

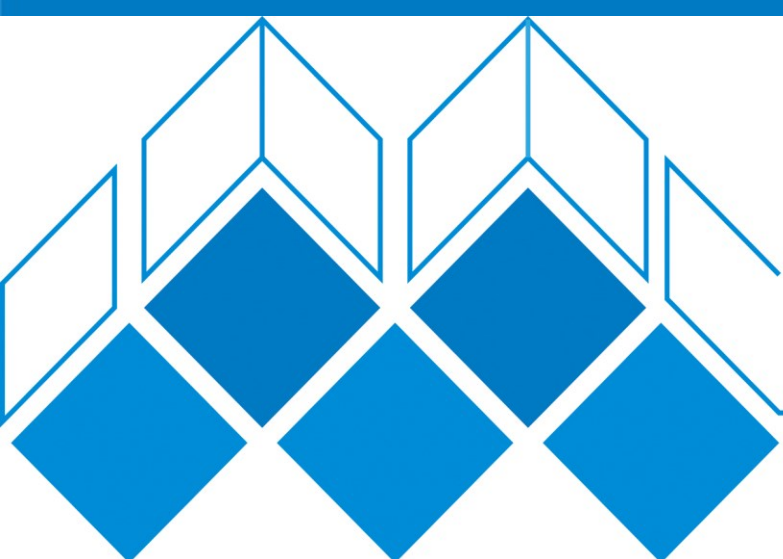
MATERIALS

データを学び、知を未来へつなぐ。

INFORMATICS

アブストラクト集

2018.8.24 さきがけ マテリアルズインフォマティクス
第2回公開シンポジウム 於 AP市ヶ谷



JST Sakigake

Materials | nformatics

「理論・実験・計算科学とデータ科学が連携・融合した 先進的マテリアルズインフォマティクスのための 基盤技術の構築」

第2回 公開シンポジウム

データを学び、知を未来へつなぐ。

2018年8月24日(金) 13:00-17:20

於 AP市ヶ谷 6階C会議室

【参加費無料】参加申し込みは下記webサイトから

URL: https://form.jst.go.jp/enquetes/m_OpenSympo2

プログラム

- | | | |
|-------|---|---------------------------|
| 13:00 | 開会挨拶 | 東京大学 常行 真司 |
| 13:10 | データマイニングを活用したマテリアルの理解と設計 | 北陸先端科学技術大学院大学
ダム ヒョウ チ |
| 13:40 | 非晶質材料の乱れた構造に潜んだトポロジーの抽出 | 物質・材料研究機構 小原 真司 |
| 14:10 | トポロジカルデータ解析を用いた物質構造の記述法 | 産業技術総合研究所 中村 壮伸 |
| 14:40 | 休憩 | |
| 15:10 | Combining First-Principles DFT Calculations and Informatics to Search for Novel Fast Ionic Conductors (第一原理計算とインフォマティクスを利用した新規イオン伝導体探索) | 物質・材料研究機構 JALEM Randy |
| 15:40 | マテリアルズ・インフォマティクスによるリチウムイオン電池の電解液探索 | 物質・材料研究機構 袖山 慶太郎 |
| 16:10 | インフォマティクスと反応経路自動探索を活用した触媒・表面吸着系の計算・解析・予測 | 北海道大学 小林 正人 |
| 16:40 | 機械学習によって明らかになる電子間の相互作用効果 | 東京大学 山地 洋平 |
| 17:10 | 閉会の辞 | |
| 17:30 | 交流会 5階D会議室 | |

データマイニングを活用したマテリアルの理解と設計

Mining materials science data: Understanding and Design

ダム ヒョウ チ

北陸先端科学技術大学院大学

DAM Hieu-Chi

Japan Advanced Institute of Science and Technology

計算機技術やアルゴリズム開発の発展により「人間のように学習するコンピューターシステムの構築」を目的とする機械学習の研究領域が急激に発展を遂げて、多くの汎用技術を作り、凄まじく応用範囲が広がった。少し遅れを取って提唱されたデータマイニングの研究領域は機械学習の研究領域とは大幅に重なる。データマイニングの研究では統計学、機械学習、および統計学習の技術を活用するが、機械学習とは少し異なり、「データから新しく有用な知識を見つける」を目的と設定される。

データマイニングの研究は多くの機械学習技術を活用するが、機械学習の研究よりデータからの「知識」獲得および「発見」といった風味が強調され、要求される。そのため、機械学習の研究領域では教師あり学習によるデータ駆動型の予測が主流だが、データマイニングの研究領域では教師なし学習によるデータ構造の発見が注目される。また、データマイニングによるデータからの知識発見プロセスは、帰納法アプローチで行われているため分野知識の理解によるデータの記述や獲得した知識の評価が不可欠である。教師あり学習による「予測」問題は基本的には予測精度によって評価でき、教師なし学習によるデータ構造の発見は客観的な統計基準などを活用する場合があるが、主観的な評価が導入される場合も少なくない。特に、計算機が自動的に発見された知識に対して、分野の知識の土台での説明性が評価され、いわば、「人間」が理解可能であることが求められる [1]。

一方、材料科学はこれまで勘と経験に頼る手法を中心に成果をあげてきたが、実用化に多大な時間と費用を要することが課題であった。これを解決する為に、実験データと計算から得られる結果を統合して、データに内在する価値を最大限に引き出す方法論の開発が期待される。特に、実験データと計算データを統合し、データマイニング・機械学習の手法を導入して材料データに内包されている法則性や隠れた要因を自動的に抽出することができると期待される。近年、データ科学

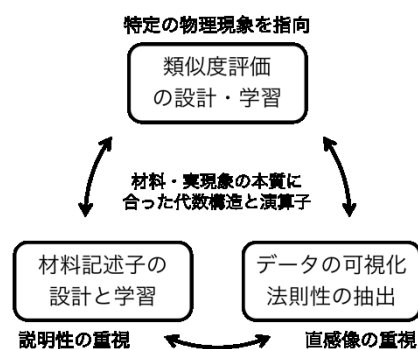


図1. 統一的な構造物性現象を説明する解析的枠組み

を活用して自然科学の研究を促進化する試みが盛んになり、物理・化学の長年貯蓄された分野の経験・理論知識の土台で築かれたマテリアルサイエンス領域においてもマテリアルズ・インフォマティクスの研究が注目を集めている。

