

アニーリングマシンを用いた合金触媒の表面モデリングツール・ 利用支援ドキュメントの開発 —SurfQit(サーフキット)の開発と高速表面モデリング—

1. 背景

日本政府は 2020 年に『2050 年までに温室効果ガスの排出を全体としてゼロにする』(以下、2050 年カーボンニュートラルと呼ぶ)事を宣言した。このような目標を達成するためには、再生不可能な地下資源である化石燃料の使用を減らし、持続可能な地上資源であり安定な二酸化炭素や水を用いてエネルギーや化学製品を製造する必要がある。このような安定な地上資源を高効率にエネルギーや化学品に転換するのは困難であり、様々な化学反応の活性化障壁を低下することができる触媒は重要な材料群である。そのため、高性能な触媒の開発はカーボンニュートラルの実現に資する化学であり、より高性能な触媒の開発に向けて最適な電子状態や金属配置を達成した触媒を創出する必要がある。中でも複数の金属種が混ざった合金触媒を用いた研究が広く行われており、その金属種の組み合わせや比率を変えることにより性能をチューニングすることができる。触媒は表面で反応が起こるため、最適な合金触媒の開発に向けて合金表面の金属配置を明らかにすることは開発の PDCA サイクルを高速かつ正確に回すうえで重要だが、金属種が増えた多元合金では金属配置の情報を実験的もしくは理論的に得ることが困難である。以上より、カーボンニュートラルの実現を目指した合金触媒開発の効率化に向けて、合金触媒の表面モデルに対して金属配置が得られる手法の構築が求められている。

2. 目的

本プロジェクトでは 2050 年カーボンニュートラルの実現に向けて、アニーリングマシンを利用した合金触媒の表面モデルにおける金属配置最適化を行う手法を構築し、ソフトウェアおよびその利用支援ドキュメントの開発により触媒開発を大幅に加速させることを目的とした。

3. ソフトウェア開発内容

本プロジェクトでは、1) アニーリングマシンによる 2 元合金系表面の金属配置予測、2) アニーリングによる多元合金系表面/多次元目的関数に対する金属配置予測、3) 予測された金属配置に対する解析と可視化、4) ソフトウェアの利便性向上、5) ソフトウェアの利用支援ドキュメントの作成、を対象としてソフトウェア・ドキュメント開発を行った。

1) アニーリングマシンによる 2 元合金系表面の金属配置予測

本プロジェクトではコバルトと銅(Co-Cu)の 2 元合金表面を対象として検討を行った。金属配置のバイナリ化としては Cu 元素が 0、Co 元素が 1 となるように設定し、アニーリングの目的関数は各金属配置での表面モデルの形成エネルギーとした。ここ

で、形成エネルギーはアニーリングマシンで取り扱える QUBO 形式にするため、少数の教師データを用い、クラスター展開法により回帰を行った。クラスター展開法に必要なクラスターモデルの形成エネルギーはスーパーコンピュータ「富岳」を利用して Quantum Espresso により算出された。その結果、適切にハイパーパラメータを決定することで、合金表面のモデリングを行うことができ、この予測された配置を再度 QUBO に代入することで相対的な安定性も求めることができた。(図 1)

