

# 第9回計算科学技術特論B(2026) ABINIT-MPプログラムによるフラグメント 分子軌道(FMO)計算 2

立教大学  
望月祐志

2026年6月11日（木） 13:00 – 14:30

主催：高度情報科学技術研究機構(RIST)

次世代HPC・AI研究開発支援センター(HAIRDESC)

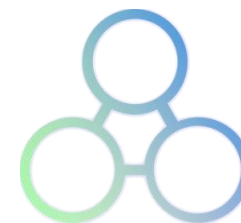
共催：東京大学物性研究所

後援：理化学研究所計算科学研究センター、

計算物質科学人材育成コンソーシアム(PCoMS)



立教大学



ABINIT-MP

# ABINIT-MPプログラムによる フラグメント分子軌道(FMO)計算2

---

望月祐志 (立教大学理学部化学科)

fullmoon@rikkyo.ac.jp

# 謝辞

## ◇現在のABINIT-MPプログラムのコード/ツールの主な関係者(敬称略)

主開発者: 望月祐志、中野達也(RIST)、坂倉耕太(大阪大)  
スクリプト: 奥脇弘次(JSOL/立教大/大阪大)、土居英男(立教大)  
開発支援: 加藤季広(NEC)、佐藤伸哉(NES)、石川岳志(鹿児島大)  
HPC関係: 片桐孝洋(名古屋大)、大島聡史(九州大)、滝沢寛之(東北大)  
応用関係: 福澤薫(大阪大)、田中成典(神戸大)、小沢拓(JSOL)

## ◇これまでの研究開発支援

CISS/HPCIの4プロジェクト; 東大生研&文科省 / FY2002-2015  
FS2020(ポスト「京」)プロジェクト; 東大&文科省 / FY2014-2019  
CRESTプロジェクト(“田中FMO”); JST / FY2004-2009  
科研費(“榊-特定領域”); 文科省 / FY2008-2009  
科研費(基盤B:代表); 文科省 / FY2016-2018  
SFR; 立教大 / FY2006-2007, 2010-2014, 2019-2020, 2022-2024  
NEC様; SX-AT高速化&機能強化の共同開発 / FY2020-2026  
その他企業様からの立教大宛のご寄付と共同研究  
JHPCN課題; 2021-2026 (継続課題)  
「富岳」課題; 2021-2026 (複数:継続課題/機動的課題)

# 内容の流れ

## ・第一回(前回)

フラグメント分子軌道(FMO)法の概要を基本的な式と処理のフローを交えて解説します。具体的には、ハートリーフォック(HF)の後で2次摂動から結合クラスター展開までの相関法までカバーします。また、基本の相互作用エネルギー解析とプロパティ評価の例(少し古いものも含む)をご紹介します。

## ・第二回(今回)

「富岳」登場後、多サンプル構造による統計的な相互作用解析が常態化した**2020年代**の新しい**FMO**計算を最初にご説明しますが、**AI for Science**の文脈に即した内容も含めます。その後、**NIS**の**GPU**搭載サブシステムや「富岳NEXT」を意識した**GPU**対応の現況をご紹介します。また、マルチスケールシミュレーション手法、量子シミュレーションへの接続についてもお話します。

# FMO計算の発展をまとめた本

2021年1月刊行 / 続編は2027年春に刊行予定

springer.com/gp/book/9789811592348

Springer

Search

Home Subjects Services Springer Shop About us

» Chemistry » Theoretical and Computational Chemistry

© 2021

**Recent Advances of the  
Fragment Molecular Orbital  
Method**

Enhanced Performance and Applicability

Editors: **Mochizuki, Yuji, Tanaka, Shigenori, Fukuzawa, Kaori** (Eds.)

Compiles a number of realistic and illustrative applications with color figures

» see more benefits

Buy this book

▼ eBook **96,29 €**  
price for Spain (gross)

Buy eBook

- ISBN 978-981-15-9235-5
- Digitally watermarked, DRM-free
- Included format: PDF, EPUB
- ebooks can be used on all reading devices
- Immediate eBook download after purchase

▶ Hardcover **124,79 €**

VISA MasterCard AMERICAN EXPRESS PayPal INVOICE

» FAQ » Policy

# 東京化学同人さんの「現代化学」に連載中

2026年4月号～2027年3月号

12回連載タイトル「生体分子のための実用的電子状態計算ツール」



概説、最近のMD-FMO計算等



FMO法の計算スキーム、GPU化等

# ABINIT-MPの全体的開発に関する論文リスト

(赤字: HPC分野の先生方 / 紫字: HPC分野の技術者方)

## ■ 英文

- (1) "Electron-correlated fragment-molecular-orbital calculations for biomolecular and nano systems", S. Tanaka\*, Y. Mochizuki\*, Y. Komeiji, Y. Okiyama, K. Fukuzawa, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **16** (2014) 10310-10344.
- (2) "The ABINIT-MP Program", Y. Mochizuki\*, T. Nakano, K. Sakakura, Y. Okiyama, H. Watanabe, K. Kato, Y. Akinaga, S. Sato, J. Yamamoto, K. Yamashita, T. Murase, T. Ishikawa, Y. Komeiji, Y. Kato, N. Watanabe, T. Tsukamoto, H. Mori, K. Okuwaki, S. Tanaka, A. Kato, C. Watanabe, K. Fukuzawa (pp. 53-67) in *Recent Advances of the Fragment Molecular Orbital Method - Enhanced Performance and Applicability*, ed. Y. Mochizuki, S. Tanaka, K. Fukuzawa (January 2021, Springer).

## ■ 邦文

- (1) "FMOプログラムABINIT-MPの開発状況と機械学習との連携", 望月祐志\*, 坂倉耕太, 秋永宜伸, 加藤幸一郎, 渡邊啓正, 沖山佳生, 中野達也, 古明地勇人, 奥沢明, 福澤薫, 田中成典, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **16** (2017) 119-122.
- (2) "FMOプログラムABINIT-MPのOakForest-PACS上での多層並列化と性能評価", 渡邊啓正\*, 佐藤伸哉, 坂倉耕太, 齊藤天菜, 望月祐志, *J. Comp. Chem. Jpn.* **17** (2018) 147-149.
- (3) "ABINIT-MP Openシリーズの最新の開発状況について", 望月祐志\*, 秋永宜伸, 坂倉耕太, 渡邊啓正, 加藤幸一郎, 渡辺尚貴, 奥脇弘次, 中野達也, 福澤薫, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **18** (2019) 129-131.
- (4) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2020", 望月祐志\*, 坂倉耕太, 渡邊啓正, 奥脇弘次, 加藤幸一郎, 渡辺尚貴, 沖山佳生, 福澤薫, 中野達也, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **19** (2020) 142-145.
- (5) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2021", 望月祐志\*, 中野達也, 佐藤伸哉, 坂倉耕太, 渡邊啓正, 奥脇弘次, 大島聡史, 片桐孝洋, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **20** (2021) 132-136.
- (6) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2022", 望月祐志\*, 中野達也, 坂倉耕太, 渡邊啓正, 佐藤伸哉, 奥脇弘次, 秋澤和輝, 土居英男, 大島聡史, 片桐孝洋, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **21** (2022) 106-110.
- (7) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2023", 望月祐志\*, 中野達也, 坂倉耕太, 奥脇弘次, 土居英男, 加藤季広, 滝沢寛之, 成瀬彰, 大島聡史, 星野哲也, 片桐孝洋, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **23** (2024) 4-8.
- (8) "ABINIT-MPプログラムの現状と今後", 望月祐志\*, 中野達也, 坂倉耕太, 土居英男, 奥脇弘次, 加藤季広, 滝沢寛之, 大島聡史, 星野哲也, 片桐孝洋, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **23** (2024) 85-97.
- (9) "FMOプログラムABINIT-MPの整備状況2025", 望月祐志\*, 中野達也, 坂倉耕太, 土居英男, 奥脇弘次, 福澤薫, 加藤季広, 成瀬彰, 星野哲也, 大島聡史, 滝沢寛之, 中島研吾, 片桐孝洋, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **25** (2026) 7-14.

# MD-FMO連携計算

(水中での構造揺らぎを取り込んで統計的な相互作用解析を行える)

# 最初のMD-FMO連携計算

The Journal of Physical Chemistry A > Vol 112/Issue 10 > Article

Subscribed

Cite Share Jump to Expand

ARTICLE | November 17, 2007

## Ab Initio Fragment Molecular Orbital Study of Molecular Interactions between Liganded Retinoid X Receptor and Its Coactivator; Part II: Influence of Mutations in Transcriptional Activation Function 2 Activating Domain Core on the Molecular Interactions †

Mika Ito, Kaori Fukuzawa, Yuji Mochizuki, Tatsuya Nakano, and Shigenori Tanaka

View Author Information ▾

Open PDF

Supporting Information (1)

- ・ サンプル数は3つ (800 ps, 900 ps, 1000 ps)
- ・ 石川先生の2009年の論文 (PAICS) もあり  
<https://doi.org/10.1002/jcc.21265>

### Abstract

The ab initio fragment molecular orbital (FMO) calculations were performed for retinoid X receptor (RXR) complexes with its ligand 9-cis retinoic acid (9cRA) and steroid receptor coactivator-1 (SRC1) to examine the influence of mutations in transcriptional activation function 2 activating domain core (AF2C) of RXR on molecular interactions between 9cRA liganded RXR and SRC1 coactivator. The RXR-SRC1 interactions in three types of RXR-9cRA-SRC1 complexes, namely, a wild type (WT), a mutant whose Glu453 of AF2C was substituted by Lys (E453K), and another mutant whose Glu456 of AF2C was substituted by Lys (E456K), were compared. Through the comparison of WT, E453K, and E456K, possible causes for a marked decrease in the transcriptional activity of RXR by the mutation of Glu453, which is known as a highly conserved charged residue of AF2C, were discussed. It was quantitatively demonstrated that the strength of the RXR-SRC1 interaction correlates with the degree of the transcriptional activation (WT > E456K > E453K). In E453K, the RXR-SRC1 interaction was substantially reduced by the AF2C-SRC1 repulsive interaction, and the charge transfer (CT) from RXR to SRC1 was also inhibited by the decreased electron donation from AF2C to SRC1. Our findings suggest that the inhibitions of the local RXR-SRC1 interaction via AF2C and of the local CT from RXR to SRC1 via AF2C would be the possible causes for the marked decrease in the transcriptional activity of RXR.

# MD-FMO先行計算例#1 (カルモジュリンとEu(III)の例)

名大のFX-100(「京」と同型機で計算:退役済)



## 部位1

アミノ酸	-386.7
水	-25.9
計	<b>-412.6 ± 15.3 kcal/mol</b> <b>(-245.0 ± 8.3)</b>

(100サンプルの平均値)

## 部位2

アミノ酸	-376.9
水	-29.3
計	<b>-406.2 ± 14.0 kcal/mol</b> <b>(-249.0 ± 8.4)</b>

## 部位3

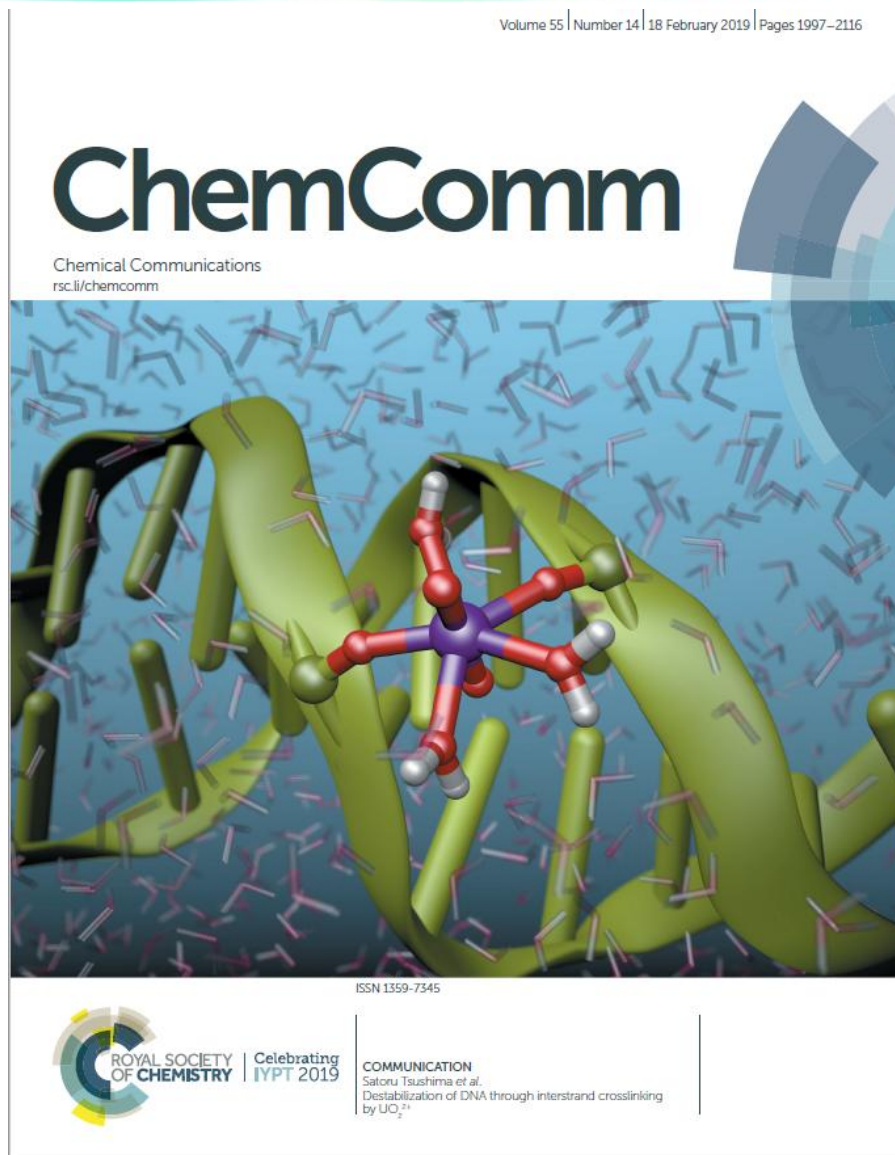
アミノ酸	-307.7
水	-46.8
計	<b>-354.5 ± 14.0 kcal/mol</b> <b>(-213.6 ± 8.0)</b>

## 部位4

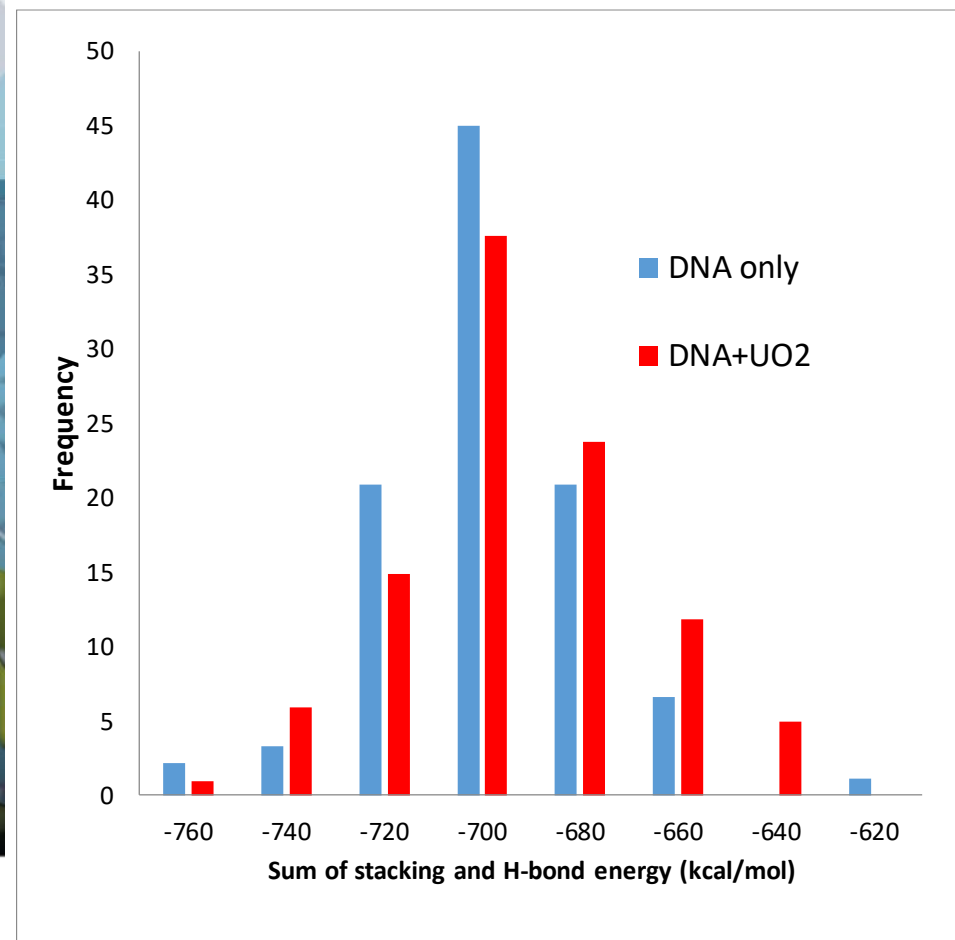
アミノ酸	-384.2
水	-32.3
計	<b>-416.4 ± 12.9 kcal/mol</b> <b>(-250.6 ± 7.7)</b>

# MD-FMO先行計算例#2 (DNAと $UO_2^{2+}$ の例)

名大のFX-100(「京」と同型機で計算:退役済)



ウラニルイオンの結合で安定化が減じる

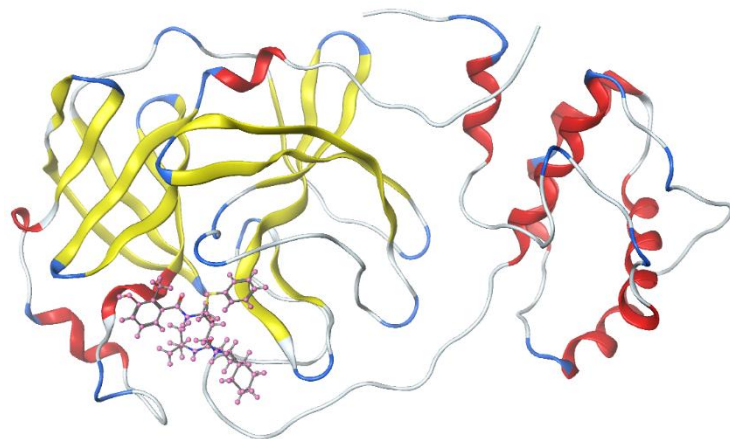


(IFIEの総和として評価)

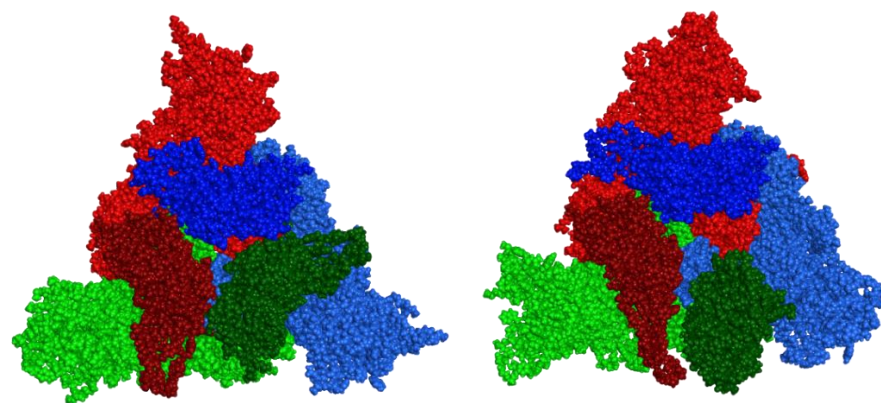
# 2020年度の「富岳」の試行利用(新型コロナ関係)

実行にはVer. 1 Rev. 22を使用

## Mpro - N3複合体の統計的相互作用解析

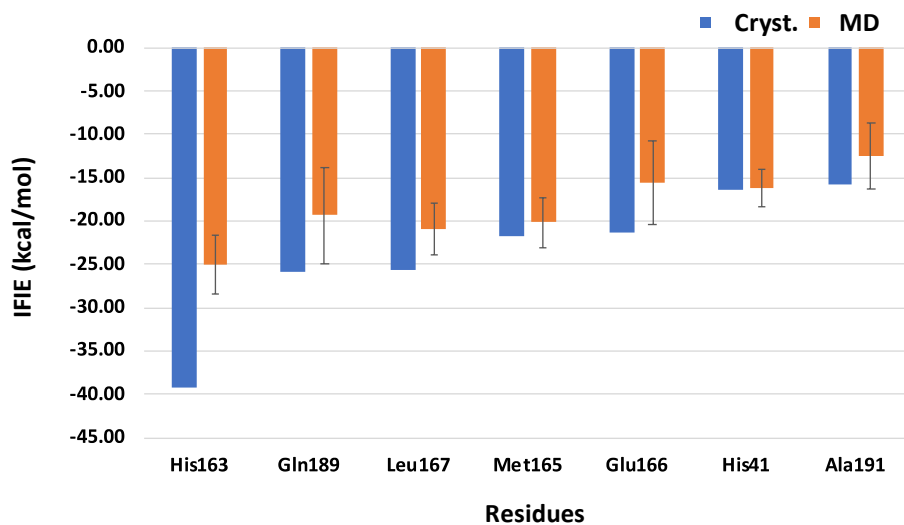
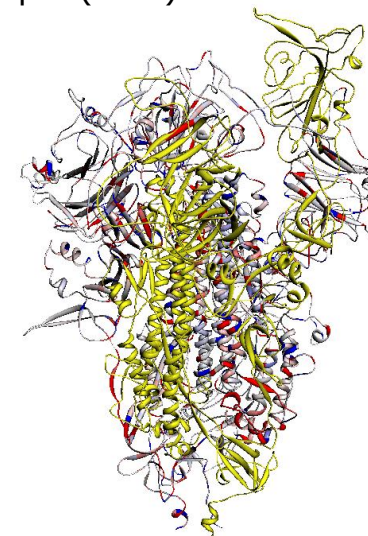
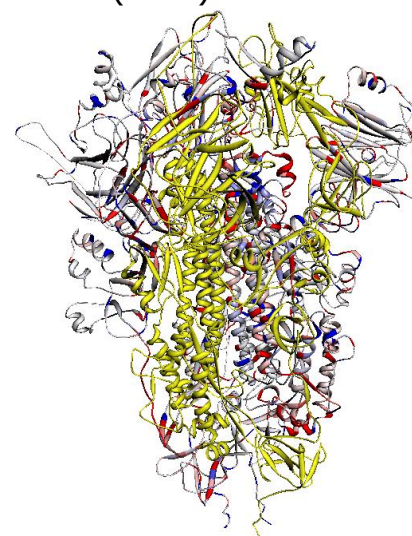