本講演会では、講演者が行なったデータマイニングを活用した材料の理解と設計の研究事例を用いて紹介する。講演者は材料構造物性現象の理解と材料設計のために材料科学データに対して記述・類似度評価・学習の基盤の手法の創出を行なっている(図1)。具体的には、物質の記述子に関する研究では、原子軌道と結晶場の情報を取り入れた材料記述子の確立 [2], データから原子ポテンシャルエネルギーを学習するための混合線形モデルの開発 [3], 固体磁石材料空間の可視化および構造推定の手法の提案 [4], 物性の理解に関しては、磁石材料の構造物性の物性値予測だけでなく、実現象の解明手法を開発した [2, 4, 5]。本講演では特に、材料のデータをマイニングして、新材料の物性を「予測」する知識の獲得や物性を発揮するメカニズムの「理解」に支援する情報の獲得する技術的課題を議論したい。

参考文献

- [1] Hieu-Chi Dam and Kiyoyuki Terakura, “From Analysis to Prediction, from Prediction to Design: Materials Informatics”, Surface Science, The Surface Science Society of Japan, 36(10), 507-514 (2015).
- [2] Tien-Lam Pham, Hiori Kino, Kiyoyuki Terakura, Takashi Miyake, Ichigaku Takigawa, Koji Tsuda, Hieu-Chi Dam, “Machine learning reveals orbital interaction in crystalline materials”, Science and Technology of Advanced Materials, Vol. 18, No. 1, 756-765 (2017).
- [3] Tien-Lam Pham, Hiori Kino, Kiyoyuki Terakura, Takashi Miyake, and Hieu-Chi Dam, “Novel mixture model for the representation of potential energy surfaces”, The Journal of Chemical Physics, 145, 15, 154103 (2016).
- [4] Tien-Lam Pham, Duong-Nguyen Nguyen, Van-Doan Nguyen, Hiori Kino, Takashi Miyake, and Hieu-Chi Dam, “Learning structure-property relationship in crystalline materials: A study of lanthanide-transition metal alloys”, The Journal of Chemical Physics, 148, 20 (2018).
- [5] Duong-Nguyen Nguyen, Tien-Lam Pham, Viet-Cuong Nguyen, Tuan-Dung Ho, Truyen Tran, Keisuke Takahashi, and Hieu-Chi Dam, “Committee machine that votes for similarity between materials”, arXiv:1807.10751 (2018).
- [6] Hieu-Chi Dam, T.L. Pham, T.B. Ho, A.T. Nguyen, and V.C. Nguyen, “Data mining for materials design: A computational study of single molecule magnet”, The Journal of Chemical Physics, 140, 044101 (2014).

非晶質材料の乱れた構造に潜んだトポロジーの抽出

Extraction of hidden topology in disordered materials

小原真司

国立研究開発法人物質・材料研究機構

Shinji Kohara

National Institute for Materials Science

ガラス・液体・アモルファスといったいわゆる非晶質材料は結晶のような長周期構造を有さないことから、その回折パターンはブロードになる。さらに、結晶の空間群や格子定数のような記述子が存在しない。したがって、回折パターンから原子の位置を一意的に決定できず、規格化されたパターンをフーリエ変換することより得られる実空間関数から二体相関として、原子間距離、配位数といった平均化された情報を抽出することが唯一行えることである。このことが原因で非晶質材料の構造解析は大きく立ち後れてきたが、二体相関で原子の相対的な位置を議論する限りは大型放射光施設 SPring-8 や大強度陽子加速器施設 J-PARC といった先端量子ビーム実験施設が誕生した今も変わらない問題である。一方で、電子回折の進化 [1], 計算機シミュレーションや最先端数学理論との連携 [2,3]により、平均化された二体相関に潜んだ非晶質材料の特徴的な構造抽出に成功した例が報告されている [4-6]。本講演では、非晶質材料の中でも我々の日常生活に欠かせない酸化ガラスに注目し、ガラスの二体相関に潜んだトポロジーの抽出を試みる。とくに、数ある酸化ガラスの中でもっとも構造・物性研究が広く行われてきたガラス形成物質として知られるシリカ (SiO_2) ガラスの回折データおよびデータ駆動型構造モデリングにより得られた回折データを忠実に再現する 3 次元構造モデルを紹介する。さらに、平岡、中村らにより開発された材料のトポロジー解析ツールであるパーシステントホモロジー解析[2]をガラスの 3 次元構造座標に適用し、ガラスに潜んだ結晶のトポロジーについて報告する。

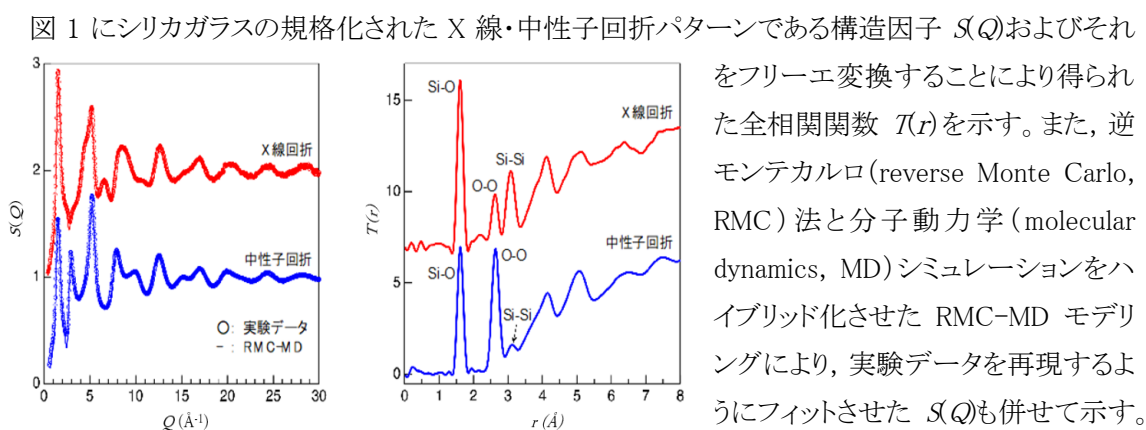


図 1 X 線・中性子回折より得られたシリカガラスの
構造因子 $S(Q)$ (左) と全相関関数 $T(r)$ (右)

