

機械学習と第一原理計算を用いた新規極性酸化物の探索

(株式会社村田製作所¹⁾) ○我毛 智哉¹・平井 大介¹・廣瀬 左京¹

Exploration of Novel Polar Oxides Using Machine Learning and First-Principles Calculations
(¹Murata Manufacturing Co., Ltd.) ○Tomoya Gake,¹ Daisuke Hirai,¹ Sakyo Hirose¹

Materials have degrees of freedom in their composition and structure, resulting in a vast chemical space represented by their combinations. To accelerate the discovery of novel materials, effective methods for exploring promising compositions and their stable structures are needed. In this study, we propose an efficient method for crystal structure prediction that complementarily utilizes a universal machine learning potential and first-principles calculations, along with two machine learning models designed to identify promising compositions within this vast chemical space. Based on these approaches, we conduct an exploration of novel polar oxides.

By employing the universal machine learning potential M3GNet¹⁾ in the early stages and the first-principles calculation code VASP^{2,3)} in the later stages, we achieved a balance between speed and accuracy in crystal structure prediction. We constructed a machine learning model to estimate the existence probability of unreported compositions and another model to predict the polarity based on compositional information, narrowing down the comprehensively generated unreported compositions to 18 candidates. Subsequent crystal structure predictions for these 18 compositions identified three candidates for polar compounds that are thermodynamically and dynamically stable. Since all these candidates have unreported structures, further expansion of chemical space using this method is anticipated.

Keywords : Polar Oxides; Composition Recommendation; Crystal Structure Prediction; Machine Learning; First-Principles Calculations

物質には組成と構造の自由度があり、それらの組み合わせで表される化学空間は膨大である。これまでに報告されていない新物質の発見を加速させるためには、有望な組成とその安定構造を効率的に探索する方法が求められる。本研究では、汎用機械学習ポテンシャルと第一原理計算を相補的に活用した効率的な結晶構造予測手法、および無数の組成から有望な組成を選定する二つの機械学習モデルを提案する。これらの手法に基づいて、極性を有する新規三元系酸化物の探索を実施する。

具体的には、探索序盤には汎用機械学習ポテンシャル M3GNet¹⁾を、終盤には第一原理計算コード VASP^{2,3)}を用いることで、速度と精度を両立した結晶構造予測が可能になった。未報告組成の存在確率を推定する機械学習モデルと、組成情報から物質の極性を予測する機械学習モデルを構築し、網羅的に生成された未報告組成を 18 種類に絞り込んだ。これら 18 組成に対する結晶構造予測を行った結果、熱力学的・動的に安定な 3 種類の極性化合物候補が得られた。いずれも未報告構造を有していることから、本手法によるさらなる化学空間の拡大が期待される。

1) C. Chen and S. P. Ong, *Nat. Comput. Sci.* **2022**, 2, 718; 2) G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* **1996**, 54, 11169; 3) G. Kresse and D. Joubert, *Phys. Rev. B* **1999**, 59, 1758.