

\* a tool for NanoLabo \*

# Advance / NeuralMD

Developed by AdvanceSoft Corp. (2020-2022)

<http://www.advancesoft.jp>

# Advance / NeuralMD

Neural Network Potential に基づいた分子動力学計算のソフトウェアです。Quantum ESPRESSO<sup>※1</sup>にて出力された第一原理計算の結果を教師データとして、分子力場を作成します。この力場を利用して、LAMMPS<sup>※2</sup>にて分子動力学計算を実行します。

## Neural Network Potential の特徴

- 第一原理計算よりも高速、かつ、既存の分子動力学計算よりも高精度
- 未知の材料、未知の添加元素 など、既存の力場が無い系も取り扱い可能
- 研究者の勘や経験に依存しない、システムティックなシミュレーションを実現

## Theory

Neural Network Potential では、系の全エネルギー  $E_{tot}$  を各原子のエネルギーの和として表現します：

$$E_{tot} = \sum_{i \in \{\text{all atoms}\}} E_i$$

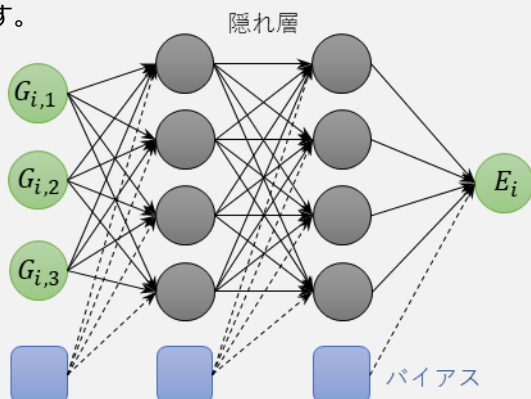
各原子のエネルギー  $E_i$  は、ニューラルネットワークで計算されます：

$$E_i = E_{NN}(G_{i,1}, G_{i,2}, G_{i,3}, \dots)$$

ニューラルネットワークへの入力データは対称関数  $G_i$  と呼ばれるもので、本製品では重み付き Behler 関数および Chebyshev 多項式が利用可能です<sup>※3,4</sup>。

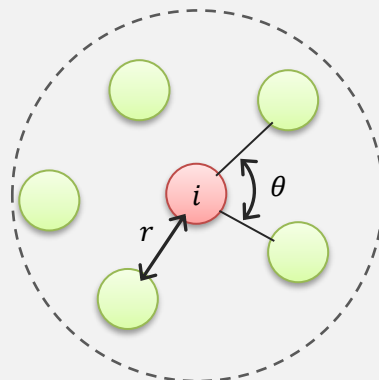
### ニューラルネットワーク

最終層におけるバイアスおよびパーセプトロンにて、それぞれ、標準原子エネルギーと化学シフトを表現します。



### 対称関数

注目している原子( $i$ )の近傍にある、他の原子の幾何構造を表現したもの。結合距離( $r$ )や結合角( $\theta$ )などの情報を含みます。



### Advance/NeuralMD の特徴的な機能

1. Single Atom Neural Network Potential
2.  $\Delta$  - Neural Network Potential
3. メトロポリス法による力場の強化
4. Advance/NanoLabo(GUI)からの操作
5. 自己学習ハイブリッドモンテカルロ法

※1 Quantum ESPRESSO は、GPL ライセンスにて配布されている第一原理計算のオープンソースソフトウェア。(https://www.quantum-espresso.org)

※2 LAMMPS は、GPL ライセンスにて配布されている分子動力学計算のオープンソースソフトウェア。(https://lammps.sandia.gov)

※3 “wACSF—Weighted atom-centered symmetry functions as descriptors in machine learning potential”, M.Gastegger, et al., JCP 148 (2018) 241709

※4 “Efficient and accurate machine-learning interpolation of atomic energies in compositions with many species”, N.Artrith, et al., Phys. Rev. B 96 (2017) 014112

# Features

## 1. Single Atom Neural Network Potential

密度汎関数理論の計算において 各原子のエネルギーを直接に出力して教師データとするアルゴリズム、Single Atom Neural Network Potential<sup>※1</sup> (SANNP) が利用可能です。電気的な分極の小さい系に対しては全エネルギーを教師データとする High-Dimensional Neural Network Potential<sup>※2</sup> (HDNNP) よりも学習過程における収束性が向上します。また、同時に各原子の Hirshfeld 電荷が出力できるため、長距離クーロン相互作用の取り扱いも可能となっています(3G-HDNNP<sup>※2</sup> を適用)。

