

実用的なアプリケーションに向けたsize-consistent multipartitioning法の改良

¹東大先端研, ²東大応化 ³慶應大理工, ⁴JSTさきがけ

○渡邊宙志^{1,2,3,4}

Improvement of size-consistent multipartitioning method toward an practical application

○Hiroshi Watanabe^{1,2,3,4}

¹ *Research Center for Advanced Science and Technology, The University of Tokyo, Japan*

² *Department of Applied Chemistry, School of Engineering, The University of Tokyo, Japan*

³ *Quantum Computing Center, Keio University, Japan*

⁴ *PRESTO, JST, Japan*

【Abstract】 For condensed systems, the incorporation of quantum chemical solvent effects into molecular dynamics simulations has been a major concern. To this end, quantum mechanical/molecular mechanical (QM/MM) techniques are popular and powerful options to treat gigantic systems. However, they cannot be directly applied because of temporal and spatial discontinuity problems. To overcome these problems, in a previous study, we proposed a corrective QM/MM method, size-consistent multipartitioning (SCMP) QM/MM, and successfully demonstrated that, using SCMP, it is possible to perform stable molecular dynamics simulations by effectively taking into account solvent quantum chemical effects. The SCMP method is characterized by two original features: size-consistency of a QM region among all QM/MM partitioning and partitioning update. However, in our previous study, the performance was not fully elicited compared to the theoretical upper bound, and the optimal partitioning update protocol and parameters were not fully verified. To elicit the potential performance, in the present study, we simplified the theoretical framework and modified the partitioning protocol.

【序】

QM/MM モデルを分子動力学(MD)計算に応用する場合、拡散の問題が生じる。この問題に対処するには、溶媒の分子モデル (QM または MM) を MD 計算の最中に時折、再定義する必要がある。このような補正的アプローチは、adaptive QM/MM 法と呼ばれる。これまでに多くの adaptive QM/MM 法が提唱されてきたが、どの手法も空間的・時間的不連続性の問題のために安定で正確な計算を実現できなかった。そこで我々は Size-consistent multi-partitioning (SCMP) 法を提唱した[1]。SCMP 法では、QM 領域の溶媒数を固定しながら様々な QM/MM 分割を用意し、それ分割に対して独立に力とエネルギーを算出した後、それらに重みをつけて足し合わせ MD 計算に利用する。SCMP 法は初めて溶媒の量子化学効果を取り込んだ安定した MD 計算を実現し、様々な物理量のより正確な算出を可能にした [2,3]。

しかし SCMP 法は、以下に示すように欠点や議論されていない点があった。(1) 有効力を算出する際に用いる重み関数がすべての QM/MM 分割に対して 0 となりシミュレーションが破綻するという問題。(2) 他の adaptive QM/MM 法は、MD のすべての瞬間において空間的連続性が保証されているのに対して、SCMP 法は時間平

均的に空間的連続性が成り立っているという点。(3) SCMP 法は理論上非常に高い並列化効率を發揮できるはずだが、現実には乖離があった点。本研究では、これらの問題点を解析し SCMP 法の枠組みに修正を加えることで問題の改善を行った。

【方法 (実験・理論)】

SCMP 法の n 番目の QM/MM 分割に対する重み関数 $\sigma^{(n)}$ は以下のように表現される

$$\sigma^{(n)} = \frac{O_{\text{QM}}^{(n)} I_{\text{QM}}^{(n)} O_{\text{MM}}^{(n)} I_{\text{MM}}^{(n)}}{\sum_k O_{\text{QM}}^{(k)} I_{\text{QM}}^{(k)} O_{\text{MM}}^{(k)} I_{\text{MM}}^{(k)}}$$

ここで O_{QM} , O_{MM} は QM と MM 溶媒それぞれの Fade-out 関数, I_{QM} , I_{MM} は QM と MM 溶媒それぞれの Fade-in 関数である。QM/MM 分割の更新の際には、新しく定義される分割において QM または MM の Fade-in 関数 のどちらかが 0 となるよう条件を課すが、0 にならない Fade-in 関数の値には任意性がある。そこで本研究では、degree of order という新しい指標を導入するなどして計算の安定化・効率化をはかった。

