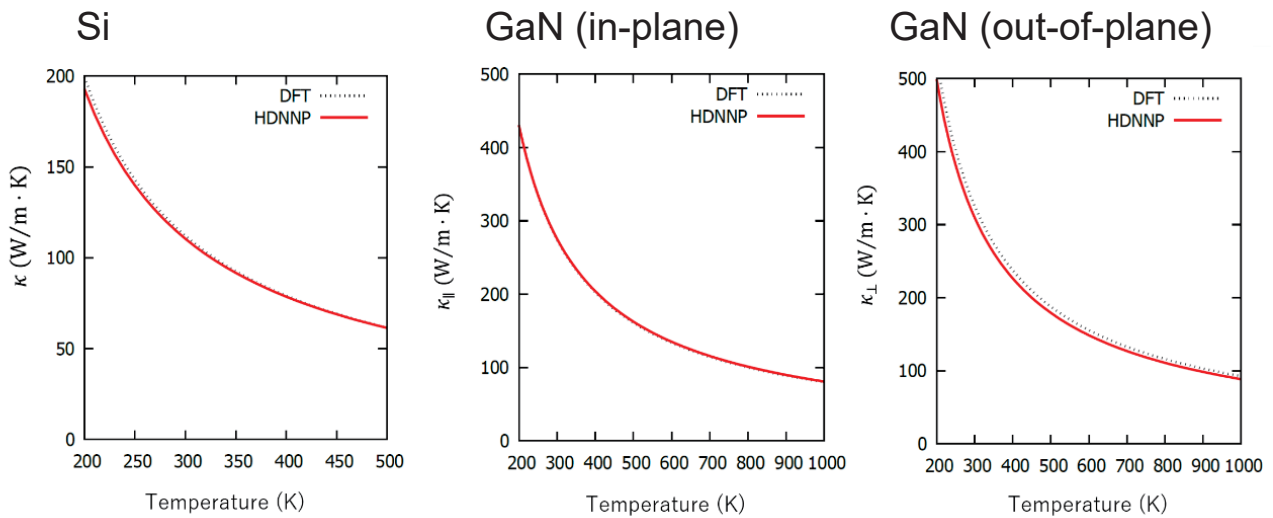
Phonon band structures



E. Minamitani, M. Ogura, SW, Appl. Phys. Express 12 095001 (2019).

26

格子熱伝導率の計算結果



E. Minamitani, M. Ogura, SW, Appl. Phys. Express 12 095001 (2019).

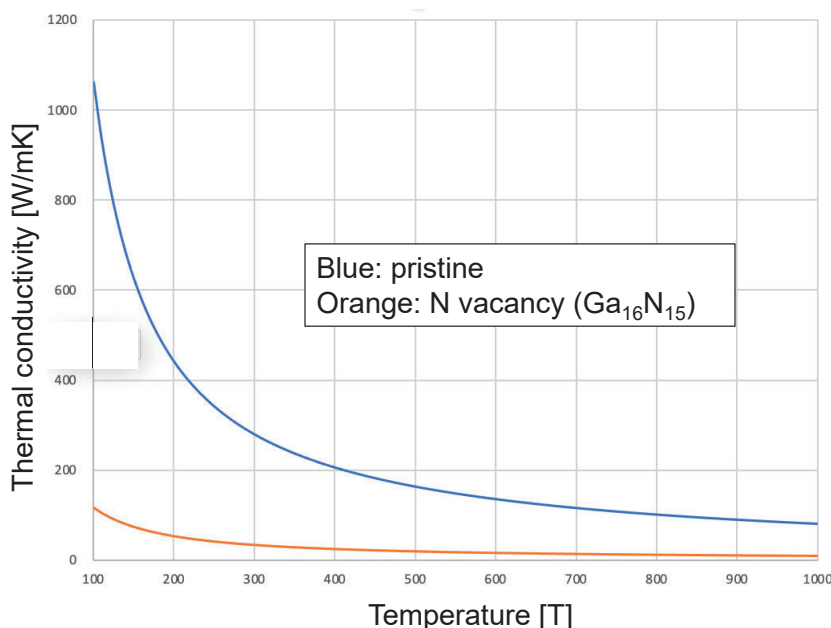
~800 times faster than DFT (but needs DFT calc. for training data)
 Advantageous for defective systems (many cases and/or large system)

27

窒素空孔を含むGaNの熱伝導率

R. Tobita, Bachelor's thesis (2021)

✓ +1 N vacancy (a N atom is removed from 32-atom cell + uniform background charge)



Thermal conductivity of pristine GaN at 300K [W/mK]

DFT [1]	HDNNP [1]	Present HDNNP
274.2	275.5	279.6

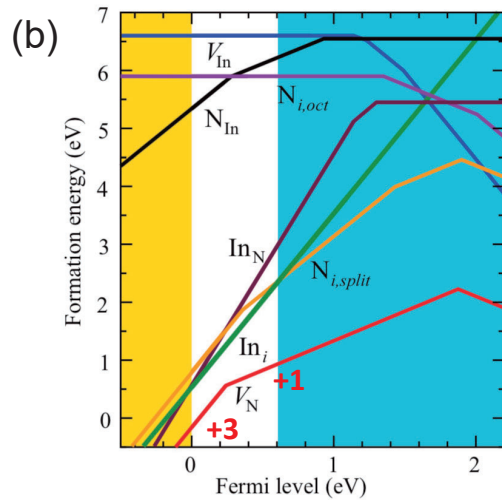
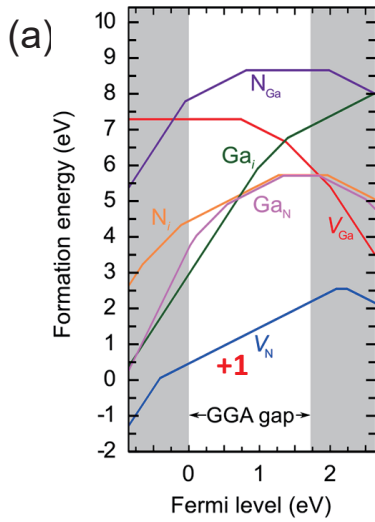
[1] Minamitani et al. Appl. Phys. Express (2019)

- ◆ # of structures needed to calculate 3rd order force constants
 - ✓ Pristine $\text{Ga}_{16}\text{N}_{16}$: 582
 - ✓ $\text{Ga}_{16}\text{N}_{15}$: 6703
 - ✓ $\text{Ga}_{32}\text{N}_{31}$: 73582

28

独自機能(1)欠陥の荷電状態:背景

欠陥生成エネルギーのフェルミ準位依存性
(a) GaN and (b) InN



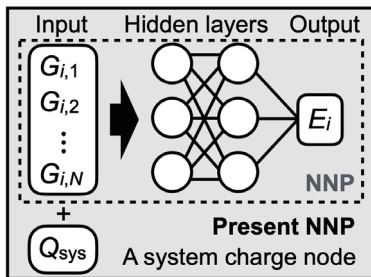
Lyons and Van de Walle, npj Comput Mater. 3,12 (2017)

Janotti, et al., Phys. Status Solidi A **209**, 65 (2012).

