

令和 4 年 6 月 6 日現在

機関番号：17401

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2021

課題番号：19K14676

研究課題名（和文）ニューラルネットワークを利用した高速な第一原理分子動力学法の生命起源研究への適用

研究課題名（英文）Application of Neural Network Driven Molecular Dynamics with First-Principles Accuracy to Origin of Life

研究代表者

島村 孝平（Shimamura, Kohei）

熊本大学・大学院先端科学研究部（理）・助教

研究者番号：60772647

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、深海熱水噴出孔環境のような極めて非平衡性の高い系に対しても、そこで起こる化学反応を微視的視点から調査できるよう、機械学習に基づいた力場構築方法の精錬を行った。非平衡性の高い系における化学反応の記述にはまだ改善の余地があるものの、役立つ多くの構築方法の知見を得た。原子に働く力及び圧力も学習することで分子動力学計算の精度を上げ、固液相転移の記述だけでなく、熱伝導度計算にも役立った。コスト関数の係数調整を行うことでさらに頑健な力場を構築できることも明らかにした。力場の原子エネルギーに潜む任意性に伴う力場の精度低下の可能性を示唆し、データ駆動的アプローチでの解決法を提案するに至った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

機械学習に基づく力場は低計算コストながら第一原理計算の精度を有するため、空間・時間スケールの観点でこれまで手が届かなかった領域へ我々を導く潜在力があり、物性分野においてフロンティアを開拓しつつある。それゆえ、潜在力をより物理的かつ実用的なレベルに押し上げるために、深海熱水噴出孔環境などの難易度の高い計算対象に取り組むことで、本研究では様々な重要な構築方法の要素を世に示せたと考えている。非平衡性の高い系に対するアプローチを完全に確立できたわけではないが、原子エネルギーという新たな視点から精度向上が期待できる手法を考案するなど、今後この分野に貢献する可能性のある成果も得られている。

研究成果の概要（英文）：In this study, we refined a machine learning-based force field construction method to investigate chemical reactions in highly nonequilibrium systems such as deep-sea hydrothermal vent environments from a microscopic viewpoint. Although there is still room for improvement in describing chemical reactions in highly nonequilibrium systems, we have gained fruitful knowledge of useful construction methods. The atomic forces and pressure in addition to potential energy were trained to improve the accuracy of molecular dynamics simulations. The trained force fields accomplished not only describing solid-liquid phase transitions but also calculating thermal conductivity. It was also found that a more robust force field can be constructed by adjusting the coefficient of the cost function. We have suggested the worsening accuracy of the force field due to the arbitrariness of the atomic energy, and have proposed a possible solution to the issue with a data-driven approach.

研究分野：計算物性物理学

キーワード：機械学習力場（原子間ポテンシャル） 人工ニューラルネットワーク 分子動力学法 第一原理分子動力学法 生命の起源

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

深海熱水噴出孔（以下熱水孔）環境を舞台とする生命の起源仮説は、多くの実験と理論的考察により多角的な視点から検証されており、生命誕生の場として妥当性を持つ。特に、古代海底におけるアルカリ性熱水孔環境は一定の流量で電子源となる  $H_2$  等を噴出しており、硫化鉄などの析出鉱物の表面で海中の炭素源・窒素源を材料に、持続的な化学反応を生じさせることが可能である（図1）。また、温度勾配及び pH 勾配が生じており、高水圧下にあることから、平衡から極めて遠い環境にある。豊富な前駆体分子・反応の持続性・散逸構造等の要素から、この場は原初生命を発現させる役割を担ったと考えられている[1]。

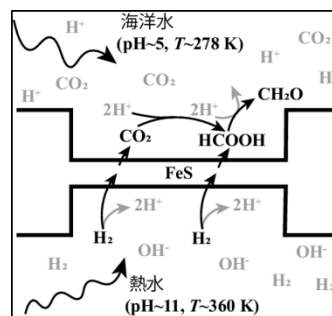


図1. 古代海洋におけるアルカリ性深海熱水噴出孔環境 [1]。

このような強い非平衡性を有する環境下で起こる化学反応を原子レベルで追跡することは、生命の起源を探求する上で重要である。実験・理論の両面において実現が極めて難しいテーマであるものの、我々は計算機上で原子一つ一つを運動させることで化学反応を追跡する第一原理分子動力学 (first-principles molecular dynamics; FPMD) 法ならば可能性があると考えた。しかし、FPMD 法は、密度汎関数法による第一原理計算の部分での計算コストが原子数  $N$  に対して  $O(N^3)$  と非常に大きい。それ故に適用が少ない原子数の系に限られ、系の大規模化や長時間計算が困難といった問題を抱える。一方で、FPMD の計算データを機械学習させた力場（機械学習力場）を構築し、機械学習力場を用いることで高精度かつ計算コストを  $O(N)$  に抑える MD 法が活用され始めていた。本手法は潜在性があるものの、（後述するように）MD 計算に必要な精度が担保されていないなどの問題があり黎明期の段階と言えた。だが、人工ニューラルネットワーク (ANN) のように任意の関数を近似できる万能近似能力を有しており、学習させるデータ（教師データ）さえあればさらに精度の改善が見込める。FPMD 法に準ずる精度の高さと長時間かつ大規模な計算が出来る力場構築法及びそれを用いた MD 計算法が提案できるかに本研究は焦点を当てた。

