材料設計支援システム　SciMAPS

粗視化分子動力学計算

粗視化分子動力学計算では分子の部分構造を 1 つの粒子にしてシミュレーションを行います。水素分子などの軽元素の振動を考慮する必要がないため通常の全原子 MD 計算の 10 倍程度の大きなモデルを取り扱えるとともに、計算する相互作用の数も大幅に削減され、全原子 MD 計算では到達困難な 100 ns 以上のシミュレーションも比較的容易に行えます。そのため、構造の平衡化までに時間を要する高分子や両親媒性分子などのソフトマターのシミュレーションに利用される計算手法です。本稿では事例を通して SciMAPS の持つ粗視化分子動力学計算機能について紹介します。

SciMAPS のメソスケール関連の機能

モデル構築から解析まで、粗視化モデルによる分子動力学計算（以下 MD 計算）に必要な機能が一通り用意されています。ほとんどの機能は、全原子モデルの機能を共有しており、同様な操作で構築および解析機能が利用可能となっています。

ビーズ定義

散逸粒子動力学を含む粗視化モデル用のビーズ種を定義してファイルとして保存します。論文等のビーズ種を利用するために、ユーザー独自のビーズ種の定義を保存することが可能です。

粗視化モデルへの分子構築機能の対応

全原子モデル用に開発されたアモルファス、高分子、結晶、表面・界面、架橋等に対する構築機能は粗視化ビーズに対しても利用することが可能です。このため、全原子モデルと同じ感覚で粗視化モデルを構築することが可能です。

粗視化力場

粗視化力場は Martini、SDK、Saft-γ-Mie の 3 種類が提供されています。同じ関数形を利用した力場であれば、既存のものをベースに編集して、新たなパラメーターを追加することも可能です。

AtoMeso converter

構築した分子の部分構造をビーズと対応付けることで全原子モデルを粗視化モデルに変換します。粗視化力場パラメーター作成プラグインの VOTCA でも利用します。

MesoAtom converter

粗視化モデルの各ビーズに部分構造を対応させることで全原子モデルに変換します。粗視化モデルで得た構造を基に全原子モデル計算を行う際に利用します。

解析機能

ミセルの大きさや表面積を解析するための粒子クラスタ解析機能、凝集状態解析のための濃度分布解析、拡散の解析のための平均二乗変位、そのほか、動径分布関数、構造解析機能が用意されています。

粗視化モデル計算の事例

粗視化力場を用いたシミュレーションの事例として、両親媒性分子 polyoxyethylene (4) heptyl ether（以下 C7E4）の粗視化シミュレーションを紹介します。Lobanova らは両親媒性分子に対して Saft-γ-Mie 力場のパラメーターを作成し、親水部と疎水部の長さや濃度を変えることで水中でのミセル生成の挙動を調べています[1)]。彼らの論文にある力場パラメーターを SciMAPS に取り込み、同様の計算を SciMAPS 上で行いました。

SciMAPS 上には登録されていない論文のビーズ粒子を利用するため、ビーズ種の定義と力場ファイルの作成を行いました。新たに加える 4 つのビーズ種 CM（$CH_2CH_2CH_2$）、EO（CH_2OCH_2）、OA（$CH_2OCH_2CH_2OH$ を 2 つのビーズで表記）、W2（水 2 分子を 1 つのビーズで表記）の定義（色、分子量）は GUI 上で行い、ライブラリーに追加しておきます。力場ファイルは、既存の Saft-γ-Mie 力場のファイルをコピーし、新しいビーズ種の相互作用パラメーターを書き込んで保存します。これにより SciMAPS 上で構造を作成することが可能になります。全原子モデルの機能を共有しており、同様な操作で構築および解析機能が利用可能となっています。

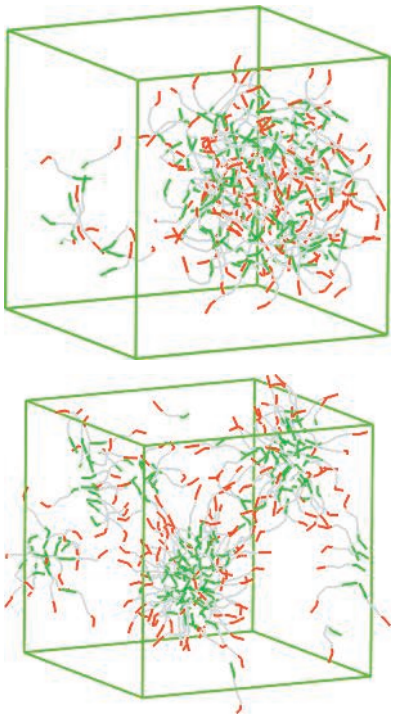

図 1. C7E4 と水分子によるミセル形成の様子（水分子は非表示）
初期構造（上）30 ns 後（下）

SCIENOMICS
delivering science

低分子構築と同様に、定義したビーズ種を選択してつなぎ合わせることで C7E4 分子を構築します。さらに、作成した C7E4 分子と溶媒である水分子からなるバルク構造を構築します。Lobanova らは C7E4 分子のみからなる分子クラスタを構築し、その周りに水分子を配置した系を構築していますが、SciMAPS では Amorphous Builder を利用して同様な系を構築しました。ここでは C7E4 分子を 0.74w％（C7E4 分子 175 個、水分子 23600 個）からなる系を構築しました。得られた構造を初期構造として、MD 計算のソフトウェアである LAMMPS によりエネルギー極小化、NVT 計算、NPT 計算を行いました。1 ステップを 10 fs にすることができるので、30 ns（300 万ステップ）の計算を 11 時間程度で実行できます [2]。