※1 "Density functional theory based neural network force fields from energy decompositions", Y.Huang, et al., Phys. Rev. B 99 (2019) 064103

※2 "A fourth-generation high-dimensional neural network potential with accurate electrostatics including non-local charge transfer", T.W.Ko et al, Nat. Comm. 12 (2021) 398

## 2. $\Delta$ - Neural Network Potential

$\Delta$ -Neural Network Potential<sup>※3</sup> ( $\Delta$ -NNP) は当社が独自に開発した手法であり、全エネルギー $E_{tot}$  を古典力場で計算されたエネルギー $E_C$ と Neural Network Potential で計算されたエネルギー $E_{NNP}$ の足し合わせで表現します。ニューラルネットワークの教師データは第一原理で計算されたエネルギー $E_{DFT}$ そのものではなく、第一原理と古典力場のエネルギーの差分 $E_{DFT} - E_C$ となります。差分を使用するため、 $\Delta$ -NNP と呼称しています。古典力場としては、Lennard-Jones-like な 2 体関数

$$E_C = \frac{1}{2} \sum_{i,j} \frac{A}{r_{ij}^{12}} + \frac{B}{r_{ij}^{10}} + \frac{C}{r_{ij}^8} + \frac{D}{r_{ij}^6}$$

を使用します。無機材料に対しては 2 体関数がポテンシャル地形の第 0 近似として機能しつつ、2 体関数では表現しきれない余剰の部分を Neural Network Potential で補完するというアプローチです。これにより、学習過程の収束性が向上し、且つ、少ない教師データでも安定した力場を作成することができます。

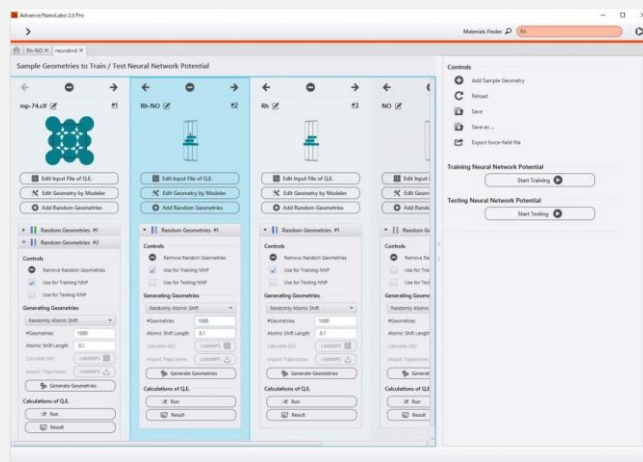
※3 <http://case.advancesoft.jp/NeuralMD/LGPS-conductivity/index.html>

## 3. メトロポリス法による力場の強化

事前に作成済みの Neural Network Potential を使用して、メトロポリス法によるモンテカルロ計算が実施できます。対称関数の分布を活用することで、生成された構造の中から未知の構造のみを抽出して教師データに追加します。これにより、効率的に教師データを再構成して、より精度の高い力場へと再学習させることができます。メトロポリス法における構造生成には原子座標の並進移動の他に、元素や空孔位置の入替操作を考慮することも可能です。