### 2. 研究の目的

本研究では、アルカリ性熱水孔環境を模擬するため高精度でかつ長時間の分子動力学シミュレーションの手法開発及びその適用が目的である。手法として我々は ANN を用いた機械学習力場を作り (ANN 力場) [2]、MD 計算を行う。ANN 力場を使った MD 計算の精度は不十分である可能性が高かった。第一原理計算のポテンシャルエネルギー  $E$  のみを機械学習させることが主流であり、MD 計算に必須な原子に働く力  $F$  が考慮されていなかったためである。局所量である  $F$  の精度を欠くと、MD 計算中に未学習構造に直面した際に、物理化学的に誤った原子時間発展を招く恐れがある。このような問題を解決するため、これまでの FPMD 法の計算コードの開発及び新規手法の開発経験を基に、FPMD 計算結果を蓄えた豊富なデータベースと、先行研究における有用な手法を駆使して、ANN 力場と FPMD 法のそれぞれの長所を組み合わせた枠組みを提案し、アルカリ性熱水孔環境に適用できる ANN 力場の開発に挑んだ。

### 3. 研究の方法

右の図2に示すように、ANN 力場の構築には、系の  $i$  原子の周囲構造を特徴づける記述子  $\sigma_i$  が必要となる。定義された複数の記述子  $\{\sigma_i\}$  を入力に、力場は対応する原子エネルギー  $\epsilon_i$  を出力するように構築される。系のすべての原子について  $\epsilon_i$  を足し合わせて、系のポテンシャルエネルギー  $E$  が得られる。近年提案された多元素系に適用可能な Chebyshev 多項式に基づく記述子[3]を採用し、生命系を構成する元素の多様さへの対応を測った。Chebyshev 記述子及び ANN 力場の構築にはオープンソースの Atomic Energy Network (AeNET) [2]を用いた。ほとんどの先行研究と同様に、AeNET でも ANN

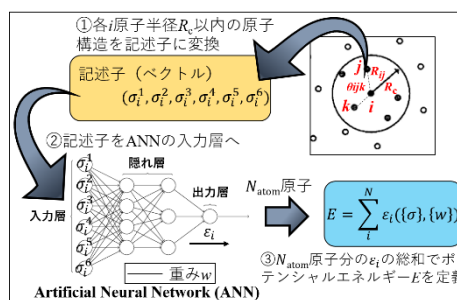


図2. ANN 力場のポテンシャルエネルギー  $E$  の計算過程

力場の学習過程で最小化されるコスト関数  $C$  は、 $E$  の項のみで構築されていた。我々は拡張を試み、AeNET のコスト関数に  $F$  の項などを新たに加えた（図3）。 $F$  は  $E$  の位置微分で与えられるように、コスト関数に含まれる物理量同士が微分積分の関係にある多目的学習の例はほとんど無かった。それ故、絶縁体（水など）、半導体（ $Ag_2Se$  など）、金属（ $Na$  など）を含む多様な物質に対して ANN 力場を構築し、有効性が確かめられた。コスト関数の各項は、含まれるデータサイズや単位も異なるので、学習のバランスをとるために調整パラメータ ( $p_E, p_F$  など) が導入されている。学習中におけるこれらパラメータの調整も重要である。ところで、ANN 力場を含めた機械学習力場は、未知の原子構造に対して必ずしも正しい予測をしない「移植性」の弱点を抱えている。そこで我々は Active Learning [4]も併用した。構築した ANN 力場を使って MD 計算を実行し、未学習の構造に直面した際に FPMD に切り替え、新たな教師データを生成し再学習を行う手法である。これを繰り返すことでより頑健な力場の構築を効率的に可能にする。未学習

の構造は ANN 力場の出力の誤差を定量化することで判定できる。

最終的に、アルカリ性熱水孔環境に対する ANN 力場構築及び MD 計算を行う。図 1 の熱水孔の環境を参考に作成された  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{H}_2\text{S}$ ,  $\text{FeS}$  から成る計算モデルに対し、ANN 力場を構築する。FeS を跨いで pH 勾配を持つ環境では、熱水と一緒に吹き出る  $\text{H}_2$  等が熱水孔側の FeS 表面上で解離し、生じた電子を海面側に供給すると考えられている。この供給が海面側における  $\text{CO}_2$  の還元を駆動する。pH 勾配を模擬するために、高 pH 側には  $\text{OH}^-$  を、低 pH 側には  $\text{H}_3\text{O}^+$  を加える。実際に FPMD 計算では FeS 表面上で  $\text{CO}_2$  が還元され、ギ酸  $\text{HCOOH}$  が生成する反応が見られており [5]、この反応の再現を ANN 力場で目指す。HCOOH やさらに還元されたホルムアルデヒド  $\text{CH}_2\text{O}$  などは非生物学的アミノ酸合成・核酸糖類の合成に必須である。