- ✓ 複数の荷電状態が存在
- ✓ 欠陥周囲の構造緩和の様子等は荷電状態により異なる
- ✓ (準安定な構造のみに注目するなら別だが)原子配置と荷電状態とは1対1対応しない
- ✓ 原子電荷を陽に考慮するNNPも開発されているが(例えばBehler, Chem. Rev. 121 (2021) 10037参照)、欠陥荷電状態の問題には対応できない。

我々の方法

K. Shimizu et al., Phys. Rev. B 106, 054108 (2022).

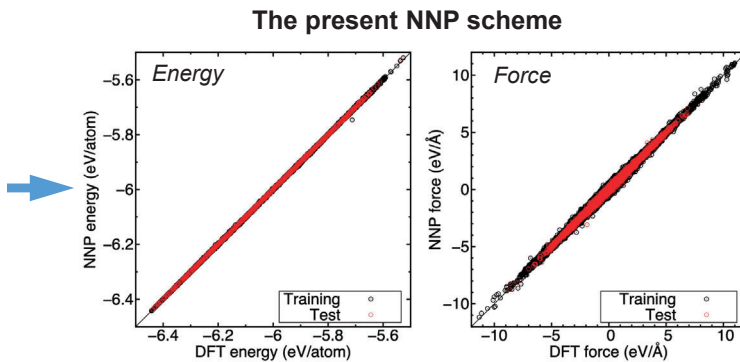
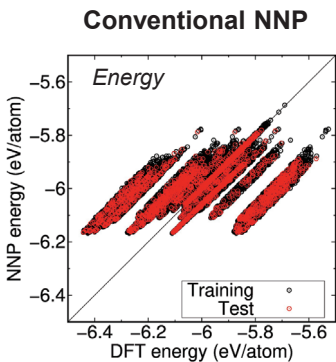


- Introduce minimal modifications into the NNP, i.e., adding one system charge node in the inputs.

$$Q_{\text{sys}} = c \frac{q_{\text{sys}}}{V}$$

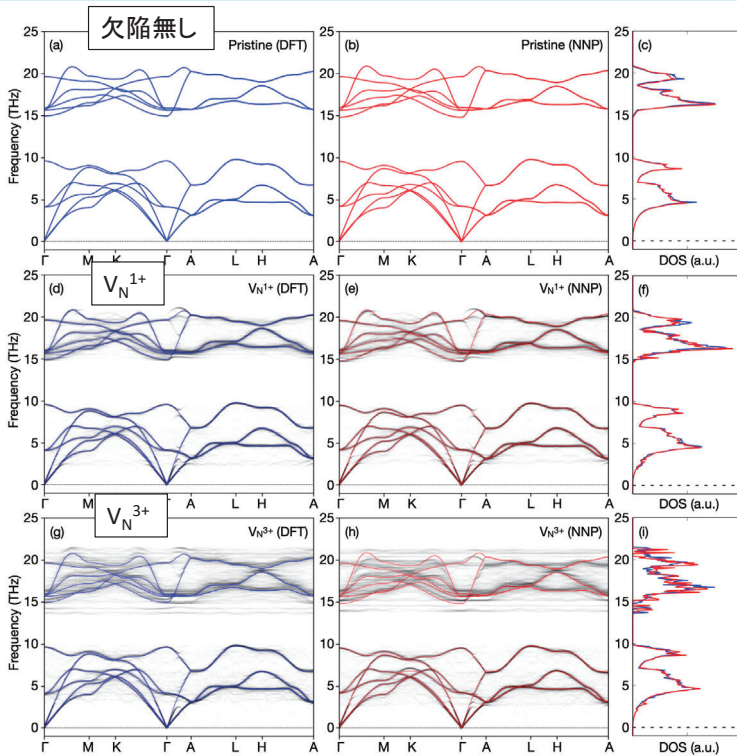
c : constant
 q_{sys} : charge state
 V : volume

$$E_i = f_a^{\text{out}} \left[w_{0,1}^{\text{out}} + \sum_{k=1}^{k_0} w_{k,1}^{\text{out}} f_a^2 \left\{ w_{0,k}^2 + \sum_{j=1}^{j_0} w_{j,k}^2 f_a^1 \left(w_{0,j}^1 + \sum_{\mu=1}^{\mu_0} w_{\mu,j}^1 G_i^\mu + w_{\mu_0+1,j}^1 Q_{\text{sys}} \right) \right\} \right]$$



We achieved considerable improvements in the training.

	RMSE	Training	Test
E (meV/atom)		1.45	1.44
F (meV/Å)		63.8	64.6

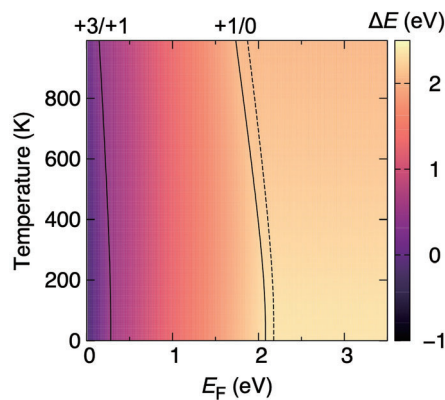
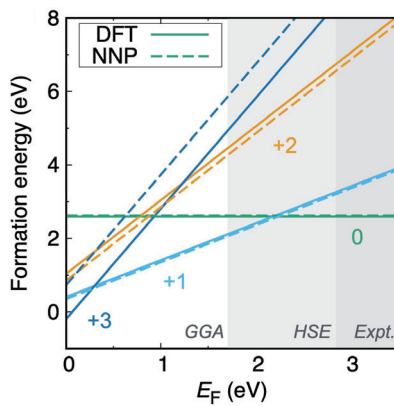


- 欠陥有りの場合は欠陥無しのブリルアンゾーンに展開 (unfolding) して表示
- DFT計算結果とよく一致
- 荷電状態によりフォノンバンド構造にも違いが現れる

31

欠陥生成エネルギー

$$E_f[V_N^q] = E_{\text{tot}}[V_N^q] - E_{\text{tot}}[\text{bulk}] + \mu_N + qE_F$$



- NNPでの計算において、価電子帯上端エネルギーと μ_N (Ga-rich condition)はDFT計算値を使用.