1 つの大きな溶質分子の塊が時間と共に大小 4 つのミセルに分かれていくことがわかります（図 1）。実際、粒子クラスタ解析機能を用いて解析すると、図 2 のようにグラフとして 5 つのピークが現れます。1 つはミセル（クラスタ）にアサインされない分子なので他の 4 つが異なる大きさのミセルになっていると考えられます。ミセルの境界面での分類が難しいため、分子を構成するビーズの半分以上が 1 つのミセルに分類されている分子でも、分子の一部のビーズがそのミセルに属するとみなされない分子がありました。このような分子については分子内のビーズを同一のミセルに属するとしました（図 2 右上）。

4 つのミセルはそれぞれ 11 本～62 本からなり、平均のミセルの大きさは 36.5 本という Lobanova らの報告と矛盾しません。

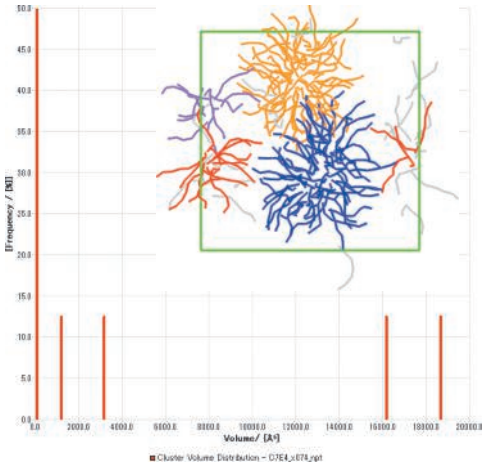

図 2. クラスタ解析とアサインされたミセル

粗視化モデルの全原子モデルへの変換

得られた事例の粗視化モデル構造は全原子モデルへ変換することが可能です。特にミセルを形成するような両親媒性分子の場合、全原子モデルでミセルを形成するまで MD 計算を行うには計算コストが非常にかかり、現実的ではありません。今回は 50 ns 後のミセルを形成したモデルに対して、MesoAtom converter を利用して変換を行い、得られたモデルを初期構造として再び構造最適化および MD 計算を行いました。粗視化モデルで得られた構造に非常に近い構造から開始することでミセル構造の経時変化を調べることができます。全原子モデルの MD 計算では 2 つのミセルが 1 つになる過程が見られました。構造変化は、まず親水基同士が絡み合うような形で互いのミセルに近づき、その後ミセル本体部分が近づいて 1 つのミセルへと変化しました（図 3）。全原子モデルでは、配向などミセル同士の接面付近の各分子の構造を調べることで、ミセル形成の過程でどのような構造変化が起こっているか詳細に見ることができます。また部分構造を取り出し、さらに解析することで、どのような相互作用がミセル形成に重要なのかを調べることが可能となります。

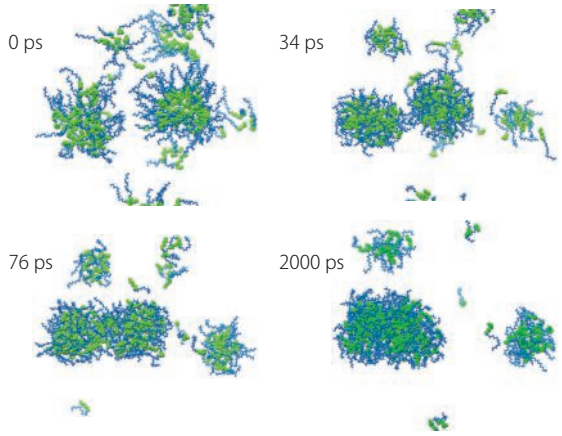

図 3. ミセルの融合の構造変化 青：親水基　緑：疎水基

まとめ

SciMAPS には粗視化分子動力学計算を行うための様々な機能が搭載されています。それらを利用することで全原子モデル計算では非常にコストのかかる計算も容易に計算を行うことが可能です。また得られた粗視化構造を全原子モデルへ変換する機能を用い、初期構造を作成することで、全原子モデルのみでは難しい構造の構築が可能となり、幅広い研究にお役立ていただけます。

参考文献

1）Lobanova, O. Development of Coarse-grained Force Fields from a Molecular Based Equation of State for Thermodynamic and Structural Properties of Complex Fluids. https://ethos.bl.uk/OrderDetails.do?uin=uk.bl.ethos.666476
2）OS: CentOS7　Intel Xeon Gold 6240R 2.4 GHz 16 コアで並列計算