#### 4. 研究成果

##### 4-1. $E$ に加えて $F$ を学習した ANN 力場の構築と物理的かつ「稀な」教師データの必要性

コスト関数に  $F$  の項 (図 3) を追加することは、 $E$  を位置及び重みパラメータでそれぞれ 1 回ずつ偏微分した、つまり  $E$  の 2 階微分を計算することになる。(このため、ReLU を活性化関数に用いることができないことに留意すべきことである。) 大変煩雑な行列計算を含むため GPU 計算機で高速に処理したいところではあるが、データ入出力処理に難がある GPU には不得意な部分がある。FPMD 計算 1 step 当たりの  $E$  は 1 個である一方、その系に原子が  $N_{\text{atom}}$  含まれると、 $F$  は  $3N_{\text{atom}}$  個であり、ANN 力場の  $F$  (図 3 右下がその表式で、 $F^{\text{ANN}}$  と表記する) も同数である。 $F^{\text{ANN}}$  は学習中に何度も計算され、その計算量は膨大であり、記述子の数  $N_{\text{des}}$  と平均隣接原子数  $N_{\text{nei}}$  (図 2 の半径  $R_c$  内に含まれる原子数) が乗され、「 $3N_{\text{atom}} \times N_{\text{des}} \times N_{\text{nei}}$ 」にもなる。例えば我々のケースでは、 $E$  の学習のみだと 250 MB であったものが、 $E$  と  $F$  だと 100 GB 以上にもなる [6]。GPU を用いた場合にはメモリ管理が容易ではなく、仮にデータを書き出したとしてもデータ読み出しに時間がかかることに加えて大規模な容量のサーバを要することから、GPU 計算機の利点が阻害される。そこで AeNET は CPU 計算機で運用することを想定していたことから、CPU の細かな計算特性を生かして、学習中に再計算が可能な部分はデータとして保存せず、都度再計算するように実装を工夫した。こうすることで、上記の我々のケースでは教師データサイズを 250MB からほとんど増加させずに現実的な時間で学習を行えるようになった [6]。

しかしこのように  $F$  の学習を導入しても、特定の熱力学的条件下で得られた教師データのみで ANN 力場を学習した場合には、頑健なものの構築は難しいことが分かった。我々は超イオン伝導体である  $\alpha\text{-Ag}_2\text{Se}$  の FPMD 計算データを教師データとして ANN 力場を構築したものの、MD 計算の途中で唐突に特定の原子間の距離がゼロになり、原子構造の崩壊に至った。このような MD 計算の破綻は、教師データに「稀に起こりえるものの物理的に重要な現象」のデータが含まれていなかったことに起因する [6]。原子間距離が短くなることはエネルギーが高くなるために出現確率は低いはずであるが、このような状態の教師データが無いと原子間に働く斥力をうまく学習できないのである。そこで人為的に高密度にした系の教師データを加えたところ頑健な ANN 力場の構築に成功し、長時間の計算を必要とする比熱の計算が高精度に行えた。

上記の  $F$  の学習及び稀な教師データの生成方法は他の研究においても役立つ、いずれも大規模系を用いた水の誘電率計算 [7] やガラス・液体  $\text{GeSe}_2$  [8] の構造因子計算も成功している。また、PTO/STO 系の非断熱 FPMD 計算データを学習した ANN 力場で、大規模系における相転移について新たな見識を得ることに役立つ [9]。

$$C = \frac{p_E}{2} \sum_I \text{DATA Structures} \left( \sum_i^{N_{\text{atoms}}} \left( \varepsilon_i(\{\sigma\}, \{w\}) - E_i^{\text{FPMD}} \right)^2 \right) + \frac{p_F}{2} \sum_I \text{DATA Structures} \frac{1}{3N_{\text{atom}}} \sum_i^{N_{\text{atoms}}} \left( \vec{F}_{i,i}(\{\sigma\}, \{w\}) - \vec{F}_{i,i}^{\text{FPMD}} \right)^2$$

↑ 各原子位置で微分

$$+ \frac{p_P}{2} \sum_I \text{DATA Structures} \frac{Q_i^{\text{FPMD}}}{6} \sum_j^6 \left( P_{i,j}(\{\sigma\}, \{w\}) - P_{i,j}^{\text{FPMD}} \right)^2$$

