

量子アニーリングを活用したペロブスカイト結晶構造探索ソフトウェアの開発

—結晶構造の離散最適化基盤の構築—

1. 背景

ペロブスカイト型材料は、太陽電池や発光デバイスなどに応用される次世代半導体材料として注目されている。図 1 に示すように、ペロブスカイトは ABX_3 という基本的な結晶構造を持ちながら、A・B・X それぞれの位置に複数の元素や分子を導入できるため、材料設計の自由度が非常に高い。その結果、混晶化や有機カチオン置換を通じて物性を最適化する研究が盛んに行われている。

しかし、自由度が高いということは、考えられる結晶構造の候補が膨大になることを意味する。特に有機無機ハイブリッド型ペロブスカイトでは、混晶による原子配置の組合せ爆発に加え、有機カチオンの向きや結晶骨格のわずかな歪みまで考慮すると、構造の可能性は指数関数的に広がる。

材料研究では第一原理計算などのシミュレーションが広く用いられているが、どのような計算を行うにも、まず原子の位置が定まった結晶構造データが必要である。結晶構造がなければ物性計算も実行できないため、構造生成は計算研究の出発点であり、ここが整わなければ研究は前に進まない。

従来は結晶構造予測と呼ばれる手法を用いて安定構造を探索してきたが、自由度の高い系では物理的に成立しない構造が多数生成されたり、全候補を評価するのに膨大な計算時間を要したりする課題があった。実際に既存の構造予測ツールを用いた検証でも、妥当な構造はごく一部に限られることが確認されている。実験による網羅探索も現実的ではなく、計算による全列挙も困難であり、従来手法も高自由度系では十分に機能しにくいという三重の課題が存在している。

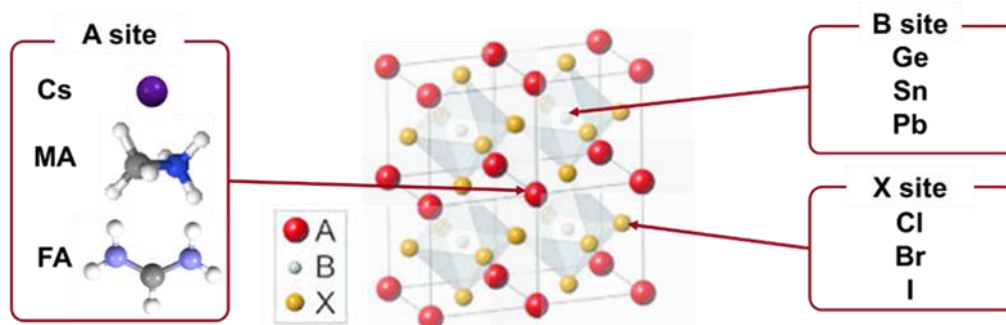


図 1 ABX_3 ペロブスカイト結晶の基本構造

2. 目的

本プロジェクトの目的は、ペロブスカイトの結晶構造探索を、原子座標を連続的に動かす最適化問題としてではなく、原子や分子の配置を選択する離散的な組合せ最適化問題として再定式化することである。そして、その最適化問題を量子アニーリングという計算技術を用いて効率的に解く構造探索基盤を構築することを目指した。

量子アニーリングは、多数の組合せの中からエネルギーの低い解を効率的に見つけることを得意とする最適化技術である。本プロジェクトでは、混晶における原子配置や有機カチオンの向き、指定された組成条件を統一的に扱えるソフトウェアを開発し、短時間で物理的に妥当な低エネルギー構造候補を得られる環境を整備することを目標とした。

3. ソフトウェア開発内容

3.1 基本コンセプト

本ソフトウェアでは、結晶構造の生成を「座席配置問題」として考える。あらかじめペロブスカイトの基本骨格を固定し、 $2 \times 2 \times 2$ に拡張した計算用セルの中の各格子点を座席とみなす。そして、それぞれの座席にどの元素を配置するか、あるいはどの方向に有機カチオンを向けるかを、選択肢の中から 1 つ選ぶ問題として表現する。