Error: $ E(\text{DFT}) - E(\text{NNP}) $	
V_N^0	0.0279 eV
V_N^{1+}	0.0551 eV
V_N^{2+}	0.187 eV
V_N^{3+}	1.03 eV

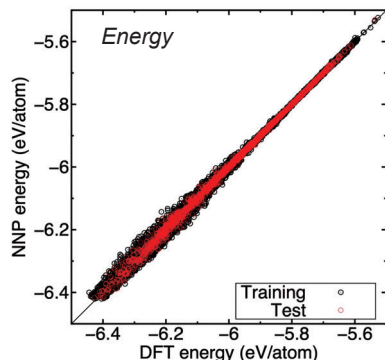
- 3+窒素空孔の生成エネルギーを除きNNP計算結果はDFT計算と（先行研究[1]とも）よく一致。
- 欠陥遷移準位の温度依存性も計算（フォノンの寄与を含めて計算）

[1] J.L. Lyons et al., npj Comput. Mater. 3, 12, (2017).

32

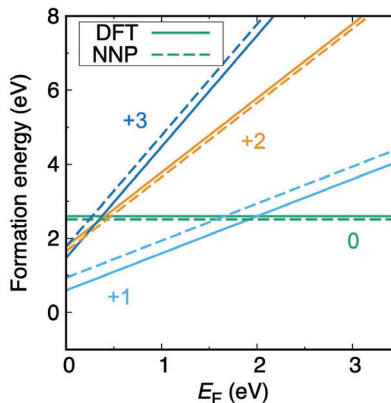
- 周期的に配列した荷電欠陥間にクーロン相互作用が生じる。これに対する補正 ΔE_{corr} を考慮したエネルギーでNNPを訓練

$$E'_{\text{tot}}[V_N^q] = E_{\text{tot}}[V_N^q] + \Delta E_{\text{corr}}$$



RMSE	Test
E (meV/atom)	8.74
F (meV/Å)	77.8

*The RMSEs became slightly worse.



Error: $ E(\text{DFT}) - E(\text{NNP}) $	
V_N^0	0.0840 eV
V_N^{1+}	0.342 eV
V_N^{2+}	0.127 eV
V_N^{3+}	0.306 eV

- 3+窒素空孔について、DFT計算との誤差は改善。
- 訓練データにも問題あり(本研究では経験的ポテンシャルを用いて構造サンプリングしたため)。ここを改善すればもっと一致がよくなると期待。

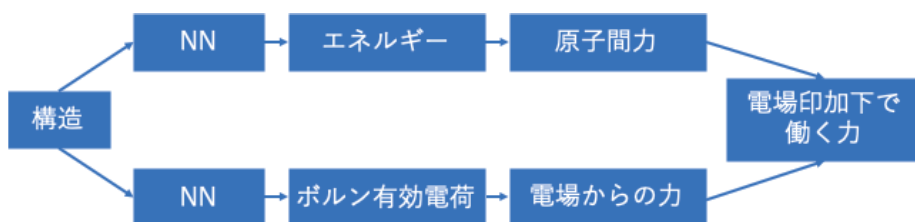
独自機能(2) 電場印加下の解析のためのNNP

VoIRAM等のデバイスの動作においては、電場印加が重要な過程がある。

- ✓ 通常のHDNNPには電場に応答する項がない
- ✓ 構造からボルン有効電荷をNNにより予測し、電場から受ける力を計算*

$$\text{ボルン有効電荷 } Z_{\alpha\beta}^* = \frac{\Omega}{e} \frac{\delta P_\alpha}{\delta d_\beta} = \frac{1}{e} \frac{\delta F_\alpha}{\delta E_\beta} \quad (\text{P:分極 } d:\text{変位 } F:\text{力 } E:\text{電場})$$
- ✓ NNPにより予測した原子間力+電場から受ける力→電場印加下でイオンに働く
 電場による力の変化 ΔF_i が電場に比例する範囲では $\Delta F_\alpha = Z_{\alpha\beta}^* \Delta E_\beta$ と表現できる

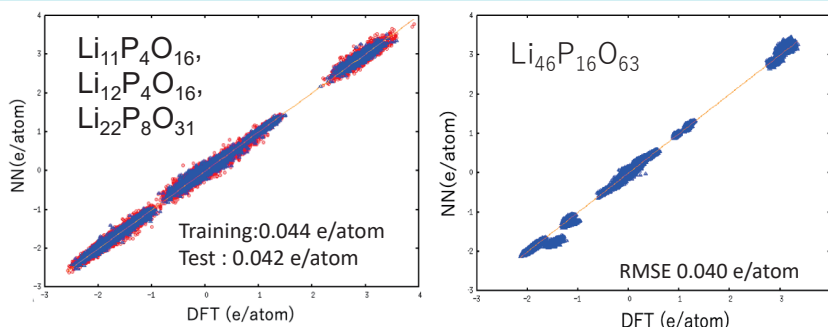
原子電荷は一意に決まらない(電子分布が連続的なので)。目的から見てボルン有効電荷が適当



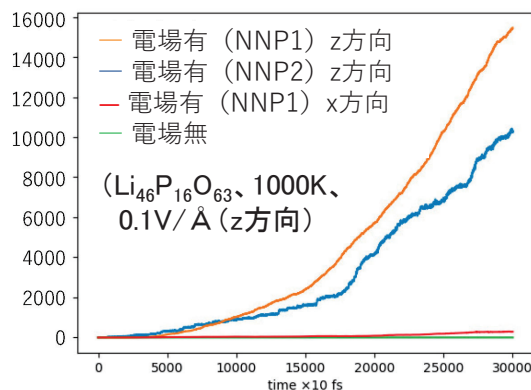
* 守屋孝紀, 東京大学大学院工学系研究科マテリアル工学専攻修士論文 (2019).