↑ 各原子位置で微分

$$\vec{F}_{i,i} = - \sum_j^{N_{\text{atoms}}} \frac{\partial \varepsilon_j(\{\sigma\}, \{w\})}{\partial \vec{R}_{i,i}}$$

↑ ピリアル定理により得る

図 3. ANN 力場学習のためのコスト関数  $C$  の設計。従来は、右辺第 1 項のポテンシャルエネルギー  $E$  に関する項のみから構成されていた。本研究では、右辺第 2 項及び第 3 項の力  $F$  及び圧力  $P$  に関する項を追加した。 $p_E, p_F, p_P$  は各項の間の単位及びデータサイズの違いを埋めるために導入された調整係数である [14]。

##### 4-2. 圧力も学習することの重要性

$E$  と  $F$  の学習により、これらの物理量の精度は著しく改善されたけれども、MD 計算には圧力  $P$  の精度も要求される。しかし、 $E$  と  $F$  のみの学習では  $P$  の精度は必ずしも保証されないことが分かった [10]。本研究では高水圧下における化学反応の記述を目指していることから、この問題の解決は重要である。そこで、コスト関数に  $P$  の項も追加することを試みた (図 3)。ピリアル定理を介して得られる  $P$  も  $E$  の微分量であるが、 $F$  に関する計算結果を使い回すことができるため計算量やデータサイズの観点の問題はほぼ無い。我々の Na に対する FPMD データを用いた、固体/液体間の相転移を記述する ANN 力場開発の研究 [10] では、 $E$  と  $F$  のみの学習では、正確に FPMD の体積を再現できずに相転移現象の記述に失敗する一方で、 $P$  も学習することで成功した。この結果は相転移現象等の記述には  $P$  の学習が必須であることを物語っている。

$P$  の学習は、意外なことに熱伝導度計算の研究 [11-13] にも役立つ。(4.5 節でも述べるように)

Green-Kubo 公式に基づく熱伝導度計算法では、MD 計算からサンプリングされた熱流束に対してその自己相関関数を積分する。一般的に、熱伝導度に支配的に寄与する熱流束の成分は原子圧力と原子速度の積から構成される部分であることが知られている。故に熱流束と圧力は密接に関係しており、 $P$  も学習することによって熱伝導度の精度が向上する結果を得た。

$E$  と  $F$  に加えて、 $P$  も学習する先行研究は、実は非常に少ない。上記の我々の結果は、 $P$  の学習の必要性を訴えるものである。

#### 4.3. コスト関数の係数調整の重要性

$E$  に加えて  $F$  と  $P$  を追加したことで学習対象の物理量が増え、 $F$  と  $P$  は  $E$  の微分量であることも踏まえると通常の多目的学習よりも複雑なコスト関数を用いている (図 2)。また、各項に含まれる教師データ数は、 $F$  が圧倒的に多く、 $E$  と  $P$  は少ない。各項の間では単位も異なる。このようなコスト関数を偏りなく最小化させるため、先行研究[14]等では効率的な学習を目指して、各項に係数(図 2 の  $p_E, p_F, p_P$ )を導入して、この目的を達成しようとしてきた。しかしながら、この係数調整の重要性はほとんど強調されていない。調整後の係数の値のみが論文に掲載されるなど、調整前後の力場の精度比較が示されなかったため、論文の読者は重要性に気づくことが難しかった。我々は、 $\text{Rb}_{0.8}\text{Na}_{0.2}$  混合系の FPMD データを用いて、係数の調整前後で劇的に原子構造の再現度が変わることを示した[15]。全く機能しなかった  $p_E = p_F = p_P = 1.0$  の単純な係数設定による結果と比較し、係数の値と ANN 力場の学習誤差との相関を調べ、 $E, F, P$  のどれにも偏りの無い学習が行えた場合に精度の良い ANN 力場の構築を達成した。

#### 4.4. アルカリ性熱水孔環境の MD シミュレーション

図 1 の環境設定に基いて我々の先行研究[5]では、図 4 に示す  $\text{CO}_2, \text{H}_2\text{O}, \text{H}_2, \text{H}_2\text{S}, \text{FeS}$  (pyrite 構造) から成る系で 330 K の温度下の FPMD 計算を行った。この系には、 $\text{FeS}$  を跨いで 2 つの領域 (低 pH 領域、高 pH 領域と呼ぶ) が存在している。図 4 の上部の領域は古代海水中を想定しており、低 pH を表すため  $\text{H}_3\text{O}^+$  を導入している。一方、下部は熱水孔側を模しており、高 pH であるため  $\text{OH}^-$  を含んでいる。FPMD 計算では、高 pH 領域側に存在する  $\text{H}_2$  が  $\text{FeS}$  表面で乖離することで、電子を低 pH 領域側の表面に吸着した  $\text{CO}_2$  に供給した。還元された  $\text{CO}_2$  は周りの  $\text{H}^+$  と結合を作り、 $\text{HCOO}^-$  の生成が最終的に確認された。本研究ではこの FPMD データを用いて上述した構築方法を反映させた ANN 力場を構築し、この化学反応過程の再現を試みた。5 種の元素を含むこの系の構造の多様性を考慮して、上述した Active Learning [4] も併用した。Active Learning については、すでに  $\text{Ag}_2\text{Se}$  を対象に実施しており[16]、より頑健な ANN 力場の構築に成功している。

