

機械学習を用いたテンプレートベースの結晶構造予測

草場 穂 ものづくりデータ科学研究センター 特任研究員

1. 研究背景

任意の化学組成によって形成されるエネルギー的に安定した結晶構造を予測することは、固体物理学における未解決問題である。原理的には、原子の集合体によって形成される安定または準安定構造は、原子座標の空間で定義されたポテンシャルエネルギー曲面の局所最適化問題を解くことで見つけることができる。ポテンシャルエネルギー曲面は、量子力学に基づいた演繹的計算手法である第一原理計算を通してのみ評価される原子座標の関数である。従って、結晶構造予測の主要なアプローチは、第一原理計算と進化的アルゴリズム、粒子群最適化等のブラックボックス最適化手法を組み合わせたものとなっている。また近年、原子座標のポテンシャルエネルギー曲面の評価を部分的に機械学習モデルで置き換えることで高速化を目指した手法も提案されている。これらエネルギー曲面の最適化に基づいた構造予測手法は、いずれも計算コストの高い第一原理計算を繰り返す必要とするため、大規模なシステムには適用できない。一方、エネルギー曲面の最適化に基づかない高速な手法として、既知構造の元素置き換えによって予測を行うテンプレートベースの手法が提案されている。既存研究では、構造に変化を与えない元素の交換可能性を、事前に定義された化学組成間の距離または元素ペアの共起確率のモデル化によって評価している。本研究では、構造予測が目的にも関わらず既存のテンプレートベースの手法では、元素の交換可能性を評価する際に構造類似性の情報が十分に活用されていない点を課題と捉え、新しいテンプレートベースの手法を開発した。

2. 提案手法

提案手法では、化学組成のペアが同一の最安定構造を与えるか否かを判別する関数を結晶構造データベースから学習する。この関数の学習には、metric learning という機械学習の技術を応用した。この関数によって構造類似性が高いと予測された、構造が既知の化学組成の元素をクエリ組成のものに置き換えることで、構造予測が達成される。最後にこの構造を初期構造として第一原理計算を行うことで、真に安定構造であるかの検証を行う。訓練された関数は96.4%の予測精度で結晶構造の類似性を判別することに成功し、約2万個の化合物に対するこの構造予測手法の数値実験は、提案手法が結晶系全体の約50~65%が予測可能であると示唆した。この研究はすでに publish されており、以下のURLからアクセスできる (<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0927025622002555>)。また、コードも公開しており (<https://github.com/Minori938/CSPML>)、Python上で簡単に本手法による結晶構造予測を実行できる。提案手法の概要を図1に示す。

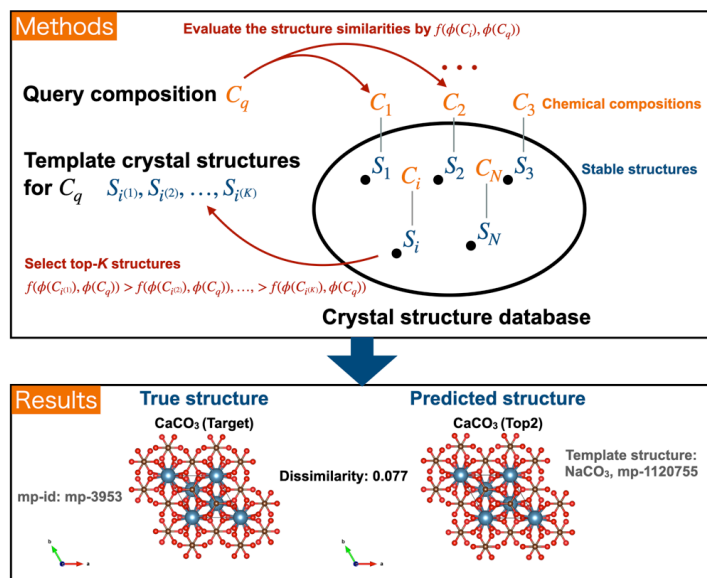


図1 提案手法の概要

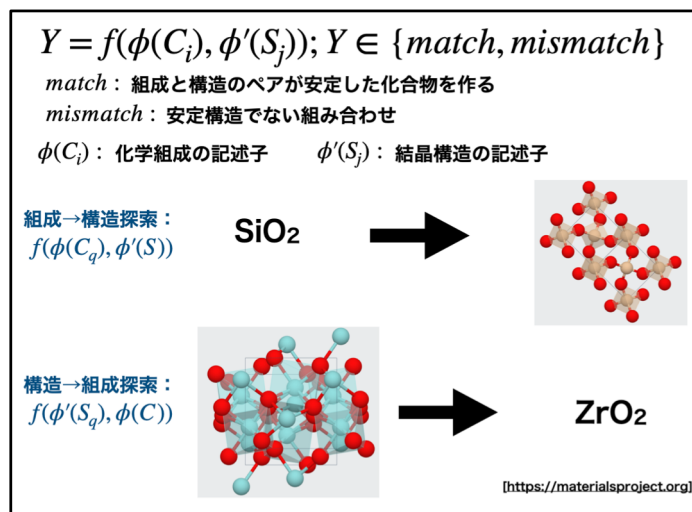


図2 現在研究中の手法概要

3. 提案手法の問題点と現在研究中的話題

上述のようにこれまでの研究では、化学組成のペアから(それらの最安定構造の)構造類似性を評価する metric learning に基づいた結晶構造予測手法を開発したが、この手法には以下三つの問題点が存在する: ① 準安定構造予測に対応していない ② 構造から組成を探す逆向きの予測に対応していない ③ データベースに無い構造を予測することができない。そこで現在、heterogeneous metric learning に基づいたテンプレートベースの新たな結晶構造予測手法の研究を行っている。本手法では、与えられた化学組成と結晶構造のペアが安定構造であるか否かを判別する関数を結晶構造データベースから学習し、その関数に基づいた結晶構造の提案によって構造予測を行う。この新しい方法論では、組成と構造を別々に扱っているため最安定構造に限定する必要が無く、①の問題点である準安定構造予測にも対応できる。また ②の問題点のように実際に材料探索する際に、構造を固定した上でその構造が安定構造である化学組成を探すという逆向きの予測が要請されることがあるが、これも組成と構造を別々に扱っているこの方法論で対応できる。③は最も重要かつ挑戦的問題点だと言えるが、この方法論上ではユーザーが定義したデータベースにない構造を事前に用意することで、構造探索領域をデータベースの外側に広げることができる。

現在研究中の手法では上述のように、以前の手法で解決できなかった三つの問題点全てに解決策を与える。また、本手法に関連した機械学習の分野として、cross-media retrieval がある。この分野の目的は、例えばカラスの画像をクエリとして入力した場合に、カラスの鳴き声にマッチした音声をリコメンドするシステムを構築することにある。クエリとはモダリティの異なるデータをリコメンドするため cross-media と呼ばれ、heterogeneous metric learning はこのタスクに対する主要な解決手段である。本手法は、化学組成をクエリとして入力した場合に、その安定構造(逆向きでも良い)をリコメンドする cross-media retrieval の問題であると捉えることができる。モダリティの異なる組成と構造間でのリコメンドシステムの構築は、本手法に上記三つの問題点を解決させる柔軟性を与えるため、本質的である。本手法の概要を図2に示す。当日までに現在研究中的の話題に進展があれば、コアタイムにて報告する。