

# 機械学習と計算機シミュレーションで新物質を予測する

## [1] 要旨

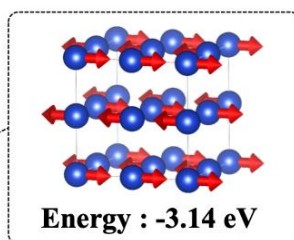
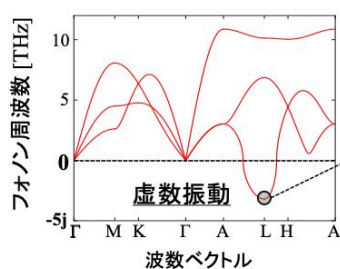
近年、新物質の探索を効率化する手法として、理論計算により安定な結晶構造を予測する結晶構造探索が注目されている。しかし、従来の手法では、不安定な結晶構造も同時に探索される点が課題とされていた。この不安定な結晶構造から安定な結晶構造を導く「虚数振動追跡法」に着目し、新しく開発された多項式機械学習ポテンシャルを用いることで計算を高速化することで、結晶構造探索へ適用したことが報告された。単体 Si を対象に検証した結果、未報告の結晶構造を多数予測することが示されており、新物質探索を加速する有力な手法として期待される。

## [2] 本文

革新的な機能や未知の物性を有する新物質を発見することは、材料科学における中心的なテーマの一つである。しかしながら、新物質の探索は、古くより研究者の経験と勘に基づく試行錯誤によって行われており、多大な時間と労力を必要としてきた。近年、この課題を克服し得る技術として、新物質を理論的に予測する「結晶構造探索」が注目されている。結晶構造探索とは、指定した化学組成や温度・圧力条件のもとで、エネルギー的に最安定となる結晶構造を、第一原理計算などの理論計算によって特定する手法である。本手法を用いることにより、実験による検証を、新物質が予測された有望な化学組成や温度・圧力条件に限定できるため、新物質探索の大幅な効率化が期待できる。

しかしながら、結晶構造探索にも課題が存在する。従来の手法では、多数の結晶構造に対して、原子位置や格子定数をエネルギーが低下する方向へと最適化する（構造最適化）。この最適化によってエネルギー曲面の極小点に位置する結晶構造を網羅できれば、それらのエネルギーを比較することで最安定な結晶構造を同定することができる。ところが、最適化が極小点ではなく鞍点へと収束し、フォノン分散において虚数振動を示す動的に不安定な構造が得られてしまうことがある。

### 動的に不安定な構造 (Cu, 単純立方)



虚数振動の方向(矢印方向)に沿って原子変位を加えて最適化

### 動的に安定な構造 (Cu, 面心立方)

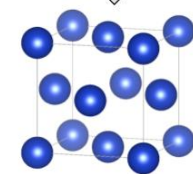
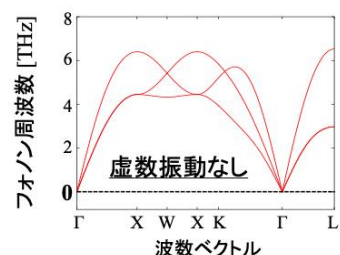


図 1. 単体 Cu における虚数振動追跡法の一例。動的に不安定な構造 (例: 単純立方構造) から、虚数振動が無く低エネルギーの動的に安定な構造 (例: 面心立方構造) が得られる。

一方で、動的不安定構造に現れる虚数振動を手がかりとして、動的安定構造を効率的に探索する手法（虚数振動追跡法）も提案されている。この手法では、虚数振動方向に沿って原子変位を加えた結晶構造を作成し、構造最適化を行う操作を繰り返すことで、エネルギーが低下した動的安定構造を探索することができる（図 1 参照）。本手法を動的不安定構造に適用することで、結晶構造探索へ応用可能と考えられるが、膨大な回数の第一原理計算を実行する必要があるため、現実的な計算時間で実施することは困難である。

近年、第一原理計算に匹敵する精度の計算を、はるかに高速に実行できる技術として、機械学習ポテンシャル（Machine Learning Potential, MLP）が注目されている。MLP は、多数の結晶構造に対する第一原理計算の結果と、それらの結晶構造を表現する構造特徴量を入力として、機械学習手法により構築された原子間ポテンシャルの総称である。最近、京都大学大学院工学研究科材料工学専攻のメンバーを中心とする研究グループは、独自に開発した多項式型の機械学習ポテンシャル（多項式 MLP）を活用することで、虚数振動追跡法を大幅に高速化し、結晶構造探索への応用を可能にした。単体 Si を対象に検証した結果、既知の結晶構造が再現されたばかりでなく、これまで単体 Si では報告のなかった結晶構造を多数予測することにも成功した。この成果は JPSJ の 2025 年 7 月号に掲載された。

具体的には、まず、ランダムに作成した 40,000 件の結晶構造に対して、多項式 MLP を用いて構造最適化を行うことで、動的不安定構造を含む多数の結晶構造を列挙する。次に、得られた全ての動的不安定構造に対して、多項式 MLP を用いて虚数振動追跡法を高速に実行することで、動的安定構造を大域的に探索する。この一連のプロセスを、0 GPa から 50 GPa までの圧力範囲について 5 GPa 刻みで実行することで、各圧力下でエネルギーおよびエンタルピーが低い結晶構造を得た。最後に、得られた動的安定構造に対して 1000 K までの自由エネルギーを算出、比較することで、各温度・圧力下において最安定となる結晶構造を同定した。その結果、これらの温度・圧力条件下で実験的に報告されている結晶構造が再現され、さらには、 $\alpha$ -La 型構造や  $\alpha$ -Sm 型構造など、単体 Si では未報告であった結晶構造が、エンタルピーの低い動的安定構造であることも示された。

本研究で提案した結晶構造探索手法は、単体金属に限らず、イオン結晶を含む多元系へも容易に拡張可能である。そのため、超伝導体や熱電材料、イオン伝導体など様々な機能性材料の探索に活用することで、革新的な特性を備えた新物質の発見が期待できる。さらに、本手法は、構造相転移や物質の熱力学的安定性に関する基礎的な理解を深めるうえでも有用であり、材料科学のさらなる発展に新たな視点をもたらすことも期待される。

原論文（2025 年 6 月 9 日公開済）

A Systematic Approach to Crystal Structure Prediction Following Imaginary Phonon Modes Combined With Polynomial Machine Learning Potentials

T. Naruse, A. Seko, and I. Tanaka, J. Phys. Soc. Jpn. **94**, 074601 (2025).

<情報提供：：成瀬 卓弥（九州大学）>