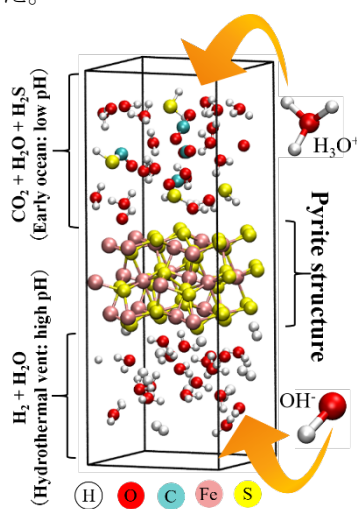


図 4. 計算モデル[5]。

しかし、安定的な MD 計算を行える力場の構築にはまだ改良の余地がある結果となった。Active Learning を行ったとしても、非物理的な現象が起こってしまった。MD 計算の途中で分子間に唐突に結合が作られてしまうなど、本来は高い活性化エネルギーの障壁を超えなければ起こらない化学反応が生じた。ANN 力場構築の観点から、要因は 3 つ考えられた。1 つ目は多様性のある教師データを生成できなかった可能性である。 $\text{FeS}$  の表面では、 $\text{H}_2\text{O}$  が吸着して 1 つの H 原子を放出する反応や、 $\text{H}_2$  が吸着して 2 つの H 原子に解離する反応など、様々な化学反応が起こりえる。多様な化学反応パターンに対して、教師データが不十分であった可能性が考えられる。ただこの問題は Active Learning で解決しうるものであり、Active Learning の出力誤差を定量化する指標の改善を試みることで解決できる可能性はある。

2 つ目は、教師データに偏りが生じていた可能性である。これは  $E, F, P$  間の偏りではなく、分子ごとのデータの偏りである。例えば、 $\text{H}_3\text{O}^+$  及び  $\text{OH}^-$  に対する教師データは  $\text{H}_2\text{O}$  のデータに比べて少ないだろう。従って、多数派の水分子  $\text{H}_2\text{O}$  の状態に関してはしっかりと学習が行われたものの、少数派である  $\text{H}_3\text{O}^+$  と  $\text{OH}^-$  のイオン状態の学習がおろそかになった可能性がある。このようなデータ不均衡問題は、少数派の原子集団に対して重点的に教師データを集める必要があるため、既存の Active Learning では解決が困難である。何故なら、多数派の原子集団のデータも同様に集めてしまう恐れがあるためである。だが、重要な原子集団を同定できたのであれば、帰納バイアスとして利用できるだろう。例えば、多数派の原子集団の配置を固定して、少数派の原子集団のみを可動にし、少数派の多様な教師データのみを得るなど工夫が考えられる。

3 つ目は、記述子である。図 2 に示したように、各原子周りの構造の情報を ANN に入力できるように記述子  $\sigma$  に変換するわけであるが、記述性が悪いと力場は構造の違いを判別できずに精度悪化につながる。距離関数と角度関数の完全系を用いて緻密に記述を構築する試みがあり[17]。また、最近是对称性、すなわち並進、回転、反転対称性の観点から記述子を構築し直す試みもあり、高精度を達成している [18]。記述性を向上させるために、このような関数の完全性や対称性の考慮が、本研究のような多様な分子から構成される系 (図 4) の記述には必要になるかもしれない。強い非平衡系を完全に記述する ANN 力場の構築は次の課題であるものの、以上の 3 つの要因は、次の段階に力場を進ませる方針を与える。