## Sタンパク質の構造2種の大規模計算



Closed (6VXX)

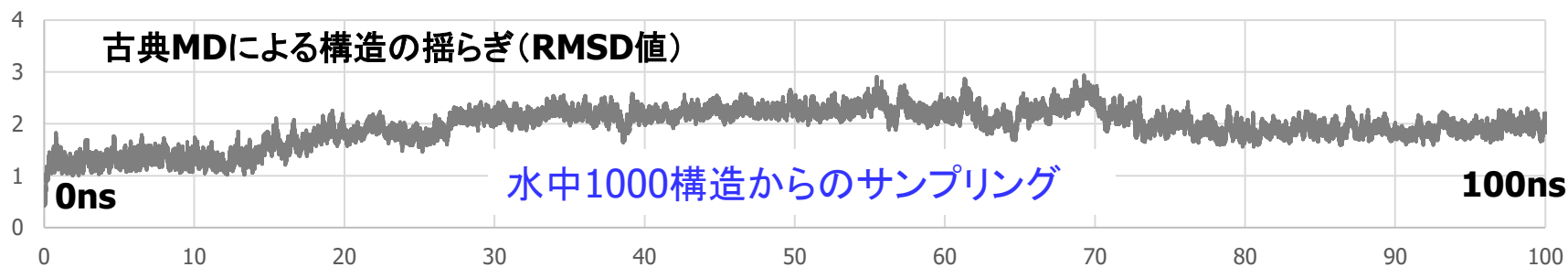
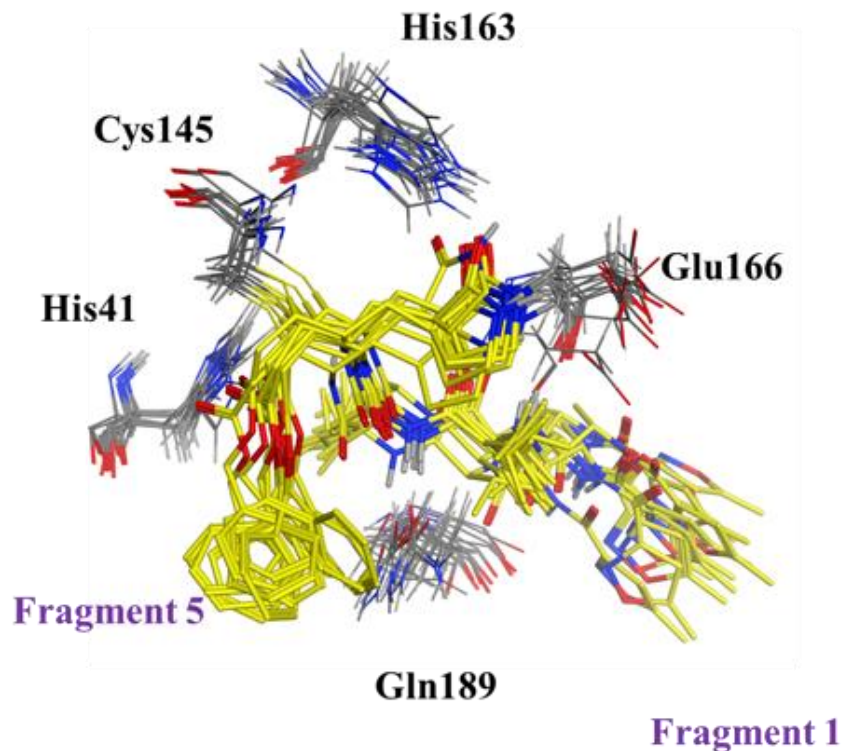
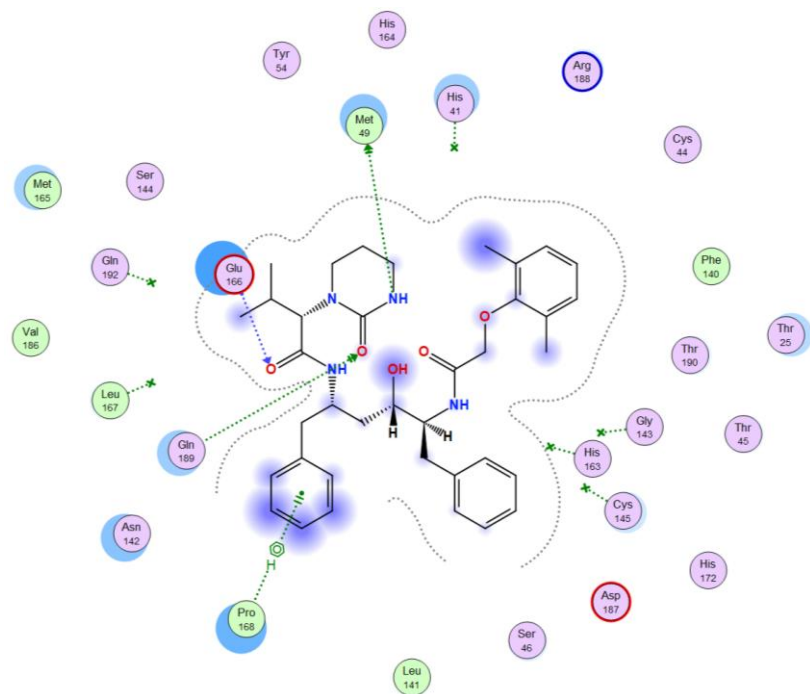
Open (6VYB)



FMO-MP2(PR)/6-31G\* (千サンプル構造)

FMO-MP3/cc-pVDZ (3.3千残基)

# Mpro-N3阻害剤のMDによる構造サンプリング

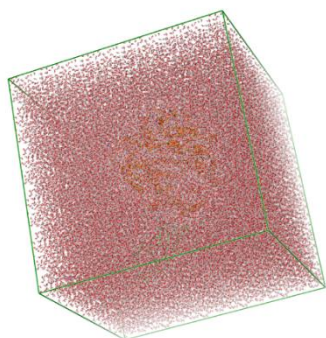


# 「富岳」でのMD-FMO連携計算のワークフロー

100構造サンプルのFMO-MP2計算は容易に可能

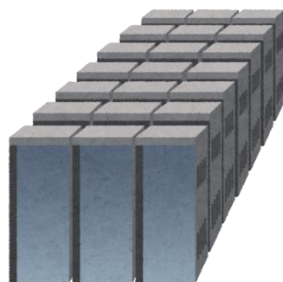
## MD set-up

Force-field setting / Periodic condition



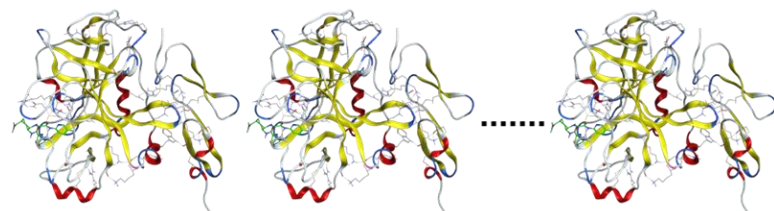
## MD simulation

MD on Fugaku (GROMACS)



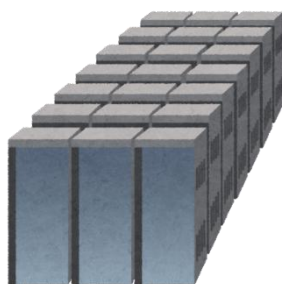
## FMO set-up

Shaping droplet model from 100-200 ns trajectory



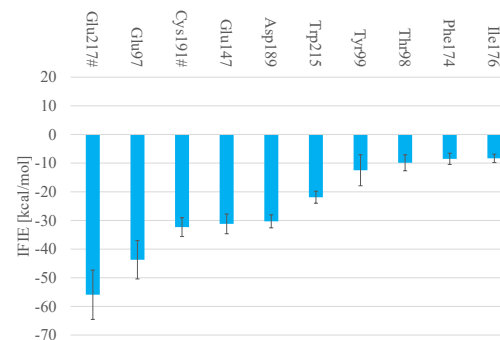
## FMO calculation

FMO on Fugaku (ABINIT-MP)



## Interaction analysis

Dynamically averaged IFIE/PIEDA data



# 水分子のクラスタリングと対イオンの点電荷扱い

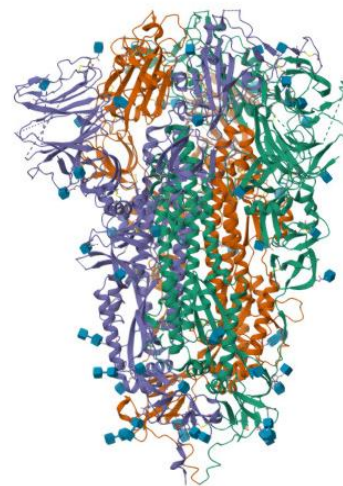
- MD軌跡でタンパク質から4.5Å以内の水/イオンを保持
- 遠方の水分子群をクラスタリング(4-6個)
- イオンは点電荷として扱う(PDB構造から抽出)
- ABINIT-MP本体も点電荷近似用に小改造
- 結果的に完走率は(ほぼ)100%に
- Ver. 2 Rev. 12にてスクリプトをオンデマンドでリリース

```

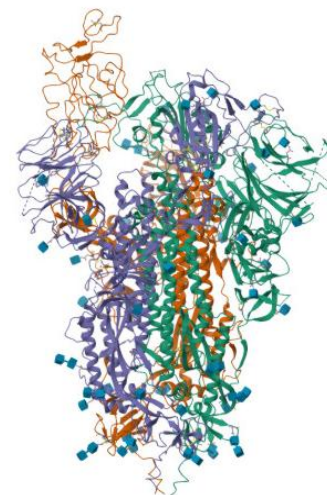
&CNTRL
  ElecState='S1'
  Method='MP2'
  Nprint=3
  Memory=14000
  Natom=0
  CHARGE=-18
  ReadGeom='6xm0-100-200ns-121000ps.pdb'
  MLfraglimit=3426
/
&FMOCNTRL
  FMO='ON'
  NBody=2
  AutoFrag='OFF'
  NF=8077
  PointChargeFile='6xm0-100-200ns-121000ps.txt'
  Ldimer=2.0
  NP=1
  Dimer_es_multipole='YES'
  Ldimer_cmm=5.0
/

```

6XLU



6XM0



```
num_pointcharge= 2334
```

#	atom_num,	chrg,	xyz	
	96097	1	234.178 20.915 222.887	
	96098	1	232.297 224.825 3.839	
	96099	1	6.761 21.636 13.063	
	96100	1	17.861 13.768 51.706	
	96101	1	24.109 10.773 102.311	
	96102	1	4.577 13.323 153.156	
	96103	1	239.695 221.975 187.373	
	96104	1	16.074 17.961 149.855	
	96105	1	1.789 4.986 210.188	
	96106	1	15.426 25.798 223.206	
	96107	1	10.278 17.294 84.552	

```
... Omitted below ...
```

# 大規模液滴モデルの多サンプル処理#1

SHORT COMMUNICATION **OPEN ACCESS**

水和スパイクタンパク質の多構造サンプルが可能に  
液滴中のイオンを点電荷置換で完走率アップ

## Large-Scale FMO-MP2 Calculations of the Spike Protein Droplet Model

Hideo Doi<sup>1</sup>  | Tatsuya Nakano<sup>2</sup>  | Kota Sakakura<sup>3</sup> | Kazuki Akisawa<sup>1</sup> | Koji Okuwaki<sup>1,4</sup>  | Yoshinori Hirano<sup>5</sup>  | Eiji Yamamoto<sup>6</sup>  | Kenji Yasuoka<sup>5</sup>  | Satoshi Ohshima<sup>7</sup>  | Takahiro Katagiri<sup>8</sup>  | Yuji Mochizuki<sup>1,9</sup> 

<sup>1</sup>Department of Chemistry and Research Center for Smart Molecules, Faculty of Science, Rikkyo University, Tokyo, Japan | <sup>2</sup>Department of HPC Support, Research Organization for Information Science and Technology, Kobe, Japan | <sup>3</sup>Foundation for Computational Science, Kobe, Japan | <sup>4</sup>JSOL Corp., KUDAN-KAIKAN TERRACE, Tokyo, Japan | <sup>5</sup>Department of Mechanical Engineering, Keio University, Yokohama, Kanagawa, Japan | <sup>6</sup>Department of System Design Engineering, Keio University, Yokohama, Kanagawa, Japan | <sup>7</sup>Research Institute for Information Technology, Kyushu University, Fukuoka, Japan | <sup>8</sup>Information Technology Center, Nagoya University, Nagoya, Aichi, Japan | <sup>9</sup>Institute of Industrial Science, the University of Tokyo, Tokyo, Japan

**Correspondence:** Yuji Mochizuki ([fullmoon@rikkyo.ac.jp](mailto:fullmoon@rikkyo.ac.jp))

**Received:** 29 November 2024 | **Revised:** 5 January 2025 | **Accepted:** 17 January 2025

**Funding:** This work was supported by Rikkyo SFR, 2022-2023-2024.

**Keywords:** droplet model | FMO | fragment molecular orbital method | MP2 | second-order Møller-Plesset perturbation | spike protein | supercomputer Fugaku

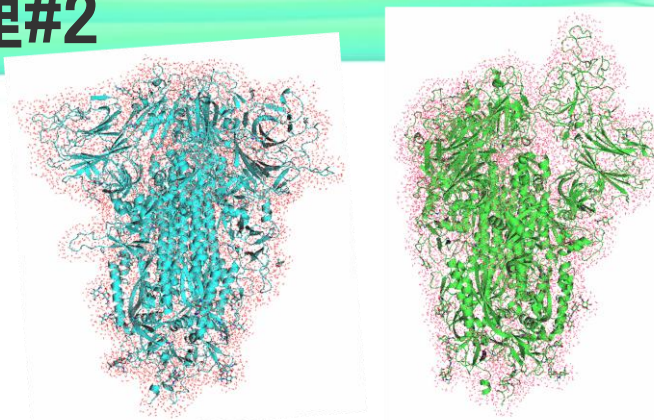
### ABSTRACT

The spike protein of SARS-CoV-2 is a challenging target for theoretical approaches. Here we report a benchmark calculation of the spike protein droplet model by the fragment molecular orbital (FMO) at the second-order Møller-Plesset perturbation (MP2) level on the supercomputer Fugaku. One hundred structure samples from molecular dynamics (MD) simulations were used for both the closed and open forms of this protein (PDB IDs 6XLU and 6XM0 respectively). The number of total fragments is about 20,000, and the job time per structure was about 2 h on 8 racks of Fugaku.

## 大規模液滴モデルの多サンプル処理#2

6XLU (closed)

6XM0 (open)



- ・Ver. 2 Rev. 8改とPythonスクリプトを使用
- ・2026年春時点で世界最大規模のFMO-MP2計算
- ・イオンの点電荷近似の方がイオン無よりベター
- ・cc-pVDZ基底での計算も完走を確認

計算時間(秒)	6XLU				6XM0			
	pnt. chg.		w/o ion		pnt. chg.		w/o ion	
	average	st. dev.	average	st. dev.	average	st. dev.	average	st. dev.
Monomer HF	3561.1	736.2	5075.2	903.0	3481.1	694.8	3569.2	643.7
Monomer MP2	15.7	0.3	22.4	1.1	15.7	0.4	16.2	0.2
Monomer (Total)	3670.9	736.2	5164.7	904.5	3595.0	694.9	3626.5	643.7
Dimer-ES	282.1	15.8	663.5	5.9	292.5	14.4	663.6	6.1
Dimer HF	824.1	47.4	1596.6	145.3	855.5	61.7	919.0	63.0
Dimer MP2	350.4	29.8	416.3	44.6	343.7	46.4	358.6	46.0
Dimer (Total)	2971.7	46.6	4174.5	152.4	3074.7	55.1	3365.9	79.4
FMO (Total)	6642.6	739.3	9339.2	959.3	6669.7	708.4	6992.4	641.1

Dimerステップの「謎時間」を減らすことは今後の(喫緊の)課題

## 大規模液滴モデルの多サンプル処理#3

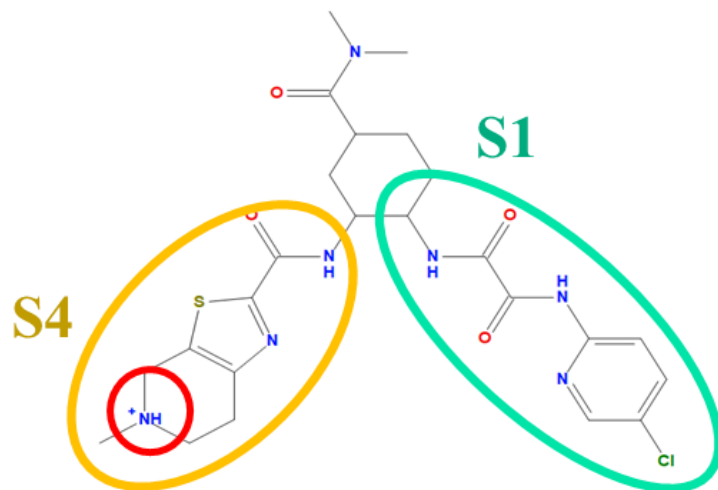
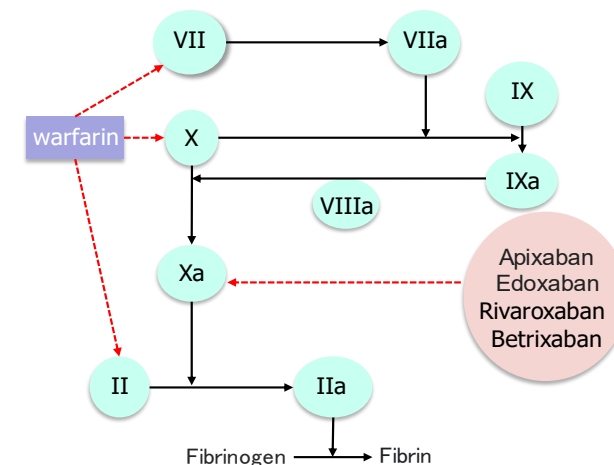
タンパク質鎖  
間エネルギー

	Chain pair	MP2 average	st. dev.	MP2(PR) average	st. dev.	(Trials)
6XLU	Li(I) ion					(85/101)
	A-B	-1626.9	230.0	-1599.9	230.5	
	A-C	-1981.8	276.9	-1954.4	276.9	
	B-C	-1975.1	185.9	-1947.0	185.7	
	pnt. chg.					(101/101)
	A-B	-1636.1	221.8	-1608.9	222.3	
	A-C	-1972.3	264.0	-1945.2	264.0	
	B-C	-1952.4	207.8	-1924.3	207.6	
	w/o ion					(96/101)
	A-B	-1829.3	180.7	-1802.2	180.6	
	A-C	-2032.7	246.8	-2005.6	246.8	
	B-C	-2029.3	190.4	-2001.2	190.0	
6XM0	pnt. chg.					(100/101)
	A-B	-1583.3	140.3	-1558.0	139.8	
	A-C	-1829.5	213.3	-1804.6	212.9	
	B-C	-1438.0	166.6	-1415.9	166.3	
	w/o ion					(99/101)
	A-B	-1676.5	147.0	-1651.2	146.3	
	A-C	-1892.0	213.5	-1867.1	213.0	
	B-C	-1462.3	169.4	-1440.3	169.1	

イオン無しの扱いは好ましくない  
(特に6XLU)

