

有機分子におけるスペクトル—物性相関

Spectrum-properties relationships of organic molecules

東大院工¹, 東工大 IIR², 東大生研³ ◯(M2) 菊政 翔¹, (P) 清原 慎², 柴田 基洋^{1,3}, 溝口 照康^{1,3}

Grad. Sch. of Eng., Univ. of Tokyo¹, IIR, Tokyo Tech.², IIS, Univ. of Tokyo³

◯Kakeru Kikumasa¹, Shin Kiyohara², Kiyoh Shibata^{1,3}, Teruyasu Mizoguchi^{1,3}

E-mail: kkiku@iis.u-tokyo.ac.jp

1. 緒言

電子エネルギー損失分光 (EELS) 及び X 線吸収分光 (XAS) は触媒や電池材料などの分析に広く利用されている分析手法である。これらの吸収端近傍微細構造は特に ELNES, XANES と称され、内殻から伝導帯への電子遷移に対応している。ELNES/XANES のスペクトル形状は非占有軌道の部分状態密度を反映し豊富な情報を含んでいるため、局所領域の配位や結合状態を解析することが可能である。

このように ELNES/XANES は強力な解析手法であるが、これらのスペクトルの形状は、多様な電子状態を反映し複雑に変化するため、スペクトルから物性に関する情報を抽出するのは困難である。加えて近年では、高い時間・空間分解能で一度に大量のスペクトルが取得可能になっているため、スペクトル解析の自動化、効率化が望まれている。

このような背景から、スペクトルデータに機械学習を適用し、高速に構造や物性の情報を抽出する「データ駆動型」の解析手法^[1] が提案されている。しかし、多様な形状を示し、有機機能性材料の解析に不可欠な炭素 K 端スペクトルへの機械学習の適用は不十分である。そこで本研究では、有機分子の炭素 K 端スペクトルに、機械学習の一種であるニューラルネットワークを適用し、物性値の定量的な予測を試みた。

2. 研究手法

QM9 データセット^[2,3]の有機分子から 7,941

分子の構造データを抽出し、炭素 K 端スペクトルの計算を行った。等価でないすべての炭素サイトについてスペクトル計算を行い合計で 38,442 個のスペクトルを得た。計算には第一原理擬ポテンシャル法の CASTEP コード^[4]を用い、交換相関汎関数は GGA とした。得られたスペクトルは、24 eV の範囲を 0.1 eV ステップで区切り 240 次元のデータとした。このスペクトルデータと、各スペクトルに対応する分子に関する物性値を用い、スペクトルを入力し物性を出力するように順伝播型ニューラルネットワークを訓練した。訓練用のデータを用いて交差検証によりパラメータを最適化し、テスト用のデータで学習器の予測精度を評価した。

3. 結果と考察

ニューラルネットワークを用いて、炭素 K 端スペクトルから HOMO-LUMO ギャップなどの物性を高精度に予測することに成功し、スペクトル形状に物性の情報が豊富に含まれていることが確認された。一方、予測が低い精度にとどまった物性も存在したが、分子の組成の情報を入力データとして追加し予測を行うことで、精度の改善に成功した。詳細な考察は当日発表する。

参考文献

[1] S. Kiyohara *et al.*, *J. Phys. Mater.*, **2** (2019), 024003, [2] L. Ruddigkeit *et al.*, *J. Chem. Inf. Model.*, **52** (2012), 2864-2875, [3] R. Ramakrishnan *et al.*, *Scientific Data*, **1** (2012), 140022, [4] M. D. Segall *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter*, **24** (2002) 2717.