## 4. Advance/NanoLabo からの操作

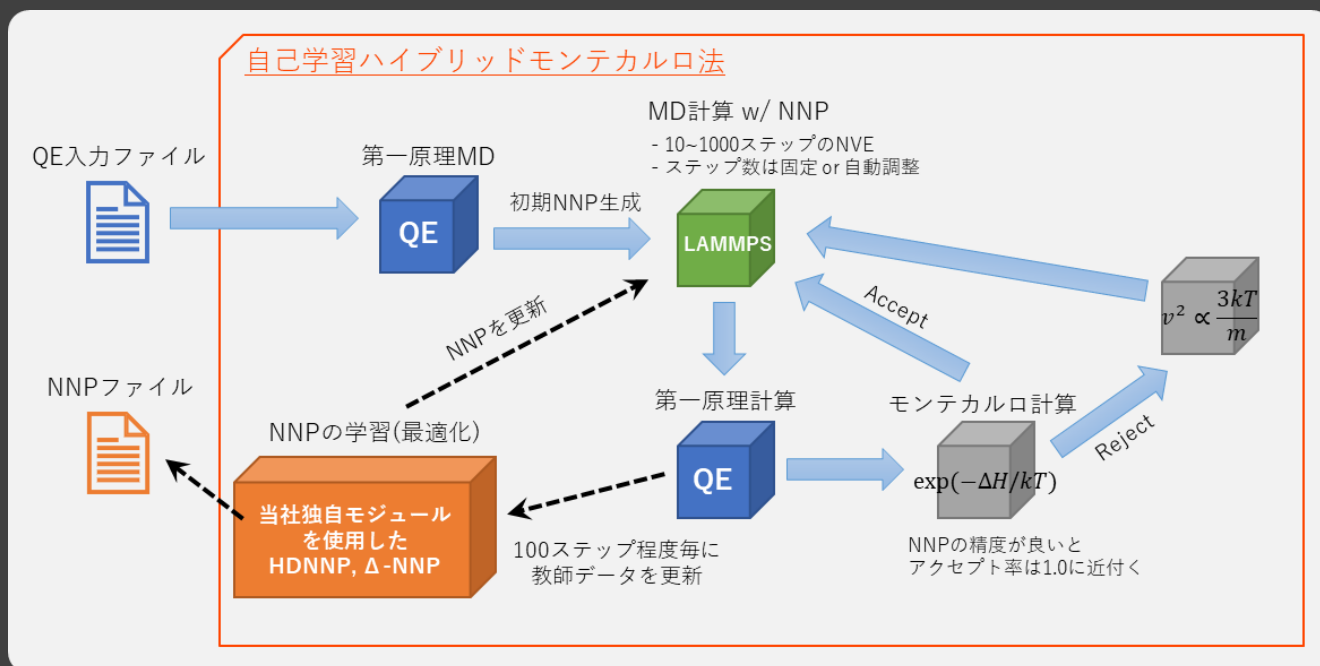
教師データの作成、ニューラルネットワークの学習および力場生成、分子動力学計算の実施まで、全ての工程を Advance/NanoLabo の画面から操作可能です。グランドプロジェクト(右図)にて多数の教師データ等を管理しつつ、作業を進めることができます。また、教師データ作成においては、第一原理計算を複数の計算リソース(計算サーバーやクラウドなど)に分散させることも可能です。



## 5. 自己学習ハイブリッドモンテカルロ法

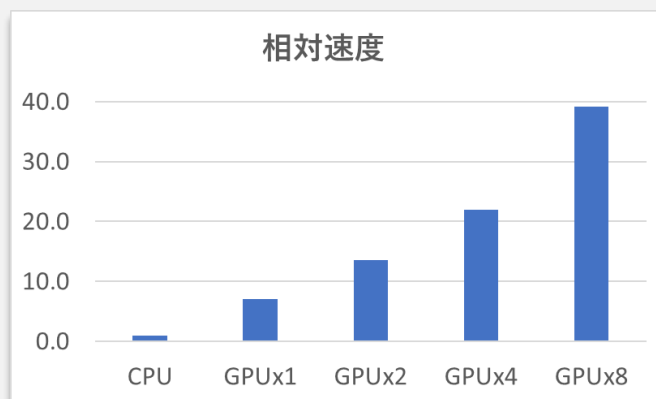
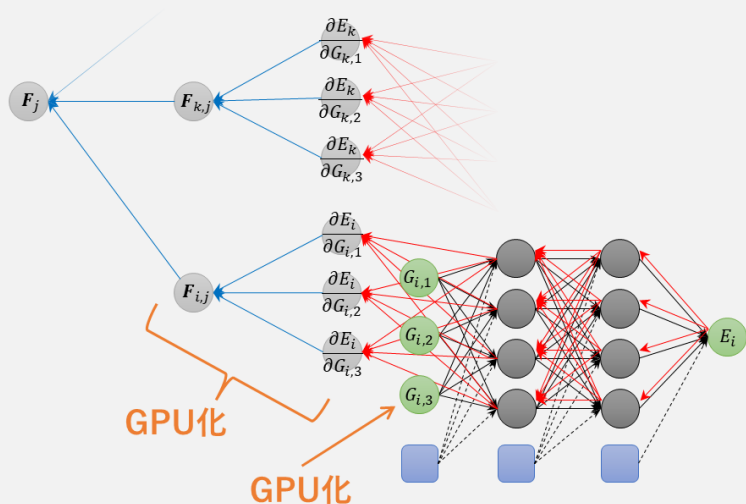
自己学習ハイブリッドモンテカルロ法は、日本原子力研究開発機構により開発された第一原理モンテカルロ法のアルゴリズムです<sup>※1</sup>。モンテカルロ法における提案構造として Neural Network Potential による分子動力学計算のトラジェクトリーを適用することで、モンテカルロ計算自体については第一原理の精度が保証されつつ、効率的な構造のサンプリングが実現できます。モンテカルロ計算の実行と同時に、各構造で計算された第一原理計算の結果を利用して Neural Network Potential の学習についても並行して実施されます。その結果、当該手法を実行すると対象とする系に特化した Neural Network 力場が自動生成されることになります。

