

Δ-Machine learning を利用した高精度ポテンシャル曲面の作成

埼玉大院・理工¹, 上智大・理工²
○橋本ゆう¹, 飯田龍聖¹, 村上龍大^{1,2}, 高柳 敏幸¹

近年ポテンシャルエネルギー関数の作成に機械学習の手法が利用されており、その有用性が示されている^[1]。しかしながら、分子を構成する原子数が増加するとポテンシャルエネルギー曲面の形が複雑になり、機械学習で作成した関数が既知のデータに対しては良い結果を与えるが、未知のデータに対して間違っただけの結果を与えてしまう過剰適合などの問題が生じてしまう。そこで今回我々はポテンシャルエネルギーの差分を利用することにより、上記の問題を解決しつつ高精度のポテンシャルエネルギー関数の作成を行った。この手法は Δ-Machine learning^[2]と呼ばれ、差分ポテンシャルエネルギー関数の形状が単純になるので、過剰適合を起さずに高精度のポテンシャルエネルギー関数を作成しやすい。(Fig.1) また、直接的に高精度のポテンシャル関数を作成するよりも計算コストがかからないという利点もある。ポテンシャルエネルギーの差分は以下の式で定義される。

$$\Delta E = E(HL) - E(LL)$$

$E(HL)$ は高精度計算レベルで得られるポテンシャルエネルギー、 $E(LL)$ は低精度計算レベルで得られるポテンシャルエネルギーである。このような差分ポテンシャルエネルギーの関数を低精度計算レベルのポテンシャルエネルギー関数に足し合わせることによって高精度のポテンシャルエネルギー関数を作成することができる。今回は反応経路自動探索法(GRRM)^[3]を用いてサンプリングした構造、ポテンシャルエネルギー、勾配を教師データとし、Bowman らが開発した MSA2.0 プログラム^[4]を用いてポテンシャルエネルギー関数のフィットを行った。

本研究では MP2/cc-pVDZ レベルのポテンシャル関数と MP2/cc-pVDZ レベルと CCSD(T)/cc-pVTZ レベルの差分のポテンシャル関数を作成することによって星間分子生成に関連がある $\text{NH}_3^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{NH}_4^+ + \text{H}$ ^[5] 反応の CCSD(T)/cc-pVTZ レベルのポテンシャル関数を作成した。作成したポテンシャル関数は CCSD(T)/cc-pVTZ の計算結果をよく再現した。(Fig.2) 詳細は当日発表する。

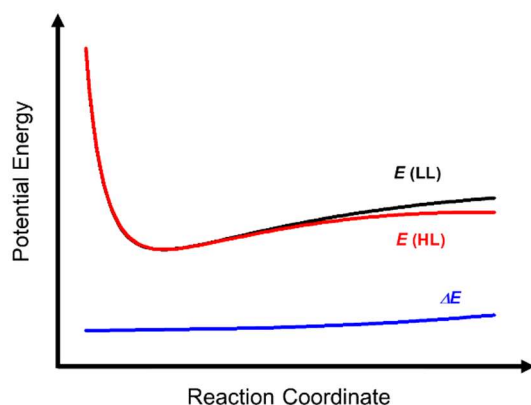


Fig.1 差分ポテンシャル関数の概念図

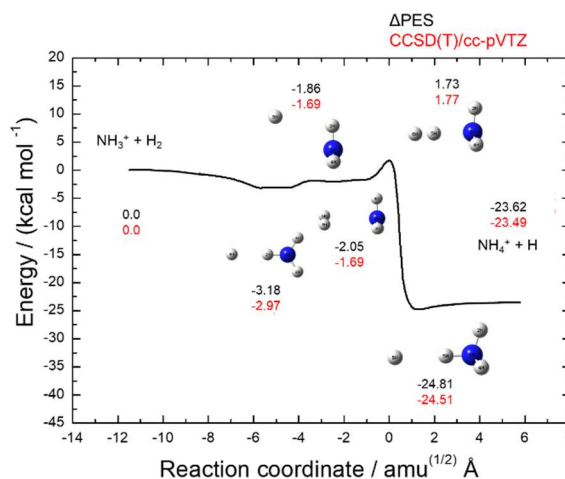


Fig.2 $\text{NH}_3^+ + \text{H}_2 \rightarrow \text{NH}_4^+ + \text{H}$ 反応の概略図

参考文献

- [1] M. Meuwly., *Chem. Rev.* 2021, 121, 16, 10218-10239
- [2] A. Nandi *et al.*, *J. Chem. Phys.* 2021, 154, 051102
- [3] S. Maeda *et al.*, GRRM 11: <http://grrm.chem.tohoku.ac.jp/GRRM/>
- [4] J. M. Bowman *et al.*, *J. Chem. Theory Comput.* 2010, 6, 26-34
- [5] J.Kastner *et al.*, *Faraday Discuss.*, 2016,195, 69-80