#### 4-5. ANN 力場の原子エネルギーの定義に関する問題とその解決策

4.4 節で述べた要因の他に、ANN 力場だけでなく機械学習力場一般に対して別の観点から弱点となる要因が考えられたため最後に言及する。力場の原子エネルギーに潜む任意性が力場の精度低下につながると考えるもので、データ駆動的アプローチでの解決が考えられる。上述のように、 $E, F, P$  と MD 計算に必要な物理量を ANN 力場に学習させるように改善が図られてきた。しかし、これらの物理量はすべて「系の全原子の持つ部分量の合計量」で与えられることに留意すべきである。例えば、2 原子  $i$  と  $j$  間に働く二体力  $F_{ij}$  がこの場合部分量であり、原子  $i$  と隣接する全ての原子  $j$  の間の  $F_{ij}$  の合計量  $\Sigma F_{ij}$  が原子  $i$  に働く力  $F_i$  である。FPMD 計算、つまり第一原理計算から教師データが生成されるため、オブザーバブルな物理量である「合計量」が教師データとなり得る一方で、「部分量」は一意には与えられず任意性を伴う。ANN 力場においては、合計量のみが FPMD 計算のそれらと一致するように学習が成されるが、部分量は例えば ANN の初期重みの違いなどによって都度変わりうる。部分量に対する学習上の制約が無いこのような状況では、特に局所的な精度を司る  $F$  に対して非物理的な力を発生させる恐れが生じ、MD 計算の破綻につながりかねない。また、一般的に原子間相互作用は多体性を有するが、計算コストの低減のため従来の力場構築は二体項から四体項までの表現に抑えられてきた。これは、本来の相互作用を無理に特定の関数系に押し付ける行為とも捉えられる。このようなことから、Root mean square error (RMSE) や Mean absolute error (MAE) などの合計量の精度指標で確認すると十分小さいために作られた力場が高精度であると判断してしまい、実は部分量は時として非物理的な量を取りえる状況が作られうると考えられる。これは Active Learning でも、「合計量」のみを学習対象に設定している限り、解決できない可能性がある。

解決策として、力場の関数系をより物理的なものにするのが考えられる。これは記述子の改善に対応しており、例えば先行研究[17,18]が行っているように関数の完全性や対称性の考慮が具体策である。しかし、それでも FPMD 計算法との計算方法の違いが生じているのは変わらず、非物理的な部分量の影響が相互作用にどのような形で現れるかは分からない。そこでもう一歩踏み込み、部分量の非物理性の程度を定量化する方法を模索した。ここでは熱伝導度の研究[11-13]が役立ち、熱流束  $\mathbf{J}$  という物理量が部分量から構成されており、この量自体が力場の非物理性の程度を反映していると考えられた。図 5 のように、図 3 のコスト関数  $C$  に熱流束の正則化項を付け足すと、学習により熱流束を小さくすることができる。実際この正則化により力場の頑健性を向上させる結果を得ており[19]、RMSE や MAE 等に加えて、熱流束は力場の精度を測る指標となりえる。このようなデータ駆動的なアプローチは、本研究で扱った極めて強い非平衡系に対する力場構築にも役立つ可能性がある。

$$C' = C + \frac{p_J}{2} \sum_I^{\text{DATA Structures}} \frac{1}{3N_{\text{atom}}} (\vec{J}_I(\{\sigma\}, \{w\}))^2$$

$$\vec{J} = \sum_i^{N_{\text{atoms}}} (t_i + \epsilon_i(\{\sigma\}, \{w\})) \vec{u}_i + \sum_i^{N_{\text{atoms}}} W_i(\{\sigma\}, \{w\}) \vec{u}_i$$

図 5. 図 3 のコスト関数  $C$  に、熱流束  $\mathbf{J}$  の正則化項が追加されたコスト関数  $C'$ 。熱流束  $\mathbf{J}$  は、原子運動エネルギー  $t_i$ 、ポテンシャルエネルギー  $\epsilon_i$ 、ビリアルテンソル  $W_i$ 、速度  $\mathbf{u}_i$  から構成される。なお、 $\sum_i^{N_{\text{atom}}} W_i$  を体積で割ったものは圧力テンソル  $\mathbf{P}$  に対応する。

#### <引用文献>

- [1] V. Sojo, *et al.*, *Astrobiology* **16** 181 (2016).
- [2] N. Artrith *et al.*, *Comput. Mater. Sci.* **114** 135 (2016).
- [3] N. Artrith, *et al.*, *Phys Rev B* **96** 014112 (2017).
- [4] L. Zhang, *et al.*, *Phys. Rev. Mater.* **3**, 023804 (2019).
- [5] Y. Muraki, *et al.*, Chem-Bio Informatics Society(CBI) Annual Meeting, Poster, P1-09, (2018).
- [6] K. Shimamura, *et al.*, *J. Chem. Phys.* **151**, 124303 (2019).
- [7] A. Krishnamoorthy, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **126**, 216403 (2021).
- [8] P. Rajak, *et al.*, *J. Chem. Phys. Lett.* **12**, 6020 (2021).
- [9] T. Linker, *et al.*, *Sci. Adv.* **8**, eabk2625 (2022).
- [10] A. Irie, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **90**, 094603 (2021).
- [11] K. Shimamura, *et al.*, *J. Chem. Phys.* **153**, 234301 (2020).
- [12] K. Shimamura, *et al.*, *Chem. Phys. Lett.* **778**, 138748 (2021).
- [13] Y. Takeshita, *et al.*, *J. Phys. Chem. Solids* **163**, 110580 (2022).
- [14] L. Zhang, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 143001 (2018).
- [15] A. Irie, *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 045002 (2022).
- [16] 竹下ら, 日本物理学会 2021 年秋季大会 21pPSL-13, Poster, (2021).
- [17] R. Drautz, *Phys. Rev. B* **99**, 014104 (2019).
- [18] S. Batzner, *et al.*, *Nat. Commun.* **13**, 2453 (2022).
- [19] K. Shimamura, *et al.*, 2022. *arXiv:2204.01405*.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 9件 / うち国際共著 4件 / うちオープンアクセス 1件）