図 1 の左の図より実験データを忠実に再現する構造モデルが構築されたことが分かる。シリカガラスの構造は、 SiO_4 四面体が酸素原子を頂点で共有することによりリングネットワークを形成することが知られているが、図 1 の右の図に示すとおり、実空間では四面体内の Si-O、O-O 相関、さらに四面体間の Si-Si 相関が観測されている。X 線は重元素に、中性子は酸素に敏感であることからこの差がよく両データに現れている。

ここで得られた 3 次元構造にパーシステントホモロジー [7]と呼ばれる、ガラスに存在するリングの形を解析する数学的手法の適用を試みた。図 2 にシリカガラスの Si の 3 次元原子座標から抽出したパーシステントダイアグラムを SiO_4 四面体が頂点共有している 3 つの結晶相のデータと併せて示す。パーシステントホモロジーでは、すべての原子の半径を同時に膨らませ、リングが生成した時点を birth、さらに原子の半径を膨らませ、リングが消滅した時点を death としてプロファイルを計算する。ガラスのダイアグラムには Death(縦)軸に沿って縦長のプロファイルが観測され、これはガラスに乱れたネットワーク構造があることを示しており、Death の値が大きいほど寿命が長い、すなわちロバストな大きなリングの存在を意味する。一方、対角線付近のプロファイルは寿命の短いリングの存在を意味する。この death 軸に沿った縦長のガラスのプロファイルに注目すると、結晶相にも同じようなプロファイルが観測され、赤矢印で示したとおり、 α -クリストバライト、 α -石英、コーサイトと高密度になるにつれて、寿命が短いリングへと変わっていることがわかる。結晶の強いプロファイルに該当する構造を抽出すると、 α -クリストバライトでは比較的対称性の良い 6 員環のみが観測されたが、 α -石英においては 6, 8 員環が、コーサイトにおいては 4, 6, 8 員環も観測され、リングの形がねじれた対称性の悪いものであることが明らかになった。シリカガラスにこれら 3 つの結晶相と同じ death 位置にプロファイルが広がっていることから、ガラスには密度がより高密度の結晶のトポロジーがある、つまり、 α -クリストバライトと比較して、よりねじれた形のリングが存在していることが明らかとなり、これがガラスの無秩序性の象徴であると言える。

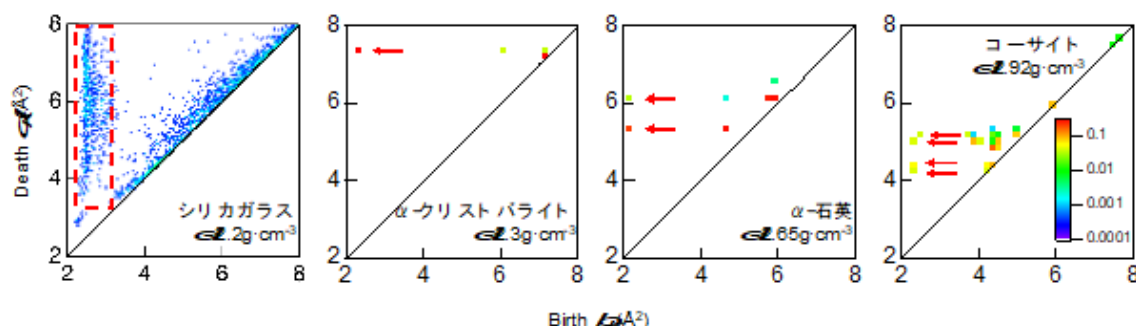


図 2 シリカガラスおよび結晶の Si 原子のパーシステントダイアグラム

参考文献

- [1] A. Hirata, S. Kohara *et al.*, *Nat. Commun.*, **7**, 11591-7 (2016).
- [2] Y. Hiraoka, T. Nakamura *et al.*, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, **113**, 7035-7040 (2015).
- [3] Y. Onodera, S. Kohara *et al.*, *Nat. Commun.*, **7**, 15449-8 (2017).
- [4] S. Kohara and P. S. Salmon, *Adv. Phys. X*, **1**, 640-660 (2016).
- [5] S. Kohara, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, **125**, 799-807 (2017).
- [6] S. Kohara *et al.*, *Quantum Beam Sci.*, **2**, 1-23 (2018).
- [7] 平岡裕章, 西浦廉政, 日本物理学会誌, **1**, 1-10 (2017).

トポロジカルデータ解析を用いた物質構造の記述法

Description method of material structure using topological data analysis

中村 壮伸

産業技術総合研究所

Takenobu Nakamura

National Institute of advanced industrial science and technology

トポロジカルデータ解析、もしくはパーシステントホモロジーとは 21 世紀に入ってから発明された比較的新しいデータ解析手法である[1]。主としてポイントクラウド(点群)データ、ほかにも画像解析、時系列データ処理などにも様々な分野で活用されている。最近、我々のグループによって分子動力学計算で得られる原子の配置データに対しても、特徴的構造を抽出する際にトポロジカルデータ解析が有用な記述手段であることを明らかになった。本講演では物質構造の記述に特化したトポロジカルデータ解析の使い方について、我々が得た代表的な知見を紹介する。