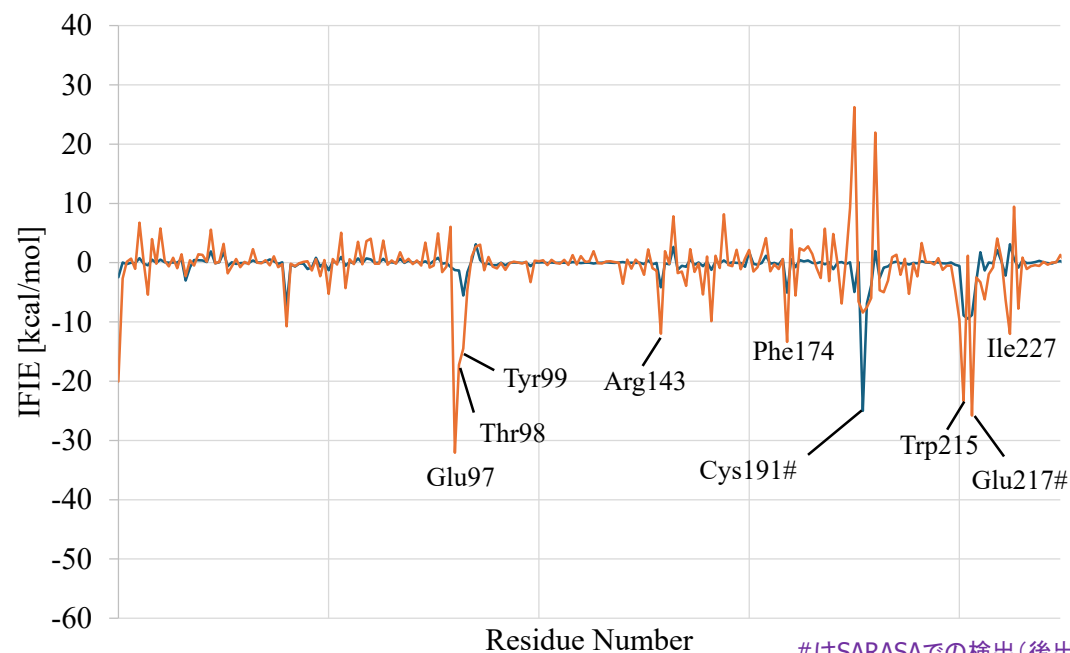
# 血液凝固のXa因子の阻害剤の計算例

- ・ 新型コロナウイルス感染時の血栓形成による重症化懸念
- ・ Xa因子阻害剤に注目 (Ref.; A. Chandra et al., *Postgrad. Med. J.* 98 (2022) 395.)
- ・ 4種の阻害剤は経口投与が可能
- ・ Xa因子-阻害剤の複合体をMM-MD/FMO連携計算で解析
- ・ Xa因子のS1とS4領域の結合の仕方、荷電状態も比較
- ・ 重要残基の特定、相互作用様態の判別を実施



Edoxaban(N+)

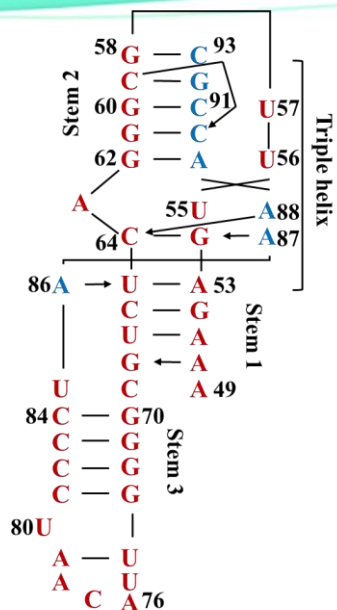
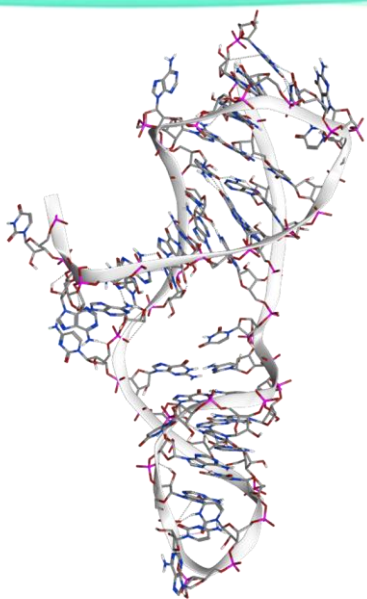
(末端6員間のNがプロトン化)



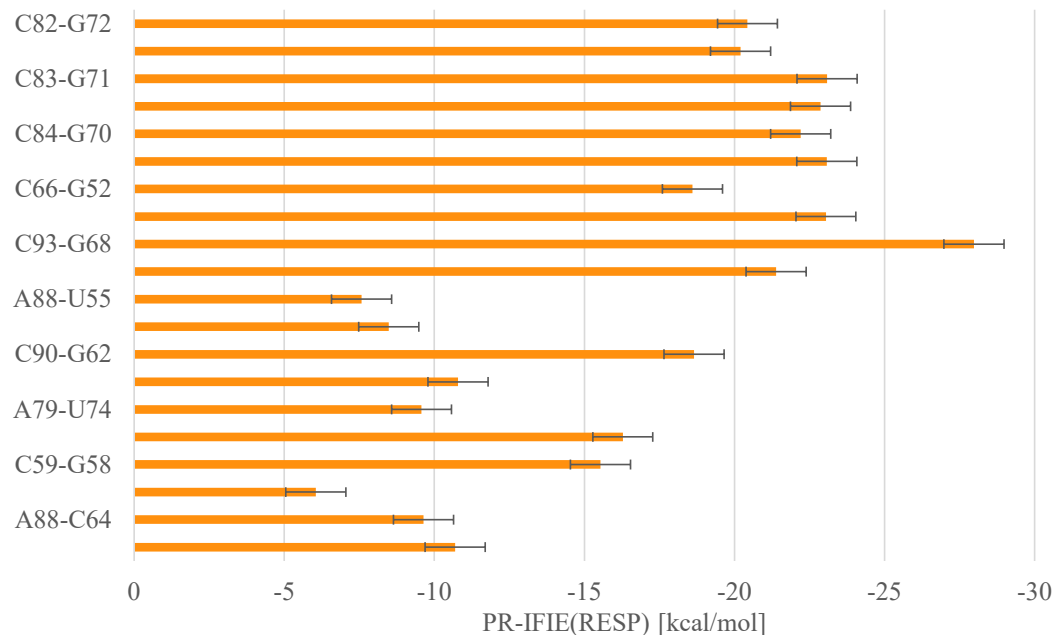
#はSARASAでの検出(後出)

— Edoxaban(N) — Edoxaban(N+)

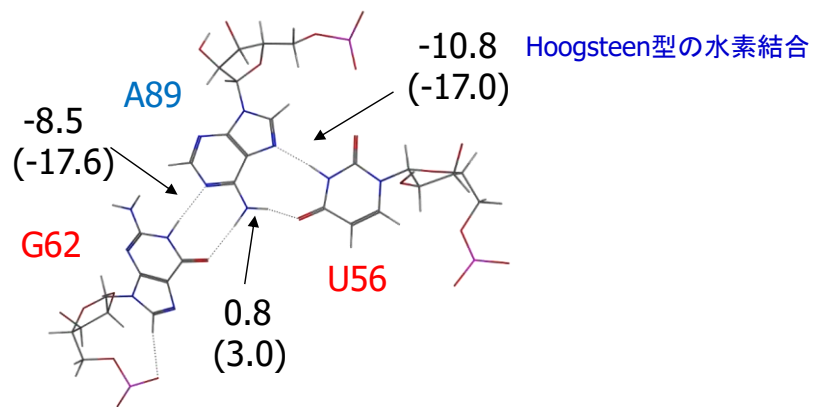
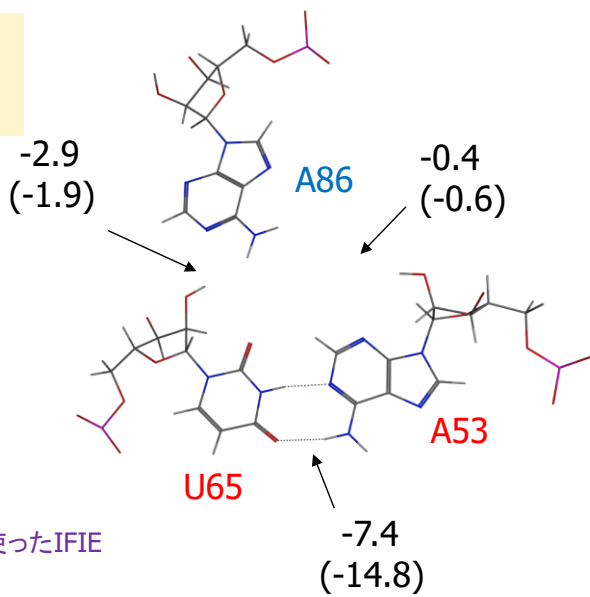
# CRISPR-CAS9の計算例：三本鎖部分のまとめ



ES(RESP)で置換した値でプロット



DNA/RNA/タンパク質の複合体を分割



Hoogsteen型の水素結合

カッコ内はESの値を使ったIFIE

# 蚊の虫除け剤の計算例

JOURNAL ARTICLE

## FMO-based interaction analysis on DEET/icaridin—AgamOBP1 complex

Kazuki Akisawa, Yurina Sakuma, Akiko Tsukamoto, Hideo Doi, Koji Okuwaki, Yoshinori Hirano, Eiji Yamamoto, Kenji Yasuoka, Yuji Mochizuki ✉ [Author Notes](#)

*Chemistry Letters*, Volume 54, Issue 2, February 2025, upaf030,

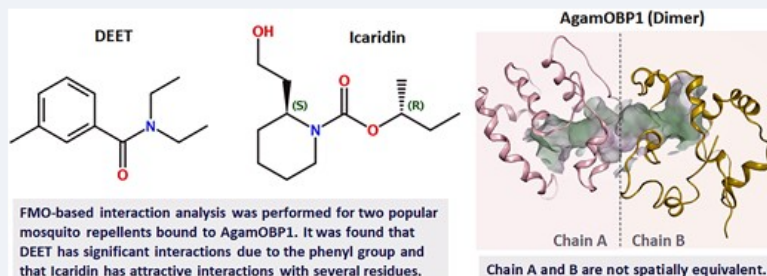
<https://doi.org/10.1093/chemle/upaf030>

**Published:** 14 February 2025 [Article history](#) ▼

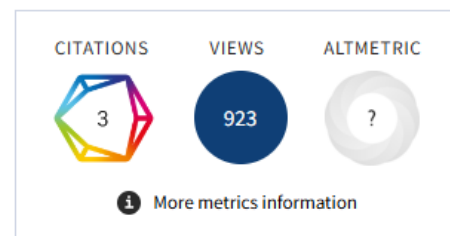
PDF Split View Cite Permissions Share ▼

### Abstract

We performed statistical interaction analysis using fragment molecular orbital calculations on the droplet models of complexes formed between 2 popular mosquito repellents (N,N-Diethyl-3-methylbenzamide (DEET) and icaridin) and the target odorant binding protein of *Anopheles gambiae* (AgamOBP1). These structure sets were generated by molecular dynamics simulations, taking into account structural fluctuations under hydration. The different binding situation for the 2 repellents was revealed; the phenyl ring with  $\pi$ -electrons plays a leading role for DEET, whereas multiple attractive interactions are involved for icaridin.



## 2つの薬剤の結合様態の差を解析



### Email alerts

New journal issues

New journal articles

Activity related to this article

[Sign up for marketing](#)

### Related articles in

[Web of Science](#)

[Google Scholar](#)

### Citing articles via

[Web of Science \(2\)](#)

[Google Scholar](#)

**Latest** | **Most Read** | **Most Cited**

# タンパク質と $\text{UO}_2^{2+}$ 複合体の計算例

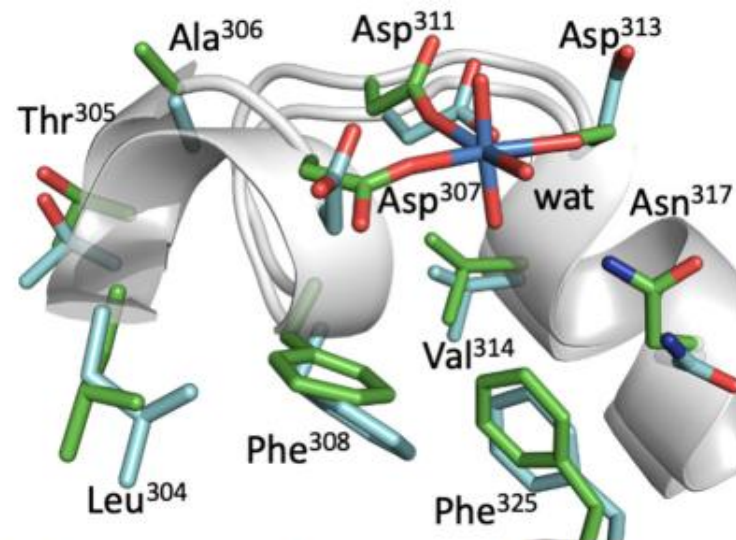
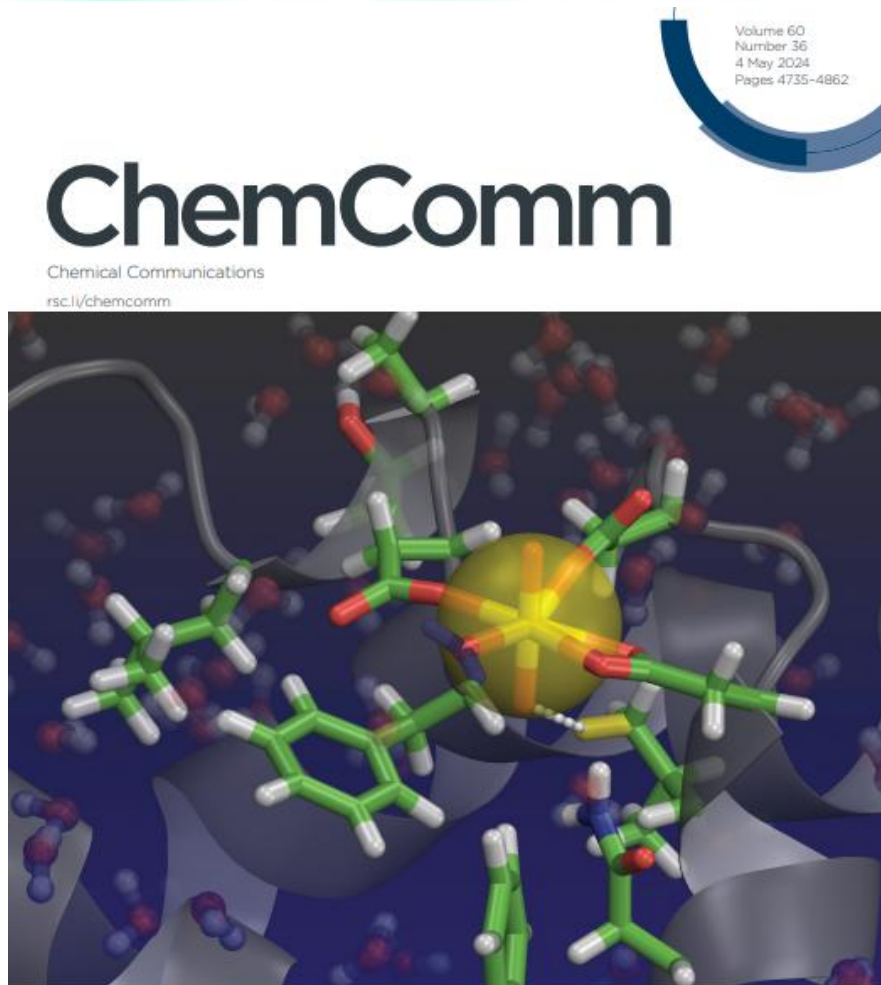


Fig. 3 Overlay of representative structures of BSA with (light green) and without (light blue) uranyl(vi). The side chains of the uranyl-interacting residues are highlighted as sticks, while the secondary structures of the protein are shown as ribbons.

Table 1 Inter-fragment interaction energy (IFIE) between uranyl(vi) and major residues in its vicinity as obtained by FMO calculations at the  $\text{MP}_{2.5}$  level as well as associated inter-fragment distances. Mean values from 100 structures as well as standard deviations are shown

	Distance (Å)		IFIE (kcal mol <sup>-1</sup> )	
	Mean	s.d.	Mean	s.d.
Leu <sup>304</sup>	8.79	0.73	-9.6	1.4
Thr <sup>305</sup>	7.82	0.50	-10.8	2.1
Ala <sup>306</sup>	7.65	0.29	-10.2	1.7
Asp <sup>307</sup>	2.19	0.04	-350.1	9.9
Phe <sup>308</sup>	2.79	0.19	-26.0	13.2
Asp <sup>311</sup>	2.20	0.05	-327.3	12.9
Asp <sup>313</sup>	2.24	0.06	-350.3	25.0
Val <sup>314</sup>	3.26	0.49	+4.8	8.6
Asn <sup>317</sup>	3.61	0.77	-8.6	42.0
Phe <sup>325</sup>	3.29	0.53	-6.5	1.7

# 前回の補足

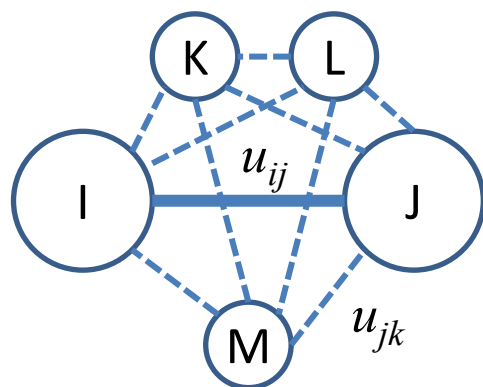
(遮蔽効果の取り込み)

# 統計的な遮蔽効果を入れたIFIE#1

## Statistical correction to effective inter-fragment interaction (SCIFIE)

- SCIFIEは、古典統計力学の多体論的な手法を用いてIFIEからフラグメント間の実効ポテンシャルを求める方法
- IFIEの各要素をエントロピー効果を部分的に含んだ自由エネルギー (Potential of Mean Force) に補正

相互作用エネルギーネットワーク (IFIE:  $u_{ij}$ )



Pair correlation function

$$h_{ij} = e^{-\beta w_{ij}} - 1$$

Ornstein-Zernike relation

$$h_{ij} = c_{ij} + \sum_{k \neq i, j} c_{ik} h_{kj}$$

Percus-Yevick (PY) approximation

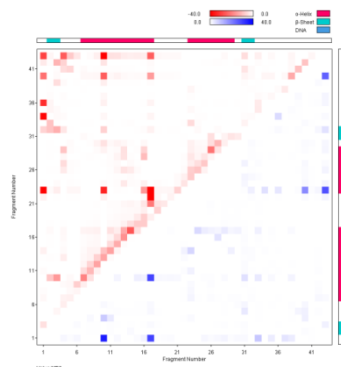
$$c_{ij} = e^{-\beta w_{ij}} + e^{-\beta(w_{ij} - u_{ij})}$$

$u_{ij}$ : IFIE

$w_{ij}$ : フラグメント間の実効ポテンシャル  
 $\beta = 1/k_B T$

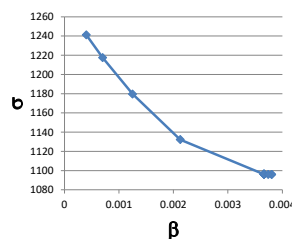
フラグメント間の実効ポテンシャルへ

$$u_{ij} \Longrightarrow w_{ij}$$



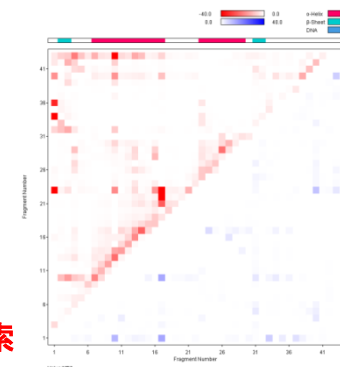
IFIE( $u_{ij}$ )セット

フラグメント間の実効ポテンシャルを  
 最小とするセット(SCIFIE)を探索



$$\sigma = \sum_{i < j} |w_{ij}|$$

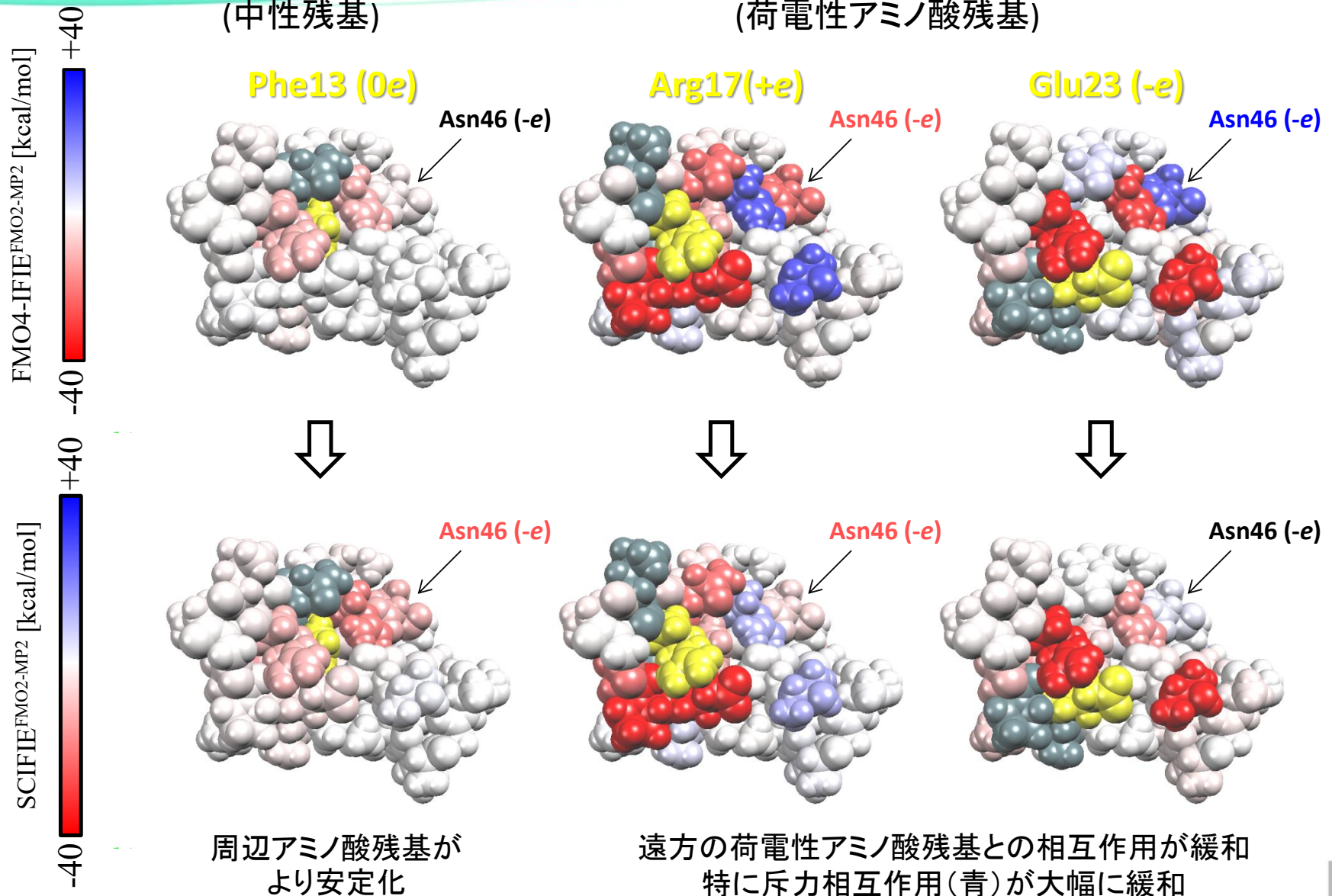
$\sigma$ 最小となる $\beta$ の探索  
 = 最も遮蔽効果のあるSCIFIE探索



