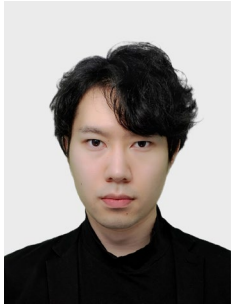
機械学習を用いた和周波発生分光計算



東北大学　平野 智倫

援助区分・期間　個人 A・2024 年 3 月 1 日～2024 年 5 月 31 日
滞在研究機関　Département de chimie,
Ecole Normale Supérieure, 75005 Paris, France
共同研究者　Prof. Damien Laage

液体界面での化学反応は均一系での反応と比べて著しく異なる様相を呈す場合があり、その微視的な理解は広範な分野で重要である。液体界面を選択的に観測できる強力な分光法として和周波発生分光法が知られており、これまで我々は得られたスペクトルを十分に理解するための基礎理論や計算手法を開発してきた [1]。和周波スペクトルは分子動力学計算や量子化学計算といった理論手法を活用して求めることができ、実験結果と照らし合わせることで液体表面の構造やダイナミクスを詳細に明らかにすることができる。

分子動力学計算は多分子系のダイナミクスを直接計算できる手法であるが、その成否は用いるモデルの精度に大きく左右される。理想的には精確な分子間相互作用は量子化学計算を用いて求めることができるが、多分子系を全て量子化学計算で扱うことは莫大な計算コストを要求し、ほとんど現実的でない。その代わりに多くの場合で分子間相互作用は単純な古典モデルで近似されるが、通常の古典モデルは原子間の結合を古典的なばねや剛体として表現するために結合の解離・生成を記述できず、化学反応の直接的なシミュレーションは不得手である。また、しばしば古典モデルのパラメータは経験的に決定され、その物理的妥当性が不明な場合もある。

パリの Damien Laage 教授のグループは上述した古典モデルの制約を打破するための機械学習ポテンシャルの構築に取り組んでいる。彼らのグループでは、比較的少数回の量子化学計算を行い、その結果を効率的に機械学習モデルに取り込むことで、非経験的かつ高精度なシミュレーションを実現してきた [2]。これらの手法は分子動力学計算による化学反応ダイナミクスの直接計算を可能とし、分子動力学計算により扱える対象を大きく拡大できる可能性がある。本滞在では、我々の開発してきた和周波分光計算に Laage グループの機械学習手法を取り込むことを目標として共同研究を行った。本講演では、共同研究から見えてきた機械学習による和周波スペクトル計算の課題と展望について紹介する。

【キーワード】分子動力学計算、和周波発生分光、機械学習ポテンシャル

【参考文献】

[1] **T. Hirano** and A. Morita, “Local field effects of quadrupole contributions on sum frequency generation spectroscopy” *J. Chem. Phys.*, **161**, 244707 (2024).

[2] M. de la Puente, R. David, A. Gomez, D. Laage, “Acids at the edge: Why nitric and formic acid dissociations at air-water interfaces depend on depth and on interface specific area” *J. Am. Chem. Soc.* **144**, 10524 (2022).