まずパーシステントホモロジーが対象とする穴という図形の数学的な定義、すなわちホモロジーについて紹介を行う。ここでは正確な定義や証明を与えることはせず、我々物質科学者がよく知る数学の言葉を使って、なじみの数学の概念との類推に基づいて紹介をおこなう。その後、ホモロジーの利点と問題点を紹介し、物質科学の立場での有用性を紹介する。

次にパーシステントホモロジーの使い方について紹介する。パーシステントホモロジーはパーシステンスダイアグラムと呼ばれる穴の長さスケールを表す 2 次元の散布図(図 1~4 参照)で表現される。この散布図から情報を読みとる際に注目すべき性質として、閾値の選択に関する頑健性と穴の階層性の2点を重点的に説明する。

最後に、分子動力学計算から得られる代表的な巨視的一様系の原子配置データに対応するパーシステンスダイアグラムの表現方法と特徴について解説を行う。巨視的一様な系の記述では全系はそっくりな部分系の集まりと考えることができる。従ってヒストグラムによる記述が有用である。気体(図 1)・液体(図 2)・完全結晶(図 3)・有限温度結晶(図 4)を典型的な構造の例とし、パーシステンスダイアグラムの階層性と頑健性に注目してどのような性質を持つか解説を行う。典型的な構造で得られた知見はガラスのような部分的に秩序を持つ乱れた構造の記述においても有用であることを紹介する[2,3]。

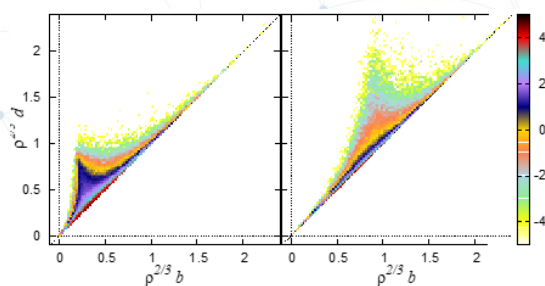


図1 気体のダイヤグラム

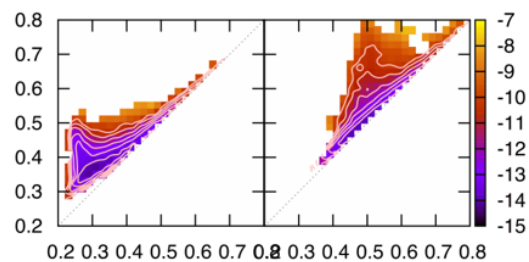


図2 液体のダイヤグラム

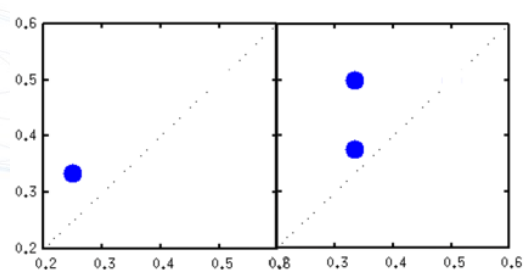


図3 完全結晶のダイヤグラム

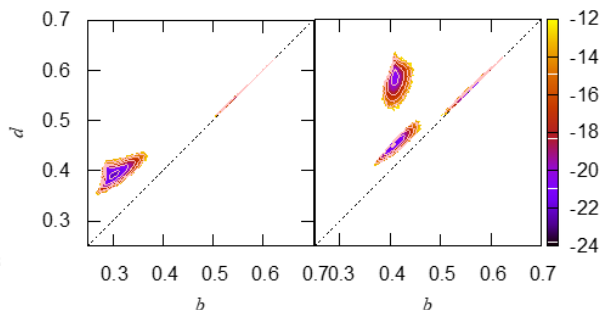


図4 有限温度の結晶のダイヤグラム

参考文献

- [1] Edelsbrunner, Herbert, and John Harer. Computational topology: an introduction. American Mathematical Soc., 2010.
- [2] T. Nakamura, Y. Hiraoka, A. Hirata, E. G. Escobar and Y. Nishiura, Nanotechnology, 26, 304001 (2015)
- [3] Y. Hiraoka, T. Nakamura, A. Hirata, E. G. Escobar, K. Matsue and Y. Nishiura, PNAS, 113, 7035, (2016)

第一原理計算とインフォマティクスを利用した新規イオン伝導体探索

Combining First-Principles DFT Calculations and Informatics to Search for Novel Fast Ionic Conductors

Randy Jalem^{a,b,c,d}

^a Center for Green Research on Energy and Environmental Materials & Global Research Center for Environment and Energy based on Nanomaterials Science (GREEN), National Institute for Materials Science (NIMS), Tsukuba, Japan

^b PRESTO, Japan Science and Technology Agency (JST), Saitama, Japan

^c Center for Materials research by Information Integration (CMI²), Research and Services Division of Materials Data and Integrated System (MaDIS), NIMS, Tsukuba, Japan

^d Elements Strategy Initiative for Catalysts & Batteries, Kyoto University, Kyoto, Japan

Discovery and development of novel fast ionic conductors is now become a major interest in the field of next-generation energy conversion and storage devices. For example, the all-solid-state ion battery concept requires a high-conductivity solid electrolyte so that desired multiple properties (e.g., high corrosion resistance, nonflammability, a wide operating temperature window, good operating stability, and longer service life) can be achieved. Although several promising new fast ionic conductors such as sulfides, garnets, NASICON-/LISICON-type materials, etc., have been reported, it is still challenging to have any one of them be able to satisfy most, if not all, of the required properties for practical application. Thus, new solid electrolytes are still continually sought. Density functional theory (DFT) calculations have now become a common practice for aiding in the discovery and theoretical evaluation of fast ionic conductors. Moreover, state-of-the-art informatics-based techniques are now becoming increasingly popular as well in extending the reach of DFT-based material evaluations and in providing robust platforms for establishing structural and structure-property relationships. Such methods enable the efficient screening and analysis of candidate materials, for example, with low ion migration energy barrier in the host framework, which is critical for the materials functioning as an ionic conductor.[1,2,3] Not only promising compositions can be identified but also the important material descriptors a given property of interest can be determined as well systematically.