【結果・考察】

改善された SCMP 法は、以前と比較して高い並列化効率を示した。(Fig. 1) また degree of order の導入により、計算が安定化し上記の MD が破綻するような状況が生じなくなった。同時に最適な degree of order を用いれば、各 MD ステップにおける瞬間的空間連続性も改善することが確認された。(Fig. 2) 一方で、空間的不連続性は、動径分布関数など時間平均的な算出量には影響がないことも判明した[4]。

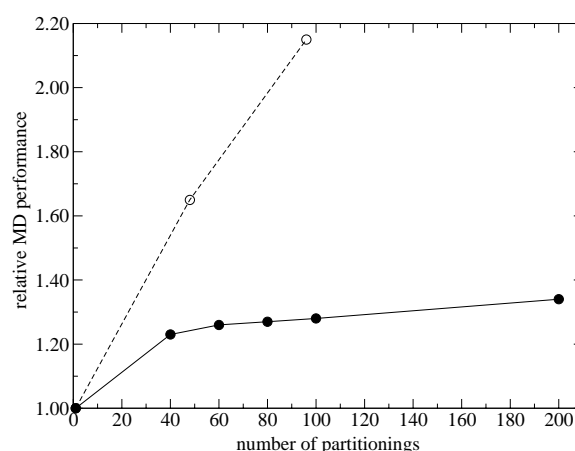


Fig. 1. MD performance (wall-time per one MD step) of the SCMP simulation relative to a conventional QM/MM.

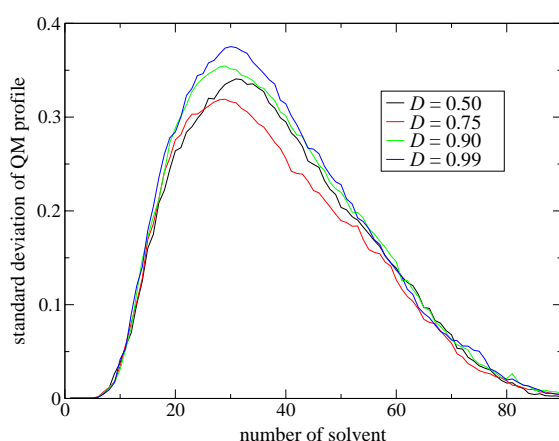


Fig. 2. Standard deviations of QM profiles with various degrees of order (D)

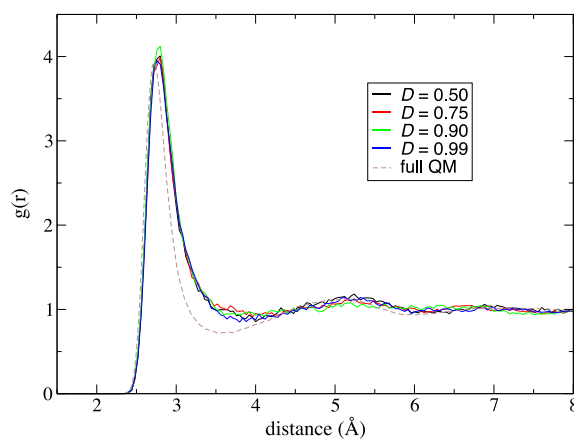


Fig. 3. Radial distribution functions from SCMP simulations with 60 partitionings using various degrees of order (D)

【参考文献】

- [1] H. C. Watanabe *et al.* *J. Chem. Theory Comput.* **10**, 4242 (2014)
- [2] H. C. Watanabe *et al.* *Phys. Chem. Chem. Phys.* **18**, 7318 (2016)
- [3] H. C. Watanabe *et al.* *Phys. Chem. Chem. Phys.* **19**, 17985 (2017)
- [4] H. C. Watanabe *et al.* *Molecules* **23**, 1882 (2018)