

2E13

化学反応分子動力学シミュレーションの 高速化について

(東京大学) ○山下雄史

On fast algorithms for the reactive molecular dynamics simulation

(Univ. Tokyo) ○Takefumi Yamashita

近年、計算機の演算能力が高まり、より長い時間スケールの分子動力学(MD)シミュレーションが可能になってきた。特に、MD 計算でタンパク質の本質的な構造変化の時間スケールに迫れたことで、タンパク質の機能解明が期待されるようになってきた。しかし、興味のある系が化学反応(化学結合の組み替え)を起こす可能性がある場合は、通常の古典 MD 計算で仮定される経験的力場が利用できないため、シミュレーションできる時間がより制限されている。例えば、化学反応を起こす系を記述する力場を求めるために QM/MM 法を利用するとすれば、QM 計算に大きな計算リソースを割かれて長時間シミュレーションは難しくなる。これは、溶液中のプロトン移動反応のように、連続的に過剰なプロトンがリレーされていくような現象を追跡したい場合、QM 領域が広くなりさらに難しくなるだろう。

これを解決する処方箋の 1 つは、化学反応を記述する経験的力場を構築することである。こうした経験的力場構築手法の 1 つが多状態経験的原子価結合(MS-EVB)法[1]であり、実際、我々は MS-EVB 法を用いて生体系や水溶液系におけるプロトン移動の分子動力学シミュレーションを行い、溶液系や生命現象の分子論的理解を深めてきた。[2-4]

こうした研究が可能になったのは、MS-EVB 法が QM/MM 法などのような直接的電子状態計算を含む方法に比べ計算コストが低いためである。しかしながら、MS-EVB 法を用いた MD 計算も通常の古典 MD 計算に比べると、計算コストは高くなる。これは、MS-EVB 法において、スムーズな結合様式の切り替えを記述するために、量子力学計算をまねた行列形式を採用しているため、その要素の数の分だけ計算コストが増加するのである。

まず、我々は、行列要素が増加した際にどこが計算のボトルネックになっているのかを詳細に調べた。そうすると、現在、周期境界条件を持つ系のクーロン力を計算する上で最も良く利用されている Particle Mesh Ewald 法においては、クーロン相互作用の長距離項の計算であることが分かった。支配的な相互作用は近距離項であるので、長距離項に多くの計算資源をつぎ込むのは「もったいない」と感じら

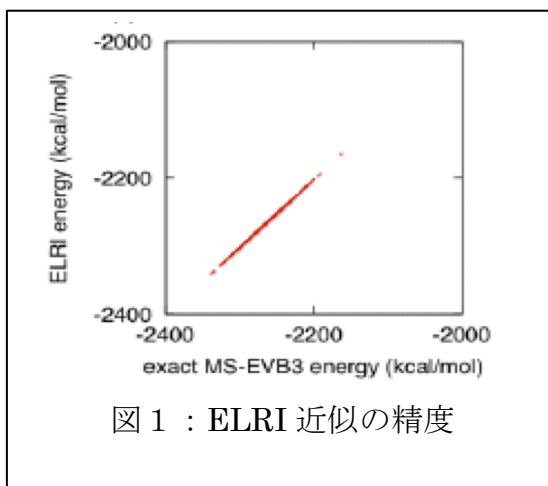


図 1 : ELRI 近似の精度

れる。そこで、我々は、長距離項の計算コストを下げるために、計算結果に大きな影響を与えない程度の良い近似法（図 1）を開発することにした。

本発表で紹介する近似方法は 2 つのアイデアとその組み合わせである。第 1 のアイデアは、有効電荷を導入するもので、Effective Long-range Interaction (ELRI) 法と呼ぶ。第 2 のアイデアは、長距離力の効果を近距離項の中に繰り込むもので、Coarse-Graining in Interaction Space (CGIS) 法と呼ぶ。ELRI 法では、MS-EVB 行列の各要素に対して遠距離力計算をおこなわず、有効電荷に対する遠距離力の計算で置き換えることで計算が速くなっている。CGIS 法では、そもそも近距離力計算しか使わないので計算が速い。詳細な解説は当日の発表でおこなうが、最後に本近似を使うことで、MS-EVB 法を使った化学反応の MD 計算は、標準的な古典 MD 計算の数倍程度にしか計算コストがかからなくなったことを強調しておきたい。[5]

References:

- [1] G. A. Voth, *Acc. Chem. Res.* **39** 143 (2006), and more references therein
- [2] T. Yamashita and G. A. Voth, *J. Phys. Chem. B* **114** 592 (2010)
- [3] T. Yamashita and G. A. Voth, *J. Am. Chem. Soc.* **134** 1147 (2012)
- [4] J. Xu, T. Yamashita, N. Agmon, and G. A. Voth, *J. Phys. Chem. B.* (in press)
- [5] T. Yamashita, Y. Peng, C. Knight, G. A. Voth, *J. Chem. Theory Comp.* **8** 4863 (2012)