|  |                        |
|--|------------------------|
| 1. 著者名<br>Kohei Shimamura  | 4. 巻<br>153            |
| 2. 論文標題<br>Computational and training requirements for interatomic potential based on artificial neural network for estimating low thermal conductivity of silver chalcogenides                    | 5. 発行年<br>2020年        |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Chemical Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>234301   |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1063/5.0027058   | 査読の有無<br>有             |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-              |
| 1. 著者名<br>K. Shimamura, S. Fukushima, A. Koura, F. Shimojo, M. Misawa, R. K. Kalia, A. Nakano, P. Vashishta, T. Matsubara, and S. Tanaka   | 4. 巻<br>151            |
| 2. 論文標題<br>Guidelines for Creating Artificial Neural Network Empirical Interatomic Potential from First-Principles Molecular Dynamics Data under Specific Conditions and Its Application to -Ag2Se | 5. 発行年<br>2019年        |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Chemical Physics  | 6. 最初と最後の頁<br>124303   |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1063/1.5116420   | 査読の有無<br>有             |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>該当する           |
| 1. 著者名<br>島村孝平, 下條冬樹, 田中成典   | 4. 巻<br>26             |
| 2. 論文標題<br>人工ニューラルネットワーク原子間相互作用ポテンシャルの分子動力学法への応用と課題  | 5. 発行年<br>2019年        |
| 3. 雑誌名<br>日本神経回路学会誌  | 6. 最初と最後の頁<br>145-155  |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.3902/jnns.26.145   | 査読の有無<br>無             |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-              |
| 1. 著者名<br>Linker Thomas, Nomura Ken-ichi, Aditya Anikeya, Fukushima Shogo, Kalia Rajiv K., Krishnamoorthy Aravind, Nakano Aiichiro, Rajak Pankaj, Shimamura Kohei, Shimojo Fuyuki, Vashishta Priya | 4. 巻<br>8              |
| 2. 論文標題<br>Exploring far-from-equilibrium ultrafast polarization control in ferroelectric oxides with excited-state neural network quantum molecular dynamics                                      | 5. 発行年<br>2022年        |
| 3. 雑誌名<br>Science Advances   | 6. 最初と最後の頁<br>eabk2625 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子）<br>10.1126/sciadv.abk2625  | 査読の有無<br>有             |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスとしている（また、その予定である）  | 国際共著<br>該当する           |

|   |                     |
|---|---------------------|
| 1. 著者名<br>Irie Ayu, Shimamura Kohei, Koura Akihide, Shimojo Fuyuki  | 4. 巻<br>91          |
| 2. 論文標題<br>Importance of Adjusting Coefficients in Cost Function for Construction of High-Accuracy Machine-Learning Interatomic Potential | 5. 発行年<br>2022年     |
| 3. 雑誌名<br>Journal of the Physical Society of Japan  | 6. 最初と最後の頁<br>45002 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.7566/JPSJ.91.045002  | 査読の有無<br>有          |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-           |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Takeshita Yusuke, Shimamura Kohei, Fukushima Shogo, Koura Akihide, Shimojo Fuyuki                                  | 4. 巻<br>163                   |
| 2. 論文標題<br>Thermal conductivity calculation based on Green-Kubo formula using ANN potential for $\alpha$ -Ag <sub>2</sub> Se | 5. 発行年<br>2022年               |
| 3. 雑誌名<br>Journal of Physics and Chemistry of Solids   | 6. 最初と最後の頁<br>110580 ~ 110580 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.jpccs.2022.110580  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-                     |

|  |                               |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Irie Ayu, Fukushima Shogo, Koura Akihide, Shimamura Kohei, Shimojo Fuyuki  | 4. 巻<br>90                    |
| 2. 論文標題<br>Reproduction of Melting and Crystallization of Sodium by Machine-Learning Interatomic Potential Based on Artificial Neural Networks | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Journal of the Physical Society of Japan   | 6. 最初と最後の頁<br>094603 ~ 094603 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.7566/jpsj.90.094603   | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難   | 国際共著<br>-                     |

