

Academic Program [Oral B] | 02. Theoretical Chemistry, Chemoinformatics, and Computational Chemistry : Oral B

📅 Fri. Mar 28, 2025 10:00 AM - 11:20 AM JST | Fri. Mar 28, 2025 1:00 AM - 2:20 AM UTC 🏛️

[C]C302(C302, Bldg. 2, Area 2 [3F])

[[C]C302-3am2] 02. Theoretical Chemistry, Chemoinformatics, and Computational Chemistry

Chair: Kento Kasahara, Go Watanabe

🇯🇵 Japanese

10:00 AM - 10:20 AM JST | 1:00 AM - 1:20 AM UTC

[[C]C302-3am2-01]

Reaction pathway search on two-dimensional model potential by deep reinforcement learning

○Takechika Kikkawa¹, Shusuke Yamanaka¹, Takashi Kawakami¹, Mitsutaka Okumura¹ (1. Osaka University)

🇯🇵 Japanese

10:20 AM - 10:40 AM JST | 1:20 AM - 1:40 AM UTC

[[C]C302-3am2-02]

Insights into the acquisition of chemical knowledge using deep learning

○Teruhisa Sadakane¹, Daisuke Yokogawa¹ (1. The Univ. of Tokyo)

🇯🇵 Japanese

10:40 AM - 11:00 AM JST | 1:40 AM - 2:00 AM UTC

[[C]C302-3am2-03]

Exploration of Novel Polar Oxides Using Machine Learning and First-Principles Calculations

○Tomoya Gake¹, Daisuke Hirai¹, Sakyo Hirose¹ (1. Murata Manufacturing Co., Ltd.)

🇯🇵 Japanese

11:00 AM - 11:20 AM JST | 2:00 AM - 2:20 AM UTC

[[C]C302-3am2-04]

Development of General Formulation for Biasing Particle Insertion/Deletion in Grand Canonical Monte Carlo Method and Application to Machine Learning Potentials

○Tatsushi Ikeda¹, Tomoya Kanno¹, Akira Nakayama¹ (1. The University of Tokyo)

深層強化学習による二次元モデルポテンシャル上での 反応経路探索

(阪大院理¹) ○橘川武知, 山中秀介¹, 川上貴資¹, 奥村光隆¹

Reaction pathway search on two-dimensional model potential by deep reinforcement learning
(¹ Graduate School of Science, Osaka University) ○Takechika Kikkawa¹, Shusuke Yamanaka¹, Takashi Kawakami¹, Mitsutaka Okumura¹

Finding transition state and reaction pathway which is determined straightforwardly from transition state are important to reveal the activation energy and the structural and electronic structural change. Many reaction pathway search methods that find transition states have been suggested which utilize the local information of potential energy surface so far. In addition, machine learning has been lively employed in the area of computational chemistry including reaction pathway search methods. Some supervised learning models for finding transition state are suggested. However, considering the amount of dataset of transition state is not enough, reinforcement learning that does not require dataset is also promising.

In this study, we suggest the new reaction pathway search method by deep reinforcement learning. The reinforcement learning model utilizes the local information of potential energy surface as with conventional methods. It predicts the direction of reaction pathway by neural networks and obtains the strategy to reach the transition states. As a first step toward applying to the real molecule, we trained the reinforcement learning model on two-dimensional model potential surfaces. In addition, the effect of lacking the local information on the performance and the transferability of the reinforcement learning model were also investigated.

Keyword : Reaction pathway search, Machine learning, Deep reinforcement learning

計算化学において遷移状態とその反応経路を特定することは、活性化障壁を明らかにするために重要である。これまで平衡構造から出発しポテンシャル平面の局所的情報(勾配やヘシアン)を利用して遷移状態までたどり着く様々な手法が提案されてきた。また近年、計算化学において機械学習が成果を挙げており、反応経路探索でも教師あり学習法が複数提案されている。しかし反応経路の教師データは不足しており、教師あり学習はその性能が教師データに依存することから、教師データが不要な強化学習による手法が有望であると言える。

そこで本研究では深層強化学習による反応経路探索法を提案する。本手法では、学習モデルは従来の計算化学的方法と同じくポテンシャル平面の局所的情報を利用して、深層学習器から反応経路の方向を推定し、遷移状態にたどり着くような戦略を獲得する。今回はその第一歩として二次元モデルポテンシャル平面を扱い、遷移状態探索に対する強化学習モデルの基本設計を検証・確立した。まずモデルに与える局所的情報を制限することにより各情報の重要性を検証した。さらにある平面で獲得した戦略を別の平面に転用することで学習効率を高める転移学習効果についても調査した。結果の詳細は当日発表する。

