

XANES データを用いる結晶構造予測モデル

Crystal Structure Prediction Model from XANES spectra

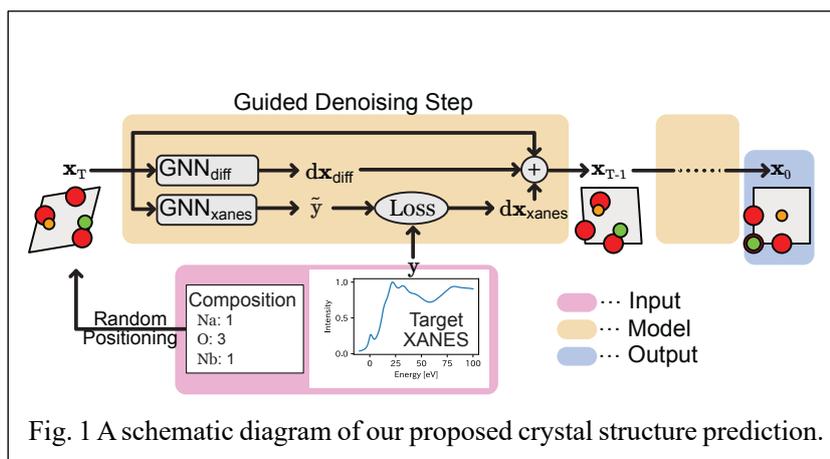
東北大¹, NIMS², 理研 AIP³ 北井孝紀^{○1}, 志賀元紀^{1,2,3}, 二宮翔¹, 西堀麻衣子¹

Tohoku Univ.¹, NIMS², Riken³ [○]Koki Kitai¹, Motoki Shiga², Kakeru Ninomiya¹, Maiko Nishibori¹

E-mail: k-kitai@tohoku.ac.jp

結晶構造予測 (Crystal Structure Prediction; CSP) は与えられた組成の物質が取りうる安定な結晶構造を主として計算機を用いて求める課題である。現在は進化的戦略、粒子群最適化、ベイズ最適化等のアルゴリズムによって構成原子の配置の提案を繰り返し、その中で生成エネルギーを最小化するような構造を発見する手法が一般的である。そこに近年では新たに、結晶拡散モデルと呼ばれる深層学習技術を応用する手法が提案された¹。結晶拡散モデルは訓練データとして与えられた安定な結晶構造のデータ群を参考にして、新規の結晶構造をランダムに生成することができる統計モデルである。通常のモデルでは結晶構造の記述子 (格子ベクトル、組成、原子配置) もランダムに生成されるが、構造を予測したい化学組成を指定する条件付きの生成も可能である。結晶拡散モデルへは、このように補助的な情報を与えることが可能であり、例えば隣接原子間の微小な位置変化に敏感な X 線吸収端近傍構造 (X-ray Absorption Near Edge Structure; XANES) のデータを用いてアモルファス構造を生成する手法が報告されている²。

本研究では結晶の組成および XANES スペクトルを入力とし、対応する結晶構造を予測する結晶拡散モデルを提案する。訓練されたモデルで結晶構造を予測する手順を Fig. 1 に示す。モデルの訓練および検証のためのデータを、Materials Project



データベースに登録されている中の Nb 元素を含む結晶構造と、その X 線吸収スペクトルの K 端付近を理論計算することで用意した。スペクトルの計算には、第一原理計算に基づくシミュレーションソフト FDMNES を用いた。このデータセットを用いて、XANES スペクトルの情報を加えることが構造推定の精度向上に寄与することの検証を行った。また、通常 (構造情報のみに関する) の結晶拡散モデルに相当する Fig. 1 中の GNN_{diff} と表記された部分のモデルパラメータに関しては、Materials Project 由来のデータセット MP-20 を使用して事前学習を行った。これにより XANES スペクトルが得られている結晶構造のデータのみでモデルを学習する場合に比べて、過学習を抑えつつ高い予測精度が得られることを確認した。

[1] L. Jiao, et al., *Advances in Neural Information Processing Systems*, **36**, 17464–97 (2023).

[2] H. Kwon, et al., *Machine Learning: Science and Technology*, **5**, 045037 (2024).