この選択を 0 または 1 で表される変数で記述し、組合せ最適化問題の標準形式である QUBO へ変換することで、量子アニーリングで解くことができる形に整える。

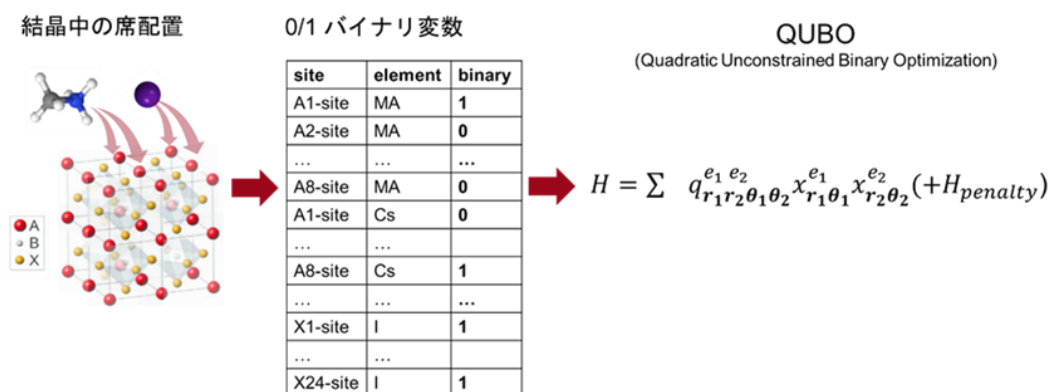


図2 ペロブスカイト構造をバイナリ化して QUBO に適用する手順

3.2 システム構成

本システムは、ユーザーが組成や格子条件を入力し、その妥当性を確認する機能、格子形状を設定する機能、量子アニーリングを実行する機能、そして得られた結果を結晶構造ファイルとして出力する機能から構成されている。Web ブラウザ上で操作できるユーザーインターフェースを備えており、専門的なプログラミング知識がなくても構造探索を実行できるよう設計した。

3.3 QUBO の構築方法

結晶構造は、選択された配置や配向の組合せによってエネルギーが決まる問題として表現される。原子間の相互作用の強さは、機械学習ポテンシャルである MACE を用いてあらかじめ評価し、それを二体相互作用の形に整理して最適化問題の係数として組み込んだ。

さらに、指定された元素数比が守られるようにする条件や、各格子点に必ず一つの状態だけが選ばれるようにする条件も数式として組み込み、混晶配置と配向問題を同一の枠組みで扱えるようにした。

3.4 量子アニーリング挙動

量子アニーリングの実行時間を長くすると、得られる解のエネルギー分布がより低エネルギー側へ集中することを確認した。これは、単なるランダム探索ではなく、より安定な構造へと収束する挙動を示していることを意味する。

また、最適化で得られたエネルギーの順位は、機械学習ポテンシャルによるエネルギー評価の順位と整合しており、物理的に妥当な結果が得られていることを確認した。

3.5 計算効率

2×2×2 のスーパーセルを例に、A サイトと B サイトをそれぞれ半分ずつ混晶にする場合、単純な組合せだけでも数千通り存在する。さらに有機カチオンの向きを含めると、候補数は数万通り以上に増加する。

これらをすべて評価する従来型の網羅的探索では数時間規模の計算が必要となるが、本手法では量子アニーリングを用いることで、約 10~20 秒で上位 1~2% の低エネルギー構造の候補群を抽出することができた。

3.6 動作環境

本ソフトウェアは Python で実装し、Web インターフェースには Streamlit を用いている。最適化エンジンとして Fixstars Amplify を利用し、出力形式は結晶構造の標準フォーマットである CIF とした。

ブラウザ上で組成を入力し、計算を実行し、生成された結晶構造をダウンロードするまでを一連の流れとして行うことができる。図 3 に Web 画面の例を示す。



図 3 構築したペロブスカイト結晶構造探索ツールの入力画面

4. 新規性・優位性

本ソフトウェアの最大の特長は、結晶構造生成を離散的な組合せ最適化問題として再定式化した点にある。これにより、混晶配置と有機カチオン配向という複雑な自由度を、同一の最適化枠組みで扱うことが可能となった。

さらに、機械学習ポテンシャルによるエネルギー評価と量子アニーリングを橋渡しする設計を採用し、材料研究の実際のワークフローに組み込める形で実装した点も重要である。また、ペロブスカイト骨格をあらかじめ固定することで、物理的に破綻した構造の生成を大幅に抑制しており、従来手法で問題となっていた高い破綻率を改善している。

5. 期待されるユーザー価値と社会へのインパクト

5.1 ユーザー価値

本ソフトウェアの主な利用者としては、第一原理計算を行う理論研究者や、X線回折解析を行う実験研究者、材料インフォマティクスを活用する研究者が想定される。

構造生成にかかる時間を大幅に短縮できることにより、研究サイクルを高速化できる。また、破綻構造の削減によって無駄な計算資源の消費を抑えることができ、混晶系の安定性比較や物性評価にも効率的に活用できる。生成された構造はそのまま第一原理計算や分子動力学計算に接続可能である。

5.2 社会的インパクト

ペロブスカイト材料は高効率太陽電池の中核材料であり、エネルギー問題の解決に直結する重要分野である。本研究により材料設計の効率が向上すれば、高効率化や高安定化、さらには低コスト化の加速につながる可能性がある。

また、本成果は量子アニーリング技術の実応用事例として、量子コンピューティング技術が材料分野でどのように活用できるかを示す具体例となる。

6. 氏名（所属）

深澤亮（早稲田大学）

（参考）関連 URL

Streamlit 試作版

<https://app-perovskite-qubocsp-trial.streamlit.app/>

GitHub リポジトリ

<https://github.com/Fukapy/Streamlit-Perovskite-QA-Trial>