SCIFIE( $w_{ij}$ )セット

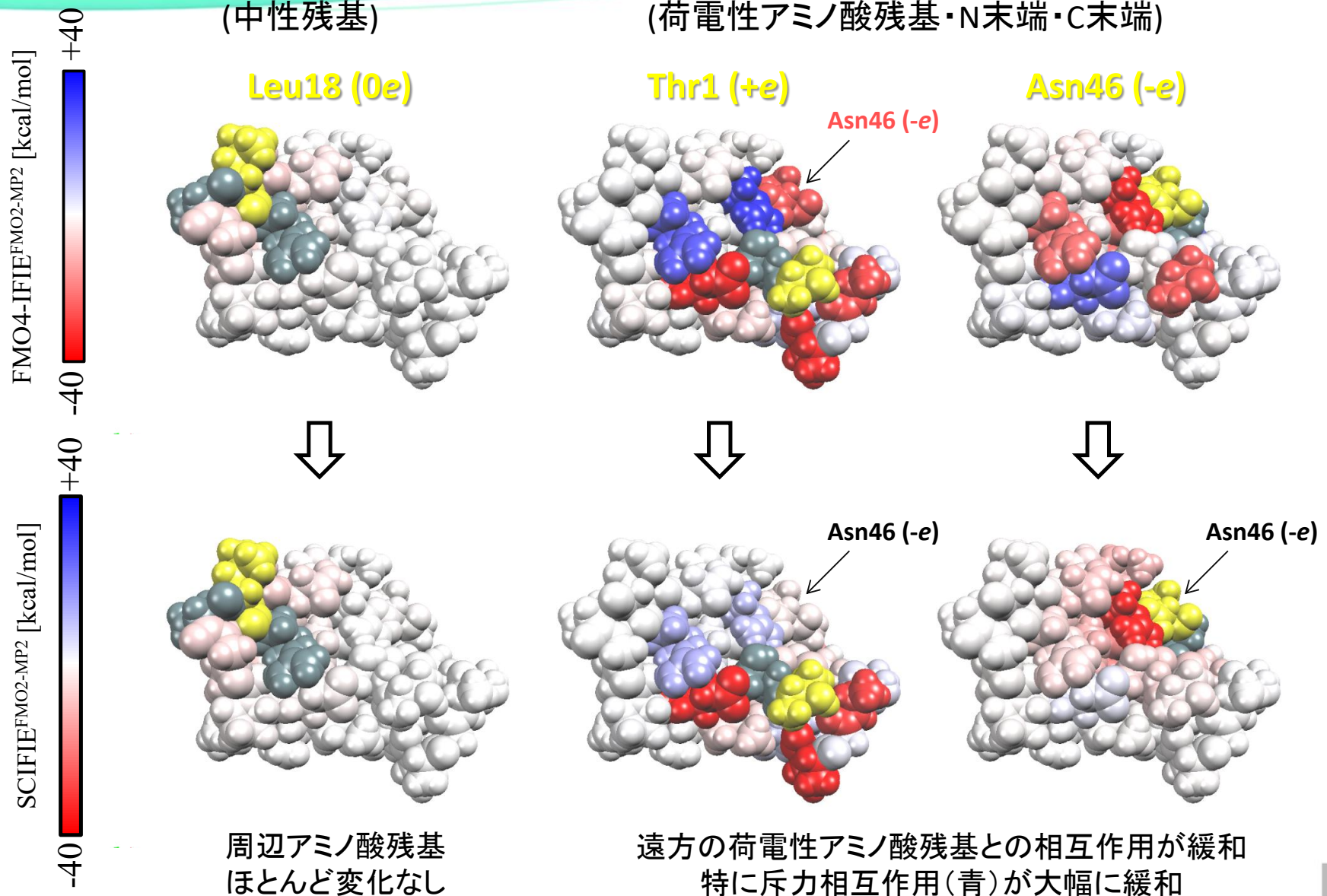
# 統計的な遮蔽効果を入れたIFIE#2

Crambinの例



# 統計的な遮蔽効果を入れたIFIE#3

Crambinの例

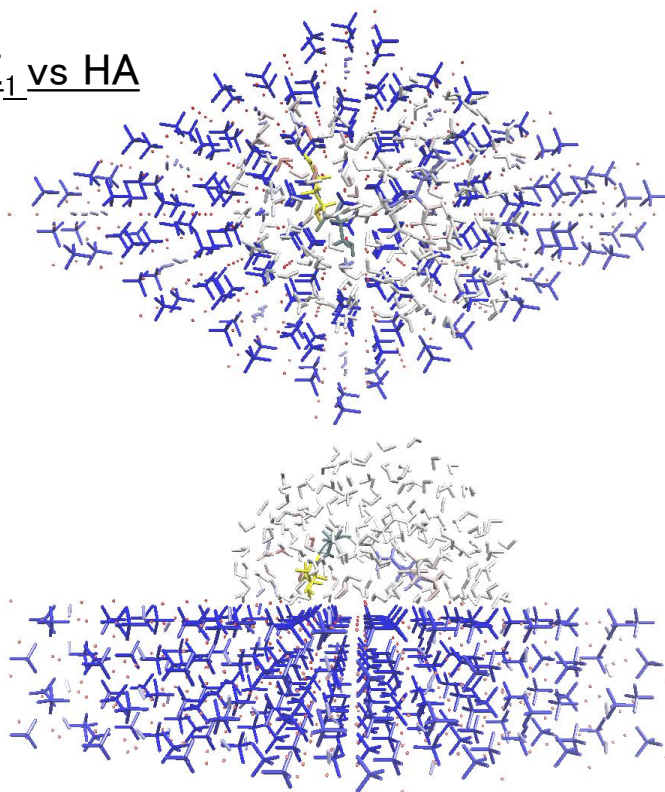


## 統計的な遮蔽効果を入れたIFIE#5

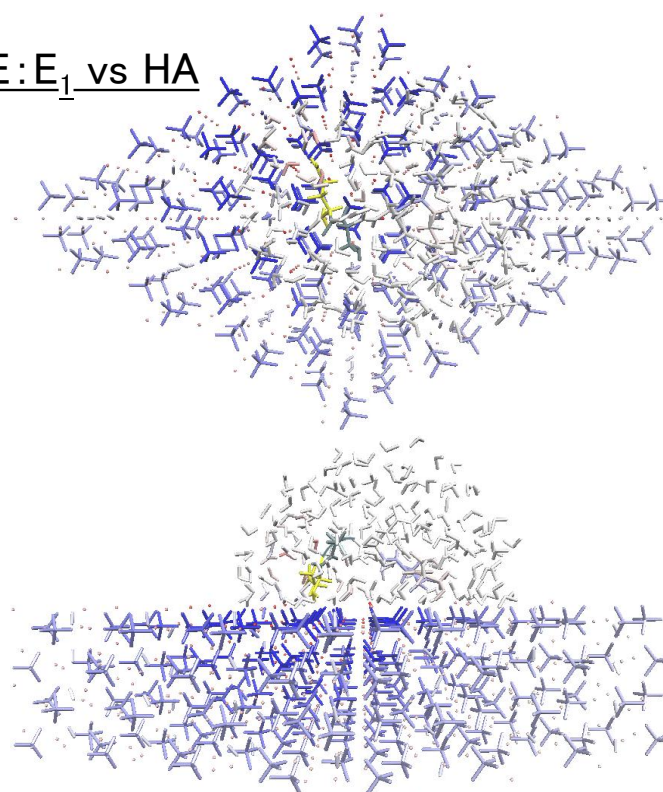
- ・ ヒドロキシアパタイトに吸着する人造ペプチドをFMO4計算で解析 (MDサンプリング有)
- ・ SCIFIEで静電相互作用を緩和、妥当な結果を取得可能に

ESQES: Glu-Ser-Gln-Glu-Ser

IFIE:  $E_1$  vs HA



SIFIE:  $E_1$  vs HA



kcal/mol

50  
(斥力)

(引力)  
-50

# AI for Science (AI4S)文脈での事例

# サロゲートモデルの広がり

Perplexityに「サロゲートモデルを手短に説明してください」とプロンプトを入れて出てきたテキストをそのまま貼りました

サロゲートモデルは、高コストな高忠実度計算の入出力関係を、少数の計算結果から学習して近似する低コストな代理モデルです。推論時には元の計算を直接実行せずに応答を高速予測でき、不確実性評価や検証を併用することで、定量性と信頼性を確保します。

Perplexityに「サロゲートモデルの例を表にしてください」とプロンプトを入れてPDFで出力された結果を貼りました

## ① サロゲートモデルの定義

### 定義と目的

- 高忠実度シミュレーション (HFS) を模倣する軽量の代理モデル
- 計算コストを  $10^2 \sim 10^4$  倍程度削減, 精度を担保

### 主要手法

- 応答曲面法 (RSM)
- ガウス過程回帰 (GPR / クリギング)
- ニューラルネット (MLP, CNN, PINN, GNN)

### 構築の前提

- 訓練データは HFS ランから生成
- 次元圧縮 (POD, PCA) で入出力を低次元化
- アクティブラーニングで効率的サンプリング

## ② HPC ワークフロー統合 (AI-in-HPC)

### パターン 1: オフライン学習

- HFS で大量データ生成 → NN 訓練 → 推論のみ HPC で実行

### パターン 2: オンライン結合 (in-situ)

- シミュレーション実行中にリアルタイム学習・推論
- Fugaku + PyTorch / JAX を MPI 経由で連携

### パターン 3: マルチスケール階層

- 粗視化モデル → サロゲート → HFS の階層的呼び出し

### 主要フレームワーク

- SmartSim / SmartRedis (ORNL)
- Colmena, RADICAL-Cybertools
- DeepMD-kit (MD-NN 統合)

### 通信最適化

- 共有メモリ / インメモリ DB でオーバーヘッドを最小化

## ③ 代表的な適用例

### 流体力学

- 乱流 ML クロージャ (Ling et al., 2016)
- 格子ボルツマン法 + CNN 加速

### 気候・地球科学

- 積雲パラメタリゼーション (Rasp et al., 2018)
- FourCastNet / Pangu-Weather による全球予報

### 電力網

- 最適潮流 (OPF) の GPR 近似
- 系統安定性解析の高速評価

### 材料・量子化学

- エネルギー汎関数 NN (ANI, NequIP)
- FMO-NN によるリガンド結合自由エネルギー推定

### 核・プラズマ

- MHD コードのサロゲートによるトカマク制御

## ④ 実装課題と推奨アーキテクチャ

### 主な課題

- 分布外汎化 (OOD) : 学習範囲外で精度劣化
- 不確実性定量化 (UQ) の実装
- ラベルコスト: HFS データ生成費用
- モデル管理: バージョン管理・再学習サイクル

### 推奨アーキテクチャ

- Ensemble + Bayesian NN で UQ を実装
- Transfer Learning: 類似物理系間で重みを再利用
- Equivariant GNN: 回転・並進対称性を保持
- Operator Learning (FNO, DeepONet)

### 検証手順

- Leave-one-out CV + HFS 検証点による誤差評価
- 物理拘束損失 (質量保存・対称性) をロスに組み込む

# サロゲートモデリングのテスト#1

Japanese Journal of Applied Physics

REGULAR PAPER · OPEN ACCESS

## Prediction of quantitative interaction energy from low-cost FMO calculation by machine learning

Hideo Doi, Ryohei Yoshine, Sota Matsuoka, Koji Okuwaki and Yuji Mochizuki

Published 14 July 2025 · © 2025 The Author(s). Published on behalf of The Japan Society of Applied Physics by IOP

Publishing Ltd

[Japanese Journal of Applied Physics, Volume 64, Number 7](#)

Citation Hideo Doi et al 2025 *Jpn. J. Appl. Phys.* **64** 077001

DOI 10.35848/1347-4065/ade8c5

Article PDF

Authors ▾ Figures ▾ Tables ▾ References ▾

Article information ▾

### Abstract

In our previous report [H. Doi et al., *JJAP* **62**, 070901 (2023)], we presented a machine learning-based approach to reduce the overall cost of fragment molecular orbital (FMO) calculations from which the effective interaction parameters for dissipative particle dynamics are derived. The corresponding protocol has been used in several applications, but in some cases a loss of accuracy has been observed. To address this issue, the additional descriptor based on the low-cost FMO calculation has been introduced and successfully applied to the nitrobenzene-hexane system. Its improved applicability has also been tested for inter-residue interactions of Chignolin.

Article metrics

1295 Total downloads



- ・元は粗視化シミュレーションのFMO計算でのパラメータ算定用
- ・オーソックスにRFを使用
- ・Chignolinの液滴モデル100サンプルでテスト(70で学習)
- ・FMO-MP2相互作用解析の標準の基底関数は6-31G\*
- ・安価な3-21G基底の相互作用エネルギーを記述子に追加
- ・6-31G\*基底は $R^2$ で0.9以上で実用化、コストは1/3
- ・cc-pVDZ基底は改善が必要、コストは1/5
- ・3-21Gはsp関数のみでGPU加速がきわめて有効

1. Introduction

2. List of descriptors

3. Test scheme

4. Results and discussion

5. Conclusions

Acknowledgments

References

[↑ Back to top](#)

# サロゲートモデリングのテスト#2

青字が構造系相互作用パラメータ  $D_{Str}$ .

## ■クーロン相互作用の記述子 $D_q$

$$D_q = \sum \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 r_{ij}}$$

- ・電荷  $q_i$ 、 $q_j$  にはモノマーのRESP電荷を使用

## ■レナード-ジョーンズポテンシャル $D_{LJ}$

$$D_{LJ} = \sum 4\epsilon \left[ \left( \frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right]$$

- ・力場としてGAFF、Gchemical、UFFを使用

## ■原子間距離の記述子 $D_d$

$$D_d = \sum \left( \frac{1}{r_{ij}} \right)^n$$

- ・変数  $n$  として、 $\{3, 4, 5, 6, 8, 10, 12\}$  を使用
- ・原子種  $\{H, C, N, O, P, Si, Cl, Na\}$  で構成されるペア  $\{H-H, H-C, H-N, \dots\}$  で計算

## ■各分子の幾何中心間の距離 $D_c$

## ■各原子種ペアの最近接原子間距離 $D_n$

## ■FMO-MP2/3-21GレベルのIFIE/PIEDA $D_{MP2}$

# サロゲートモデリングのテスト#3

他に構造系のパラメータを5種投入 (RESP電荷、LJなど)  
6-31G(d)はサロゲートモデル化が可能、コスト低減は1/3

$R^2$  のヒートマップ

IFIE / 6-31G(d) /  $D_{Str}+D_{MP2}$

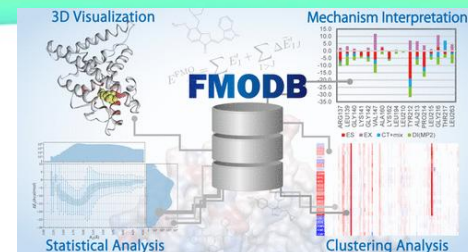
	Asp3	Pro4	Glu5	Thr6	Gly7	Thr8	Trp9	Gly10
Gly1	0.93 (0.05)						0.90 (0.04)	0.89 (0.04)
Tyr2		0.66 (0.06)	0.90 (0.03)		0.65 (0.11)	0.90 (0.03)	0.77 (0.07)	0.93 (0.01)
Asp3			0.95 (0.01)	0.89 (0.07)	0.95 (0.01)	0.89 (0.02)	0.86 (0.05)	0.95 (0.04)
Pro4				0.93 (0.02)	0.88 (0.06)	0.91 (0.02)	0.96 (0.02)	
Glu5					0.85 (0.06)	0.89 (0.07)		
Thr6						0.89 (0.03)	0.93 (0.06)	
Gly7							0.72 (0.07)	
Thr8								0.85 (0.06)

IFIE / cc-pVDZ /  $D_{Str}+D_{MP2}$

	Asp3	Pro4	Glu5	Thr6	Gly7	Thr8	Trp9	Gly10
Gly1	0.88 (0.05)						0.75 (0.04)	0.90 (0.05)
Tyr2		0.45 (0.06)	0.73 (0.07)		0.58 (0.14)	0.84 (0.05)	0.72 (0.09)	0.81 (0.05)
Asp3			0.90 (0.02)	0.89 (0.06)	0.87 (0.06)	0.79 (0.06)	0.73 (0.09)	0.95 (0.04)
Pro4				0.72 (0.05)	0.84 (0.06)	0.86 (0.04)	0.92 (0.02)	
Glu5					0.45 (0.08)	0.87 (0.06)		
Thr6						0.69 (0.09)	0.90 (0.05)	
Gly7							0.11 (0.10)	
Thr8								0.27 (0.15)

# FMODDコンソーシアムのFMODB#1

- 世界初のタンパク質の量子化学計算DB
- 理研(本間G)を中心に阪大・FMODDで共同開発
- **87,239**エントリー(**32,030** PDB)を公開中
- 簡易的にWebインターフェース上でIFIE解析可能
- FMO計算結果一式ダウンロード可能



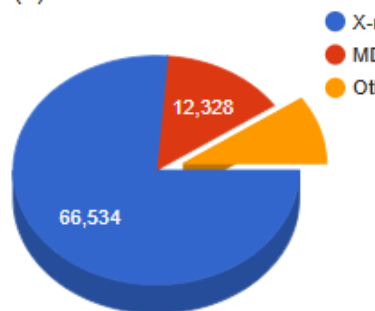
<https://drugdesign.riken.jp/FMODB>

- *FMODB ID*
- *PDB ID*
- *UniProt ID*

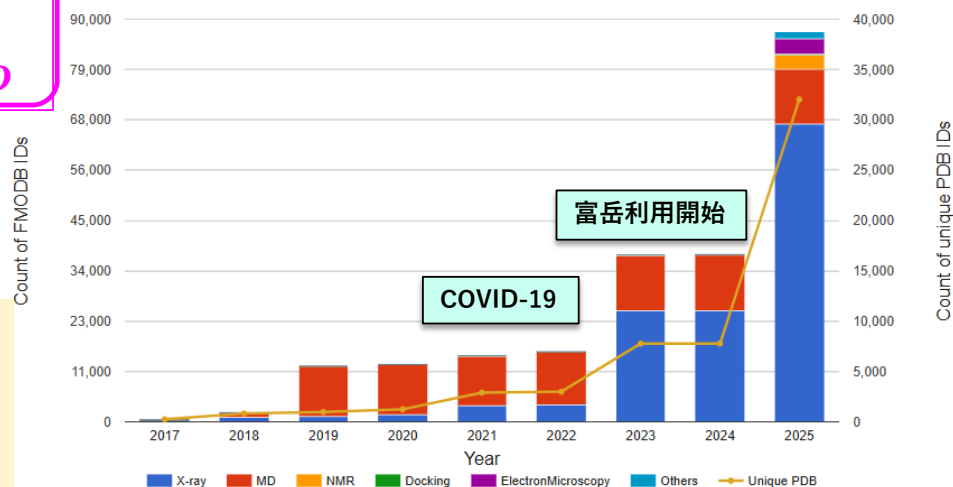
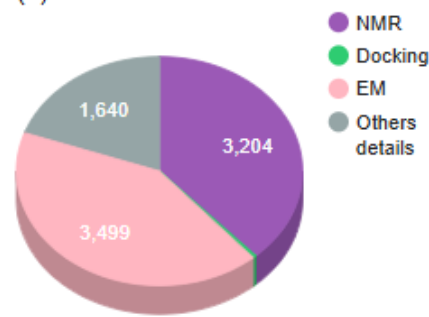
タンパク質基本フォールド : 6,000  
リガンド系 : 5,000  
AlphaFold : 20,000  
複合体 : 収集中(数万)

