

量子化学計算と機械学習による有機高分子の屈折率予測

LG Japan Lab¹・東工大²・統数研³ ○千葉 真人¹・酒向 正己^{1,2}・林 慶浩^{2,3}・安藤 慎治²・安尾 信明²・
関嶋 政和²・川内 進²

<緒言>

主鎖構造にフルオレン基を含む有機高分子材料は、高い屈折率と透明性の高さからレンズ用高屈折材料として広く使用されている。これらは多数の芳香環を有するため、高屈折率かつ高耐熱性を示し、さらに各芳香環がそれぞれ異なる向きに面するため、光学的異方性を打ち消して低複屈折を示すことが知られている。本研究では、計算機上で高屈折率の有機高分子材料を探索するため、高分子材料の屈折率を機械学習に基づく計算により推定するための新たな方法論（スキーム）を構築した。

<手法>

フルオレン系高分子を対象に、繰り返し単位の両端をメチル基で終端し、Lorentz-Lorentz 式に基づいて屈折率を算出した。Lorentz-Lorentz の式は、以下のように表される。

$$\frac{n_{\lambda}^2-1}{n_{\lambda}^2+2} = \frac{4\pi}{3} \frac{\rho \cdot N_A}{M_w} \alpha_{\lambda} \quad (1)$$

ここで、 n は屈折率、 M_w は分子量、 N_A は Avogadro 係数、 ρ は密度、 α は分極率（体積次元）を示す。添え字の λ は、波長 λ の光に対する物性であることを示す。式(1)における密度 ρ は、分子の van der Waals 体積と Packing 係数を用いて、次のように変形することができる^[1]。

$$\frac{n_{\lambda}^2-1}{n_{\lambda}^2+2} = \frac{4\pi}{3} K_p \frac{\alpha_{\lambda}}{V_{vdw}} \quad (2)$$

本研究では、式(1)と(2)を用いて屈折率を算出した。式(1)における密度 ρ は、Polymer Genome^[2]を用いて算出した。式(2)における Packing 係数は、Slomniski らの値 0.681^[3]を使用した。分極率 α_{λ} と分子体積 V_{vdw} は、量子化学計算により算出した^[1]。量子化学計算法としては、長距離交換相互作用を考慮した DFT (CAM-B3LYP 法^[4])を用いた。この手法では、交換相互作用 $1/r_{12}$ を以下のように短距離部分と長距離部分に誤差関数を用いて分割し、短距離部分については密度汎関数を、長距離部分については密度汎関数ではない交換積分項を用いる。

$$\frac{1}{r_{12}} = \frac{1-\text{erf}(\mu r_{12})}{r_{12}} + \frac{\text{erf}(\mu r_{12})}{r_{12}} \quad (3)$$

長距離交換相互作用の導入は、従来の密度汎関数で知られていた分極率の過大評価を抑えることが知られている^[5]。また参考情報として、紫外-可視域での吸光度の目安を得るために TD-DFT 計算を行い、励起状態への一電子遷移エネルギーを求めた。

フルオレン系高分子の構造は、PolyInfo database^[6]から抽出した。計算結果から構築したデータベースを用いて、XGBoost 法等の機械学習技術に基づき、繰り返し単位構造から屈折率を予測できるモデルを構築した。XGBoost 法は、複数の弱学習器（決定木）を一つにまとめるアンサンブル学習手法であり、前の弱学習器の結果を、次の学習データに反映させることに特徴がある。予測のための特徴量には、Morgan fingerprint、及び RDKit^[7]により生成した分子記述子を使用した。予測 model により得られた特徴量の重要度に基づき、屈折率の予測に重要な因子を抽出した。Fig.1 に全体の計算スキームを示す。

Refractive index prediction of organic polymers based on quantum chemical calculations and machine learning

Mahito CHIBA¹, Masami SAKO^{1,2}, Yoshihiro Hayashi^{2,3}, Shinji ANDO², Nobuaki YASUO², Masakazu SEKIJIMA², and Susumu KAWAUCHI² (¹LG Japan Lab Inc., 4-13-14 Higashi-Shinagawa, Shinagawa-ku Tokyo 140-0002, Japan, ²Tokyo Institute of Technology, 2-12-1 Ookayama, Meguro-ku Tokyo 152-8550, Japan, ³The Institute of Statistical Mathematics, 10-3 Midori-cho, Tachikawa-shi Tokyo 190-0014, Japan)

