

深層学習に基づく波動関数・電子構造の記述子表現と転移学習への応用

(産業技術総合研究所¹) 椿 真史¹

Descriptor representation for quantum chemistry with deep learning (¹*National Institute of Advanced Industrial Science and Technology*) Masashi Tsubaki¹

Deep neural networks (DNNs) have been used to successfully predict molecular properties calculated based on the Kohn--Sham density functional theory (KS-DFT). Although this prediction is fast and accurate, we believe that a DNN model for KS-DFT must not only predict the properties but also provide the electron density of a molecule. This letter presents the quantum deep field (QDF), which provides the electron density with an unsupervised but end-to-end physics-informed modeling by learning the atomization energy on a large-scale dataset. QDF performed well at atomization energy prediction, generated valid electron density, and demonstrated extrapolation. Furthermore, we provide another aspect of QDF, not as a machine learning model for predicting a molecular property; we assume that the final layer of the pre-trained QDF model encodes the fundamental quantum-chemical characteristics (i.e., wave function) of a molecule learned from a large number of molecules.

Keywords : *Machine Learning, Density Functional Theory, Materials Informatics*

材料開発には、量子化学シミュレーションを用いた物性計算が必要不可欠であるが、膨大な計算コストがかかるという問題がある。この問題を解決するために近年、機械学習・深層学習が物性予測に用いられるようになってきている。

本発表ではまず、化合物の分子構造（原子配置）のみから原子化エネルギーを学習する過程において、深層モデル内部の計算が密度汎関数理論に基づくことで電子構造を獲得する、自己無撞着学習モデル Quantum Deep Field (QDF)¹を紹介する。QDFはまず、原子軌道（基底関数）の線形結合、すなわち LCAO で分子（コーン・シャム）軌道を初期化する。そして、その分子軌道を入力としたニューラルネットワークを用いてエネルギーを学習する。さらに、分子軌道から得られる電子密度とポテンシャルとの対応を、もう一つのニューラルネットワークを用いて学習する。

QDF を化合物とその物性に関する大規模データベースである QM9 を用いて学習し、物性の外挿予測性能を評価した。理論計算は実験値を 1~2kcal/mol の誤差で予測できる一方で、QDF は理論計算値を外挿含めて 1~3kcal/mol の誤差で予測できた。つまり、実験値を 2~5kcal/mol の誤差で予測できたことになる。

本発表では加えて、QDF は単なるエネルギーの学習・予測に用いられるだけではなく、分子に対する汎用的な記述子を提供できること示し、簡単な転移学習の応用例を紹介する。外挿に加えて転移学習への有効性を示すことで、QDF が大規模データから波動関数や電子構造という分子の普遍的な特徴を学習できていることを示す。

1, Quantum deep field: data-driven wave function, electron density generation, and energy prediction and extrapolation with machine learning, Masashi Tsubaki and Teruyasu Mizoguchi, Physical Review Letters, 2020.