2026/6/11

(a) Overall Distribution



(b) Breakdown of Others



# FMODDコンソーシアムのFMODB#2

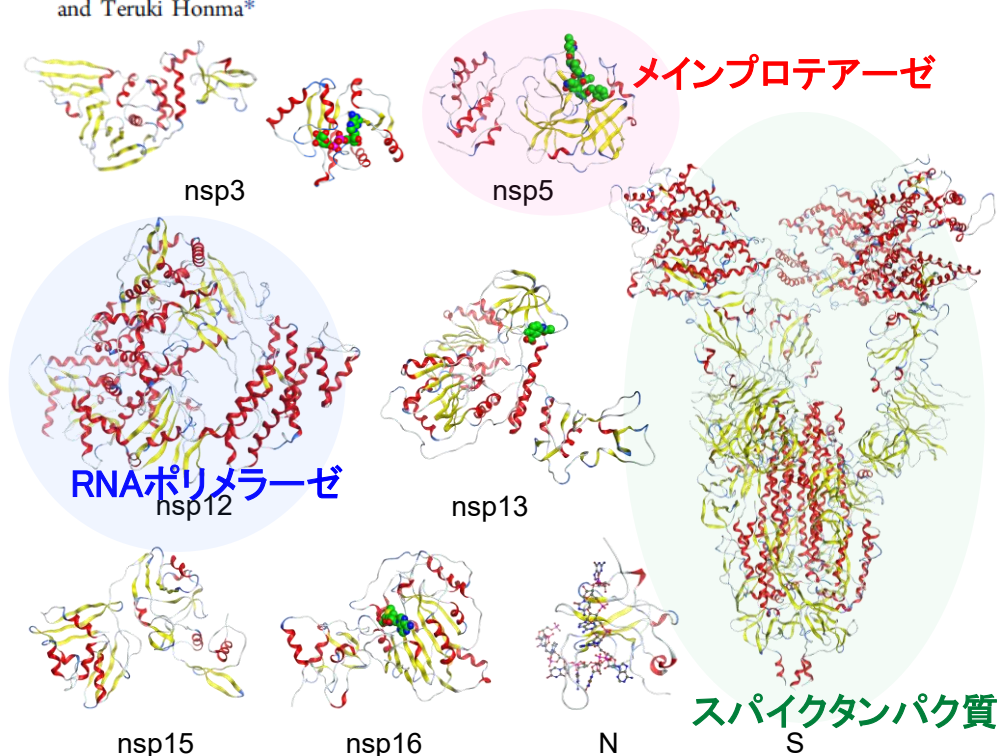


pubs.acs.org/jcim

Article

## Special Features of COVID-19 in the FMODB: Fragment Molecular Orbital Calculations and Interaction Energy Analysis of SARS-CoV-2-Related Proteins

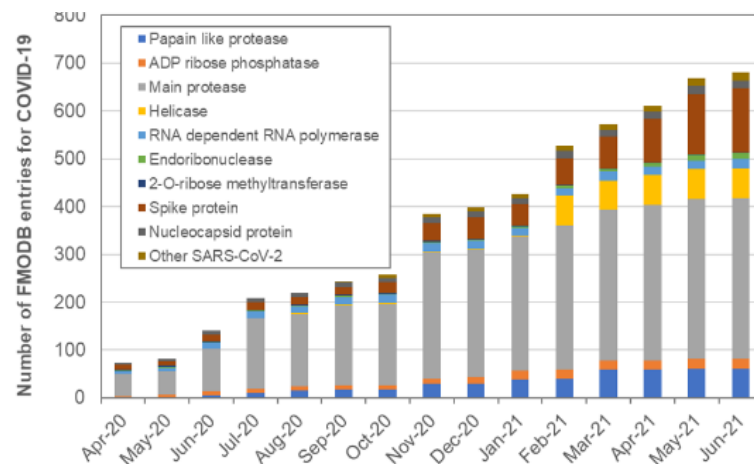
Kaori Fukuzawa,\* Koichiro Kato,\* Chiduru Watanabe,\* Yusuke Kawashima, Yuma Handa, Ami Yamamoto, Kazuki Watanabe, Tatsuya Ohyama, Kikuko Kamisaka, Daisuke Takaya, and Teruki Honma\*



<https://drugdesign.riken.jp/FMODB/>



**PDB公開構造→即FMO計算**  
 FMODBを通じて、全世界に公開  
 2020年3月にプレスリリース



2023年1月時点で、10種類のタンパク質の865個の構造のFMO計算結果を公開

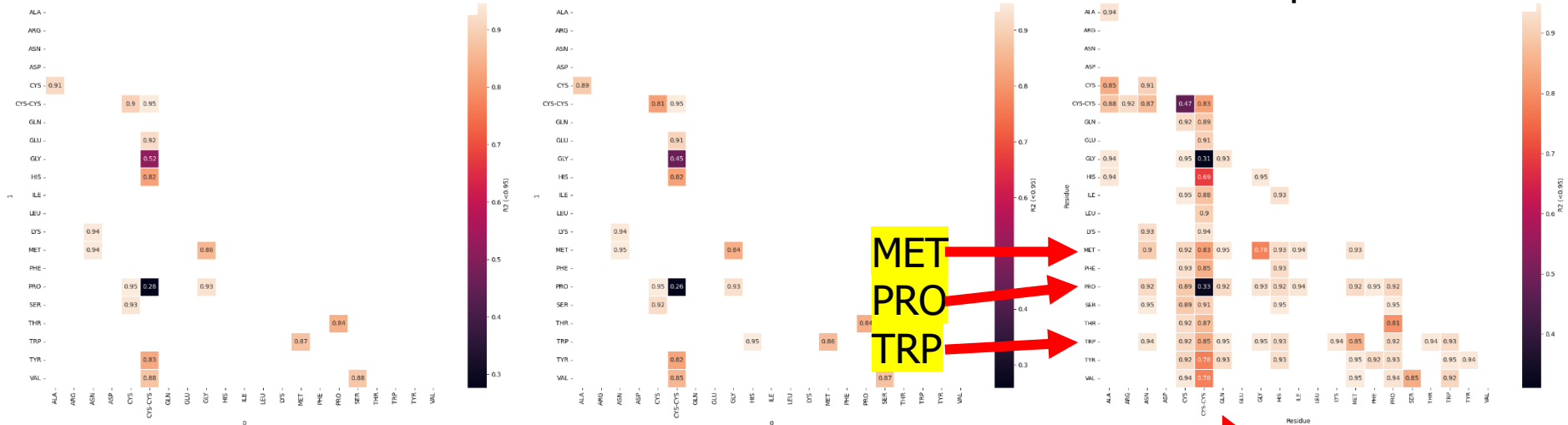
# SCOP2データのサロゲートモデリング

$R^2 < 0.95$ のみ表示

6-31G\*

6-31G\*\*

cc-pVDZ



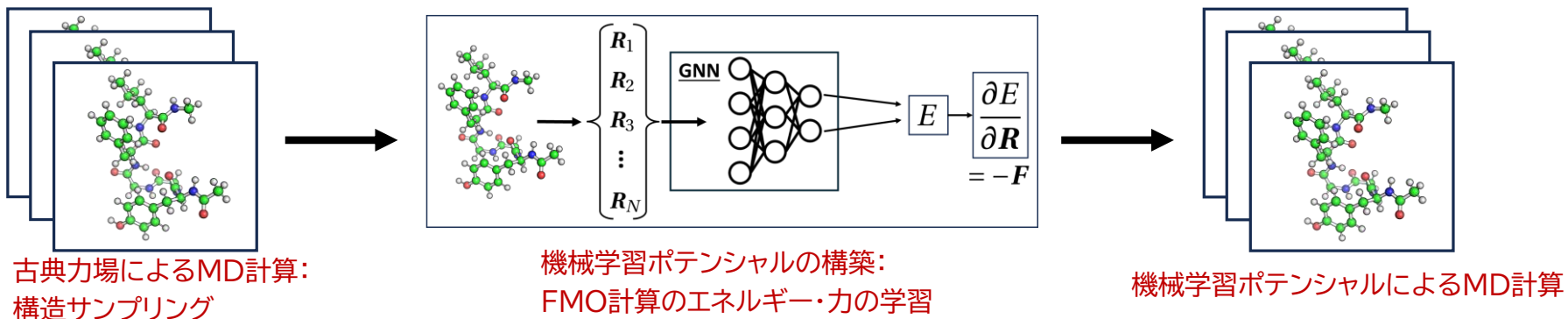
記述子 : 3次元記述子, 3-21Gの計算結果

予測手法: XGBoost

- SCOP2は約5千のタンパク質をカバーするデータセット、それをMP2レベルで計算
- 特定の残基ペアで精度が悪くなっている (CYS\_CYS, CYS, MET, PRO, TRP)
- **GLY**-CYS\_CYS 0.31, **PRO**-CYS\_CYS 0.33, **CYS**-CYS\_CYS 0.47, TYR-CYS\_CYS 0.78
- CYS\_CYS と TYR, CYS, HISの組み合わせのみ非常に悪い
- **3つの組み合わせ以外は  $R^2 > 0.78$**

# FMO力場#1

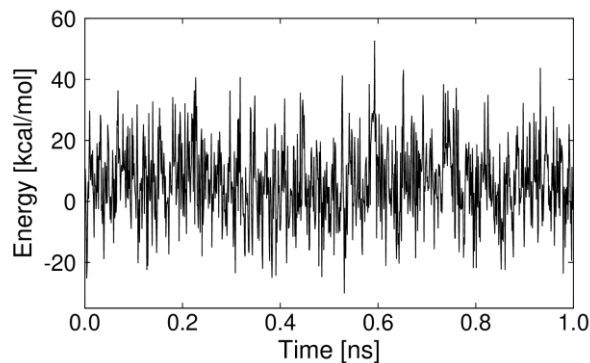
## FMO計算結果とグラフニューラルネットワークを用いたFMO機械学習ポテンシャル(FMO-NNP)の構築



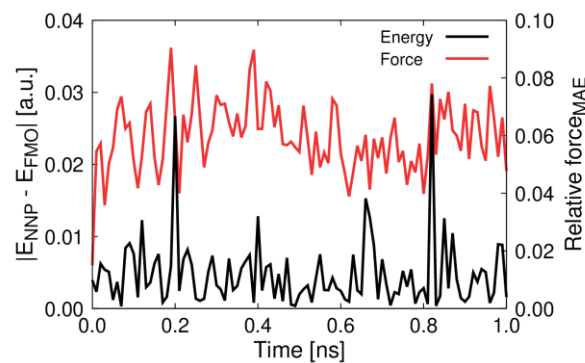
## 結果: ペプチド分子(Lue-enkephalin)の FMO-NNP による分子動力学計算

**FMO計算に匹敵する精度でナノ秒 (ns) 程度の安定的なMD計算が可能に!**

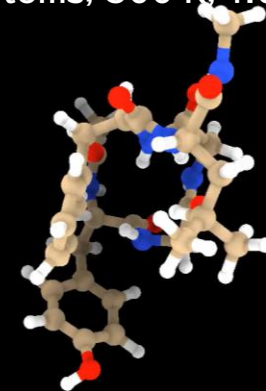
MD計算中のFMO-NNPによるエネルギー



FMOとの比較(E: 0.01 au, F: 5%程度の誤差)



86 atoms, 500 K, 1.0 ns

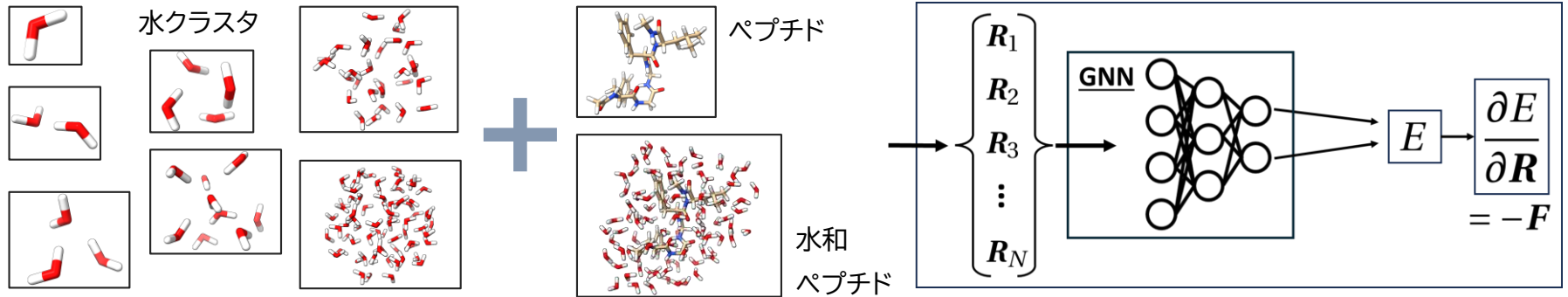


# FMO力場#2

様々な水分子の構造と孤立および水和したペプチド分子構造を学習データとした FMO-NNP の構築

水クラスタと水和ペプチドを含む学習で水中のMD計算を可能に

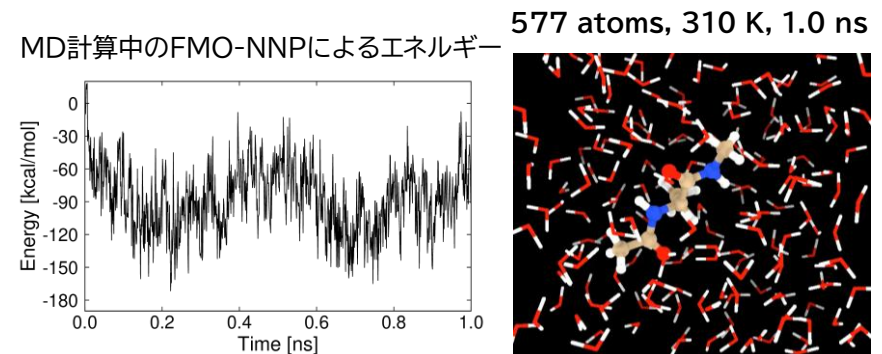
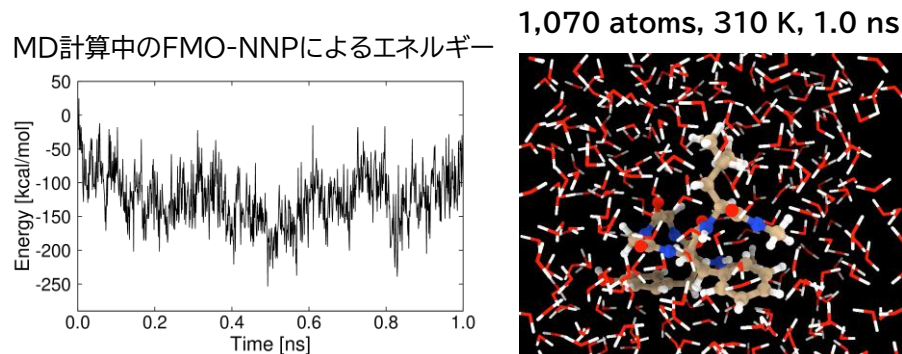
水+ペプチド分子に対する機械学習ポテンシャルの構築



結果: 水中の生体分子系に対する FMO-NNP を利用した分子動力学シミュレーション

水中のLeu-enkephalin: 周期境界条件でのMD計算も可能

水中のアラニンジペプチド: 非学習アミノ酸を含むMD計算



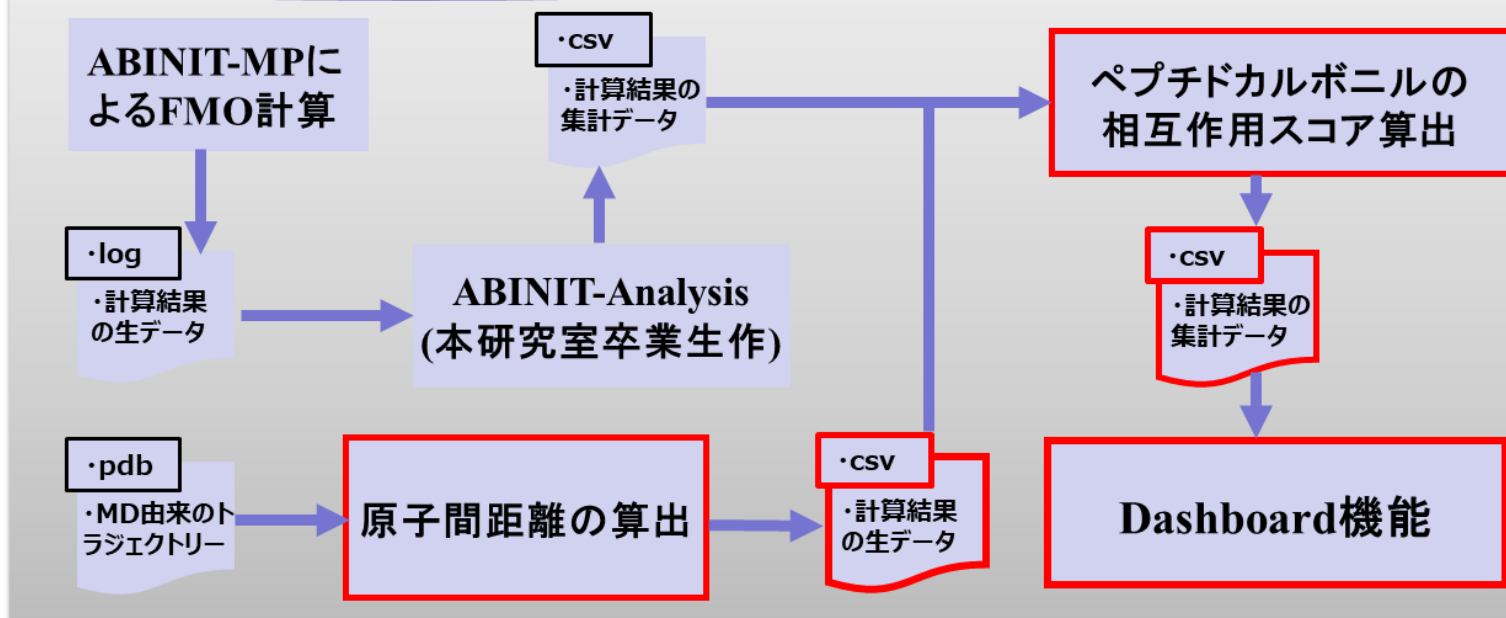
# ペプチド結合>C=O部相互作用の自動検出#1

- 開発言語 : Python 3.9.4
- 本スクリプトで解析をサポートするソフトウェア: ABINIT-MP
- 主な機能

原子間距離の算出、ペプチドカルボニルの相互作用スコアの計算、Dashboardによる可視化、システム名はSARASA

MD-FMO向けツール

## 解析のワークフロー

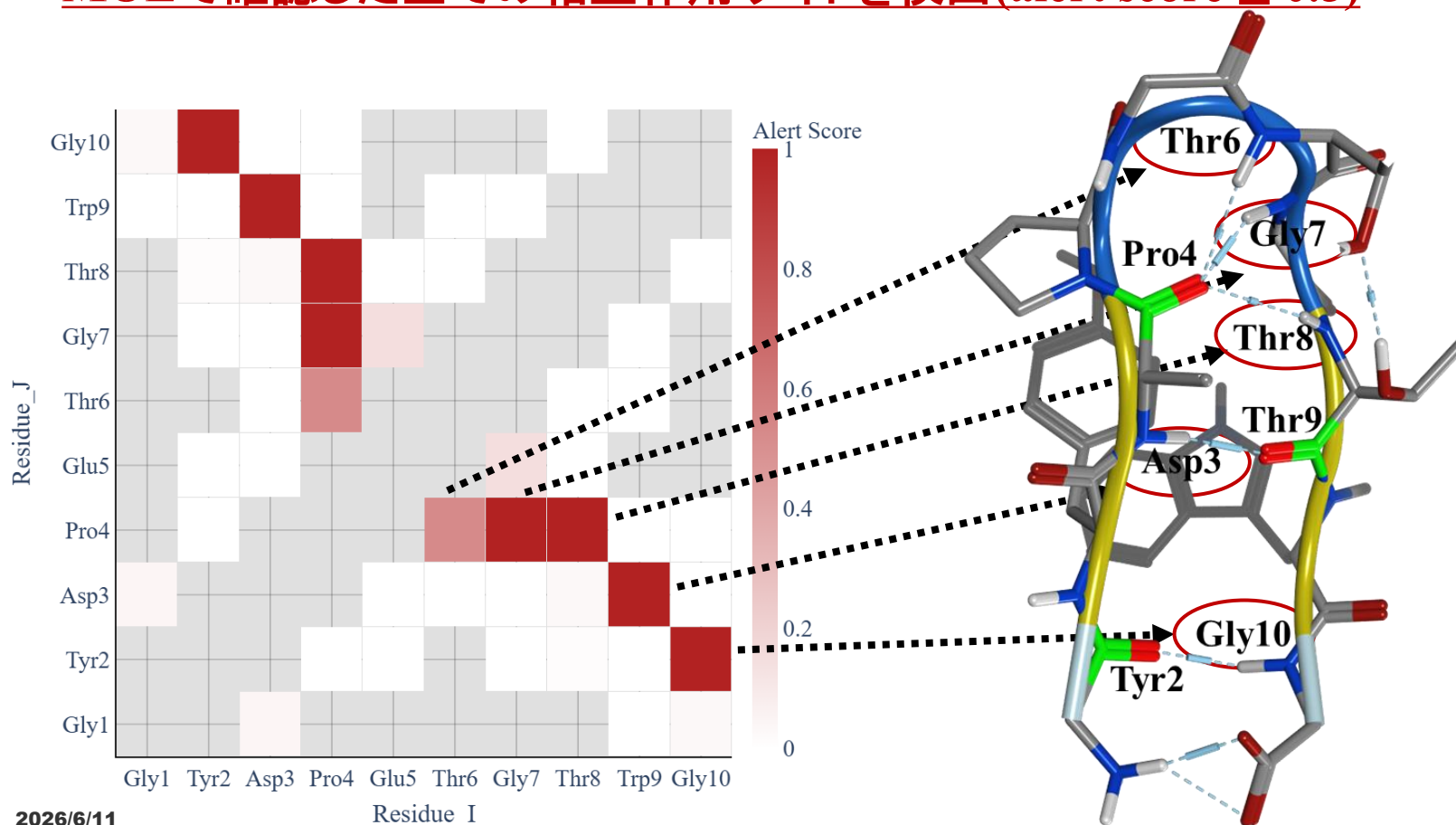


# ペプチド結合>C=O部相互作用の自動検出#2

## ■ MOEによる構造確認と本スクリプトの結果の比較

対角線を基準に対称な位置にあるマス(たとえば (I, J) と (J, I))は、同じ残基ペアのスコアを表しているため同じ値。

**MOEで確認した全ての相互作用サイトを検出(alert score  $\geq 0.5$ )**



# スパイクタンパク質の相互作用テンソル分解(1回目)

2022年の注目論文に選定

LETTER • OPEN ACCESS

## Collective residue interactions in trimer complexes of SARS-CoV-2 spike proteins analyzed by fragment molecular orbital method

