

第一原理計算／機械学習モデル構築／高並列統計熱力学計算 連携フレームワーク abICS の開発と蓄電固体界面への応用

abICS Framework for Coupling of ab initio Calculations, Machine Learning, and Highly Parallelized Statistical Thermodynamics Simulations

---Application to Interface Ionics---

山形大理 ○笠松 秀輔

Yamagata Univ., °Shusuke Kasamatsu

E-mail: kasamatsu@sci.kj.yamagata-u.ac.jp

蓄電固体界面の原子スケール描像を得るにあたって、量子論に基づく第一原理計算に対する期待は大きい。しかしながら、多数のイオン・欠陥種による膨大な配置自由度を有する界面で、熱力学・電気化学の原理に基づいた予測を第一原理計算だけで行うのは困難であり、現象論的な空間電荷層モデルに頼らざるを得ないのが現状である[1]。我々はこのような配置自由度の問題を解決し、真の第一原理基界面モデリングを実現するため、第一原理計算、機械学習、そして高並列統計熱力学計算手法を組み合わせる abICS (ab Initio Configuration Sampling) フレームワークの開発を進めている[2,3]。abICS による計算の手順は以下の通りである：(1) ランダムにイオン配置を生成し、第一原理計算による構造最適化を行い、学習データセットを構成する；(2) 配置から構造最適化後のエネルギーを予測するニューラルネットワーク (NN) モデルを学習する；(3) NN モデルを使って、レプリカ交換モンテカルロ(RXMC)法[4]による原子配置の高並列サンプリングを行う；(4) サンプリングされた構造の一部に対して第一原理計算を行い、NN モデルの精度検証を行い、不十分な場合はデータセットに追加して再学習し、(3) から繰り返す。図に、定比組成の Pt/イットリア安定化ジルコニア界面モデルに対して本手法を適用した例を示す。まず、NN モデルによる配置エネルギー予測と、第一原理計算の結果は良い相関を示しており、学習に成功していることが分かる (図 a)。このモデルを使い、RXMC 法によって 1800 K での Y と酸素空孔の分布を計算したところ、Y ドープントは界面最隣接層に偏析し、それに伴って酸素空孔もやや界面に偏析することが分かった (図 b)。このような計算を進めて行くことで、従来の現象論的な空間電荷層モデルを超えた原子スケール描像の獲得が可能になると考えられる。

[1] K. Shimizu et al., Phys. Rev. Mater. 4, 015402 (2020).

[2] S. Kasamatsu et al., J. Phys.: Condens. Matter 31, 085901 (2019).

[3] S. Kasamatsu et al., arXiv preprint: 2008.02572

[4] K. Hukushima et al., J. Phys. Soc. Jpn. 65, 1604 (1996).

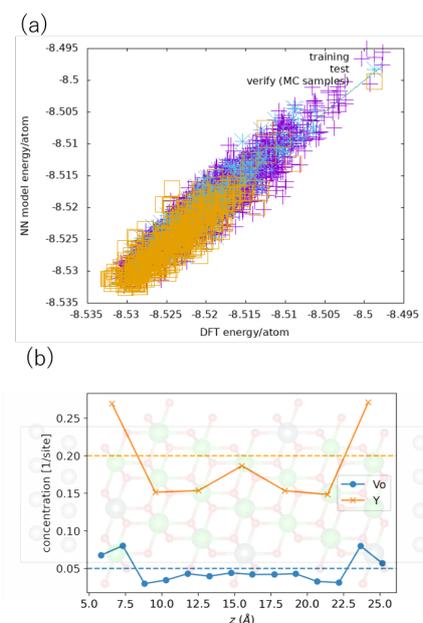


Figure 1:
Machine-learning-assisted ion
configuration sampling in the
Pt/YSZ interface system