ボルン有効電荷の予測

- ◆ 小さなモデルで訓練したNNで大きなモデルのボルン有効電荷も予測できた。



電場印加下のMD計算



- ✓ 平均二乗変位(左図)は電場印加方向(z方向)が他の方向よりずっと大きくなっている—物理的に妥当な結果
- ✓ 他方向(x, y)も電場ゼロの時とは少し異なる—ボルン有効電荷の非対角成分がゼロでないことを反映

・NNP1とNNP2: 訓練データセットが異なる

35

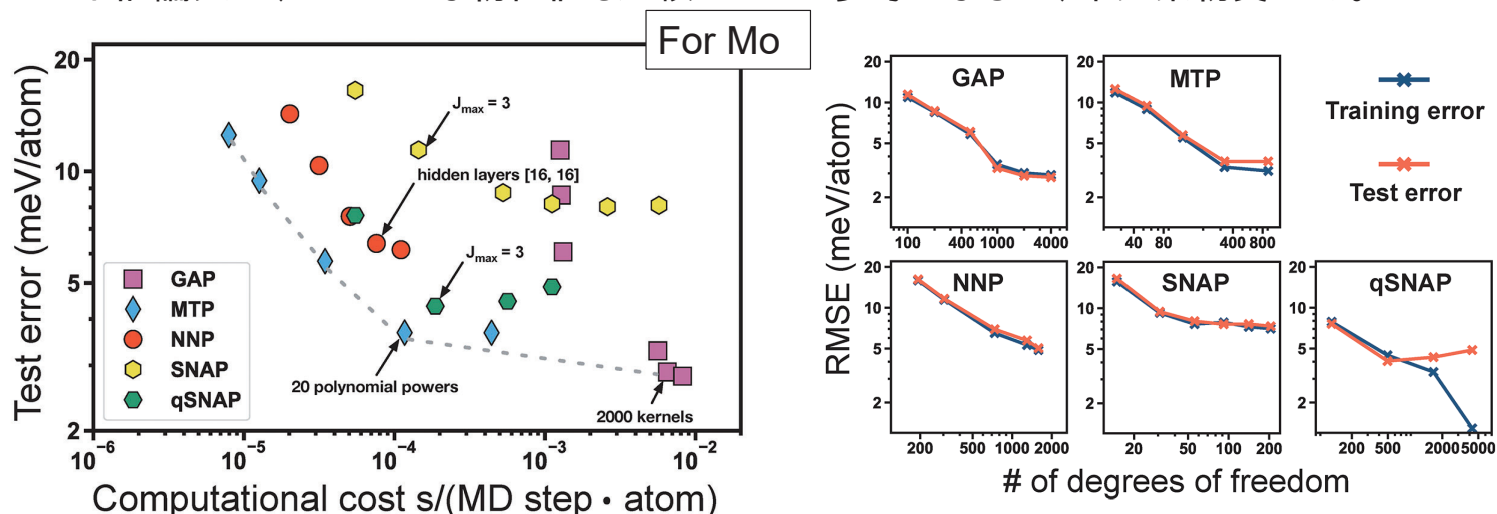
現状と展望についての私見

- ① 我々や他グループの研究から: 機械学習ポテンシャルにより、様々な対象に対し訓練データに用いた計算法の精度に迫る予測精度の計算が確かに可能。
- ② 機械学習ポテンシャルにも様々な方法あり: 方法の優劣ははっきりしていないのでは(比較の試みはあるが、難しい)。
- ③ 多くの原子種を含む系の高精度ポテンシャルの作成は挑戦的課題と以前は思っていた。が、そうでもなさそう。
- ④ 訓練データサンプリングが残された大きな課題か。永井氏(原研、第3回講演者)の自己学習ハイブリッドモンテカルロ法等に期待。
- ⑤ この2年ほどで状況の大きな変化: 公開されていて使えるコードが増え、商用のものも。人&計算資源の少ない小さな研究グループは、画期的アイデアがない限りメインストリームで無いところを狙うしかないかも。

36

②に関して: 様々な機械学習ポテンシャルの比較例

- ✓ 公平な比較は難しい。方法によりハイパーパラメータが異なり、どこまでそれを最適化できているかにも結果が依存するので。
- ✓ 下記論文は、いろいろな物性値も比較していて参考になるが、単元素物質のみ。



Y. Zou, et al., J. Phys. Chem. A 124 (2020) 731.

37

我々が行った比較の例: グラフニューラルネットワークによるポテンシャル

➤ SchNet [1]

- 原子番号に応じて原子埋め込みベクトル x_i^0 を初期化
- 原子間距離に対して連続的に変化するフィルター W^l の畳み込み演算を繰り返し、原子の周辺環境を埋め込みベクトルに取り込む

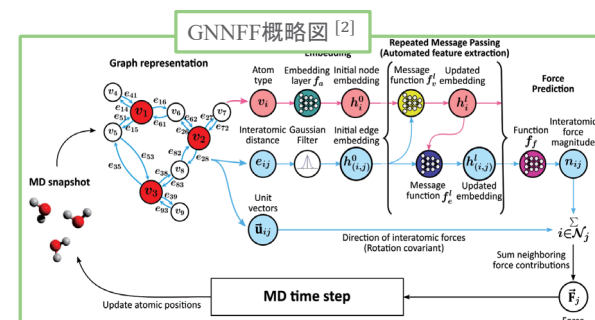
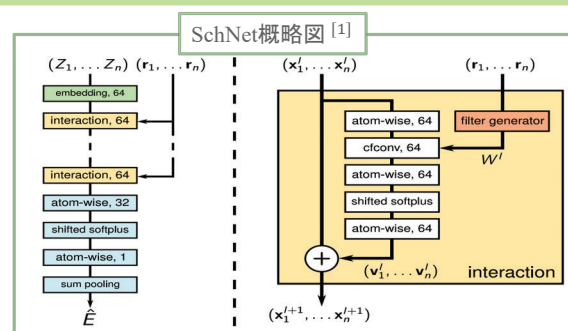
$$x_i^{l+1} = \sum_j x_j^l \cdot W^l(r_j - r_i)$$

いずれも記述子の調整が不要な方法

➤ GNNFF (グラフニューラルネットワークフォースフィールド) [2]

- 原子種に応じてノード埋め込みベクトル h_i^0 を、原子間距離に応じてエッジ埋め込みベクトル $h_{(i,j)}^0$ を初期化
- 2つのベクトルを相互に用いた演算を繰り返しながら、局所環境をノードに、二体間の相互作用をエッジに取り込む

$$f_n^l : h_i^l, h_{(i,j)}^l \rightarrow h_i^{l+1} \quad f_e^l : h_i^l, h_{(i,j)}^l \rightarrow h_{(i,j)}^{l+1}$$



[1] K. T. Schütt et al., J. Chem. Phys. 148, 241722 (2018).

