

## 機械学習を用いた結合形成に伴う状態密度変化の予測

### Prediction of Change of DOS Associated with Bond Formation using Machine Learning

東京大学工学系研究科 生産技術研究所, <sup>○</sup>(M2) 鈴木 観輝, 柴田 基洋, 溝口 照康

Institute of Industrial Science, Faculty of Engineering, The Univ. of Tokyo,

<sup>○</sup>Eiki Suzuki, Kiyou Shibata, Teruyasu Mizoguchi

#### [背景]

状態密度 (DOS) は物質の電子構造を表し、原子同士の化学結合状態や物性を理解する上で大変重要である。例えば、電気特性や光学特性はバンドギャップに依存し、触媒活性は DOS の d-band 中心位置と相関がある<sup>[1]</sup>。一般的に DOS は第一原理計算を用いて計算され電子構造解析に利用されるが、特に大きな物質系では計算コストが高いという問題がある。そこで近年では第一原理計算を機械学習の手法によって代替する研究が報告されている<sup>[2]</sup>。一方で、結合形成は物質の基礎的な現象ながら、それに伴う電子状態や DOS 形状の変化は準位の分裂やシフトを含み複雑である。

そこで本研究では、機械学習の手法により未知の分子の結合や吸着に伴う DOS 形状の変化の予測を試みた。結合前の孤立系の DOS を用いて結合後の DOS の予測を行い、結合距離の変化に対する DOS 形状の変化を予測することに成功した。

#### [方法]

まず、第一原理計算により H-Kr の原子で構成された孤立単原子・二原子分子・1原子が吸着したグラフェン及びエチレンについて様々な結合距離における DOS データベースの作成を行った。次にニューラルネットワークモデルを構築し、各データベースについて DOS 形状の予測を行った。

DOS データベースの構築は VASP コード<sup>[3]</sup>を使用した PAW 法による第一原理計算で行った。カットオフエネルギーは 500eV、交換相関ポテンシャルは GGA-PBE を用いた。セミコア軌道は価電子軌道として扱った。なお、計算はすべてスピン分極と、SCAN+rVV10 法<sup>[4]</sup>による van der Waals 力を考慮した。二原子分子、吸着グラフェン、吸着エチレンについてそれぞれ 14750, 5694, 2670 組のデータセットを作成した。

DOS 形状の予測には順伝播型ニューラルネットワークを用いた。孤立原子や孤立吸着原子の DOS および結合距離 (及びグラフェンでは吸着サイトを表すベクトル) を入力データ、それらの結合・吸着後の DOS を出力データとした。また、吸着グラフェンと吸着エチレンには対応する二原子分子の DOS も入力データに加えた。入出力に用いた DOS は規格化し、1500 次元のベクトルとした。データセットは訓練データに含まれる組み合わせの化学種はテストデータには含まないように 8:2 の割合で分割した。損失関数は平均二乗誤差を用いた。

#### [結果]

テストデータの予測において計算された DOS 形状と良い一致が見られ、結合距離に対する DOS 形状の変化が再現できた。例えば、O<sub>2</sub> 分子では 1.2Å の最安定結合距離において約 -14eV に位置するピークが結合距離の増加に伴って -10eV にシフトし、ダブルピークとなる様子が再現されている。一方で、吸着グラフェン及び吸着エチレンについては、対応する二原子分子の DOS も入力データに加えた場合のみ予測が成功した。詳細を当日に発表する。

#### [参照文献]

- [1] B. Hammer and J.K.Nørskov, Adv. Catal. **45**, 71 (2000).
- [2] A. Chandrasekaran *et al.*, npj Comput. Mater. **5**, 22 (2019).
- [3] G. Kresse and J. Furthmüller, Comput. Mater. Sci. **6**, 15 (1996).
- [4] H. Peng *et al.*, Phys. Rev. X **6**, 041005 (2016).