Koji Okuwaki, Kazuki Akisawa, Ryo Hatada, Yuji Mochizuki, Kaori Fukuzawa, Yuto Komeiji and Shigenori Tanaka

Published 24 December 2021 • © 2021 The Author(s). Published on behalf of The Japan Society of Applied Physics by IOP Publishing Ltd

[Applied Physics Express, Volume 15, Number 1](#)[Spotlights 2021](#)Citation Koji Okuwaki et al 2022 *Appl. Phys. Express* **15**  
DOI 10.35848/1882-0786/ac4300
 Article PDF

Article metrics

2008 Total downloads



Submit

[Submit to this Journal](#)

Share this article



- ・6VXX(クローズ型)と6VYB(オープン型)の2構造の比較
- ・3本のタンパク質鎖の相互作用テンソルを幾何平均で構築
- ・CP分解で重要情報を抽出

[Authors](#) ▼ [Figures](#) ▼ [References](#) ▼
[Article information](#) ▼

## Abstract

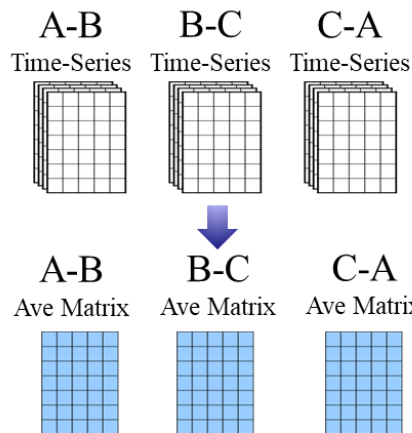
In large biomolecular systems such as protein complexes, there are huge numbers of combinations of inter-residue interactions whose comprehensive analyses are often beyond the intuitive processing by researchers. Here we propose a computational method to allow for a systematic analysis of these interactions based on the fragment molecular orbital calculations, in which the inter-fragment interaction energies are comprehensively processed by the singular value decomposition. For a trimer complex of SARS-CoV-2 spike protein, three-body interactions among residues belonging to three chains are analyzed to elicit a small number of essential interaction modes or networks crucial for the structural stability of the complex.

[Abstract](#)[Supplementary data](#)[Acknowledgments](#)[References](#)[↑ Back to top](#)

# スパイクタンパク質の相互作用テンソル分解(2回目)#1

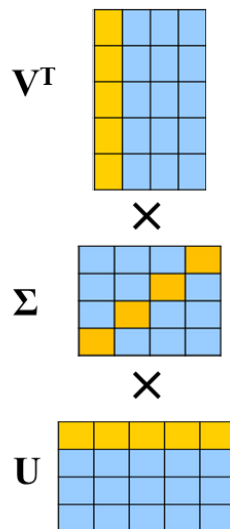
## 時間平均行列の作成

A-B、B-C、C-A各ペアで  
IFIEの時系列テンソルから  
時間平均行列を作成



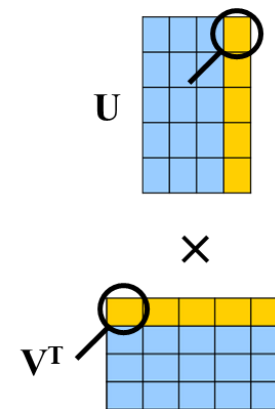
## 特異値分解 (SVD) を実行

モードΣと寄与( $V^T$ ,  $U$ )に分解

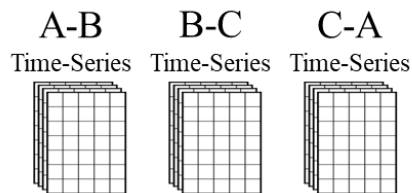


## 主要残基の選出

上位10モード、10残基を  
選出



時系列テンソルの再構成  
選出した主要残基のみから  
なる時系列テンソルを作成



三体相互作用テンソル(4階)の作  
成とCP分解

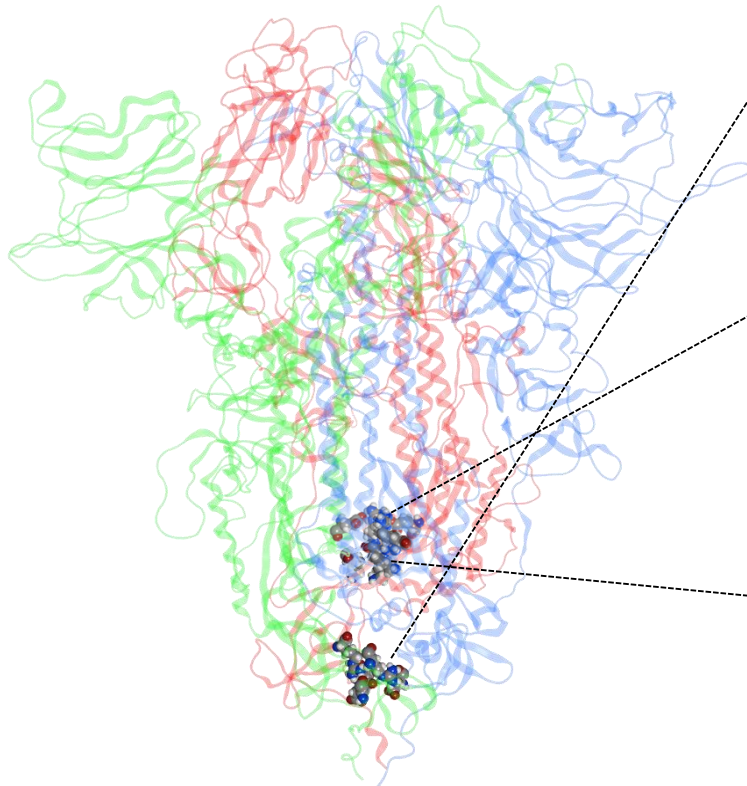
二体相互作用 $E_{ijt}$ ,  $E_{jkt}$ ,  $E_{kit}$ から  
$$E_{ijkt} = (E_{ijt} \cdot E_{jkt} \cdot E_{kit})^{1/3}$$

で三体相互作用を算出。この三  
体相互作用テンソルに対してCP  
分解を適用。

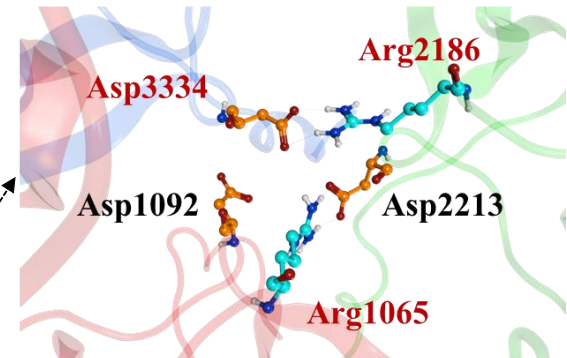
$i$ : チェーンAの残基  
 $j$ : チェーンBの残基  
 $k$ : チェーンCの残基  
 $t$ : サンプル数

# スパイクタンパク質の相互作用テンソル分解(2回目)#2

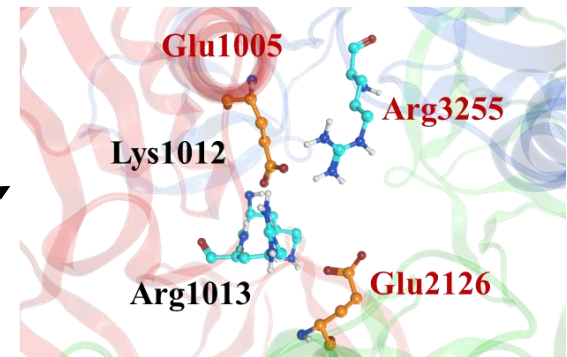
- 各コンポーネントの空間分布と最大の寄与を示した時間でのスナップショット。いずれも静電的な三体相互作用。comp\_3は静電反発の可能性。



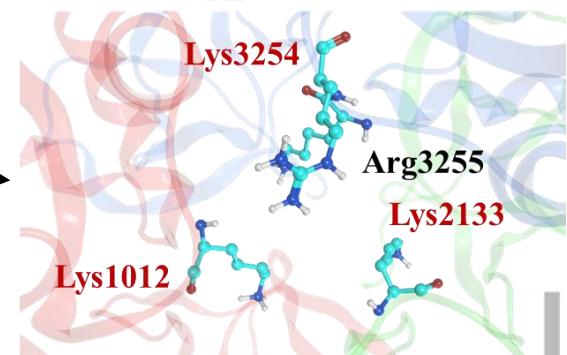
183 ns comp\_1



172 ns comp\_2



172 ns comp\_3



# GPU処理への対応

# GPU対応と機能拡張の必要性

## ■背景

- ・GPUスパコンの遍在化
  - ⇒ 東大の「Wisteria」Aquarius、九大の「玄界」NG-B、JHPCNの「Miyabi-G」
- ・MO系の計算がGPUに対応済
  - ⇒ 高名なTeraChem、**GAMESS-US**も対応（GPU化FMO専用**EXESS**も在り）
  - ⇒ 国内でも先行例在り（OpenFMOなど）
- ・理研の「富岳NEXT」（2030年度稼働予定）
  - ⇒ 1ノード構成はCPU「富士通 MONAKA-X」（2基）に加え「**NVIDIA GPU**」（4基）

## ■対応策

- ・ABINIT-MPのGPU対応を推進（坂倉氏&中野氏）
  - ⇒ HFのミニアプリでの検討を先ず2022年度下期に実施（成瀬氏による）
  - ⇒ 2025年度末に**FMO-MP2エネルギー**まで達成（最適化作業は継続）
  - ⇒ 2026年度末に**Ver. 2 Rev. 16**として反映してリリース
- ・「最初からGPU向け」の**FMO-X**を別途開発（「富岳NEXT」を強く意識）
  - ⇒ **2電子積分のRI近似**による行列積処理指向（機能はFMO-MP2まで）
  - ⇒ FMO-MP2エネルギー**微分**（MD、構造最適化）、FMO-MP3エネルギーまで
  - ⇒ **OSSの予定**、生成AIによる高度チューニングを実施

# ABINIT-MPのミニアプリ

2022年度下期の東大情基セの支援PJに参加

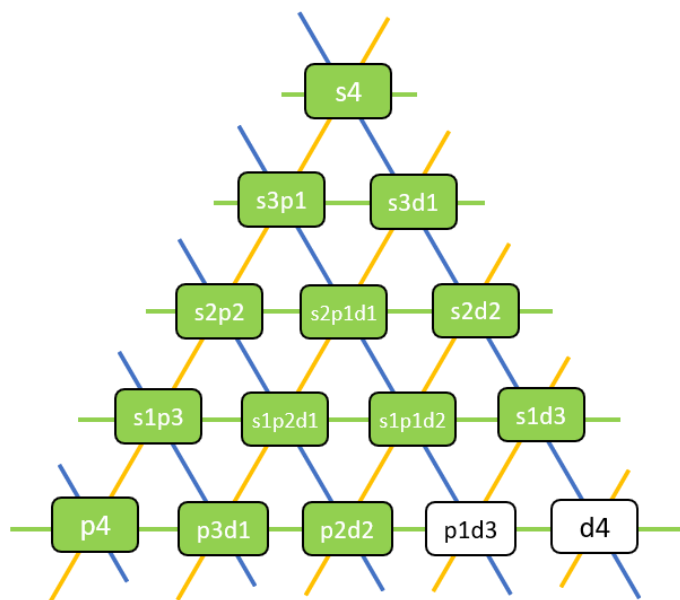
- ・ FMOなしでHF計算のみを実行
- ・ 2電子積分の性能評価とチューニング用
- ・ ネームリストで積分タイプを使い分け可能
  - ObaraはABINIT-MPと同じVRR法で軌道の組み合わせ毎のサブルーチン
  - Obara-generalは汎用ループでの計算、最適化は特にされていない
  - HGP-generalはHRR法での汎用ループでの計算、最適化は未
  - Obara-vectorはNEC SX向けにループ構造をベクトル計算用に変更してある
- ・ Obara-vectorは、GPUでの処理に向く?!
- ・ 演算数的にはHRRにも可能性あり
- ・ コンパクトなルーチンで性能が出れば最良...
- ・ 4タイプでの評価をお願いできれば...
  - 筋のよさそうなものをチューニング
  - 基底関数は6-31G\*が基本

```

&CNTRL
  ReadGeom='adamantane.pdb'
  eri_type=0 ! Obara
! eri_type=1 ! Obara-general
! eri_type=2 ! HGP-general
! eri_type=3 ! Obara-vector
! memory=4000
/
&SCF
!maxscfcyc=10
/
&BASIS
  BasisSet='6-31G*'
! BasisSet='6-31G'
! BasisSet='cc-pVDZ*'
/
    
```

# ミニアプリのチューニング (NVIDIA成瀬彰氏)

- ◇ 先ず、ABINIT-MPの通常の積分生成と同じ、**小原・雑賀のVRR式**のルーチン群を対象に
  - 元は{x, y, z, w}={s, p, d}関数の組み合わせからsub\_xyzwは81種類 (自動生成)
- ◇ 多数の sub\_xyzw をバッチ化して、GPU の多並列性を活用する
  - 以下の理由から単純に全部をバッチ化すればいいわけではない
    - ・ sub\_ssss: 計算手順が簡単、一時配列数が少なく、そのサイズは小さい (レジスタ使用量: 少): データ並列性が高い (IJKL\_ex が大きめ)
    - ・ sub\_dddd: 計算手順が複雑、多数の一時配列が必要で、そのサイズは大きい (レジスタ使用量: 多): データ並列性が低い (IJKL\_ex が小さい)
  - 計算特性の近いものをまとめる (**構造の改変**)、**OpenACC指示文**の挿入
  - **Fock行列への加算**も、バッチ化積分ルーチンの内部で実施 (メモリアクセス量削減)



- ・ 81種を26種に再構成して削減
- ・ 緑色が GPU 化の対象
- ・ "s3d1"等は4通りを含む
- ・ "s1d3"、"p3d1"、"p2d2"等はレジスタ要求量が多く、レジスタスピル発生
- ・ "p1d3"、"d4" は CPU 実行

# Phe-TrpとTrpでのミニアプリのテスト(HF)

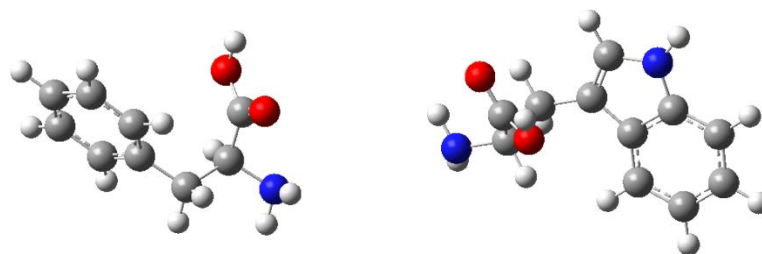
東大Wisteria-Aquariusを使用

- 下記の条件で再度実行(flat MPI)

export NNODES=1

export NGPUS=1

export NPROCS=8



- Trp-Pheのテスト

6-31G (#Orb = 289, #SCF = 17) ; 27.9 s / 4.3 s → Acc = 6.5

6-31G\* (#Orb = 451, #SCF = 18) ; 69.4 s / 10.8 s → Acc = 6.4

cc-pVDZ (#Orb = 520, #SCF = 19) ; 179.0 s / 21.8 s → Acc = 8.2

6-311G\*\* (#Orb = 651, #SCF = 21) ; 257.4 s / 37.7 s → Acc = 6.8

- Trpのテスト

6-31G (#Orb = 159, #SCF = 17) ; 8.4 s / 1.8 s → Acc = 4.7

6-31G\* (#Orb = 249, #SCF = 18) ; 21.9 s / 3.6 s → Acc = 6.1

cc-pVDZ (#Orb = 285, #SCF = 17) ; 51.4 s / 6.2 s → Acc = 8.3

6-311G\*\* (#Orb = 357, #SCF = 21) ; 76.4 s / 10.5 s → Acc = 7.3

- GPUは「加速装置」としての価値アリと判断

# ABINIT-MP本体のGPU対応のベースプラン

## 積分の分類

Type	Unique quartet
[s4]	(ss ss)
[s3p1]	(ss sp)
[s3d1]	(ss sd)
[s2p2]	(ss pp), (sp sp)
[s2p1d1]	(ss pd), (sp sd)
[s2d2]	(ss dd), (sd sd)
[s1p3]	(sp pp)
[s1p2d1]	(sp pd), (sd pp)
[s1p1d2]	(sp dd), (sd pd)
[s1d3]	(sd dd)
[p4]	(pp pp)
[p3d1]	(pp pd)
[p2d2]	(pp dd), (pd pd)
[p1d3]	(pd dd)
[d4]	(dd dd)
Count	21

## ループのスケッチ

```
do scc-iteration
  do 1,nf <MPI>
    do scf-iteration
      do one-int-loop
        do eri-loop with GPU
      do eri-loop (dddp,dddd)
    enddo
  enddo
<mp2 processing>
do dimer-loop <MPI>
  do scf-iteration
    do one-int-loop
      do eri-loop with GPU
    do eri-loop (dddp,dddd)
  enddo
enddo
<mp2 processing>
```

# 2電子積分のGPUでの生成

(MPI)  
do I  
do J  
(MPI/OpenMP)  
do K  
do L  
I,J,K,L軌道殻項  
(~数100)  
<81種類の処理に分岐>  
do p  
do q  
do r  
do s  
p,q,r,s縮約項  
(各~10)  
<メイン処理>

GPU化

(MPI) 実装上は21種類  
前処理 <81種類の処理に分岐>  
①積分処理は非同期計算可能  
(GPU)  
do ijkl(1重化) ②長ループを実現~10000  
do p  
do q  
do r  
do s  
①、②効率的なGPU利用が可能  
<メイン処理>

ループ長が短くGPUの並列性をいかせない

軌道殻シェル一重化&処理毎の結合

## FOCK行列

$$F_{\mu\nu} = H_{\mu\nu} + \sum_{i,\lambda,\sigma} C_{\lambda i} C_{\sigma i} \{ \underline{2(\mu\nu|\lambda\sigma)} - (\mu\lambda|\nu\sigma) \}$$

## 2電子積分

$$(\mu\nu|\lambda\sigma) = \int dr_1 \int dr_2 \phi_\mu(r_1) \phi_\nu(r_1) \frac{1}{r_{12}} \phi_\lambda(r_2) \phi_\sigma(r_2)$$

# FMO-HFのGPU化のためのループ構造の再構築1

## GPU化 OpenACCによるGPU化

```
do SCC-iteration
  do monomer-Loop
    set index table for GPU
    sort angular momentum type ERI
    !$acc data copyin(nsh2atm,nto2shl,fmt_table,dkps,apps,pps,workbuf)

    do SCF-iteration
      !$acc data copyin(dc) copy(fc)
```

```
subroutine gpu_pppp
  !$acc parallel num_workers(2) vector length(16)
  !$acc loop gang worker
  do n4 =1,n_pppp_size<MPI>
    ish = nslist(1,n4)
    jsh = nslist(2,n4)
    ksh = nslist(3,n4)
    lsh = nslist(4,n4)
    ~
```

I,J,K,L軌道シェルループを1重化したループをGPUで計算

# FMO-HFのGPU化のためのループ構造の再構築2

## GPU化 データ転送

```
do SCC-iteration
  do monomer-Loop
    set index table for GPU
    sort angular momentum type ERI
    !$acc data copyin(nsh2atm,nto2shl,fmt_table,apps,workbuf)
```

各モノマーのSCF計算の前に  
GPU用Index配列、積分作業配列をCPU->GPU転送

SCF内で変化する電子密度、FOCK行列の転送

```
do SCF-iteration
  !$acc data copyin(dc) copy(fc)
```

```
subroutine gpu_pppp
  !$acc parallel num_workers(2) vector length(16)
  !$acc loop gang worker
  do n_pppp !on GPU
    IJ = list()
    KL = list()
    do ip
      do jq
        do kr
          do ls
            calc ERI
```