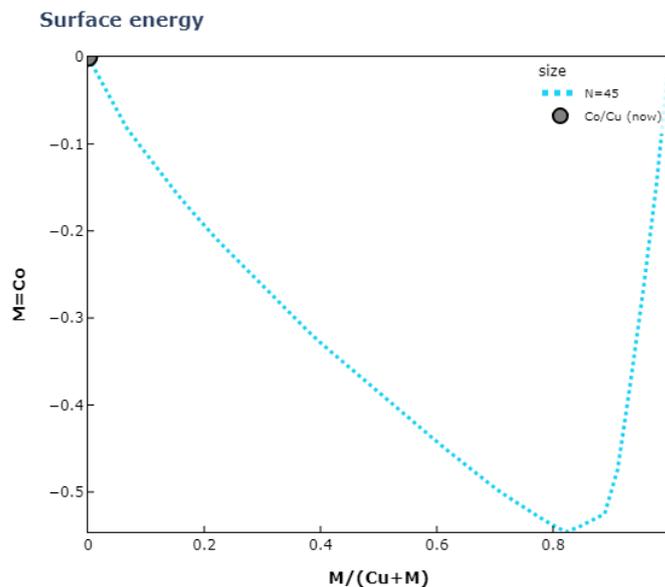


図 1. 2 元合金系におけるアニーリング結果: 金属比率と相対的な安定性

2) アニーリングによる多元合金系表面/多次元目的関数に対する金属配置予測

さらに、前項のコードを拡張することで任意の金属数、任意の精度のクラスター展開に対して QUBO を構築できるコードを作成し、動作確認を行った。これにより、SurfQit 上でユーザーの求める系と精度に対して QUBO 作成を行えるようになった。

3) 予測された金属配置に対する解析と可視化

ユーザーがアニーリングの結果得られた構造から解析や解釈に必要な情報を抽出するための GUI を実装した。この GUI では、スライダーを用いて指定された金属比率の合金に関する構造・解析情報を図示する。図示される情報としては 1) インタラクティブに描画されマウスで回転や拡大が可能である、原子を球で表した表面モデル、2) 表面からの遠さ毎の金属比率の図示、3) 表面からの遠さごとの各金属種からの動径分布関数、4) 各金属比率における各金属の深さ方向の分布の分散と平均、5) 各金属比率における合金の形成エネルギー、の 5 種類である。

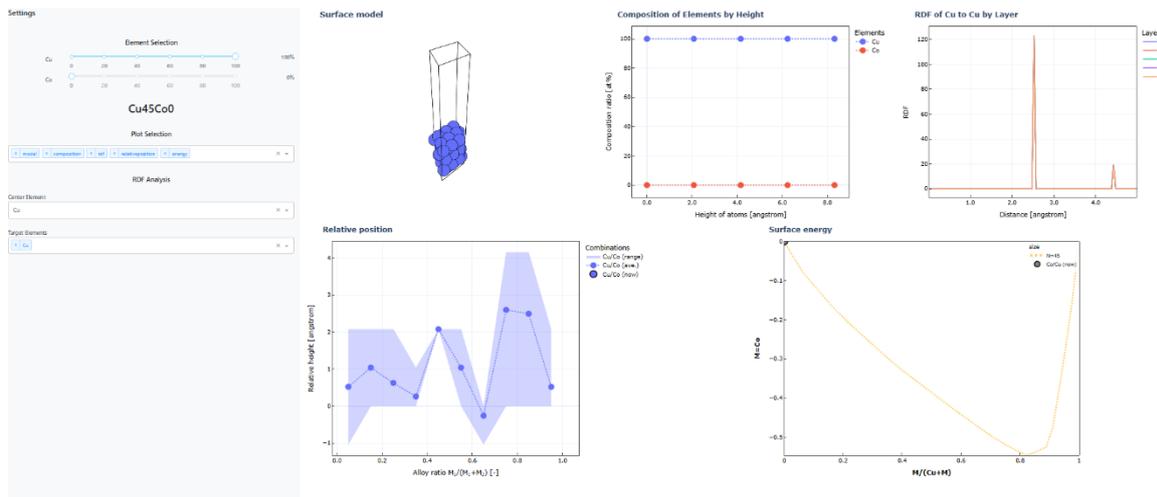


図2. アニーリング結果に対する可視化の例

4) ソフトウェアの利便性向上

本プロジェクトでは、ユーザーの利便性向上・柔軟な使用への対応・手法としての精度向上を目的として、1) ユーザーが教師データを追加できる機能、2) クラスタ展開の変数の自動削減、を実装した。特に2)については、クラスタ展開に用いる教師データの数がむやみに増えることを抑制した。Co-Cu 合金表面においてはオーバーフィッティングを防止しつつ同等の精度の回帰を行えるという結果が得られた。また、この機能により教師データの必要数も削減できるため、従来手法に比べて第一原理計算の回数を減らせるという SurfQit の強みをより強力に発揮できるようになった。

