

機械学習による物性理論の補強—機械学習交換相関汎関数の構築

物性研究所 杉野研究室 永井 瞭

人の手では複雑過ぎて構築できないような複雑なデータ間の関係性に対し、大量のパラメータをもった学習モデルを用意し、機械の力で関係性を再現するようにパラメータ最適化を行うという、コンピュータの計算能力を活かした力技のような技術を機械学習という。この力技は様々な場合において非常に高い予測性能を示すことが示されたため、現在機械学習に関連した研究は非常に盛んに行われている。物性研究においても機械学習の技術を取り入れる動きは活発であり、学習させるべきデータを実験などで蓄積し、それを用いて多数の物質の中から有力な物性をもつ物質を探り当てる、などといった方法で応用が試みられている。

我々もこの流行りに乗り、機械学習を物性の第一原理計算手法の改善に応用する研究を行っている。一般の機械学習の応用では観測などによって蓄積されたデータを用いるが、本研究は訓練データを手元で生成する。しかし、このデータ生成に必要な理論は計算量が非常に大きく、実際にデータを生成できるのは小さい物質に限られる。そこで、データ生成に必要な理論を、機械学習モデルを組み込んだ計算量の低い理論に代替させることで、より広範な物質に対してデータを得られるようにする、というのが研究の大枠である。

電子状態の第一原理計算で扱っている問題は、結局3次元連続空間における量子多体問題であり、極論を言えば量子力学の教科書に必ず載っている Schrödinger 方程式から解を得ることができる。

$$H = \sum_n \left[-\frac{\nabla_n^2}{2} + V_{\text{ion}}(\mathbf{r}_n) \right] + \frac{1}{2} \sum_{m \neq n} \frac{1}{|\mathbf{r}_m - \mathbf{r}_n|} \quad (1)$$

$$H\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots) = E\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots) \quad (2)$$

しかし、Schrödinger 方程式の計算量は粒子数に対して指数オーダーで増加するため、小さい系でしか厳密に解くことができない。そこで、計算量を落として基底状態の情報を得られる次の Kohn-Sham 方程式が開発された[1]。

$$H_{\text{KS}} = -\frac{\nabla^2}{2} + V_{\text{ion}}(\mathbf{r}) + \int d\mathbf{r}' \frac{n(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + V_{\text{xc}}([n]; \mathbf{r}) \quad (3)$$

$$H_{\text{KS}}\varphi_i(\mathbf{r}) = \varepsilon_i\varphi_i(\mathbf{r}), \quad n(\mathbf{r}) = \sum_i \theta(\mu - \varepsilon_i)|\varphi_i(\mathbf{r})|^2 \quad (4)$$

この方程式は粒子数に対して多項式時間で解くことができる。ただし、計算量を圧縮した代償として式(3)には V_{xc} という項が生じる。この項は(交換相関)汎関数と呼ばれ、電子密度の汎関数であるが、非常に複雑な形をしており厳密には書き下すことができない(もし厳密に書き下すことができるとすれば、それは Schrödinger 方程式の基底状態に対する厳密解に相当する)。実用計算ではこの項を近似して用いるが、精度が不十分であったり、近似の方法によって精度良く記述できる物質が限られるなどの問題がある。高精度かつ汎用性の高い汎関数の開発は物性理論において重要な使命である。

汎関数の厳密形は書き下せないが、ある系において先程の厳密な Schrödinger 方程式を解くことができれば、Kohn-Sham 方程式と照合することでその系における汎関数を数値的に知ることができる。そこで、いくつかの厳密解を解くことができるほど小さい系に対して電子密度分布と汎関数の値を求め、その間の写像を機械学習モデルで訓練し、その写像が訓練外の物質にも汎関数として実用的な精度で利用することができれば役に立つのではないかと考え、本研究が行われた。

実際に構築すべき写像は、電子密度から各地点の交換相関エネルギー密度という量である。

$$n(\mathbf{r}) \rightarrow \varepsilon_{\text{xc}}([n]; \mathbf{r}) \quad (5)$$

これは特徴量・予測量のどちらも空間上で連続的に定義される量であり、機械学習するには工夫が必要である。我々はまず1次元のモデル系上で空間をグリッドに区切り、連続量を離散化されたベクトルとして扱った上で、ニューラルネットワークにこれらのベクトル間関係を学習させた[2]。結果として、構築された写像を Kohn-Sham 方程式(1)に代入し数学的操作を行っても十分な精度で取り扱いができることを示した。

その後、この手法を実際の物質に適用した[3]。水やアンモニアなどのいくつかの小分子に対し高精度な波動関数法で厳密な電子状態を求めることにより訓練データを生成し、それを分子の周りのグリッド上でベクトルデータとして扱い、汎関数を機械学習させ、訓練外の数百の分子系に適用して精度検証を行った。少数分子のデータしか用いて