※1 “Self-learning hybrid Monte Carlo: A first-principles approach”, Y.Nagai, et al., Phys. Rev. B 102 (2020) 041124



## Advance/NeuralMD Pro

Advance/NeuralMD Pro は **GPU** でのニューラルネットワークの学習および分子動力学計算に対応しています。MPI 並列との併用も可能で、複数の GPU を搭載したマシン and/or GPU を搭載した複数のマシンノード にも対応しています。GPU 1 デバイス当たり 2~4 つの MPI プロセスを起動することで、GPU と CPU 双方の稼働率を常に高い状態に保持できるように設計されています。計算コストの高い対称関数および力の計算を GPU 化しています(左下)。



Intel Xeon Platinum 72 コア(CPU) と NVIDIA V100 1~8 デバイス(GPU) での分子動力学計算の速度比較。CPU での計算速度を 1 とした相対速度をプロット。計算対象は LGPS スーパーセル(2 万原子系)。計算リソースには Mat3ra(<https://mat3ra.com>)を使用。

# How-to-use

## A. 手動での力場作成

### 1. サンプル構造の作成

力場作成のためのサンプル構造を、Advance/NanoLabo などを利用して ユーザーが作成します。  
複数個のサンプル構造を同時に使用して、一つの力場を作成することが可能です。

### 2. ランダム構造の生成

サンプル構造を基にして、原子座標をランダムに変位させた多数の構造を自動的に生成します。  
また、生成された全構造について、第一原理計算を一括して実行するスクリプトも同時に出力します。

### 3. Quantum ESPRESSO による第一原理計算

生成されたスクリプトを実行して、第一原理計算を実施します。  
計算には当社にて改修を施した Quantum ESPRESSO を使用して、原子毎のエネルギーを出力します。

### 4. ニューラルネットワークの学習（最適化）

Quantum ESPRESSO にて計算された原子毎のエネルギーを教師データとして、  
ニューラルネットワークを最適化します。最適化計算には、当社の提供するツールを使用します。  
計算完了後、LAMMPS にて利用可能な力場ファイルとして ニューラルネットワークの情報を出力します。

### 5. LAMMPS による分子動力学計算

作成した力場ファイルを用いて、分子動力学計算を実施します。  
計算には、当社にて Neural Network Potential の機能を追加した LAMMPS を使用します。

## B. 自己学習ハイブリッドモンテカルロ法の利用

ユーザーが自ら教師データを作る必要が無く、Quantum ESPRESSO の入力ファイルを準備して自己学習ハイブリッドモンテカルロ法の計算コマンドを唯一つ実行するだけ自動的に力場が生成されます。  
Advance/NanoLabo (GUI)をお使いの場合には、画面上のボタンを押すだけです。手動での力場作成では数週間~1 ヶ月以上掛かっていた作業が、半日~数日で完了します。

# Licensing

## ライセンス形態

OS	ライセンス形態
Windows <sup>※1</sup>	ノードロック (リモートデスクトップ利用可)
Linux	フローティング

※1 Window では Advance/NeuralMD Pro はご利用になれません。

## ライセンス価格

製品	年間(企業・国研)	年間(大学)	買取(企業・国研)	買取(大学)
Advance/NeuralMD	50 万円 <sup>※3</sup>	25 万円 <sup>※3</sup>	150 万円 <sup>※3</sup>	75 万円 <sup>※3</sup>
Advance/NeuralMD Pro <sup>※2</sup>	90 万円 <sup>※3</sup>	45 万円 <sup>※3</sup>	270 万円 <sup>※3</sup>	135 万円 <sup>※3</sup>

※2 Advance/NeuralMD Pro では GPU でのニューラルネットワークの学習および分子動力学が実施できます。  
※3 Advance/NanoLabo と同時にご購入いただくと、定価から 2 割引きとなります。

## トライアルライセンス

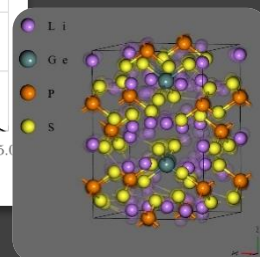
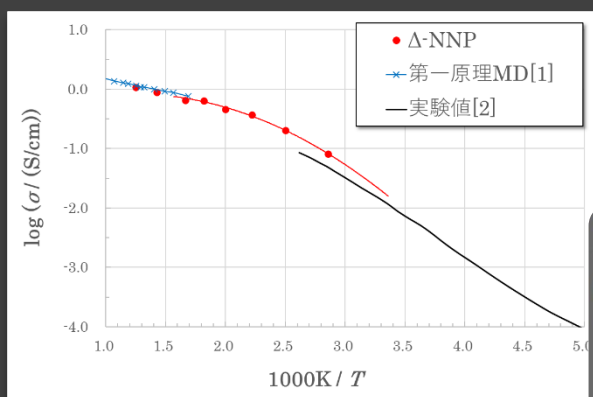
お一人様につき 1 ヶ月間、トライアルライセンスを無償でご利用になれます。