In this talk, recent efforts related to the development of efficient computational search/screening methods to find novel fast ionic conductors will be presented. The first part includes a proposed Bayesian-optimization-driven DFT-based material search framework, applying it to a

search/screening problem over a model material system with composition $(\text{Li}/\text{Na})\text{MXO}_4\text{Z}$ (M: group 2, 3, 4, 13; X: group 14, 15, 16; Z: F, Cl, Br, I), with DFT-based ion migration energy (E_b) as a main search/screening criterion.[4] The approach only requires $\sim 30\%$ of the total DFT- E_b sequential evaluations on the average to recover the optimal compound $\sim 90\%$ of the time. For screening compounds with $E_b < 0.3\text{eV}$ (a criterion referred from typical values of reported solid electrolytes), the recovery performance of the method is ~ 2 times better than the random search. A procedure for transfer learning will also be explained in which the knowledge/information gained from favorite-type Li ion conductors is leveraged to efficiently survey for favorite-type Na ion conductors. Another topic that will be shown is about the development of general material descriptors for crystalline solids for potential use in large-scale material exploration and discovery, based on combined real feature values from Voronoi tessellation of crystal structures and atomic property data.[5] The proposed representation was validated in terms of predictive accuracy on various DFT-calculated material properties such as cohesive energy, material density, electronic band gap, and thermodynamic decomposition energy.

References

- [1] R. Jalem, M. Nakayama et al., Chemistry of Materials 24, 1357 (2012).
- [2] R. Jalem, M. Nakayama et al., Journal of Materials Chemistry A 2, 720 (2014).
- [3.] R. Jalem, M. Nakayama et al., Journal of Chemical Information and Modeling 55, 1158 (2015).
- [4] R. Jalem, K. Kanamori, I. Takeuchi, M. Nakayama, H. Yamasaki, and T. Saito, Scientific Reports 8, 5845 (2018).
- [5] R. Jalem, M. Nakayama, Y. Noda, T. Le, I. Takeuchi, Y. Tateyama, and H. Yamazaki, Science and Technology of Advanced Materials 19, 231 (2018).

マテリアルズ・インフォマティクスによるリチウムイオン電池の電解液探索

Liquid electrolyte search for Lithium-ion batteries with materials informatics technique

袖山慶太郎

物質・材料研究機構 MaDIS, JST さきがけ

Keitaro Sodeyama

National Institute for Materials Science (NIMS) MaDIS, JST PRESTO

近年、従来型の実験や計算により得られた大量のデータと、情報科学的なデータ科学手法を融合させることで、真に産業応用上使えるような新規材料開発を加速させるマテリアルズ・インフォマティクス(MI)による研究が進展している。例えばリチウムイオン電池をはじめとする蓄電池では、高容量化や高出力化といった性能向上を目指した開発が実験や計算研究を通じて精力的に進められているが、必要とされる「高性能化」や「安全性向上」といった複数の機能を同時に両立させるような新規材料を、電池の種類に応じた数だけ探し出すには多大な時間が必要となってしまう。さらにこれら蓄電池では、正極、負極、そして有機系電解液の各構成要素それぞれに対して最適な材料探索を行う必要がある。正極および負極固体材料の探索に関しては MI を用いた報告が数多く存在する一方で、Li イオンの伝導を担う有機系電解液材料に関してはそのような研究は進んでいない。新規電極材料を使いこなせるような電解液材料の開発は喫緊の課題であり、固体系材料と比べて材料探索スピードの加速が産業界からも強く求められている。本講演では、計算科学によるリチウムイオン電池電解液の解析事例を示したあとで、データ科学手法を用いた電解液材料の特性を予測する記述子の自動抽出例と、それに基づいた新規電解液探索手法確立に向けた取り組みについて紹介する。具体的には、Li イオンの配位エネルギーを予測する記述子抽出を例にとり、データ科学手法の適用例を紹介する。

記述子候補のデータベースを構築するため、電池の実験に際してよく用いられるキシダ化学株式会社のカatalogより、バッテリーグレードの溶媒 103 種に関して Gauss 関数を用いたクラスターモデル計算を行った(B3LYP/cc-pVDZ)。さらに Li イオンに配位した構造に関して構造最適化を行った(図 1)。これらの計算に

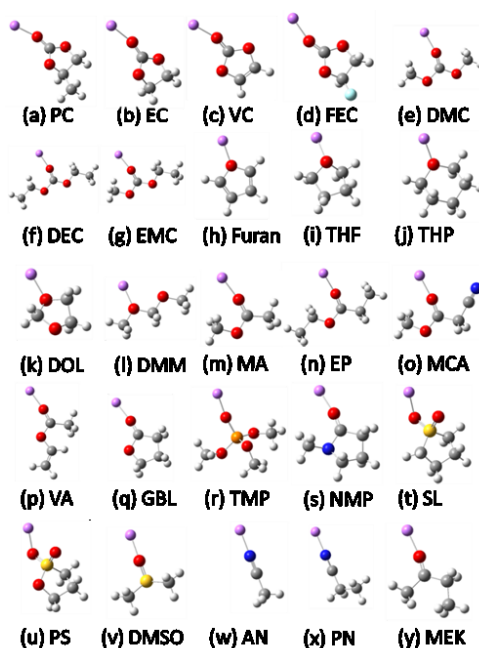


図 1. データ解析に用いた代表的な 25 種の溶媒分子

より得られた配位エネルギーや Li イオンに配位している原子の Mulliken 電荷、HOMO, LUMO の値、Li と溶媒間の距離、さらにカタログ上の各種物性値(沸点、融点、引火点、密度、分子量、双極子モーメント)を記述子としてデータベースを構築した。これらに対しデータ科学手法(多変数線形回帰(MLR)および LASSO)を用いた機能予測を行った。さらに東京大学岡田研究室で開発されている線形回帰による全状態探索(ES-LiR)法を用いた予測も行った。