[2] C. W. Park et al., npj Computational Materials. 7, 1 (2021).

38

HDNNPとの比較 (SchNetの例)

西尾健人、東京大学材料工学科卒業論文(2022)

GaN (Validation)	SchNet	HDNNP [1]
エネルギー [meV/atom]	0.57	66.5
力 [meV/Å]	29.9	37.8

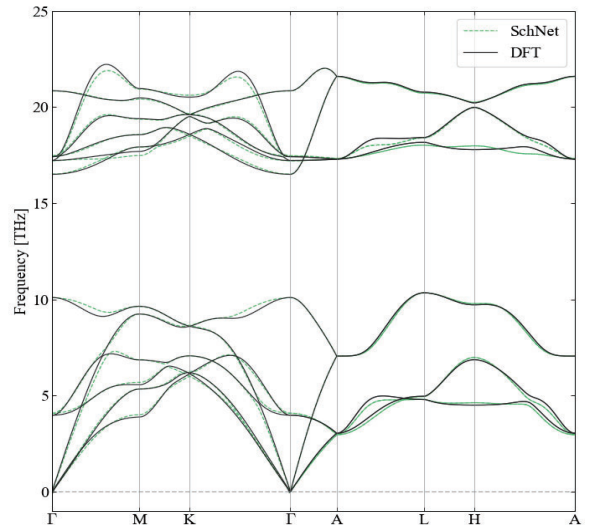
Li ₃ PO ₄ (Validation)	SchNet	HDNNP [2]	HDNNP [3]
エネルギー [meV/atom]	3.1	5.6	3.3
力 [meV/Å]	84.6	—	86.1

HDNNPとの比較

- GaN, Li₃PO₄ の両方において、検証データでの RMSE が記述子を調整した HDNNP より低くなった
- 機械的なハイパーパラメータの最適化のみで高い予測精度を発揮

フォノン分散曲線計算

- phonopy を用いた GaN 中のフォノン分散曲線の計算
- SchNet を用いて得られた結果が第一原理計算を用いた結果とおおむね一致した



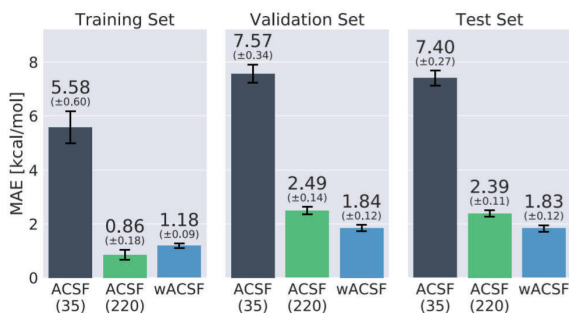
[1] E. Minamitani et al., Appl. Phys. Express **12**, 095001 (2019); [2] W. Li et al., JCP **147**, 214106 (2017); [3] 大塚竜慈、東京大学材料工学科卒業論文(2022).

③に関して: 多元系に適した方法論

Up to 5 elements

WACSF^[2]

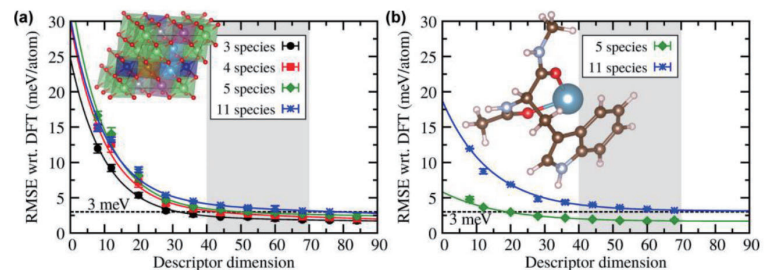
- Introduce element-dependent weightings



[2] M. Gastegger et al., J. Chem. Phys. (2018).

Chebyshev^[3]

- Use Chebyshev polynomials instead of symmetry functions
- Introduce element-dependent weightings



[3] N. Artrith et al., Phys. Rev. B (2017).

➡ Energy of stable structures can be accurately predicted.

✓ How about the structures in which atoms are shifted from equilibrium positions?

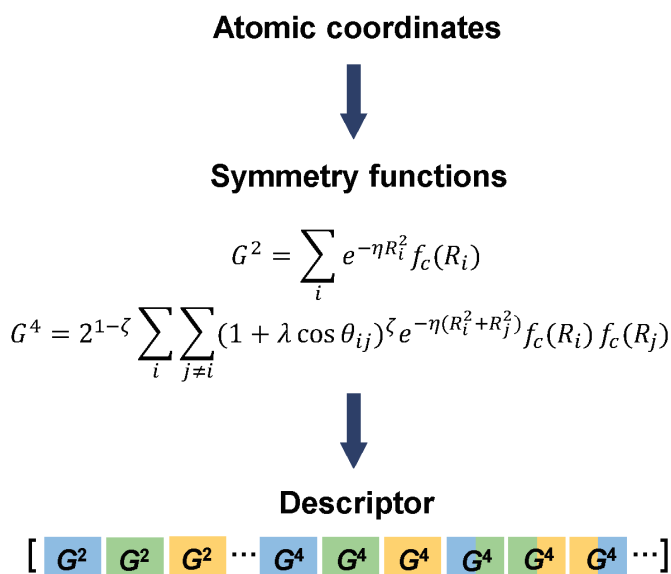
✓ How about the accuracy of force prediction?

Tests using our data (Li₃PO₄) show their effectiveness.

