

TSUBAME 共同利用 令和7年度 産業利用 成果報告書

利用課題名 機械学習ポテンシャルを用いた有機無機界面に関する分子動力学シミュレーション
英文: Machine Learning Interatomic Potential aided Molecular Dynamics Study for addressing organic/inorganic Interface issues

利用課題責任者
稲葉祐策

所属
株式会社クレハ
<https://www.kureha.co.jp/>

邦文抄録(300字程度)

機械学習ポテンシャルは量子化学計算レベルの高精度で且つ高速に分子動力学シミュレーション可能な手法として注目され、本課題では複合材料の特に有機無機界面含む系を再現可能なポテンシャル構築する事により界面現象理解を目的とした。ファウンデーションモデルを活用した構造サンプリングと強化学習を自動化する事で多様な構造を効率的に得られるようになった。

英文抄録(100 words 程度)

Machine Learning Interatomic Potential (MLIP) is garnered attention to implement molecular dynamics simulations with both quantum mechanical accuracy and practical scalability. This project aims to address organic/inorganic interface issues by retraining MLIP which enables them to simulate complex materials. To obtain variety of training data including unstable structures, sampling by utilizing a foundation model and reinforcement of the MLIP modes is automated

Keywords: 機械学習ポテンシャル 有機無機界面 教師データサンプリング ファウンデーションモデル

背景と目的

近年、機械学習ポテンシャルは量子化学計算レベルの高精度に且つ高速に分子動力学シミュレーション可能な手法として盛んに検討され、結晶系や分子系の計算データを使って精度向上が図られ学習済みモデルが公開されるようになった。そのようなポテンシャルを用いて複雑な現象、反応を予測し、材料開発が加速する事が期待されている。その特徴を活かし、例えば機能性材料のような様々な材料と複合されたりして用いられる材料の課題解決に適用される事が期待される。複合材料では各々界面が存在し、その機能を十分に発揮するのに界面構造の制御、理解が欠かせない。そのような界面の課題を抱える対象として本プロジェクトでは次世代蓄電池である全固体 Li 電池を想定している。無機固体とポリマー、イオンなど含む複雑な界面での反応や吸着現象を従来の古典力場で扱うには精度が不十分であり、また量子化学を使った第一原理分子動力学計算では計算時間が膨大となり、その様な系を機械学習ポテンシャルで、高精度かつ量子化学計算を用いる

より格段に高速にシミュレートする事が期待される。界面のシミュレーションを行うには界面を扱えるポテンシャルとそれを学習するためのデータが必要であり、本プロジェクトでは、界面シミュレーションの前段階として、機械学習ポテンシャル学習データサンプリングを自動化によって解決し今後の機械学習ポテンシャル学習のデータを得た。

概要

次世代蓄電池の全固体 Li 電池ではイオン拡散や機械強度の観点で活物質、電解質、導電助剤、高分子それぞれの界面に起因する課題がある。これら課題解決の為に電池内の異種界面の相互作用、イオン拡散等の現象を分子シミュレーションにより原子・分子レベルで解明する事が不可欠である。しかし、有機分子と無機固体を含めた界面のような複雑なモデルへ機械学習ポテンシャルを適用した取り組みは少ない。本研究では機械学習ポテンシャルのモデル精度を向上し、得られたモデルを用いた分子動力学シミュレーションによ

り有機無機界面が課題となる電池材料の実問題適用を目的とした。

結果および考察

機械学習ポテンシャルの学習の為にデータを安定構造だけでなく不安定な構造も含めサンプリングする為に昇温しながら分子動力学計算(MD)を実行した。量子MDを実行すると多大な計算時間が必要であり、教師データの構造はファウンデーションモデルを使った MD 計算から得る事とした。計算手順を図 1 に示す。

計算プログラムは lammmps、原子間ポテンシャルにはファウンデーションモデル(Allegro-OAM-L[1])を用いた。昇温する速度、間隔は任意に設定することができる。その間のスナップショットをサンプリングして第一原理計算を行う。第一原理計算プログラムは QuantumESPRESSO を用いた。第一原理計算の結果を使ってファウンデーションモデルをファインチューニングして、次の昇温 MD の原子間ポテンシャルとしている。