予測すべき機能として、クラスターモデル計算により得られた配位エネルギーを選択し、それ以外の 10 種の特徴量から機能予測を行った。交差検証により求めた予測結果より、MLR で寄与の大きい特徴量は Mulliken 電荷、Li と溶媒間の距離、密度の三つであったが、LASSO では Mulliken 電荷のみが記述子として抽出され、その他の特徴量は刈り込まれた。いくつかのサンプルでは LASSO による予測値は MLR によるものに比べて悪化しているが、全ての記述子を用いる MLR に比べると LASSO は平均予測誤差が約 20%減少した。配位

エネルギー予測に関して ES-LiR 法が最も高精度に予測できることを確認した(図 2)。また図 3 に ES-LiR 法により得られたウェイトダイアグラムを示す。白色部はその記述子を使用していないことを示しており、横軸は予測精度の高いものから順に 25 種の記述子の組合せパターンを示す。これにより、どの記述子が抽出されたかを信頼性高く選ぶことができ、今回の系では溶媒酸素の Mulliken 電荷および Li 酸素

間の距離が安定的に機能説明能力を持つことが分かる。このようなデータ科学手法は、電解液機能を説明する記述子抽出に有効であり、今後説明変数を増やしていくことで、より広範な機能に対する材料探索が可能になると期待できる。今後 DFT-MD 法を用いた電解液のトラジェクトリーから記述子を抽出することで、より広範な機能に対する電解液探索が可能になる。

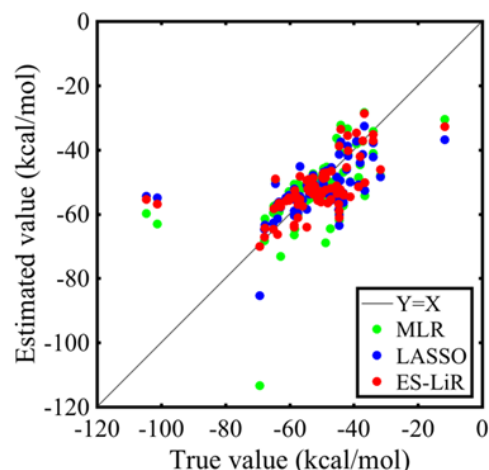


図 2. 103 種の溶媒分子と Li イオンとの配位エネルギー(縦軸は MI 手法による予測値、横軸は DFT 計算による計算値)

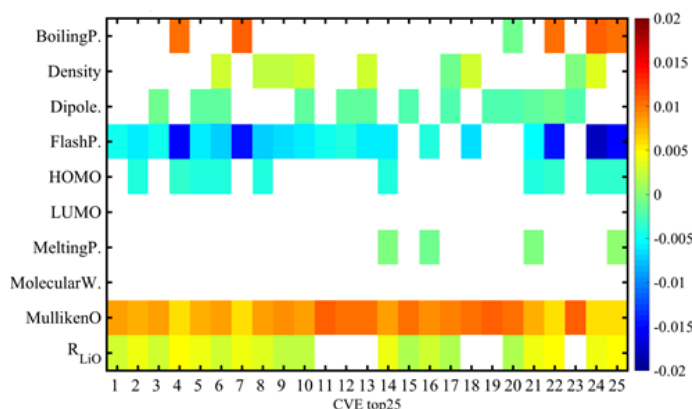


図 3. 配位エネルギー予測精度の高い記述子群のウェイトダイアグラム

参考文献

- [1] K. Sodeyama, Y. Igarashi, T. Nakayama, Y. Tateyama, M. Okada, *Phys. Chem. Chem. Phys. in press* (2018). DOI: 10.1039/c7cp08280k

インフォマティクスと反応経路自動探索を活用した

触媒・表面吸着系の計算・解析・予測

Calculation, analysis, and prediction for catalyst and surface adsorption systems with informatics techniques and automated reaction path search

小林 正人

北海道大学大学院理学研究院

Masato Kobayashi

Faculty of Science, Hokkaido University

量子化学計算の適用範囲は、最近のコンピュータとプログラムの発展に伴って、3つのベクトルに向かって拡大してきたと言えよう。1つ目は生体分子などをターゲットとした大規模化のベクトルであり、例えば我々も、大規模分子系の量子化学計算を可能とする分割統治法の開発を行ってきた[1,2]。2つ目は高精度化のベクトルであり、従来の高精度計算が様々な系に対して適用できるようになっただけでなく、高い計算性能を利用して複雑な電子状態を解くための手法開発も進められている。最後のベクトルが、ハイスループット化である。従来から行われてきた「普通の計算」にかかる時間が短縮したことで、多数の計算を短時間かつ並列に得て利用する様々な応用が可能になった。反応経路の系統的探索から、平衡構造間を結ぶ遷移状態のデータベースを構築するグローバル反応経路地図 (global reaction route map: GRRM) プロジェクト[3]も、ハイスループット化により可能となった方法と言えるであろう。これらの手法で得られる膨大な情報を解析し、また新しい系のふるまいの予測に用いるための手法として、インフォマティクスの利用に注目が集まっている。

本講演では、特に触媒・表面吸着系の量子化学計算をターゲットに、配座や反応経路を自動的に探索して得られた多数の構造・電子状態計算結果から、インフォマティクスを活用して解析や予測を行った例について紹介する[4]。

【ランダムフォレスト回帰を用いた金属ナノクラスターの表面吸着エネルギー推定】

数個から数十個程度の原子で構成される金属ナノクラスターは、新規触媒材料として注目されている。金属ナノクラスター触媒は、実際には担体に担持されて活性を示す。担体まで含めた理論計算による触媒メカニズムの解明も広く行われるようになってきたが、ごく限定的なクラスターサイズ・吸着構造を取り扱った研究が大多数である。活性の高い担持クラスター構造の設計のためには、広範なサイズ・吸着構造に対する系統的な計算が必要であるものの、クラスターの吸着構造は、クラスターサイズが大きくなるにしたがって急激に増