方法のポイント: 原子種毎のweight

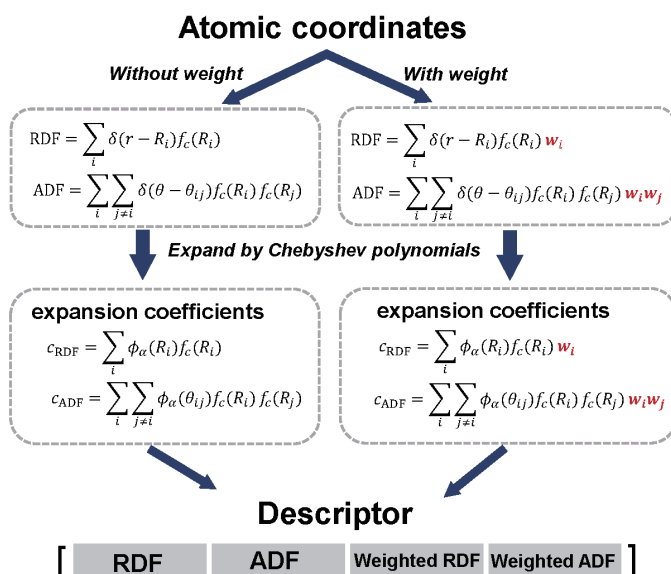
重み付き対称性関数法 (M. Gastegger et al., J. Chem. Phys. 148 (2018) 241709) も同様の考え方

Behler2011^[1,2]



[2] J. Behler, J. Chem. Phys. 134, 074106 (2011).

Chebyshev^[3]



[3] N. Artrith et al., Phys. Rev. B 96, 014112 (2017).

41

④ (訓練データサンプリング) に関して

- ✓ 訓練データが十分多様な構造を含んでいることが重要。
- ✓ 分子動力学 (MD) 計算は基本的な戦略。
- ✓ MD 計算で生成された構造を全部用いるのは、構造間の相関が強いので良くない。
- ✓ 第一原理 MD 計算はコストが高く、加えて直前の項の問題がある。→ 何らかの工夫が必要。(経験的ポテンシャルによる MD 計算、精度の粗い機械学習ポテンシャルでの MD 計算、NEB 計算で得た構造の追加等: 例えば J. Phys. Energy 3 (2021) 012003 を参照)。
- ✓ 経験的ポテンシャル (古典力場): V_N^{3+} の構造サンプリングでは問題があった。
- ✓ 訓練データが多すぎると機械学習が大変になるので、似た構造のデータは間引くといった工夫も必要 (例えば上記解説論文参照)。
- ✓ 永井氏 (原研、第3回講演者) の自己学習ハイブリッドモンテカルロ法 (Phys. Rev. B 102 (2020) 041124) 等の優れた方法が出てきたが、複雑な系 (界面など) や原子種の多い系等についてはさらなる検証が必要かも。

42

⑤(状況の変化)に関して

- ✓様々なグループがコードを公開している。
aenet、n2p2、SchNetPack、SIMPLE-NN(ソウル大グループ)、
我々も (<https://github.com/masayoshi-ogura/HDNNP>)
- ✓商用のものも出てきたことを含め、開発が急速に進んだ。
VASPへの組み込み、Advance/NeuralMD、Matlantis、
相当数の熟練した研究者・技術者が豊富な計算資源を用いて研究開発しているところもある。
- ✓自分でゼロからコード開発するのはどんどん難しくなっている。
第一原理計算ほど複雑なコードではないが。既存コードやライブラリを最大限活用するのが現実的。
- ✓独自の機能等を追及する余地はありそう。電子状態がより大きく効いてくる問題への対応は大きな課題。

アドバンスソフト からの情報提供

1. セミナー 今後の予定
2. 弊社ソフトウェアのご案内
3. シミュレーションサービスについて

アドバンスシミュレーション・セミナー今後の予定

第8回
12月9日/金

14:00~15:30

流体・データ同化



東北大学 流体科学研究所 航空機計算科学センター

教授 大林 茂 様

「流動現象のデジタルツインを実現するデータ同化流体科学」

内閣府の科学技術基本計画において、日本が目指すべき未来社会の姿としてサイバー空間とフィジカル空間を高度に融合させた自律的社会環境がSociety 5.0として提唱されています。その中で、ものづくりの効率化や生産性向上に向けたデジタルツインの開発利用が進んでいます。デジタルツインの実現には、シミュレーションと現実を適切に融合させる技術が重要な鍵となります。その技術として、数値シミュレーションと計測データを使ってハイス推定を実現するデータ同化が注目されています。この講演では、数値流体力学の発展形としてのデータ同化流体科学の概要といくつかの適用例を紹介します。

第9回
12月23日/金

13:00~17:00

特別セミナー[2]



「JAMSTECの最先端地球科学」

国立研究開発法人 海洋研究開発機構 付加価値情報創成部門

アプリケーションラボ 気候変動予測情報創生グループ

主任研究員 土井 威志 様

地球情報科学技術センター データサイエンス研究グループ

グループリーダー 松岡 大祐 様

数理科学・先端技術研究開発センター 応用数理科学グループ

主任研究員 宮腰 剛広 様

第10回 2023年
1月20日/金

14:00~15:30

早稲田大学 総合研究機構 グローバル科学知融合研究所

研究院教授 高橋 桂子 様

Advance/NanoLabo

Advance/NanoLaboは、第一原理計算と分子力学のシミュレーションを行うためのモデリング、計算実行、計算結果の可視化を統合したGUIシステム。

◆計算エンジン

- Advance/PHASE (当社製品)
- Quantum ESPRESSO (オープンソース、第一原理計算)
<<https://www.quantum-espresso.org>>
- LAMMPS (オープンソース、分子力学)
<<https://lammps.sandia.gov>>

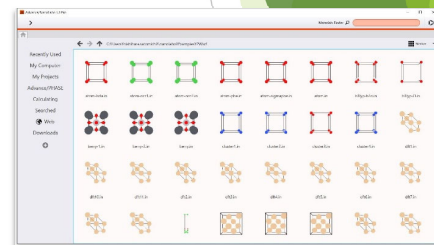
◆モデリング機能

Materials Projectなどのデータベースから化学式入力により材料データベース検索することができます。取得した結晶構造はアイコン表示されます。結晶、表面、界面、分子に対するモデリング機能が備わっており簡単にスラブモデルや不整合界面、高分子モデルを作成できます。