深層学習を利用した化学的知識獲得に関する考察

(東大院総文¹⁾) ○貞金 輝久¹・横川 大輔¹

Insights into the process of acquiring chemical knowledge with deep learning (¹*Graduate School of Arts and Sciences, The University of Tokyo*) ○Teruhisa Sadakane,¹ Daisuke Yokogawa¹

Deep learning has seen significant advancements in chemistry, enabling a wide range of applications. These achievements largely rely on the use of large-scale datasets. However, in chemistry, the high technical demands of experiments often result in the prevalence of small-scale datasets, leading to a critical issue where model performance significantly declines in such environments. This study aims to address this issue by incrementally increasing the number of training samples to analyze how models learn the influence of substituents and functional groups on molecular properties. By doing so, we seek to elucidate the relationship between improved prediction accuracy and the process of acquiring chemical knowledge.

In this study, the water/octanol partition coefficient (LogP) was used as a molecular property to analyze the performance of deep learning in low-data environments and the process of acquiring chemical knowledge. Specifically, LogP prediction was targeted, and the number of samples was incrementally increased to evaluate prediction accuracy and the interpretability of features learned by the model. A Graph Convolutional Network (GCN) was employed, and Integrated Gradients were applied to visualize chemical knowledge. As a result, it was confirmed that as the number of samples increased, prediction accuracy improved, and the model more accurately captured the chemical characteristics of molecular structures.

Keywords : *Explainable AI; Feature Attribution; Solubility; Substituent; Graph Neural Network*

深層学習は、化学分野においても幅広い応用が進展しており、その成果は大規模データセットの活用大きく依存している。しかし、化学分野では実験の技術的要求が高いため、小規模データセットが多くを占めており、このような環境ではモデルの性能が著しく低下するという課題がある。本研究では、この課題を解決する手がかりとして、学習サンプル数を段階的に増加させながら、分子構造の中で置換基や原子団が物性値に与える影響をモデルがどのように学習しているかを解析した。これにより、予測精度の向上と化学的知識の獲得過程の関係性を明らかにすることを目的とした。

本研究では、化学物質の物性値として水/オクタノール分配係数 (LogP) を用い、少量データ環境における深層学習の性能と化学的知識の獲得過程を解析した。具体的には、LogP 予測を対象に、サンプル数を段階的に増加させながら予測精度と学習モデルによる特徴量の解釈性を評価した。モデルには Graph Convolutional Network (GCN) を使用し、Integrated Gradients¹ を適用して化学的知識の可視化を行った。その結果、サンプル数が増加するにつれ、予測精度が向上するとともに、学習モデルが分子構造の化学的特徴をより正確に捉えることが確認された。

1) Interpretable Attribution Assignment for Octanol–Water Partition Coefficient. D. Yokogawa, K. Suda, *J. Phys. Chem. B.* **2023**, 127, 7004.

機械学習と第一原理計算を用いた新規極性酸化物の探索

(株式会社村田製作所¹⁾) ○我毛 智哉¹・平井 大介¹・廣瀬 左京¹

Exploration of Novel Polar Oxides Using Machine Learning and First-Principles Calculations
(¹Murata Manufacturing Co., Ltd.) ○Tomoya Gake,¹ Daisuke Hirai,¹ Sakyo Hirose¹

Materials have degrees of freedom in their composition and structure, resulting in a vast chemical space represented by their combinations. To accelerate the discovery of novel materials, effective methods for exploring promising compositions and their stable structures are needed. In this study, we propose an efficient method for crystal structure prediction that complementarily utilizes a universal machine learning potential and first-principles calculations, along with two machine learning models designed to identify promising compositions within this vast chemical space. Based on these approaches, we conduct an exploration of novel polar oxides.

By employing the universal machine learning potential M3GNet¹⁾ in the early stages and the first-principles calculation code VASP^{2,3)} in the later stages, we achieved a balance between speed and accuracy in crystal structure prediction. We constructed a machine learning model to estimate the existence probability of unreported compositions and another model to predict the polarity based on compositional information, narrowing down the comprehensively generated unreported compositions to 18 candidates. Subsequent crystal structure predictions for these 18 compositions identified three candidates for polar compounds that are thermodynamically and dynamically stable. Since all these candidates have unreported structures, further expansion of chemical space using this method is anticipated.

