

Tersoff-NN : ボンドオーダーのみを機械学習する ハイブリッド型ポテンシャルの開発 (I)

Tersoff-NN: A Hybrid Interatomic Potential with a Bond-order Function using Neural Networks (I)

早大理工 ○西村 祐亮, 平井 健太郎, 渡邊 孝信

○Y. Nishimura, K. Hirai, T. Watanabe (Waseda Univ.)

E-mail: yusukeskelton@toki.waseda.jp

【はじめに】ニューラルネットワーク(NN)やガウス過程を用いて第一原理計算で得られるデータを学習する機械学習原子間ポテンシャルは、第一原理計算では扱えないような大規模系の分子動力学 (Molecular Dynamics; MD) 計算を可能にすることから、データ駆動の物質・材料開発の基盤技術として確固たる地位を築きつつある。しかし、従来の解析的な関数で表現された原子間ポテンシャルと比較すると 100 倍以上の計算時間を要する^[1]。また多層パーセプトロン (MLP) による機械学習ポテンシャルは内挿学習であり、訓練データに含まれない未知の構造に対する予測能力の低さが指摘されている^[2]。そこで近年、汎用的化学反応力場として知られる ReaxFF のボンドオーダー(BO)計算部を MLP に置き換えた ReaxFF-NN が開発され、従来の ReaxFF と同等の計算速度と第一原理計算に近い予測精度の両立に成功している^[3,4]。ただし、ReaxFF は従来の解析的なポテンシャルの中でもかなり複雑な関数形を有し、多くの計算コストを必要とする上、アドホックに選ばれた関数を組み合わせて設計されているため、外挿能力には依然として不安が残る。

そこで、本研究では、共有結合のユニバーサリティ^[5,6]を考慮して設計された Tersoff ポテンシャルをベースに、MLP を用いて BO の計算を行うハイブリッド型機械学習ポテンシャルを開発した。

【Tersoff-NN の概要】 Tersoff ポテンシャルは次式で定義される。

$$E_{\text{total}} = \frac{1}{2} \sum_i \sum_{j \neq i} f_c(r_{ij}) [f_R(r_{ij}) + b_{ij} f_A(r_{ij})]$$

f_c はカットオフ関数、 f_R と f_A はそれぞれ反発エネルギーと引力エネルギーで、 b_{ij} が原子 $i-j$ 間の BO を表す。各原子の局所環境を特徴づける記述子を入力とし、注目している $i-j$ 原子間の BO を出力する。BO 決定部の構成や記述子の詳細は本講演の次の講演で報告する。 f_c 、 f_R 、 f_A に含まれるパラメータ Tersoff ポテンシャルのものと同じである。

【結果】 Fig. 1 に Si の多形およびクラスターにおける配位数と凝集エネルギーの計算結果を示す。Tersoff-NN で Tersoff ポテンシャルをよく再現できている。Fig. 2 に Tersoff-NN による Si 結晶 (256 原子) の融解 MD シミュレーションの結果を示す。Tersoff ポテンシャルと同様の動径分布関数が再現できた。Fig. 3 に Si 結晶 (64 原子) の MD シミュレーションの 1 ステップあたりの計算時間を示す。Tersoff-NN の計算時

間は Tersoff ポテンシャルの 2 倍程度にとどまった。このように共有結合のユニバーサリティに基づく Tersoff 型ポテンシャルでも、計算速度を大きく損なわずにハイブリッド機械学習化が可能であることが実証された。

【謝辞】 本研究は科学研究費 基盤研究 (B) (23K22800) の支援を受けて行われた。

【参考文献】 [1] Y. Zuo et al., J. Phys. Chem. A, 124, 731-745 (2020), Suppl. [2] J. Behler, Chem. Rev., 121, 10037-10072 (2021). [3] L.-Y. Xue et al., Phys. Chem. Chem. Phys., 23, 19457-19464 (2021). [4] Feng Guo et al., <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-3133294/v1> (2024). [5] J. H. Rose et al., PRB 29, 2963 (1984). [6] G. C. Abel, PRB 31, 6184 (1985). [7] J. Tersoff, PRB 38, 9902-9905 (1988).

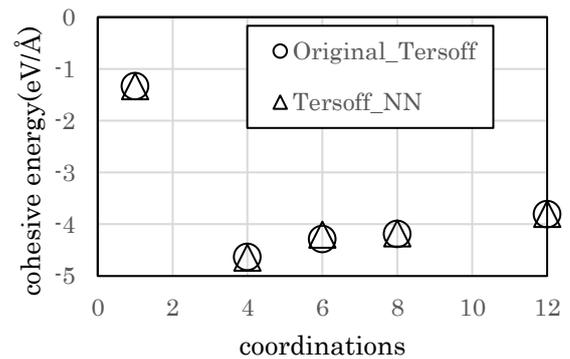


Fig. 1 Cohesive energy per atom for polytypes of silicon

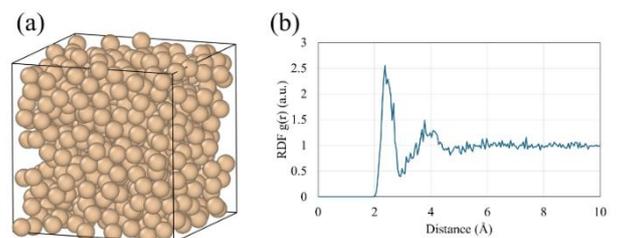


Fig. 2 (a) final snapshot of Si melting simulation (b) the corresponding RDF

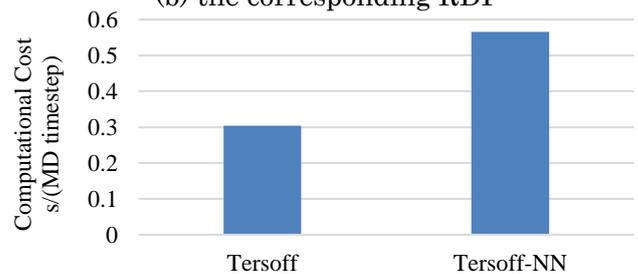


Fig. 3 Computational costs of Tersoff-NN and Tersoff potential