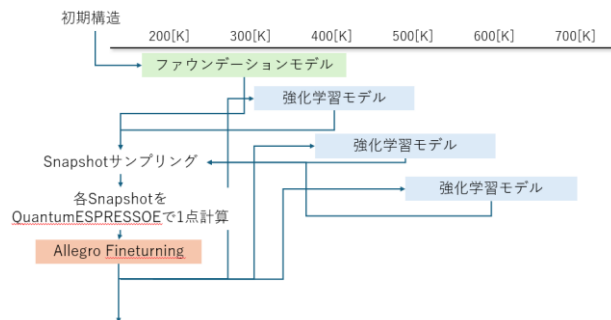


図 1 データサンプリング手順

フッ化ビニリデンオリゴマーと LiTFSI(リチウムビス(トリフルオロメタン)スルホニル)イミド)を含むモデル(図 2)を計算した結果を例として示す。昇温速度は 20[ps]。開始温度 200[K]から 400[K]まで昇温してモデルを強化学習、その後開始温度 300[K]から 500[K]まで昇温する一連の操作を開始温度 500[K]まで繰り返した。得られたスナップショットでファインチューニングし、原子に働く力を第一原理計算と比較した結果を図 3 に示す。強化学習により原子に働く力の予測値が改善している事がわかる。今後、界面や混合物のデータを増やしていく事で異種界面シミュレーション可能なポテンシャル作成を行う。

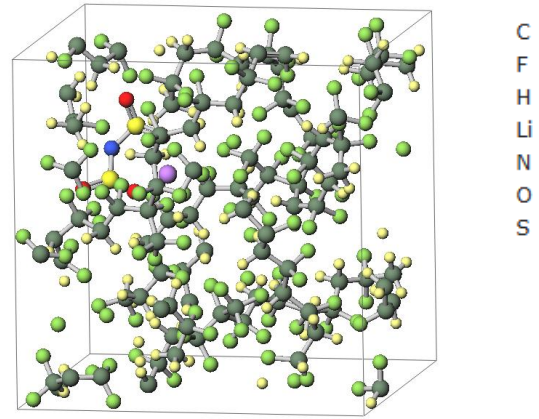


図 2 計算モデル

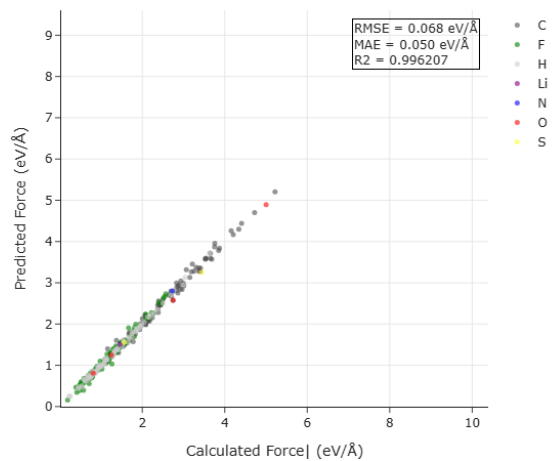
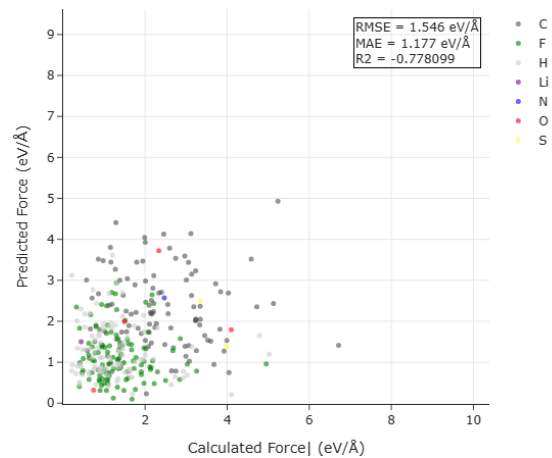


図 3 原子に働く力 予測値 vs 第一原理計算上:ファウンデーションモデル、下:強化学習後

まとめ、今後の課題

本研究では界面シミュレーションを扱うための前段階である構造サンプリングの効率化を実施し、多様な構造データから強化学習した機械学習ポテンシャルが得られるようになった。今後、界面シミュレーション可能なポテンシャル作成を行い、目的とした電池内の異種界

面の相互作用、イオン拡散等の現象を明らかにする。

[1] Kavanagh, S. R., & MIR Group @ Harvard.
(2025). NequIP & Allegro Foundation
Potentials (0.1). Zenodo.
<https://doi.org/10.5281/zenodo.16980200>