

反応経路地図とパーシステントホモロジーの融合による エネルギー地形の記述子の開拓

北大院総化¹, 北大院理², 産総研³, 関大システム理工⁴, 北大WPI-ICReDD⁵

村山武来¹, 青木雅允², 石橋卓², 齋藤琢弥², 中村壮伸³, 寺本央⁴, 小林正人²⁵, 武次徹也²⁵

ポテンシャルエネルギー曲面(PES)は $3N-6$ 変数(N :原子数)の関数であり、化学反応の解析・解釈のための重要な役割を担っている。最近Mirthら^[1]によって、数学的に定義される「穴」についての情報を抽出するトポロジカルデータ解析の手法: パーシステント・ホモロジー(PH)を用いたPESの解析が行われ、当該手法はPESのトポロジー的特徴をコンパクトな表現を可能にすることが報告された。しかしながら、この手法ではPES上のすべての定常点を解析的に求める必要があり、実在系に適用するのは困難である。そこで、我々は前田・大野・諸熊により提唱されたGRRM戦略^[2]により構築できるようになった反応経路地図(RRM)に対してPH解析を行う手法を提案する(図1)。反応経路地図は、頂点と辺にエネルギーが重み付けされたグラフとして考えることができる。辺の重みに基づき、単体複体を順次生成するフィルトレーションがPetriら^[3]によって提案された。本研究では、Petriらのフィルトレーションを頂点にも拡張、本来表現されない生成元に一定の値を与える等のRRMの解析に適した定式化によって、Adjusted Weight Rank Clique Filtrationを開発^[4]した。

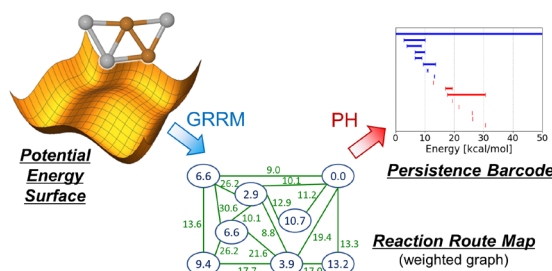


図1. 研究概要

GRRMプログラムで得られた反応経路地図を参照し、PH計算ソフトウェアHomCloudを使用して、本手法に基づくPH解析結果を出力するプログラムを開発した。

本手法により、RRMに内在する「穴」をエネルギーの次元を持つbirth (b)とdeath (d)の2値で特徴付けることができる。 b を始端、 d を終端としたバーを集めてPHを表現したものをpersistence barcode (PB)と呼ぶ。例として貨幣金属ナノクラスター X_3Y_2 ($X, Y = \text{Cu}, \text{Ag}, \text{or Au}$)のPBを示す(図2)。縦に並んだ同じ元素の組合せのPBは似た傾向を示すことが確認できる。具体的には、Au/Cuの組合せではPHの生成元が50 kcal/molまでの広い範囲に見られるが、他の組合せでは、30 kcal/mol程度までにしかみられない。また、Ag/Cuの組合せでは、他よりも生成元の数自体が少ない。さらに、Au/Agの組合せでは、deathが ∞ の1次PHの生成元の数が他よりも多い。これらの結果は、開発した解析法により2つの金属元素の親和性や合金反応の特性の抽出に利用できる可能性を示唆している。

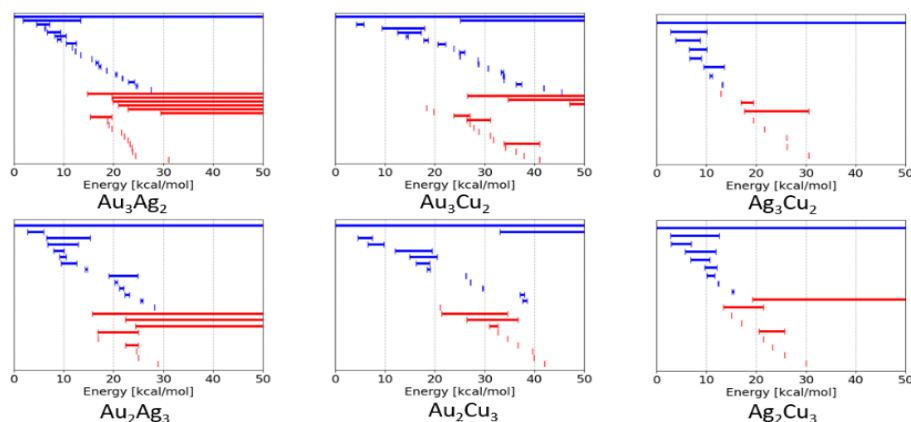


図2. 貨幣金属ナノクラスターの反応経路地図

[1] J. Mirth *et al.*, *J. Chem. Phys.* **154**, 114114 (2021).

[2] S. Maeda, K. Ohno, and K. Morokuma, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **15**, 3683-3701 (2013).

[3] G. Petri, M. Scolamiero, I. Doncato, and F. Vaccarino, *PLOS ONE* **8**, e66506 (2013)

[4] B. Murayama *et al.*, *J. Chem. Theory Comput.*, **19**, 5007-5023(2023)