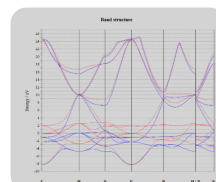
◆可視化機能

バンド構造図のプロット作成、振動モード、分子力学アニメーションなど種々のポスト処理が可能です。NEB反応経路の残存表示などの特徴的な機能を実装しております。

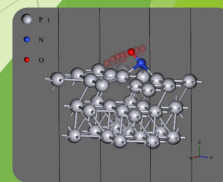
結晶構造のアイコン表示



バンド構造図のプロット



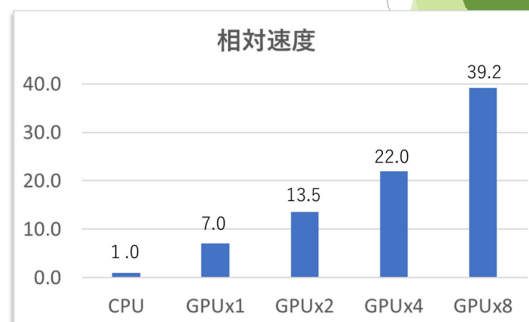
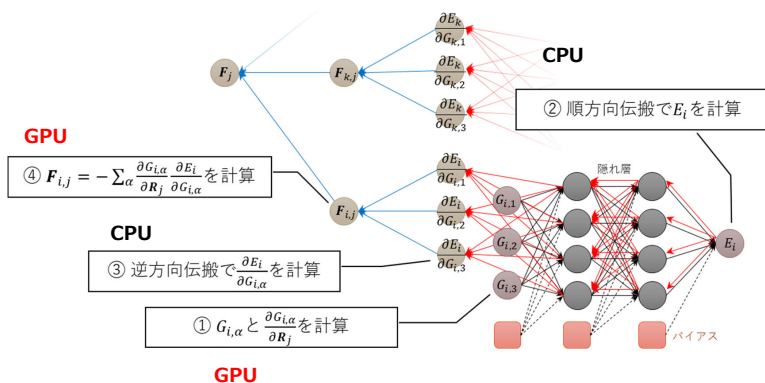
NEB反応経路の残存表示



2022年9月、Advance/NeuralMD Proリリース

Neural Network力場がGPUに対応 約40倍の高速化を達成

ニューラルネットワーク分子力学システムAdvance/NeuralMDをGPU化した、**Advance/NeuralMD Pro**をリリースいたします。Advance/NeuralMD Proでは、ニューラルネットワークの学習および分子力学計算がGPU化されています。MPI並列との併用も可能で、複数のGPUを搭載したマシン and/or GPUを搭載した複数のマシンノードにも対応しています。GPU 1 デバイス当たり2~4つのMPIプロセスを起動することで、GPUとCPU双方の稼働率を常に高い状態に保持できるように設計されています。計算コストの高い対称関数および力の計算をGPU化しています(左下図)。詳細は<http://case.advancesoft.jp/NeuralMD/GPU-NNP/>をご覧ください。複数のGPUを搭載したクラウド環境でのベンチマークでは、CPUの約40倍の高速化を達成しています(右下図)。

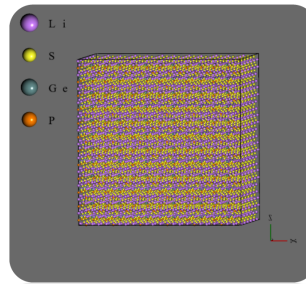


Intel Xeon Platinum 72コア(CPU)と NVIDIA V100 1~8デバイス(GPU)での分子力学計算の速度比較。CPUでの計算速度を1とした相対速度をプロット。計算対象はLGPSスーパーセル(2万原子系)。計算リソースにはMat3ra(<https://mat3ra.com>)を使用。詳細は、<http://case.advancesoft.jp/NeuralMD/GPU-Mat3ra/>。

MPI並列 & マルチGPUで数万原子系での計算が可能に

Advance/NeuralMD Proでは、ニューラルネットワークの学習過程 および LAMMPSによる分子動力学計算 の両方においてMPI並列が利用可能です。且つ、MPIで分割された各プロセスは別個のGPUデバイスへとアクセスすることができます。これにより、複数のGPUを搭載した計算機環境での運用が可能となり、Neural Network力場で数万原子系の本格的な分子動力学シミュレーションが可能となります。

※Pythonで実装されたGraph Neural Network力場などの他社サービスではモデル並列の実現が難しく単一GPUでの計算となり、計算可能な原子数がGPUメモリに依存するため、2000~3000原子系が限界となります。一方、当社製品ではクラウドなどを活用して多数のGPUを確保できれば、原子数は無制限です。



21,600原子系のリチウムイオン伝導体(Li₁₀GeP₃S₁₃)では、NVIDIA V100 x 8を使用して24時間当たり1.2nsの分子動力学シミュレーションを実行できています。

