

第一原理計算と機械学習の融合による材料中のアモルファス領域の短距離構造解析

名古屋工業大学 大学院工学研究科 応用物理分野 准教授

田村 友幸

1. テーマ設定の背景

ガラス材料やセラミックス材料に含まれるアモルファス領域には、結晶材料では考えられない特異構造が含まれている可能性が高く、それらを検知し活かすことで更なる高機能化を目指す研究が盛んに行われている。従来は、X線回折実験と分子動力学シミュレーションからアモルファス領域の中距離構造（第二～第三隣接より遠方）の解明が盛んに行われてきた。より微細な短距離構造（第一～第二隣接）を高分解能に観測する実験方法としては、放射光によるX線吸収分光（XAS）や電子顕微鏡による電子エネルギー損失分光（EELS）の吸収端近傍構造 XANES/ELNESがあるが、平均情報しか得られず、実験結果の解釈が進んでいないのが現状である。申請者はそこに、今後の材料開発を変革しうるアモルファス固有の特異構造というお宝が大量に眠っていると信じている。このような現状を突破する手段として独自開発のXANES/ELNES計算コードに情報科学を導入することで、アモルファス領域に含まれるナノスケールの特異構造を検知し、活かすことを目標としてきた。

2. 素形材分野との関連性

本研究は「理論計算+情報科学」を核とし、「材料形成プロセス」「ナノ計測」との融合を目指すものであり、これまで平均情報しかわからなかった材料中のアモルファス領域の短距離構造を詳細に理解するための新しい構造解析法を提案した。

3. 研究開発の成果

筆者は、XASやEELSの吸収端近傍構造 XANES/ELNESを電子状態計算に基づいて高精度に計算できるプログラムを独自で開発し¹⁾、高

効率化を進めることで、化学反応を扱うために必要な大規模モデルについても現実的な時間で実行を可能とした。このプログラムをLiイオン電池の正極-電解液界面の大規模第一原理分子動力学シミュレーションに適用することで、これまでに実験結果から推察された反応とは異なる新たな反応が判明し、これが実験結果とも矛盾しないことを明らかにした²⁾。また、負極中の酸素関連欠陥に適用することで、不明だったピークの起源を明らかにすることに成功した³⁾。

さらに、情報科学の機械学習を導入することで、到底不可能と考えられていた数千原子モデルについてもスペクトルが得られるようになり、実験結果との比較検討を可能にした。XANES/ELNESが短距離構造の情報を多く含んでいることに着目して、局所構造情報 x だけからスペクトル $I(e)$ が $I(e) \approx f(x, e)$ として予測できると仮説を立て、機械学習モデルを構築し（図1）、仮説の妥当性を示した。能動学習を導入することで少量の第一原理計算の結果からモデルパラメー

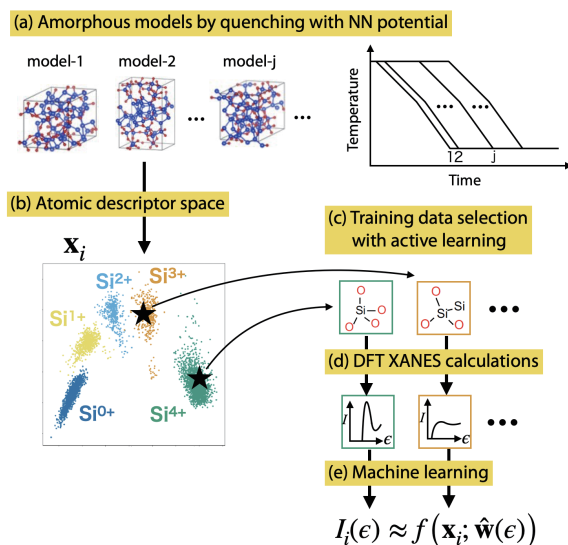


図1 アモルファス材料のXANES理論スペクトルの能動学習の流れ

タを学習できることが明らかになり、その結果、数千原子を含むモデルでも局所構造情報 x から四則演算だけで簡単に平均スペクトルが得られるようになった（図2）。これによりスペクトルから局所構造を理解する逆問題も解ける可能性を示した⁴⁾。

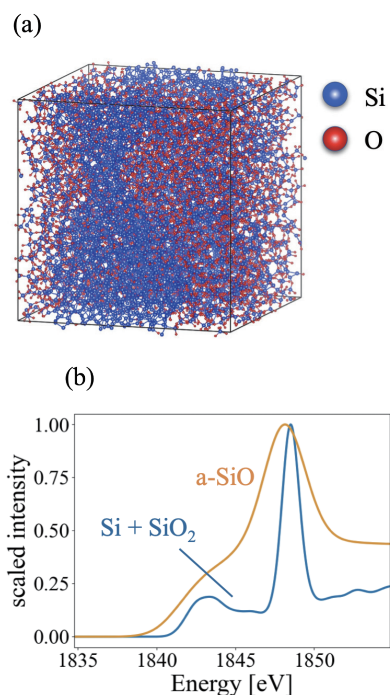


図2 (a) 約5000原子からなるアモルファスSiOモデルと (b) そのSi K端XANESの平均スペクトル

4. 訴求点

近年、材料設計に情報科学を導入するMaterials informatics (MI) が世界的に広がりを見せており、申請者は情報統合型物質・材料開発イニシアティブ (MI²I) の蓄電池材料グループに理論計算の立場から参加した。第一原理計算と機械学習に基づくMIの多くは、結晶に関する第一原理計算データベースの学習であり、格子欠陥やアモルファス構造といった乱れた系は計算コストが大きく各個研究に限定されていた。そうした中で申請者は、結晶粒界の研究に機械学習を導入し、100万原子からなるランダム粒界についても第一原理計算と同程度の原子エネルギーを簡便に予測することに成功した⁵⁾。さらにXANES/ELNESスペクトルが局所構造情報を多く含んでいることに着目し、局所構造情報だけからスペク

トルを予測することにも成功した⁴⁾。エネルギーは実験では直接観察できない物理量であるのに対して、XANES/ELNESスペクトルは実験で観察できる物理量であり、実験結果と比較検討が可能な局所物性の機械学習は材料科学の点から重要である。

日本国内にはSpring-8やあいちシンクロトロン光センター等の放射光施設や高分解能電子顕微鏡など、世界に誇る高分解能ナノ計測装置が多く存在する。しかし、解釈が進まずに眠っている実験結果が膨大にあり、宝の持ち腐れといっても過言ではないのが現状である。本研究によりそれらの解釈が進めば、アモルファス材料の高機能化は大きく進むはずである。また、日本国内にはガラス材料やセラミックス材料に関連する素材企業が多く、学術だけでなく産業に与える影響も大きいと期待される。

参考文献

- 1) T. Tamura, S. Tanaka and M. Kohyama, Phys. Rev. B Vol.85, pp.205210-1-15 (2012).
- 2) T. Tamura, M. Kohyama and S. Ogata, Phys. Rev. B Vol.96, pp.035107-1-8 (2017).
- 3) W. Katayama, T. Tamura, Y. Nishino and T. Hirose, Comput. Mater. Sci. Vol.196, pp.110555-1-7 (2021).
- 4) H. Hirai, T. Iizawa, T. Tamura, M. Karasuyama, R. Kobayashi and T. Hirose, Phys. Rev. Mater. Vol.6, pp.115601-1-11 (2022).
- 5) T. Tamura and M. Karasuyama, Phys. Rev. Mater. Vol.4, pp.113602-1-13 (2020).