Keywords : Polar Oxides; Composition Recommendation; Crystal Structure Prediction; Machine Learning; First-Principles Calculations

物質には組成と構造の自由度があり、それらの組み合わせで表される化学空間は膨大である。これまでに報告されていない新物質の発見を加速させるためには、有望な組成とその安定構造を効率的に探索する方法が求められる。本研究では、汎用機械学習ポテンシャルと第一原理計算を相補的に活用した効率的な結晶構造予測手法、および無数の組成から有望な組成を選定する二つの機械学習モデルを提案する。これらの手法に基づいて、極性を有する新規三元系酸化物の探索を実施する。

具体的には、探索序盤には汎用機械学習ポテンシャル M3GNet¹⁾を、終盤には第一原理計算コード VASP^{2,3)}を用いることで、速度と精度を両立した結晶構造予測が可能になった。未報告組成の存在確率を推定する機械学習モデルと、組成情報から物質の極性を予測する機械学習モデルを構築し、網羅的に生成された未報告組成を 18 種類に絞り込んだ。これら 18 組成に対する結晶構造予測を行った結果、熱力学的・動的に安定な 3 種類の極性化合物候補が得られた。いずれも未報告構造を有していることから、本手法によるさらなる化学空間の拡大が期待される。

1) C. Chen and S. P. Ong, *Nat. Comput. Sci.* **2022**, 2, 718; 2) G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* **1996**, 54, 11169; 3) G. Kresse and D. Joubert, *Phys. Rev. B* **1999**, 59, 1758.

グランドカノニカルモンテカルロ法におけるつり合いを満たす 挿入削除バイアス法の開発と機械学習ポテンシャルへの適用

(東大院工) ○池田 龍志・菅野 智也・中山 哲

Development of General Formulation of Biasing Particle Insertion/Deletion for Grand Canonical Monte Carlo Method and Its Application to Machine Learning Potentials (¹*Graduate School of Engineering, The University of Tokyo*) ○Tatsushi Ikeda, Tomoya Kanno, Akira Nakayama

The surfaces and interfaces of materials are sites of various chemical transformations, and investigating the behavior of solutes and solvents at interfaces where bonds are recombined is important from an academic and engineering perspective. Recent developments in machine learning potentials (MLPs)¹ and other computational techniques have made it possible to perform reactive molecular simulations on an unprecedented scale. Although the grand canonical Monte Carlo (GCMC) method is effective for equilibrium state structure sampling without fixing the chemical composition, there are some cases where the GCMC method for electronic state calculations and MLPs does not satisfy the appropriate balance conditions, such as the introduction of structure optimization, especially in surface chemistry. Aiming to extend the GCMC method to reactive systems, we have developed the modified cavity bias (MCB) method that reformulates the cavity bias method to satisfy detailed balance². We report the results of applying this method to hydrogen adsorption on metal surfaces, in combination with an MLP trained to specialize in energy differences in particle number changes.

Keywords : *Monte Carlo Simulation; Grand Canonical Ensemble; Surface Adsorption*

物質の表面・界面は様々な化学変換の場であり、結合の組み換えのある界面での溶質・溶媒の振る舞いを調べることは触媒反応や腐食・研磨などの側面で学術的・工学的に重要となる。近年の機械学習ポテンシャル (MLP)¹などの開発によりこれまでにない規模の反応性のある分子シミュレーションが可能になってきている。化学組成を固定せずに平衡状態構造サンプリングを行う場合グランドカノニカルモンテカルロ (GCMC) 法が有効であるものの、電子状態計算や MLP の GCMC 法への適用については特に表面化学において構造最適化の安易な導入など適切なつり合い条件を満たさない誤ったものが散見される。我々は反応性がある系への GCMC 法の拡張を目指し、キャビティバイアスバイアス法を詳細つり合いを満たすように再定式化した修正キャビティバイアス (MCB) 法を開発した²。これと粒子数変化におけるエネルギー差に特化させて訓練した MLP を組み合わせ、金属表面への水素吸着に適用した結果を報告する。

1) E. Kocer, et al., *Annu. Rev. Phys. Chem.* **2022**, 73, 163. 2) T. Ikeda and A. Nakayama. *J. Chem. Theory Comput.* **2024**, 20, 9364.