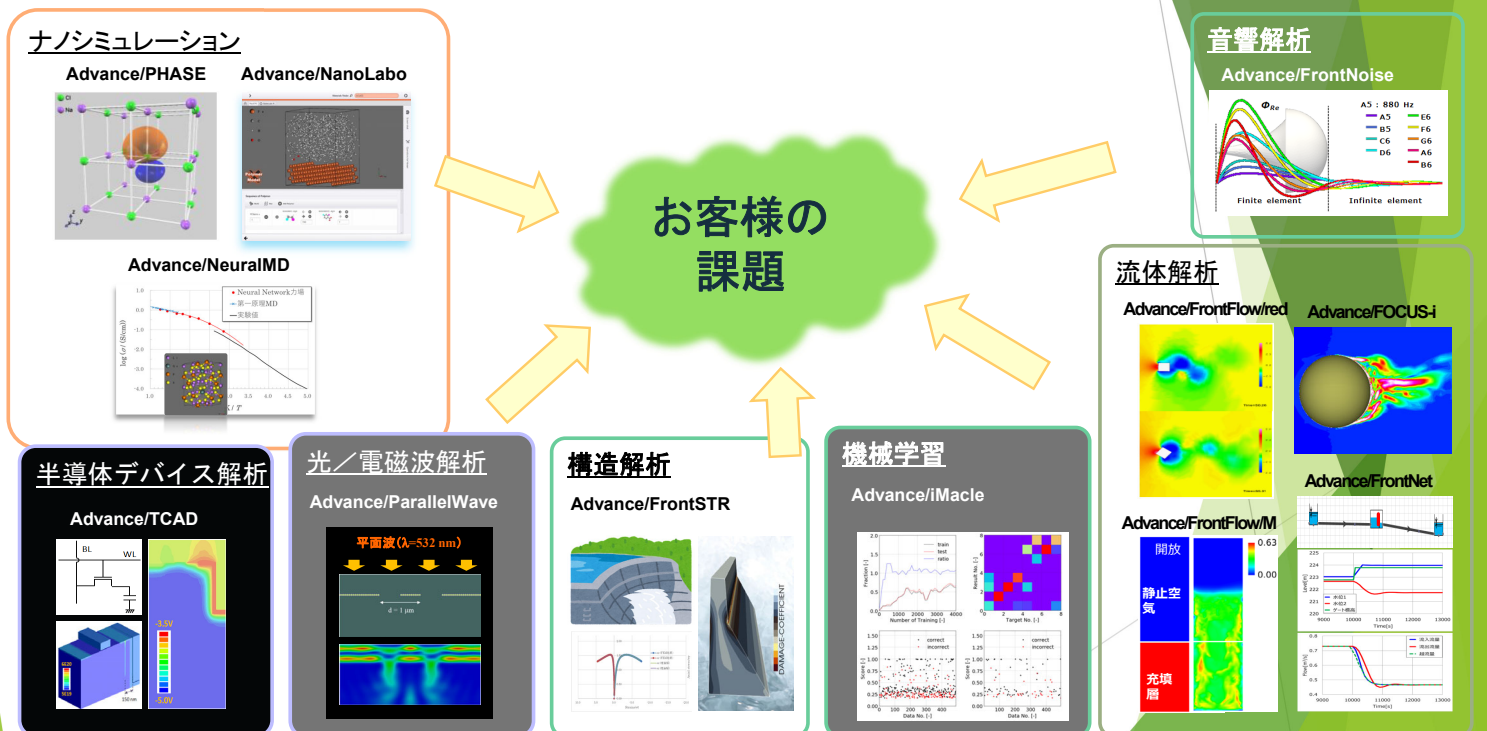
計算条件	設定値
対称関数の種類	Chebyshev多項式
対称関数の動径成分	50個
対称関数の角度成分	30個
カットオフ半径	6.0 Å
Δ -NNP法	適用有り
NNの構造	2層 x 40ノード (twisted tanh)
アンサンブル	NVT (T=500K)
時間刻み	0.5fs
MDステップ数	100

無償アップグレードキャンペーン

Advance/NeuralMD Proリリース時点 ~ 2023年4月末の間、無償アップグレードキャンペーンを実施しております。キャンペーン期間中は、Advance/NeuralMDのライセンスを既にお持ちのお客様は無償でAdvance/NeuralMD Proをお使い頂けます。また、Advance/NeuralMDを新規に購入されるお客様についても、キャンペーン期間中は追加料金無くAdvance/NeuralMD Proがご利用になれます。

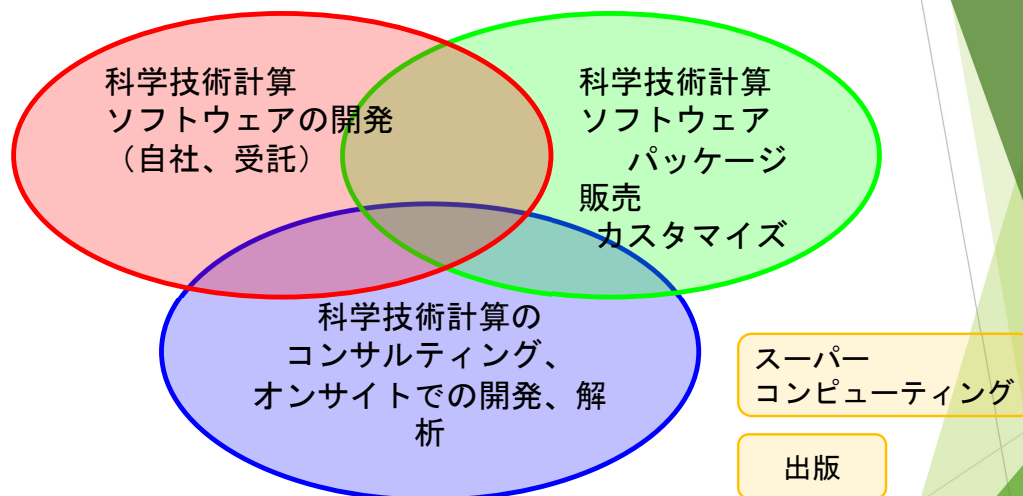
製品	年間(企業・国研)	年間(大学)	買取(企業・国研)	買取(大学)
Advance/NeuralMD	50万円	25万円	150万円	75万円
Advance/NeuralMD Pro	90万円 50万円	45万円 25万円	270万円 150万円	135万円 75万円

▶ アドバンスソフトが開発・販売するソフトウェア



事業内容

アドバンスソフトがご提供するサービス



科学技術計算ソフトウェアの開発を基礎とした、
科学技術計算に関する様々なソリューションをご提供します。

パッケージソフトウェアの解析事例

解析事例Webページをリニューアルしました。

アドバンスソフト 事例集

検索

<http://case.advancesoft.jp>

- ソフトウェア名からだけでなく、産業分野別、解析分野別の検索が可能となりました。
- 最新の事例を掲載しました。今後も逐次最新事例を紹介します。

産業分野別	解析分野別
自動車・運輸	流体
材料・化学	爆発・燃焼
産業機械	構造
航空宇宙	振動音響
エレクトロニクス	ナノ・バイオ
建設土木	プリポスト
原子力	半導体デバイス
エネルギー	光・電磁波
環境・防災	

facebook、YouTubeでも関連記事を掲載中

<http://www.facebook.com/advancesoft.jp>



<http://www.youtube.com/user/advancesoft>





警告

このレポートに収録されている文章および内容については、ご自身のために役立つ用途に限定して無料配布しています。このレポートを、販売、オークション、その他の目的で利用するには、著作権者の許諾が必要になります。このレポートに含まれている内容を、その一部でも著作権者の許諾なしに、複製、改変、配布を行うことおよびインターネット上で提供する等により、一般へ送ることは法律によって固く禁止されています。