ハイスループット計算と機械学習を用いた二次元ハロゲン化物ペロブスカイトの設計

応用化学科　分子コース

3年　川浦佑太

【緒言】

　ハロゲン化物ペロブスカイト材料は、イオン電池やイオンキャパシタなどのエネルギー貯蔵用途での利用が期待されている。それらの開発においては、電極材料表面での効率的なイオンの吸着および拡散のプロセスが必要であるため、イオンとハロゲン化物ペロブスカイトとの間の吸着エネルギーを評価することが重要である。しかし、従来の実験作業や第一原理計算による手法では、新材料の迅速な開発が困難である。そこで本論文の著者らは、イオンベースのエネルギー貯蔵用途向けのハロゲン化物ペロブスカイト材料の効率的な設計を目的とした、イオンの吸着エネルギーの計算手法を確立した。本論文では、ハイスループット第一原理計算と機械学習を用いることで、効率的な吸着エネルギーの算出を可能にした。ハイスループット計算とは、大量の計算データを効率的に算出する計算手法のことである。本発表では、ハイスループット第一原理計算、特徴量の選択および重要度の評価、機械学習モデルの構築、機械学習モデルにより得られたイオン／ペロブスカイト系候補のスクリーニングとその物性評価について述べる。

グラフ

自動的に生成された説明

Fig. 1 xxxx

【実験および結果と考察】

１．ハイスループット第一原理計算

　密度汎関数理論に基づくハイスループット計算を実行し、640種の材料データを取得した。その結果、吸着エネルギーはイオン吸着質の種類に強く依存することが示唆された。さらに、吸着エネルギーの分布はペロブスカイトの組成に影響を受けることが示唆された。また、イオン吸着質はハロゲン結合を介して二座配位していることがわかった。

２．特徴量の選択および重要度の評価

　ピアソンの相関係数を用いて、吸着エネルギーに対する特徴量重要度を評価し、冗長な特徴量を削除することで13個の特徴量を選択した。特徴量重要度を評価した結果、イオン密度が吸着エネルギーに大きく寄与していることがわかった。これは、イオンとペロブスカイト材料との間の相互作用に対して、イオン吸着質の質量と体積の影響が大きいためであると考えられた。さらに、特徴量重要度を包括的に評価するために、14種の異なるランク付け手法を用いて評価した。その結果、ピアソンの相関係数では原子半径の重要度の評価が不十分であることが示唆された。

３．機械学習モデルの構築

　予測値と真値に対する、ピアソンの相関係数・二乗平均平方根誤差・決定係数を用いて、6つの機械学習アルゴリズムの予測精度を比較した。その結果、Xgboostアルゴリズムが最も高い精度を示したため、材料予測の仮想空間に選択された。続いて、Xgboostアルゴリズムを用いた学習済みモデルに各特徴量を入力し、11796個のイオン／ペロブスカイト系の吸着エネルギーを予測した。

４．機械学習モデルにより得られたイオン／ペロブスカイト系候補のスクリーニングとその物性評価

機械学習モデルにより得られたイオン／ペロブスカイト系候補のスクリーニングを行った。その結果、最終的に5つの組成候補が得られた。続いて、それらの候補に対して第一原理計算を実施し、吸着エネルギー・２次元原子座標・バンドギャップ・投影状態密度スペクトルを評価し、さらに、分子動力学計算による熱力学的安定性を評価した。その結果、これらの材料候補の物性は、エネルギー貯蔵デバイスとしての要件を満たしていたため、本手法の有用性が示された。

【結論】

　ハイスループット第一原理計算と機械学習を用いて、二次元ハロゲン化物ペロブスカイトとイオン吸着質間の吸着エネルギーを効率的に算出することに成功した。また、本手法を用いることで、エネルギー貯蔵デバイスの要件を満たす組成候補を得ることに成功した。また、複数の特徴量重要度評価手法を用いて包括的な特徴量評価を行った結果、〜〜〜なことが示唆された / わかった。今後、二次元ハロゲン化物ペロブスカイト材料の開発において、機械学習ベースの材料探索が促進されることが期待される。

【参考文献】

Hu, W., *et al*., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2022, 14, 18, 21596–21604

【謝辞】

　本演習を行うにあたり、ご指導いただきました藤ヶ谷研の喜多氏に感謝致します。