5) ソフトウェアの利用支援ドキュメントの作成

本プロジェクトでは、ユーザーが SurfQit を使用する際の利便性向上・ユーザーの挫折の防止・ソフトウェアの使用を検討する潜在的なユーザーの使用感の確認のため、SurfQit の利用支援ドキュメントとして、API reference・Tutorial・example を作成した。API reference では各関数・各クラスの入力値・出力値について説明した。documents では SurfQit に関連する分野の背景の説明や前提知識の説明を行った。example ではブラウザ上に仮想の jupyter notebook の実行環境を構築する Binder というサービスを利用し、ローカルに Python の実行環境を構築せずにユーザーが SurfQit の動作を体験できる機構を構築し公開した。これらはすべて国内外両方への普及を目指し、日本語だけではなく英語でも作成を行った。

4. 新規性・優位性

多元合金表面の金属配置を実験的に観測することは困難であり、理論的な予測においても計算コストと精度の間にトレードオフが存在している。その一方、SurfQit では少ない第一原理計算の結果を用いて形成エネルギーの定式化を行うだけで、金属配置をアニーリングマシンによる探索により予測することができる点で優位性がある

と考えられる。また、表面モデルを直接予測するソフトウェアはこれまでに存在しなかったため、そのようなソフトウェアを始めて作成したという点で新規性があると言える。

5. 期待されるユーザー価値と社会へのインパクト

本プロジェクトで開発した SurfQit は主に触媒研究を行う、第一原理計算等の計算環境を持つ研究者をユーザーとして想定しており、ユーザーが合金を用いた触媒を解析する際に利用できる。従来用いられてきた触媒表面のモデリング手法は実際に現れる安定な金属配置を求めるためには様々な金属配置を持つ合金表面の形成エネルギーを比較する必要があるが、SurfQit では使用する金属種を入力していくつかの合金表面モデルの形成エネルギーの第一原理計算を行うだけで、表面における金属配置を現実的な時間で得ることができる。本手法で第一原理計算は最も実行時間のかかるボトルネックであり、ユーザーの持つ計算資源として想定される範囲ではコードの実行時間やアニーリングの通信時間は比較的短時間である。SurfQit は 2 元合金に対して従来手法と比較して数十倍の計算コストの削減を達成できると見込まれる。

SurfQit により各金属比率での金属配置とその物理化学的解析結果が得られれば、実験的に観測されたスペクトルなどと比較して最適な合金構造を予測することが可能となるほか、得られた金属配置の構造データに対して触媒反応の原料との相互作用の強さを第一原理計算で算出することで最適な電子状態を与える合金の探索が可能となる。以上のように金属種の入力と少ない第一原理計算のみを必要とする SurfQit により合金触媒開発の加速が期待される。また、アニーリングマシンによる最適化の結果から触媒化学研究者が求める情報の可視化まで一貫して出力できる点はユーザーとして出力結果が理解しやすい形になっていると考える。

上記で想定している触媒研究は日本に絞っても複数の大学や研究所で行われており、合金触媒に注目した論文数も近年増加傾向にある。そのため、SurfQit は日本内外での触媒研究に対して大きな波及効果を持つことが予想される。また、SurfQit は合金だけではなく複数の元素が不規則に配置する材料全般にも適用可能なため、複数の元素が混合した材料群の開発に関係する科学技術の進歩に貢献することについても社会的インパクトを持つ。以上の波及により、二酸化炭素の燃料化や水素のエネルギー化などにおいて最適な触媒の創出が進み、2050 年カーボンニュートラルの実現を達成することが期待できる。

6. 氏名（所属）

三瓶 大志（早稲田大学大学院 先進理工学研究科 応用化学専攻）

七種 紘規（早稲田大学大学院 先進理工学研究科 応用化学専攻）

（参考）関連 URL

<https://hiroshi3pei.github.io/SurfQit.github.io/>