**SCC収束ループ、モノマーループ、  
モノマー収束ループ内での最適な  
データ転送が必須**

# FMO-HFのGPU化の測定例

2026年6月頭での暫定タイミング

測定結果 (単体性能 Chignolin/6-31G/HF@wisteria)

routine	GPU	CPU1core (s)	CPU1core +1GPU(s)	備考
set_nshatable		-	2.2	前処理
direct_scf_gmat	✓	2209.0	<b>x101.3</b> → 21.8	クーロン、交換積分 + FOCK生成
monomer_esp_ele	✓	115.0	1.2	モノマー環境静電ポテンシャル (3中心)
dimer_esp_ele	✓	32.2	0.4	ダイマー環境静電ポテンシャル (3中心)
dimer_es	✓	72.5	0.4	ダイマーES近似
monomer_esp_ptc		3.0	3.0	
dimer_oneint		10.1	9.8	1電子積分
others		13.6	10.0	
<b>Total</b>		<b>2455.3</b>	<b>x50.2</b> → <b>48.9</b>	

最コスト部分の「2電子積分 + FOCK生成」は80倍強の高速化

# MP2のGPU化の留意点

## 技術的特徴 (MP2)

### パネル化 Tiling 設計

GPUメモリを節約しつつ batched GEMM にまとめる

### cuBLAS StridedBatched

NVIDIA最適化カーネルを適切に活用

### 対称性の利用

$ij\_pair = j(j-1)/2 + i$  でメモリ・演算量を半減

### 積分スクリーニング

シェルペアインデックスによるスクリーニング

```

1 subroutine mp2_drive(nbo, nmo, nfzc, ndoc, coef, enemo, ixncs, ...) ! ERI shell-pair index tables
   included
2   ! --- Frozen virtual screening (dynamic, threshold-based) ---
3   if (chk_frozen_virtual) nfzv = count(enemo > thrfzv)
4   Cocc(nbo, ndoc) = coef(:, nfzc+1 : nfzc+ndoc) ! correlated occupied MOs
5   Cvir(nbo, nvac) = coef(:, nfzc+ndoc+1 : nmo-nfzv) ! active virtual MOs
6   ! --- GPU memory: G_abij1 persists across all panels ---
7   !$acc enter data create(G_abij1(nvac, nvac, ndoc*(ndoc+1)/2)) ! ij symmetry
8   do k1 = 1, ixncs, kb ! outer shell panel (r-index)
9     do l1 = 1, ixncs, lb ! inner shell panel (s-index, screened by swz)
10      suberi_mp2_gpu2(gpars, ...) ! compute (pq|rs) on GPU; packed AO integrals
11      ! Step 1: packed->dense + AO->occ MO [cuBLAS StridedBatched GEMM]
12      BUF_PQ(nbo, nbo, IBR*IBS) = unpack(gpars) ! exploit (pq|rs)=(ap|rs)
13      T_pi(nbo, ndoc, IBR, IBS) = DGEMM_batched(BUF_PQ, Cocc) ! stride=0 for Cocc
14      ! Step 2: occ->vir MO [cuBLAS StridedBatched GEMM, Cvir^T]
15      U_ai(nvac, ndoc, IBR, IBS) = DGEMM_batched(Cvir^T, T_pi)
16      ! Step 3: contract s-panel into V_aij [cuBLAS, B3 zero-screened]
17      V_aij(nvac, ndoc, ndoc, IBR) += DGEMM_batched(reshape(U_ai), screen(Cocc))
18    end do ! l1
19    ! Step 4: contract r-panel into G_abij1 [OpenACC parallel, i<=j]
20    !$acc parallel G_abij1(b, a, ij) += dot(V_aij(a, i, j, :), Cvir(:, b)) ! atomic
21  end do ! k1
22  ! Step 5: MP2 energy summation [OpenACC parallel, i<=j symmetry]
23  !$acc parallel E_MP2 += (2T-K)*T / (ε_i+ε_j-ε_a-ε_b) ! T-direct, K=exch
24 end subroutine

```

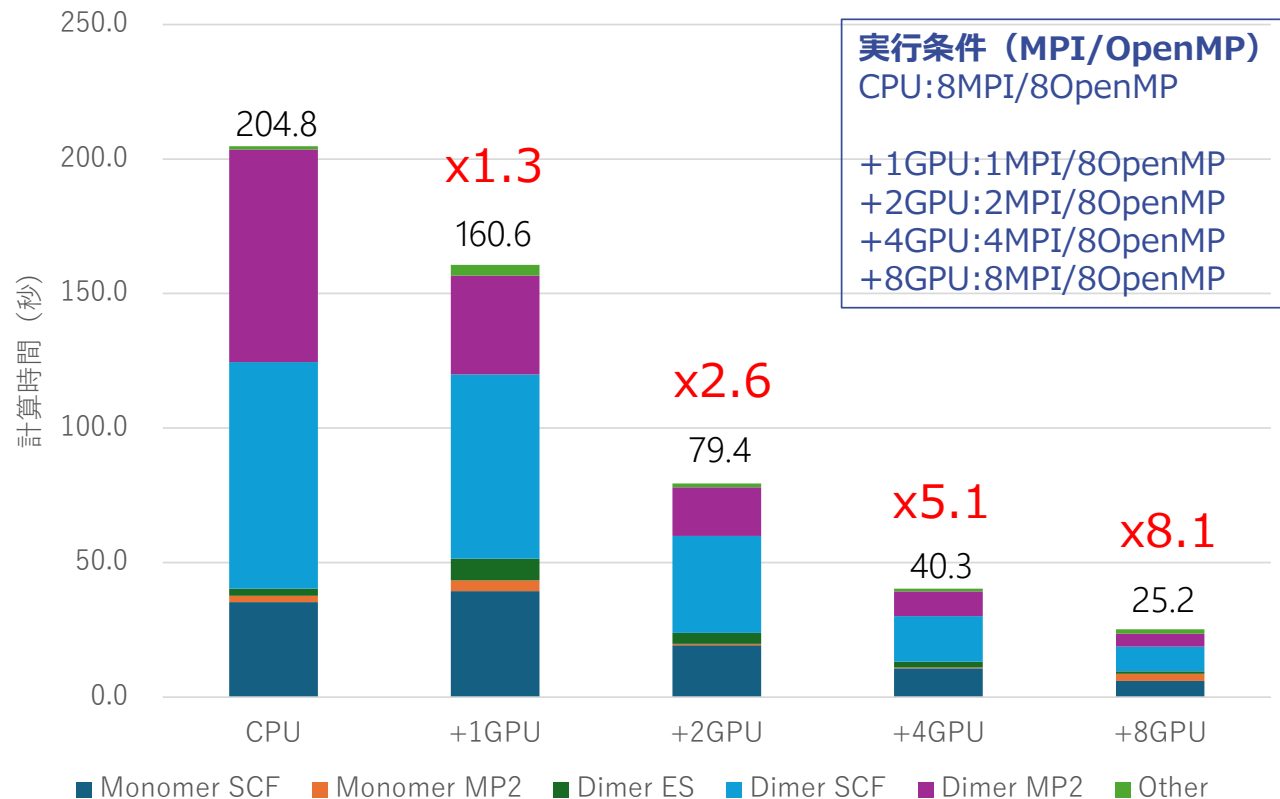
$$E_{\text{MP2}} = \sum_{ij}^{\text{occ}} \sum_{ab}^{\text{vir}} \frac{(ia|jb) [2(ia|jb) - (ib|ja)]}{\epsilon_i + \epsilon_j - \epsilon_a - \epsilon_b}$$

$$(ia|jb) = \sum_{\mu\nu\lambda\sigma} C_{\mu i} C_{\nu a} C_{\lambda j} C_{\sigma b} (\mu\nu|\lambda\sigma)$$

# FMO-MP2のGPU化の測定例#1

2026年6月頭での暫定タイミング

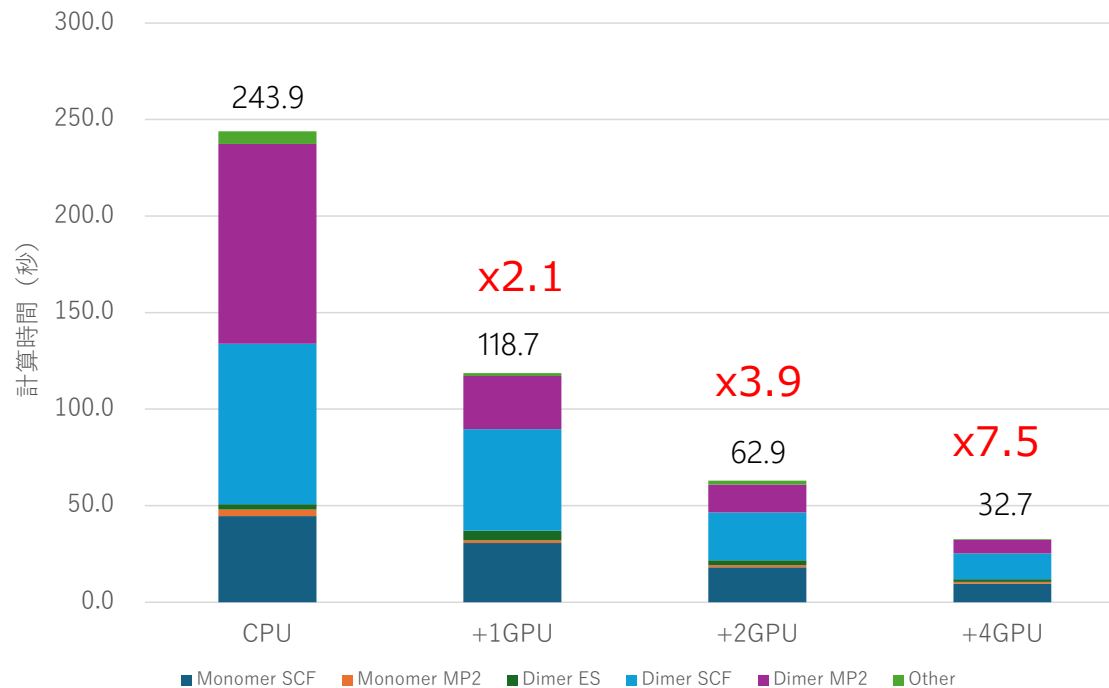
## 測定結果 (TrpCage/6-31G/MP2@SQUID)



# FMO-MP2のGPU化の測定例#2

2026年6月頭での暫定タイミング

## 測定結果 (TrpCage/6-31G/MP2@wisteria)



実行条件 (MPI/OpenMP)  
CPU:10MPI/7OpenMP

+1GPU:2MPI/8OpenMP  
+2GPU:4MPI/8OpenMP  
+4GPU:8MPI/8OpenMP

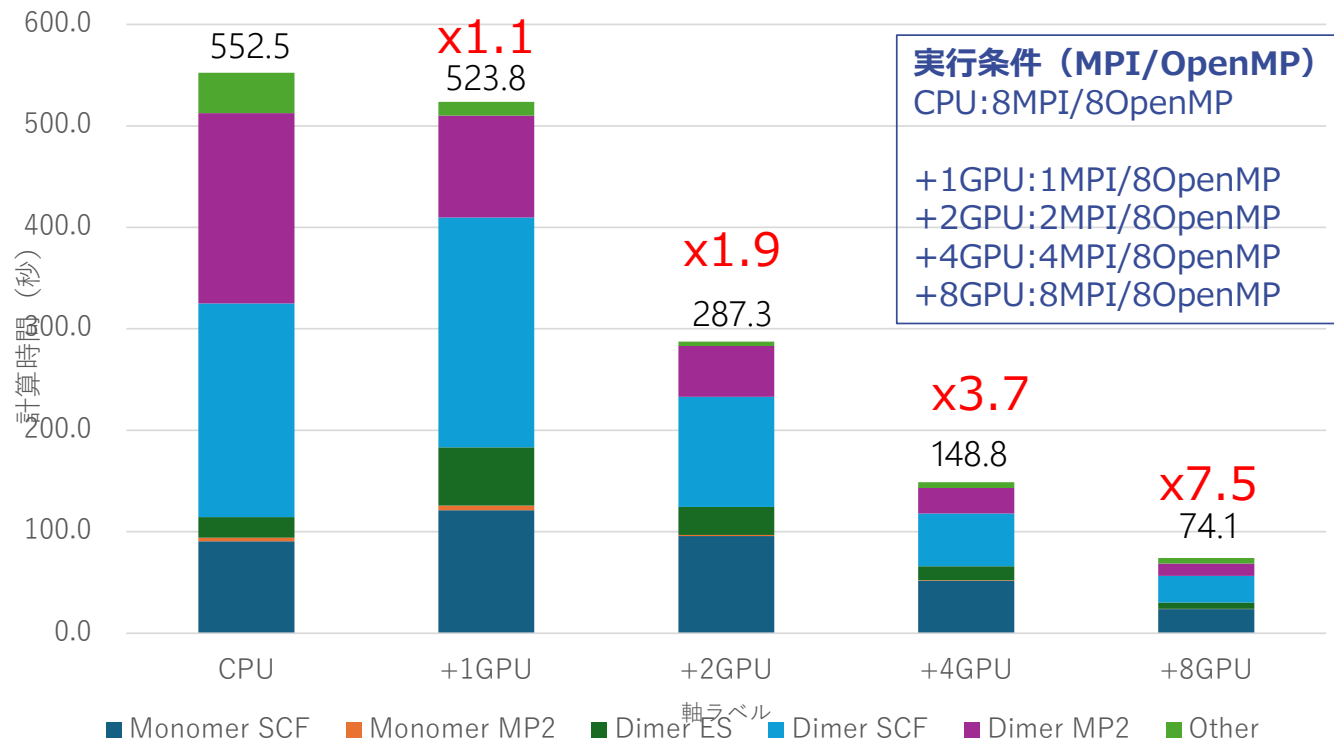
2MPIプロセス=1GPU  
OpenMP数=8

MPS活用

# FMO-MP2のGPU化の測定例#3

2026年6月頭での暫定タイミング

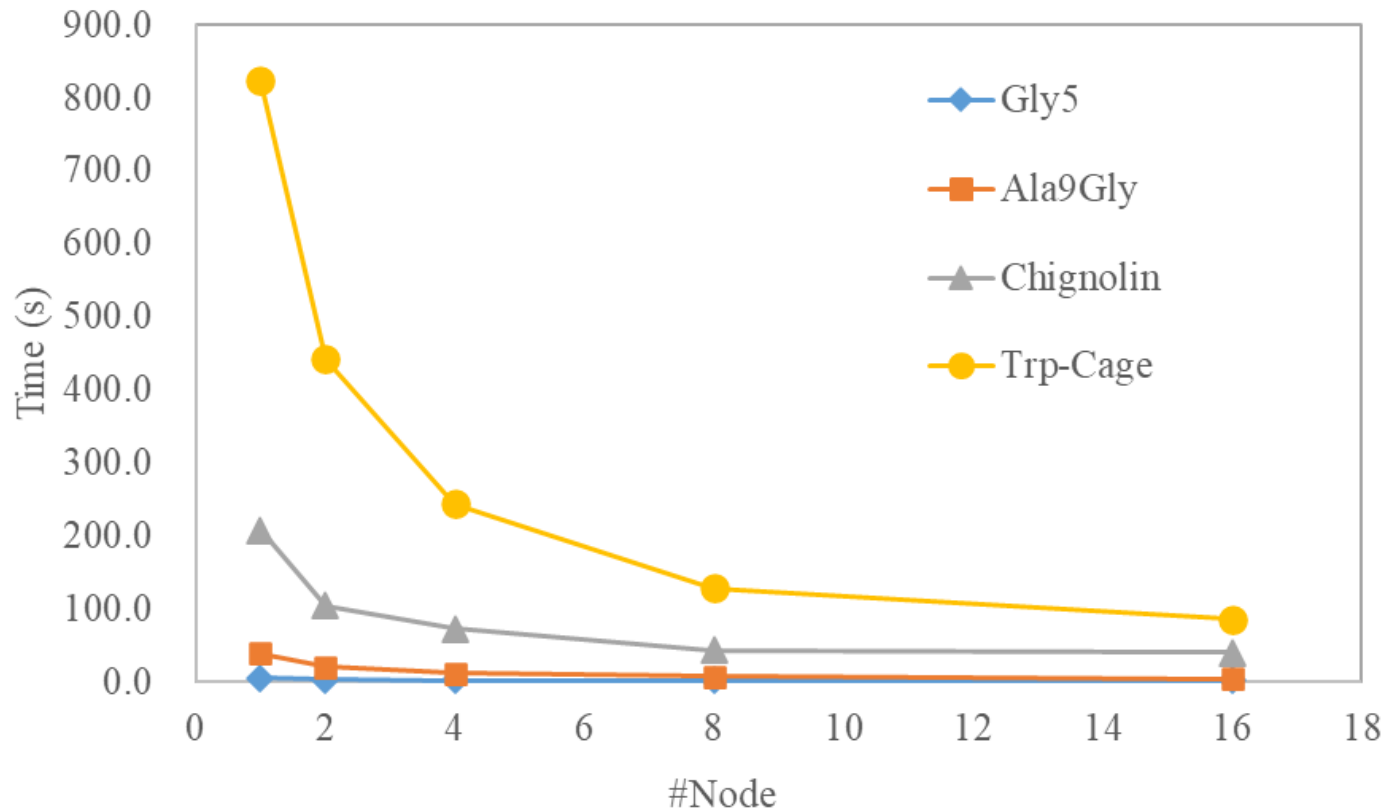
## 測定結果 (Crambin/6-31G/MP2@SQUID)



# FMO-HF計算のGPU加速性能の評価 @ Miyabi-G#1

2026年6月頭での暫定タイミング

坂倉氏のGPUループのドライブとは異なる

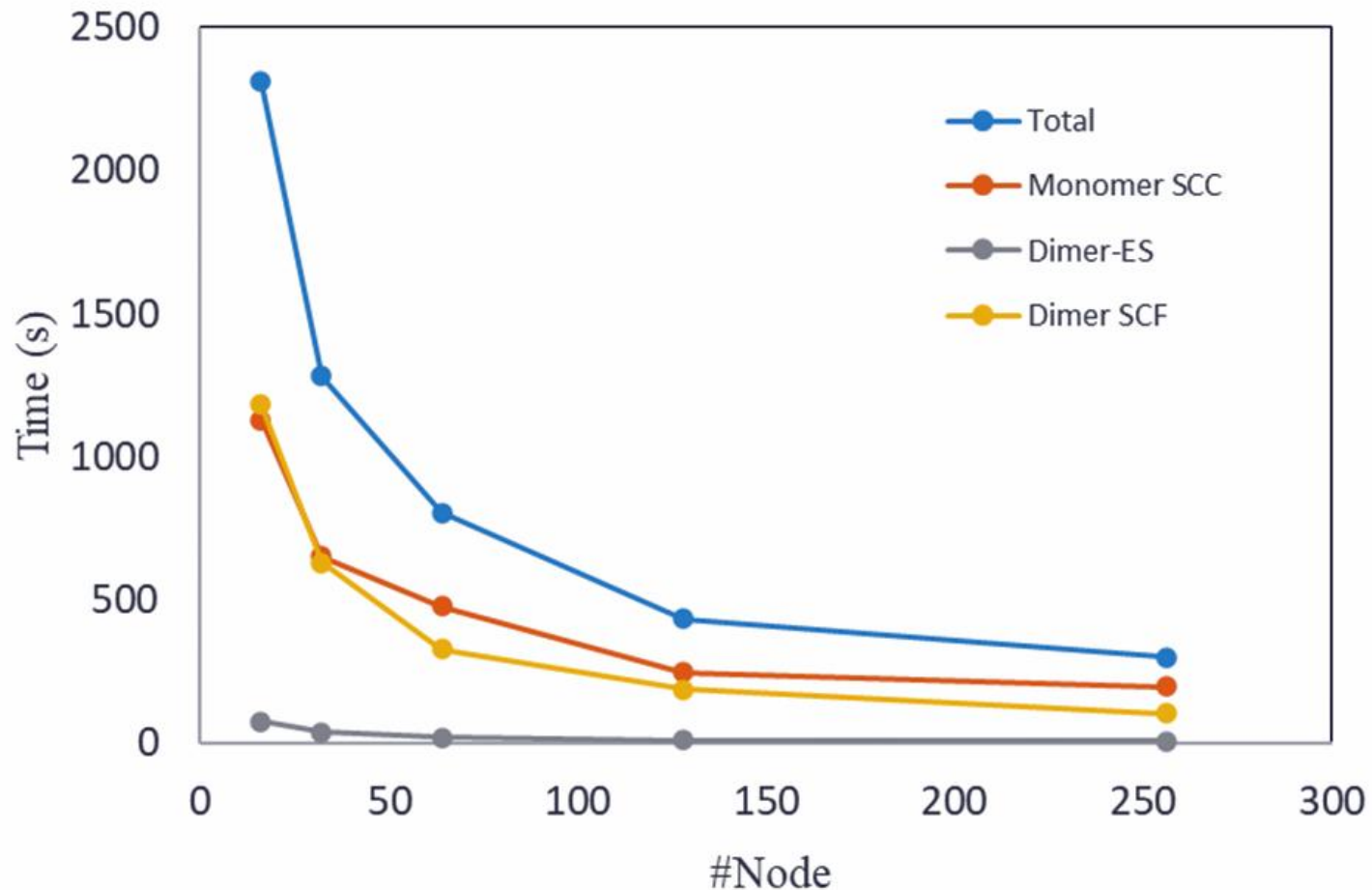


- ・Trp-Cageでも8ノードで加速は飽和
- ・HIV-Pでも実施(16ノード基準で64まではスケール)