大してしまい、すべての吸着構造を考慮することは現実的ではない。量子化学計算を用いることなく（特により大きなサイズのクラスターの）吸着エネルギーを推定することができれば、プレスクリーニングに利用することができる。

そこで、クラスター吸着状態のグラフ構造（原子・結合・面・四面体の数）のみを説明変数として、量子化学計算により求まる吸着エネルギーを推定することを試みた。具体的な系として、Au(111)面上に六方晶窒化ホウ素（h-BN）ナノシートを載せた担体に、 Au_n クラスター（ $n=1\sim 8$ ）を担持させた触媒を考えた。この系は、絶縁体の h-BN に不活性な Au(111)面を接合させて高い触媒活性が得られた現実の触媒として、近年注目を集めている[5,6]。GRRM プログラムなどを用いて、合わせて 635 個のクラスター構造・吸着構造を量子化学計算により得て、これを目的変数とした。図 1 に、ランダムフォレスト回帰により予測された吸着エネルギー（横軸）と量子化学計算により得られた実際の吸着エネルギー（縦軸）の相関を示す。

まず、クラスターサイズ $n=1\sim 7$ のうち 200 構造を訓練データセット（図では灰色の点）としてランダムに選んで、ランダムフォレスト回帰器を作成し、 $n=8$ のデータを含む 435 構造（テストデータセット、図では黒色の点）に対して、このランダムフォレスト回帰器の予測性能を調べた。特に左下の吸着により安定化する領域では、よい相関がみられる。また、より大きなサイズのデータが含まれるテストセットに対しても、訓練セットとほぼ変わらない予測性能を示していることがわかり、量子化学計算フリーのプレスクリーニング手法として、十分に利用できる。変数重要度に着目すると、クラスター自身の構造に関する記述子が、表面の構造に関する記述子よりも大きかった。これは、この系では吸着に伴う緩和が大きくなく、元のクラスター構造の安定性が吸着エネルギーにダイレクトに効いていることを表している。

参考文献

- [1] M. Kobayashi and H. Nakai, in *Linear-Scaling Techniques in Computational Chemistry and Physics* (Springer, 2011), pp. 97-127.
- [2] M. Kobayashi, T. Fujimori, and T. Taketsugu, *J. Comput. Chem.* **39**, 909-916 (2018).
- [3] S. Maeda, K. Ohno, and K. Morokuma, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **15**, 3683-3701 (2013).
- [4] 小林正人, 化学工業 **69** (1), 27-32 (2018).
- [5] K. Uosaki *et al.*, *Sci. Rep.* **6**, 32217 (2016).
- [6] G. Elumalai *et al.*, *Electrochem. Commun.* **66**, 53-57 (2016).

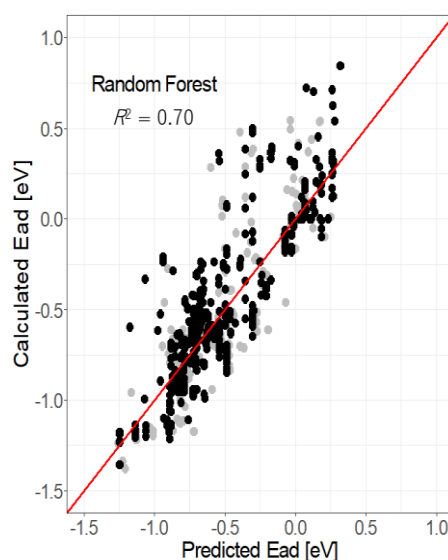


図 1 Au_n クラスター ($n=1\sim 8$) の h-BN/Au(111) 表面への吸着エネルギーの予測値（横軸）と計算値（縦軸）の相関。

機械学習によって明らかになる電子間の相互作用効果

Interactions among electrons revealed by machine learning

山地 洋平

東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻

Youhei Yamaji

Department of Applied Physics, The University of Tokyo

固体結晶中の電子が示す様々な性質は、エレクトロニクスの基礎を支えてきました。半導体デバイスの機能の源は、電子が運ぶ電荷に他なりません。固体中の電子には他にもスピンやバレーと呼ばれる自由度があり、新しい情報の運び手として注目を集めています。

固体中の電子が示す機能の源泉は、一つの電子が示す電荷やスピンにとどまりません。多くの電子がクーロン相互作用によって互いに影響を与え合うことで、磁性や超伝導に代表される様々な性質を示します。とくにゼロ抵抗を始めとする特異な現象によって、超伝導現象はカマリン・オネスによる1911年の発見以来、注目をあつめてきました。超伝導量子干渉計(SQUID)や量子ビットなど、その応用は多岐にわたります。

超伝導の性質を理解するには、『どのように電子同士が相互作用しているか』を解明する必要があります。バーディーン、クーパー、シュリーファーが明らかにした超伝導(BCS 超伝導)の発現機構[1]によると、量子化された結晶格子の振動、フォノンによって 2 つの電子が互いに引き寄せられ、クーパー・ペアと呼ばれる電子対を形成することで超伝導状態が発現します。

金属の中で電子の運動を追いかけて行くと、電子間のクーロン相互作用によって、電子は自身を特徴づけていた運動量やスピン、エネルギーを忘れていきます(図1を参照)。超伝導状態では、運動量やエネルギーの変化にとどまらず、クーパー・ペアの存在によって、負の電荷を帯びた電子から正の電荷を持つ正孔への変化が生じます。これら固体中での電子の履歴は、理論物理学では自己エネルギーと呼ばれる物理量によって記述されます。

BCS 超伝導においては、トンネル電子分光法によって電子が正孔へと変化する履歴を記述する『異常自己エネルギー』の観測に成功し、フォノンがクーパー・ペアを形成していることの動かぬ証拠が得られました[2]。

一方、1986 年に発見された銅酸化物高温超伝導体[3]では、超伝導転移温度より高温の常伝導状態が通常の金属とは異なる性質を示すために、発見から 30 年以上が経過した現在でも、異常自己エネルギーの観測は困難な課題となっています。

