

Title	データ駆動型高分子材料研究における統計的機械学習 と分子シミュレーションの融合
Author(s)	南條,舜
Citation	サイバーメディアHPCジャーナル. 2024, 14, p. 85- 88
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/96532
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

データ駆動型高分子材料研究における統計的機械学習と

分子シミュレーションの融合

南條 舜

総合研究大学院大学 複合科学研究科

1. はじめに

材料設計のパラメータ空間は広大である。マテ リアルズインフォマティクス (Materials Informatics: MI)の目的は、材料データとデータ 科学の先進技術を活用し、広大な探索空間から革 新的特性を持つ新材料を発見することである。

データ駆動型材料研究における最も大きな壁 は、体系的且つ包括的なデータの不足である。特 に、高分子材料のデータ資源の乏しさは際立って いる。現在の高分子物性データベースはいずれも データの量が非常に少なく、たとえば既存のデー タベース PoLyInfo[1]に物性値が公開されている ホモポリマーの数は 18,000 程度である。その中 で、同一の実験条件で測定された特定の物性値の データに限定した場合、わずか 100 データにも満 たない例も存在する[2]。

また、我々が目指す"革新的な材料"の周辺に はそもそもデータが存在しない。したがって、限 られたデータの壁を乗り越えるデータ科学の方 法論が MI の基本問題の解決につながる。

機械学習のモデルは一般的に内挿的であり、デ ータの存在しない領域の予測性能が大きく低下 する。一方、物理法則に基づく分子シミュレーシ ョンは、未踏領域の材料特性をある程度予測でき ることが期待される。そこで、データの不足を補 う手段の一つとして、材料研究では機械学習と分 子シミュレーションの融合が重要な役割を担う と考えられる。

本研究では高分子材料に目標を定め、データ駆 動型材料研究における機械学習と分子シミュレ ーションの融合技術を創出し、高分子科学の研究 者らと共同で概念実証を行うことを目指した。

2. 手法

はじめに、ベイズ最適化[3]・能動学習[4]等の 適応的実験計画法を用いて機械学習と分子シミ ュレーションによる計算機実験を系統的に循環 させるワークフローを実装した。図1に示すよ うに、現在観測済みの分子シミュレーション結 果を訓練データとしてサロゲートモデルを訓練 し、獲得関数に基づき次に分子シミュレーショ ンを行う候補を選定する。そして、選定された 候補の分子シミュレーションを実施し、結果を 訓練データに追加する、というサイクルを繰り 返す。



図1:適応的実験計画法と 分子シミュレーションの融合ワークフロー

本ワークフローにより、現時点でデータが存 在しない外挿領域に分子シミュレーションの新 しいデータを作り出す。そして、このデータを 含めてモデルを訓練することで外挿的予測性能 を獲得し、モデルの適応範囲が徐々に拡大する ことが期待される。

関連する研究として、低分子化合物や単結晶 においては第一原理計算と機械学習を融合した 物質探索の方法論やソフトウェアが既に確立さ れている[5-6]。しかしながら、高分子材料系で は分子シミュレーションによる物性評価の自動 化・高速化が技術的な障壁となり、研究が進ん でいない。そこで、近年公開された高分子物性 計算の全自動化ライブラリ RadonPy[7]を組み合 わせることにより問題解決を図った。RadonPy は全原子古典分子動力学(Molecular Dynamics: MD) シミュレーションによる高分子物性計算を 全自動化するオープンソースソフトウェアであ り、高分子の繰り返し単位を構成する分子構 造、重合度、温度等の計算条件を入力とし、熱 物性や光学特性などの17種類の物性を自動計算 するアルゴリズムが実装されている。そこで、 図1のワークフローをスーパーコンピュータ SQUID 上で実装することにより、物性計算の自 動化・高速化が可能となり、前述の技術的な壁 を打ち破ることができた。

3. 実験

実装したワークフローの性能評価の一例とし て、光学用高分子の探索を実施した。光学用高 分子はメガネやカメラレンズ等の様々な製品に 用いられる材料であり、その主な要求特性は高 屈折率・高アッベ数である。しかしながら、両 物性の間には経験的な限界線が知られており、 限界線を越える高分子はほとんど存在しないこ とが知られている[8]。ここで、RadonPyを用い た屈折率・アッベ数の分子シミュレーション結 果が文献値を良く再現できることを事前に確認 できたので、実装したワークフローを用いたプ ール型のベイズ最適化を実施することにより、 経験的な限界線を越える高分子の発掘を目指し た。