|   |                           |
|---|---------------------------|
| 1. 著者名<br>Rajak Pankaj, Baradwaj Nitish, Nomura Ken-ichi, Krishnamoorthy Aravind, Rino Jose P., Shimamura Kohei, Fukushima Shogo, Shimojo Fuyuki, Kalia Rajiv, Nakano Aiichiro, Vashishta Priya | 4. 巻<br>12                |
| 2. 論文標題<br>Neural Network Quantum Molecular Dynamics, Intermediate Range Order in GeSe <sub>2</sub> , and Neutron Scattering Experiments  | 5. 発行年<br>2021年           |
| 3. 雑誌名<br>The Journal of Physical Chemistry Letters   | 6. 最初と最後の頁<br>6020 ~ 6028 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1021/acs.jpcllett.1c01272  | 査読の有無<br>有                |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>該当する              |

|   |                               |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名<br>Shimamura Kohei, Takeshita Yusuke, Fukushima Shogo, Koura Akihide, Shimojo Fuyuki                     | 4. 巻<br>778                   |
| 2. 論文標題<br>Estimating thermal conductivity of -Ag <sub>2</sub> Se using ANN potential with Chebyshev descriptor | 5. 発行年<br>2021年               |
| 3. 雑誌名<br>Chemical Physics Letters  | 6. 最初と最後の頁<br>138748 ~ 138748 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1016/j.cplett.2021.138748  | 査読の有無<br>有                    |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>-                     |

|   |                      |
|---|----------------------|
| 1. 著者名<br>Krishnamoorthy Aravind, Nomura Ken-ichi, Baradwaj Nitish, Shimamura Kohei, Rajak Pankaj, Mishra Ankit, Fukushima Shogo, Shimojo Fuyuki, Kalia Rajiv, Nakano Aiichiro, Vashishta Priya | 4. 巻<br>126          |
| 2. 論文標題<br>Dielectric Constant of Liquid Water Determined with Neural Network Quantum Molecular Dynamics  | 5. 発行年<br>2021年      |
| 3. 雑誌名<br>Physical Review Letters   | 6. 最初と最後の頁<br>216403 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子)<br>10.1103/PhysRevLett.126.216403  | 査読の有無<br>有           |
| オープンアクセス<br>オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難  | 国際共著<br>該当する         |

[学会発表] 計7件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件)

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>島村孝平, 竹下雄輔, 福島省吾, 高良明英, 下條冬樹                 |
| 2. 発表標題<br>熱伝導度計算に有効な人工ニューラルネットワークに基づく 原子間ポテンシャル構築方法の検討 |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会 2020年秋季大会                             |
| 4. 発表年<br>2020年   |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>島村孝平  |
| 2. 発表標題<br>計算機シミュレーションを用いた生命起源研究                       |
| 3. 学会等名<br>CBI学会2020オンライン大会 FS-02生命の起源: 化学反応と情報 (招待講演) |
| 4. 発表年<br>2020年  |



|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>島村孝平, 竹下雄輔, 福島省吾, 高良明英, 下條冬樹                   |
| 2. 発表標題<br>熱伝導度計算に有効な人工ニューラルネットワークに基づく 原子間ポテンシャル構築方法の検討II |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会 第76回年次大会(2021年)                         |
| 4. 発表年<br>2021年   |

|                                      |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名<br>島村孝平                      |
| 2. 発表標題<br>生命の起源問題に対する計算科学からの試み      |
| 3. 学会等名<br>研究会「計算生命科学～多体問題から生命システムへ」 |
| 4. 発表年<br>2019年                      |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>島村孝平                          |
| 2. 発表標題<br>夾雑系理解のための分子動力学手法の開発とその応用      |
| 3. 学会等名<br>新学術領域「分子夾雑の生命化学」第2回関西地区シンポジウム |
| 4. 発表年<br>2019年                          |

|  |
|--|
| 1. 発表者名<br>島村孝平, 竹下雄輔, 福島省吾, 高良明英, 下條冬樹                    |
| 2. 発表標題<br>熱伝導度計算に有効な人工ニューラルネットワークに基づく 原子間ポテンシャル構築方法の検討III |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会 2021年秋季大会                                |
| 4. 発表年<br>2021年  |

|   |
|---|
| 1. 発表者名<br>島村孝平, 竹下雄輔, 福島省吾, 高良明英, 下條冬樹                   |
| 2. 発表標題<br>熱伝導度計算に有効な人工ニューラルネットワークに基づく 原子間ポテンシャル構築方法の検討IV |
| 3. 学会等名<br>日本物理学会 第77回年次大会(2022年)                         |
| 4. 発表年<br>2022年   |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| 氏名<br>(ローマ字氏名)<br>(研究者番号) | 所属研究機関・部局・職<br>(機関番号) | 備考 |
|---------------------------|-----------------------|----|
|                           |                       |    |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関    |  |  |
|---------|------------|--|--|
| 米国      | 南カリフォルニア大学 |  |  |