# Cases

## Δ-NNP による Li イオン伝導率計算

Li イオン伝導体である  $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$  に Δ-NNP を適用して、イオン伝導率( $\sigma$ )を計算しています。第一原理 MD ではモデルサイズを大きくできず、イオンが激しく運動する高温領域でしかシミュレーションできません。一方、Neural Network Potential を使用すると、常温でもシミュレーション可能で、イオン伝導率の実験値をよく再現しています。

$\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$  のイオン伝導率



※1 A.Marcolongo, et al., <https://arxiv.org/abs/1910.10090>

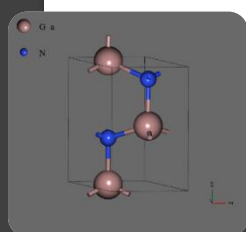
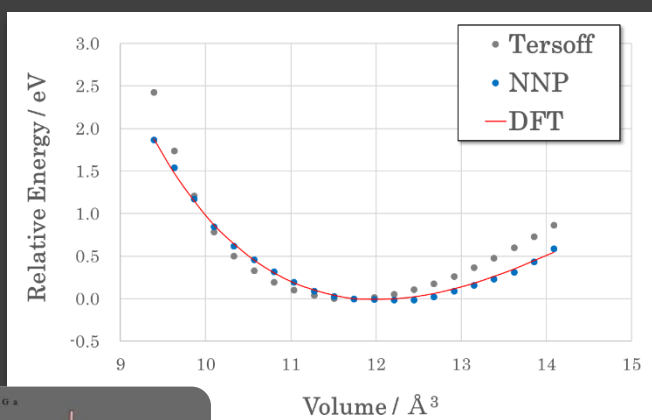
※2 菅野了次, Electrochemistry, 85(9), 591-596 (2017)

## 既存の分子力場よりも高精度

Neural Network Potential を GaN 結晶に適用し、計算結果を Tersoff 力場<sup>※3</sup>と比較しています。教師データには、300K~6000K の古典分子動力学計算にて生成した 500 個の構造を使用しています。ポテンシャルエネルギーおよび原子に働く力について、DFT 計算の結果をよく再現しており、Tersoff などの既存の力場よりも高精度であることが確認できます。

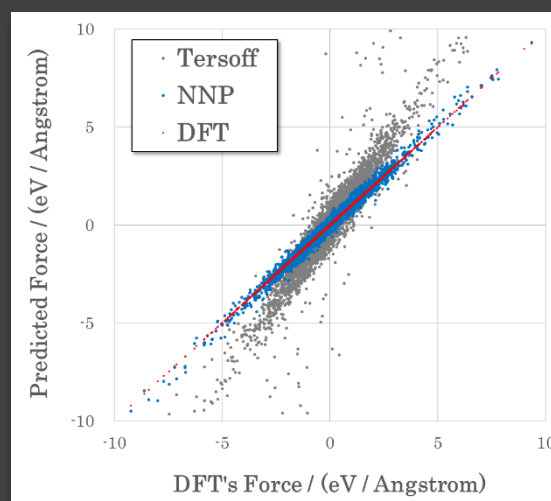
※3 多体系分子力場 [https://lammps.sandia.gov/doc/pair\\_tersoff.html](https://lammps.sandia.gov/doc/pair_tersoff.html)

ポテンシャルエネルギー vs 体積 <sup>※4</sup>



※4 NNP の教師データには、種々の格子定数を有する GaN 結晶を用いています。

原子に働く力の検証



RMSE(Tersoff): 1.05 eV/Å, RSME(NNP): 0.19 eV/Å

## アドバンスソフト株式会社

詳しい情報をご希望の方は、まずはお問い合わせください。デモンストレーションも可能です。

〒101-0062 東京都千代田区神田駿河台四丁目3番地

新お茶の水ビルディング 17階西

TEL: 03-6826-3971 FAX: 03-5283-6580

URL: <http://www.advancesoft.jp/>

E-mail: [office@advancesoft.jp](mailto:office@advancesoft.jp)