本実験では、サロゲートモデルに通常のガウ ス過程回帰モデルを使用し、モデルの訓練に用 いる入力xは物性計算(分子シミュレーショ ン)のパラメータをカーネル平均埋め込み[9]に より固定長化した170次元のベクトルを使用し た。また、仮想高分子のプールについては確率 的言語モデルにより生成された仮想高分子1万 構造を用いた。さらに、獲得関数については期 待超体積改善量[10]を用いた。期待超体積改善 量は、予測分布からのサンプルが与えられた際 のパレート超体積増加量の期待値であり、本実 験のように目的変数が二変数の場合は式(1)から 解析的に計算可能である。

$$A(x) = \iint \Delta \text{HVI} \cdot p(y_1|x) \cdot p(y_2|x) dy_2 dy_1 \quad (1)$$

なお、ベイズ最適化の一回のサイクルにつき、 獲得関数の上位 10 個の高分子の分子シミュレー ションを実施した。

4. 結果

図2に実装したワークフローを用いて収集さ れた高分子の屈折率およびアッベ数の分子シミ ュレーション結果の推移を示す。ベイズ最適化 のサイクルを繰り返すにつれて、経験的な限界 線を越える高分子の数が徐々に増える様子を確 認できた。ここで、経験的な限界線を越える高 分子の構造パターンを解析した結果、約4割が 部分構造に硫黄原子を含むことが明らかとなっ た。さらに、その中でスルホニル基(-SO₂-)を 含む構造が複数確認された。過去の合成実験の 知見[11-12]によるとスルホニル基の分子屈折と 分子分散の比が大きいことから、高分子の部分 構造にスルホニル基を導入することにより屈折 率とアッベ数をともに向上できることが実証さ れている。そのため、今回の実験で発掘された スルホニル基を有する高分子を実際に合成した 場合においても、経験的な限界線を越えること が期待される。以上、材料科学の事前知識を活 用しないデータ駆動型手法により、実験結果が ほとんど存在しない領域に存在する高分子の候 補を発掘することができた。



図2:ベイズ最適化のサイクルをN回繰り返す ことにより収集された高分子の分子シミュレー ション結果。上段はN=5、中段はN=10、下段は N=20の場合を表す。点線は文献[8]に記載され た屈折率とアッベ数の経験的な限界線を表す。

5. おわりに

本研究では、データ駆動型高分子材料研究に おける問題点を解決するための一つの方法とし て、機械学習と分子シミュレーションの融合ワ ークフローを実装した。今回の報告では屈折率 とアッベ数を対象とした計算機実験結果に焦点 を絞ったが、RadonPyを用いて計算可能な17物 性、もしくはRadonPyの計算結果から転移可能 な物性であれば適用できるため、本研究の学術 的価値としては汎用性が高いことが考えられ る。

今後は高分子科学の研究者らと協同し、今回 の実験において発掘された高分子、もしくはそ の類似高分子が現実世界においても経験的な限 界線を越えることを実証したいと考えている。

参考文献

- S. Othuka, et al., International Conference on Emerging Intelligent Data and Web Technologies., 22-29, (2011).
- W. Stephen, et al., Npj Computational Materials., 5, 66, (2019).
- (3) E. Brochu, et al., arXiv preprint arXiv:1012.2599 (2010).
- (4) DA. Cohn, et al., Journal of artificial intelligence research, 4, 129-145 (1996).
- (5) S. Ju, et al., Physical Review X, 7, 021024 (2017).
- (6) G. Agarwal, et al., Chemistry of Materials, 33, 8133-8144, (2021).
- (7) Y. Hayashi, et al., Npj Computational Materials., 8, 222, (2022).
- (8) S. Ando, et al., Japanese journal of optics, 44, 298-303, (2015).
- (9) K. Muandet, et al., Foundations and Trends[®] in Machine Learning, **10**, 1-141 (2017).
- (10) K. Yang, et al., Journal of Global Optimization, 75, 3-34 (2019).
- (11) R. Okutsu, et al., Macromolecules, 41, 6165-

6168 (2008).

(12) Y. Suzuki, et al., Macromolecules, 45, 3402-3408 (2012).