私たちは、長年の困難を解決し、高温超伝導の発現機構に迫るため、機械学習、とくにボルツマン機械を用いた異常自己エネルギーの再構成を試みました。近年の高度に進化した光電子分

光法の成果から、異常自己エネルギーを抽出することに成功し、隠されたフェルミ粒子が高温超伝導をもたらしていることを示唆する結果を得ています[4]。今後、新たな分光光学測定手法として、多体電子の性質を明らかにしていくことが期待されます。

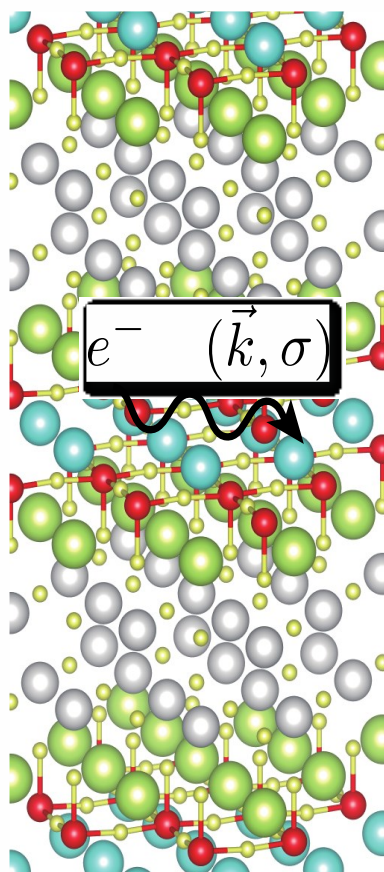
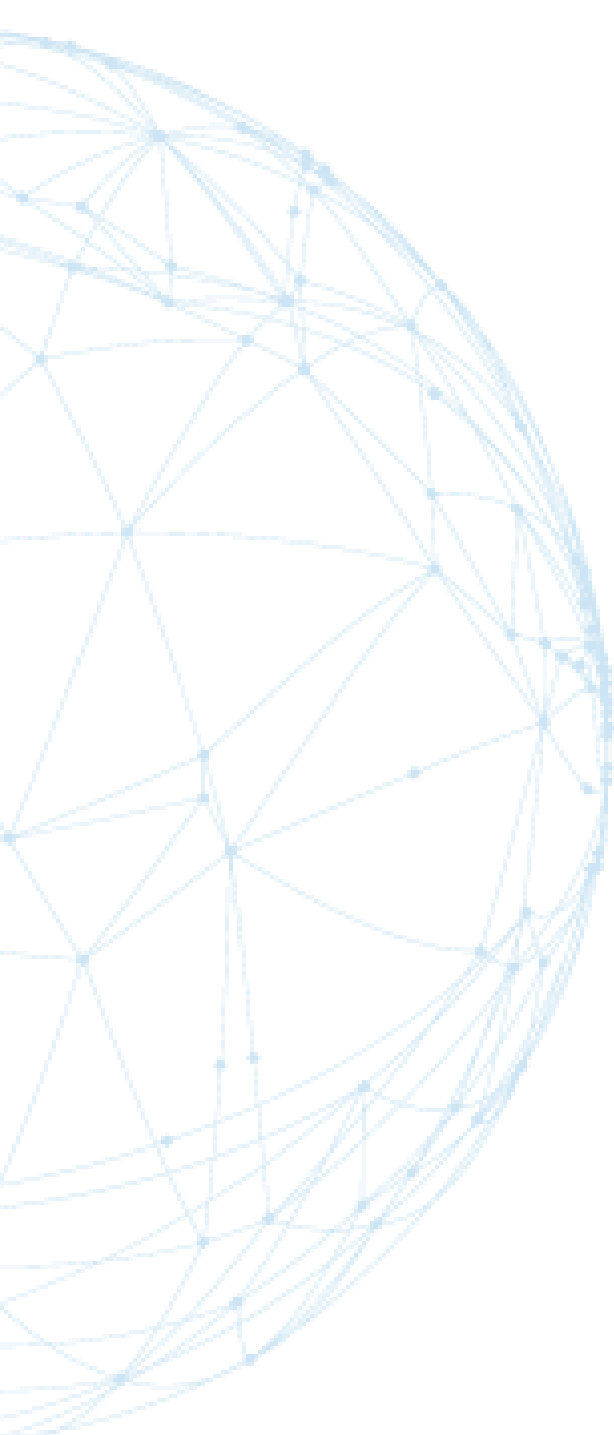


図1 銅酸化物中を運動する電子
一つの電子の様子は、運動量 k や
スピン σ などによって特徴づけら
れます。しかし、これらの特徴量
は、電子間の相互作用によって変
化していきます。そのような変化
の履歴は『自己エネルギー』によ
って記述されます。

参考文献

- [1] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, Theory of Superconductivity, Phys. Rev. 108, 1175 (1957).
- [2] W. L. McMillan and J. M. Rowell, Lead phonon spectrum calculated from superconducting density of states, Phys. Rev. Lett. 14, 108 (1965).
- [3] J. G. Bednorz and K. A. Müller, Possible high T_c Superconductivity in the Ba-La-Cu-O system, Z. Physik 64, 189 (1986).
- [4] Y. Yamaji, T. Yoshida, A. Fujimori, and M. Imada, submitted.

MEMO



国立研究開発法人

科学技術振興機構

Japan Science and Technology Agency

戦略的創造研究推進事業 さきがけ [マテリアルズインフォ]
理論・実験・計算科学とデータ科学が連携・融合した
先進的マテリアルズインフォマティクスのための基盤技術の構築

2018年8月発行

発行・連絡先 〒102-0076
東京都千代田区五番町K's五番町
国立研究開発法人 科学技術振興機構
戦略研究推進部 ICTグループ マテリアルズインフォ担当
TEL:03-3512-3526

U R L <http://www.jst.go.jp/kisoken/presto/index.html>
問 い 合 わ せ https://form.jst.go.jp/enquetes/senryaku_inquiry