¹Tel: +81-3-6703-8472, Fax: +81-3-6703-8515, E-mail: mahito.chiba@lgilab.com

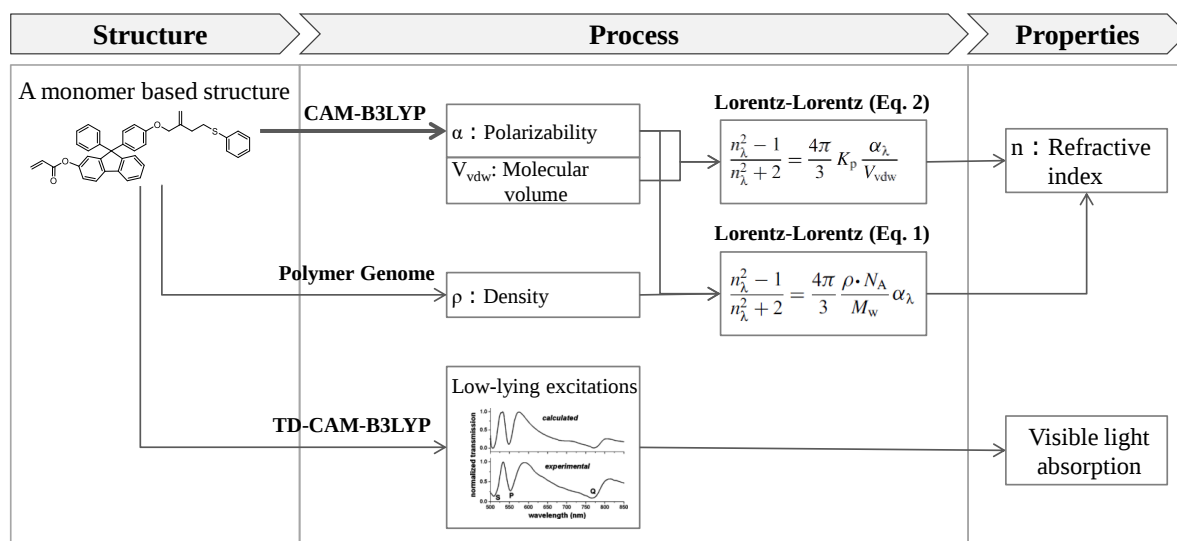


Fig. 1 Computational Scheme for refractive index calculation

<結果と考察>

量子化学計算により得られた屈折率は、実験値と比較的良好な対応 ($R^2 \approx 0.5$, Fig. 2 参照) を示した。Fig. 1 の計算スキームにより、PolyInfo^[6]上のフルオレン系高分子材料の約 150 種について屈折率と低準位励起状態を計算し、その計算結果をデータベース化した。そのデータベースから XGBoost 法を用いて屈折率の予測モデルを構築し、予測性能と予測において重要な特徴量について考察をした。結果の詳細については、当日報告する。

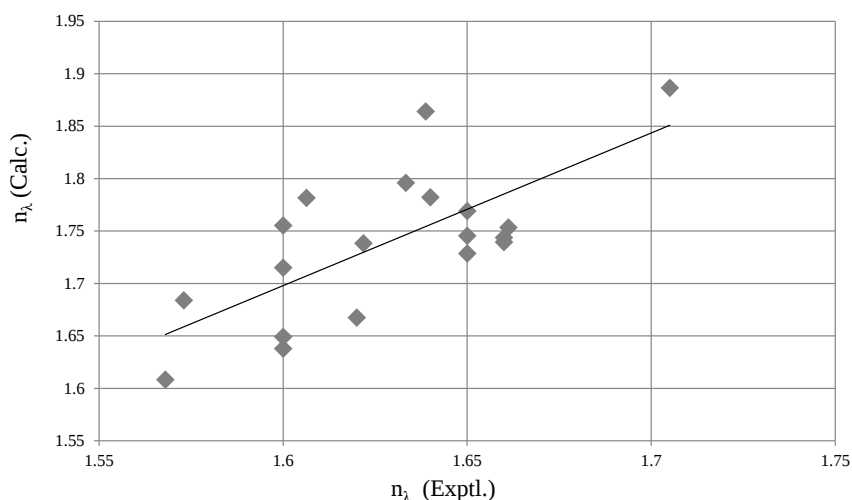


Fig. 2 Calculated refractive index values compared with experimental values.
Refractive indices were calculated using Eq.(1) with ρ estimated by Polymer Genome.

<参考文献>

- [1] S. Ando, *Chem. Lett.*, **47**, 1494-1497 (2018).
- [2] <https://www.polymergenome.org/>.
- [3] G. L. Slonimskii et al., *Polym. Sci. U.S.S.R.*, **12**, 556-577 (1970).
- [4] T. Yanai et al., *Chem. Phys. Lett.*, **393**, 51-57 (2004).
- [5] M. Kamiya et al., *J. Chem. Phys.*, **122**, 234111 (2005).
- [6] <https://polymer.nims.go.jp/>.
- [7] <https://www.rdkit.org/>.