## FMO-HF計算のGPU加速性能の評価 @ Miyabi-G#2

2026年6月頭での暫定タイミング

FMO-HF/6-31G計算の多ノードでの実行テスト / HIV-protease



# RI近似: テンソル次数の低減

Coulomb matrix (J)

$$\tilde{J}_{pq} = 0$$

Loop over  $I$  # Parallelized

$$Q_I = \sum_{rs} L_{I,rs} P_{rs} \quad \# \text{DDOT}$$

$$\tilde{J}_{pq} = \tilde{J}_{pq} + L_{I,pq} Q_I \quad \# \text{DAXPY}$$

End of loop over  $I$

ALLREDUCE ( $\tilde{J}_{pq}$ )

Exchange matrix (K)

$$\tilde{K}_{pq} = 0$$

Loop over  $I$  # Parallelized

$$X_{I,qi} = \sum_s L_{I,qs} C_{si} \quad \# \text{DGEMM}$$

$$\tilde{K}_{pq} = \tilde{K}_{pq} + \sum_i X_{I,pi} X_{I,qi} \quad \# \text{DGEMM}$$

End of loop over  $I$

ALLREDUCE ( $\tilde{K}_{pq}$ )

MP2 correlation energy ( $E^{\text{MP2}}$ )

Loop over  $I$  # Parallelized

$$X_{I,pi} = \sum_r L_{I,pr} C_{ri} \quad \# \text{DGEMM}$$

$$B_{I,ia} = \sum_q X_{I,qi} C_{qa} \quad \# \text{DGEMM}$$

End of loop over  $I$

$$E^{\text{MP2}} = 0$$

Loop over  $ij$  # Canonical  $ij$  pair

$$(ia|jb) = \sum_I B_{I,ia} B_{I,jb} \quad \# \text{DGEMM (partial sum of I)}$$

ALLREDUCE ( $ia, jb$ )

$$E^{\text{MP2}} = E^{\text{MP2}} + \frac{(2 - \delta_{ij})[2(ia|jb) - (ib|ja)](ia|jb)}{\varepsilon_i - \varepsilon_a + \varepsilon_j - \varepsilon_b}$$

End of loop over  $ij$

$$(pq|rs) \approx \sum_I L_{I,pq} L_{I,rs}$$

- RI近似は最適化基底を別途準備
- 展開基底は無短縮1項、角運動量は+1

# FMO-XでのHF

- GPU対応の方針（Fock行列生成のGPU化）
  - ◆ 2電子積分の計算には、小原らによるVertical Recurrence Relation (VRR)を使用[1]
  - ◆ 行列積の計算には、cuBLASDGEMMを使用
- GPUによるFock行列生成の擬似コード

```
get_aux_basis_number
```

```
set_aux_basis
```

```
!$acc parallel
```

```
  Calculate  $A_{PQ} = (P|Q)$  # VRR (2中心)
```

```
!$acc end parallel
```

```
Cholesky decomposition  $A = LL^T$  # CPU
```

```
Inverse factorization  $Z = (L^T)^{-1}$  # CPU
```

```
!$acc parallel
```

```
  Calculate  $(pq|P)$  # VRR (3中心)
```

```
!$acc end parallel
```

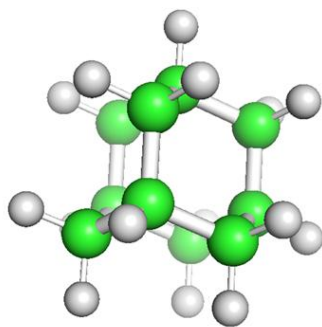
```
 $J_{pq} \approx \sum_P B_{pq}^P \sum_{rs} B_{rs}^P D_{rs}$  # cuBLASDGEMM (クーロン項の計算)
```

```
 $K_{pq} \approx \sum_{iP} B_{pi}^P B_{qi}^P$  # cuBLASDGEMM (交換項の計算)
```

```
 $F = H + 2J - K$ 
```

# FMO-Xのテスト例#1

- コンパイルオプション：`-gpu=mem:unified:nomanagedalloc`  
(GH200のユニファイド・メモリの使用を指定)
- ベンチマーク系：アダマンタン分子



アダマンタン

計算方法	原子軌道数	1CPU (72コア) (秒)	1CPU (1コア) +1GPU (秒)
HF/cc-pVDZ	230	2.6	20.3
HF/cc-pVTZ	590	2203.7	383.7

cc-pVDZは外側の軌道を2分割し分極関数を加えた基底関数である。また、cc-pVTZは外側の軌道を3分割し分極関数を加えた基底関数である。cc-pVDZよりもcc-pVTZの方が計算精度が良い。

- HF/cc-pVTZ計算の場合、1GPU (1コア+1GPU) を使用することにより1CPU (72コア) の**5.7倍**の高速化が得られた。

## FMO-Xのテスト例#2

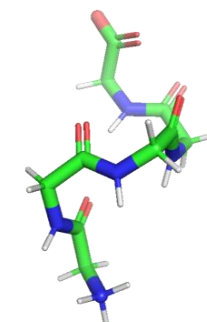
- 計算方法は、FMO-MP2/cc-pVDZ。補助基底関数には、cc-pVDZ-RIFITを使用。
- ダイマーに対する環境静電ポテンシャルの割合が大きい (55%)。
- FMO計算のGly<sub>5</sub>の高速化は**1.4倍**であった。

表1 Miyabi-GによるGly<sub>5</sub>の計算時間

主要計算ルーチン	計算時間 (秒)		倍率
	1CPU(72cores) <sup>†</sup>	1CPU(1core)+1GPU	
モノマーSCF	217.3	111.2 (1.6) <sup>‡</sup>	
モノマーMP2	0.8	2.1	
モノマー合計	218.2	113.3	1.9
ダイマーES	0.0	0.0	
ダイマーSCF	44.5	75.5 ( <b>41.2</b> ) <sup>‡</sup>	
ダイマーMP2	11.7	5.2	
ダイマー合計	56.3	87.0	0.6
FMO計算合計	274.5	200.3	<b>1.4</b>

<sup>†</sup> ABINIT-MP Ver.2 Rev.8による計算時間

<sup>‡</sup> カッコ内は環境静電ポテンシャルの計算時間



Gly<sub>5</sub>  
(グリシン5量体)

## FMO-Xのテスト例#3

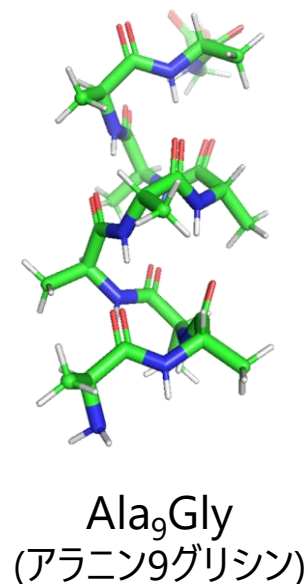
- 計算方法は、FMO-MP2/cc-pVDZ。補助基底関数には、cc-pVDZ-RIFITを使用。
- ダイマーに対する環境静電ポテンシャルの割合が大きい (78%)。
- FMO計算のAla<sub>9</sub>Glyの高速化は**1.9倍**であった。

表2 Miyabi-GによるAla<sub>9</sub>Glyの計算時間

c	計算時間 (秒)		倍率
	1CPU(72cores) <sup>†</sup>	1CPU(1core)+1GPU	
モノマーSCF	2011.5	654.5 (10.7) <sup>‡</sup>	
モノマーMP2	2.3	5.8	
モノマー合計	2014.0	660.3	3.1
ダイマーES	0.4	13.9	
ダイマーSCF	671.3	733.9 ( <b>570.4</b> ) <sup>‡</sup>	
ダイマーMP2	89.2	28.2	
ダイマー合計	760.9	812.6	0.9
FMO計算合計	2775.6	1472.9	<b>1.9</b>

<sup>†</sup> ABINIT-MP Ver.2 Rev.8による計算時間

<sup>‡</sup> カッコ内は環境静電ポテンシャルの計算時間



# 開殻・多参照系の扱い

(相関係はこれから本実装)

# 開殻系と多参照系の扱い

金属酵素の扱い(Feイオン中心など)

## ■ 開殻領域

- ・ UHFとUMP2のエネルギーはFMO3レベルで実装済; UHFではエネルギー微分も可能
- ・ スピン汚染の問題から実際の応用はこれまで困難; 特に遷移金属イオンを含む系
- ・ スピン汚染の無いROHFを実装; FMO2/3と多層FMOの扱いを2025年度中に実施
- ・ 電子相関の補正はRMP2を2026年度に実装; UMP2の積分変換モジュールを流用

## ■ 多参照領域

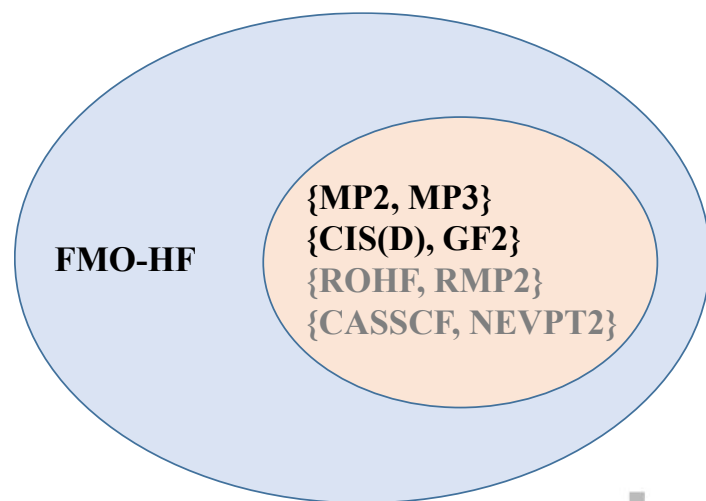
- ・ CASSCFが第一選択肢; 14軌道/14電子問題までを想定 (数億次元)
- ・ 任意の状態に対してスピン汚染の問題の無いCSFベースの並列化CASCIエンジンを開発済
- ・ CASSCFの軌道最適化はSuper-CIでプロトタイピング終了; 2026年度に本実装予定
- ・ 相関補正はNEVPT2で式群の整理完了; CASCIエンジンは4体密度行列の計算まで対応済

$$F_{\mu\nu}^{\alpha} = H_{\mu\nu}^{Core} + \sum_{\lambda\sigma} \{P_{\lambda\sigma}^{\alpha+\beta}(\mu\nu|\sigma\lambda) - P_{\lambda\sigma}^{\alpha}(\mu\lambda|\sigma\nu)\}$$

$$F_{\mu\nu}^{\beta} = H_{\mu\nu}^{Core} + \sum_{\lambda\sigma} \{P_{\lambda\sigma}^{\alpha+\beta}(\mu\nu|\sigma\lambda) - P_{\lambda\sigma}^{\beta}(\mu\lambda|\sigma\nu)\}$$

	closed	open	virtual
closed	$A_{cc}F^{\alpha} + B_{cc}F^{\beta}$	$F^{\beta}$	$(F^{\alpha} + F^{\beta})/2$
open	$F^{\beta}$	$A_{oo}F^{\alpha} + B_{oo}F^{\beta}$	$F^{\alpha}$
virtual	$(F^{\alpha} + F^{\beta})/2$	$F^{\alpha}$	$A_{vv}F^{\alpha} + B_{vv}F^{\beta}$

ROHFの軌道エネルギーは混合係数に依存(全エネルギーは不変)



# ROHFのテスト計算

## ■ ROHF/6-31G\*法による開殻系分子のテスト

- ・ 一旦閉殻を解いてから開殻をアドオン(MOON)
- ・ SCF 計算の収束加速にはDIISを採用
- ・ 混合係数には Roothaan を標準で使用

開殻系分子のROHF/6-31G\*ベンチマーク計算

電子状態	分子	DIIS (反復回数)	Total Energy (hartree)
Doublet	CH <sub>3</sub>	7	-39.5547230051
	Ti(III) - hexa waters	10	-1303.6732618476
Triplet	CH <sub>2</sub>	8	-38.9153556302
	Ni(II) + (NH <sub>3</sub> ) <sub>6</sub>	14	-1843.4854137239
Quartet	N	7	-54.3823112551
	HCNH	12	-93.3000580389
Quintet	HCCH <sub>2</sub> CH	10	-115.7192512076
Sextet	HCNCH	14	-131.0492682698
	Fe(III)	8	-1260.4466395961

# ROHFの正準化係数セットは多数アリ

- ・全エネルギーは同じ、収束性は?!
- ・軌道エネルギーと軌道は各々で異なる
- ・相関計算で凍結内殻の場合は要注意
- ・プリセットで選択可能

8772

*J. Phys. Chem. A* **2010**, *114*, 8772–8777

## On the Ordering of Orbital Energies in High-Spin ROHF<sup>†</sup>

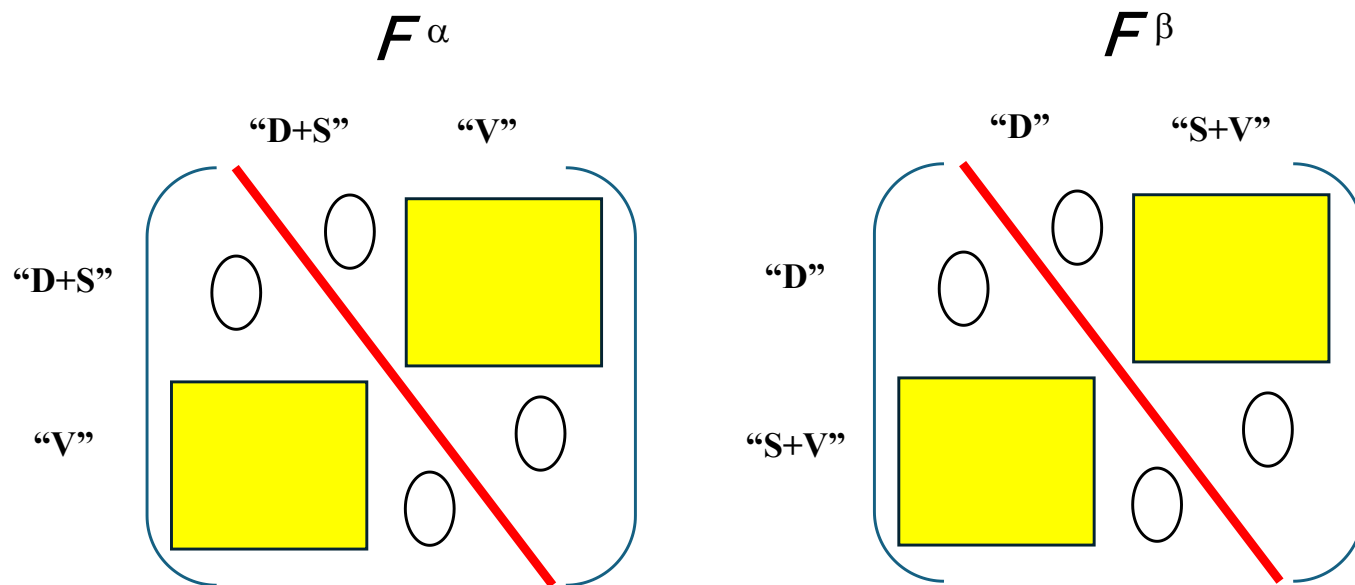
Kurt R. Glaesemann<sup>\*‡</sup> and Michael W. Schmidt<sup>§</sup>

*William R. Wiley Environmental and Molecular Science Laboratory, Pacific Northwest National Laboratory, MS K8-83, P.O. Box 999, Richland, Washington 99352, and Department of Chemistry and Ames Laboratory USDOE, Iowa State University, Ames, Iowa 50011*

	$A_{cc}$	$B_{cc}$	$A_{oo}$	$B_{oo}$	$A_{vv}$	$B_{vv}$
Guest and Saunders	1/2	1/2	1/2	1/2	1/2	1/2
● Roothaan single matrix	-1/2	3/2	1/2	1/2	3/2	-1/2
Davidson	1/2	1/2	1	0	1	0
Binkley, Pople, and Dobosh	1/2	1/2	1	0	0	1
McWeeny and Diercksen	1/3	2/3	1/3	1/3	2/3	1/3
Faegri and Manne	1/2	1/2	1	0	1/2	1/2
GAMESS GVB program	1/2	1/2	1/2	0	1/2	1/2
Plakhutin, Gorelik, and Breslavskaya	0	1	1	0	1	0
Pure Alpha	1	0	1	0	1	0
Pure Beta	0	1	0	1	0	1

# ROHF配置参照のUHF的なRMP2法

- ・ ROHFの軌道をUHF風に $\alpha$ スピンの軌道と $\beta$ スピンの軌道に分割
- ・ Fock行列を構築して対角化;  $\alpha$ 空間は“D+S” & “V”、 $\beta$ 空間は“D” & “S+V”
- ・ 軌道エネルギーを持つ $\alpha$ と $\beta$ の「準正準軌道」の各セットに転換
- ・ スピン汚染の問題は無し、大きさ無矛盾性もOK
- ・ ブーリアンの定理は不成立、1電子励起の寄与も要考慮
- ・ GAUSSIAN16に実装済
- ・ 凍結内殻の扱いでは、正準化係数の設定にも注意 (GAUSSIANはM.D.)
- ・ ABINIT-MPには並列化UHF/UMP2モジュールがあり、本実装時には利用可



# CASCI(Full CI)エンジン#1

Theor Chem Acc (2007) 117:397–405  
DOI 10.1007/s00214-006-0171-8

REGULAR ARTICLE

## A graphical symmetric group approach for a spin adapted full configuration interaction: partitioning of a configuration graph into sets of closed-shell and open-shell graphs

Kiyoshi Tanaka · Yuji Mochizuki ·  
Takeshi Ishikawa · Hidemi Terashima ·  
Hiroaki Tokiwa

- ・ スピン適合のCSF展開
- ・ 行列式展開よりコンパクトで精確
- ・ MPIベースの並列化

Received: 6 July 2006 / Accepted: 3 August 2006 / Published online: 6 October 2006  
© Springer-Verlag 2006

**Abstract** We developed a spin adapted full configuration interaction (FCI) method which was expected to be effective for parallel processing. The graphical symmetric group approach (GSGA) was employed, where a configuration graph was partitioned into several sets of closed-shell and open-shell graphs. The configuration state functions (CSFs) bearing the same number of closed-shells and open-shells were assembled in a configuration group. The graphical approach provided a number to identify each CSF in a sequential order within the group. Combination of this partitioning and

an intermediate configuration-driven algorithm in calculating the so-called  $\sigma$  vectors allowed us to use symbolic coupling constants. Furthermore, this combination made it easy to implement an efficient algorithm suitable to task-distributed parallel procedure for evaluating  $\sigma$  vectors. A program was written and some test calculations were carried out with high parallel efficiency. The largest size of FCI used 10 million CSFs (20 million determinants).

**Keywords** Spin adapted FCI · GSGA · Intermediate configuration-driven algorithm · Parallel processing

## CASCI(Full CI)エンジン#2

$$H = \sum_{pq} \left\{ h_{pq} - \frac{1}{2} \sum_s (ps|sq) \right\} E_{pq} + \frac{1}{2} \sum_{pqrs} (pq|rs) E_{pq} E_{rs}$$

$$\sigma_I^{(i+1)} = \sum_J H_{IJ} C_J^{(i)}$$

$$\Sigma_K \langle \Phi_I | E_{pq} | \Phi_K \rangle \langle \Phi_K | E_{rs} | \Phi_J \rangle$$

$$\langle K | E_{pq} | J(Nc, No) \rangle \text{ or } \langle K | E_{pq} | J(Nc - 1, No + 2) \rangle \text{ or } \langle K | E_{pq} | J(Nc + 1, No - 2) \rangle$$

- ・ ハミルトニアン の 2 体 部分 は 因子 分解 の 技法 で 効 率 的 に 並 列 処 理
- ・ 1 億 次 元 程 度 は 余 裕 で 求 解 可 能 ( 行 列 式 展 開 な ら 数 倍 以 上 の 変 数 )

FCI timing of CH<sub>2</sub> molecule with DZP basis on Xeon (Gold 6248)

<sup>3</sup> B <sub>1</sub>	#Node	1	2	4	8	16	2.5M次元
	Time (s)	470.4	239.3	128.6	70.4	43.2	
	Acc.	1.0	2.0	3.7	6.7	10.9	
<sup>1</sup> A <sub>1</sub>	#Node	1	2	4	8	16	1.5M次元
	Time (s)	433.6	225.4	116.7	63.9	39.1	
	Acc.	1.0	1.9	3.7	6.8	11.1	

# CASSCFのSuper-CIプロトタイプ

- RoosのCP論文をベースに実装、(act,act|act,all)の変換積分のみで済むのがメリット
- 内部縮約1電子励起CIのFock指向の近似版に小工夫追加、BLB要素は正確に計算
- 近似度がやや穏やかなIJQC版も併せて実装

## BLB要素

$$\begin{aligned} \langle 0|\hat{H}'|i \rightarrow a \rangle &= \sqrt{2}F_{ai} \\ \langle 0|\hat{H}'|t \rightarrow a \rangle &= n_t^{-1/2} \left\{ \sum_u^{(A)} F_{au}^I D_{tu} + \sum_{uvx}^{(A)} P_{tuvx} (au|vx) \right\} \\ \langle 0|\hat{H}'|i \rightarrow t \rangle &= m_t^{-1/2} \left\{ 2F_{ti}^A + \sum_u^{(A)} (2\delta_{tu} - D_{tu}) F_{ui}^I - \sum_{uvx}^{(A)} P_{tuvx} (iu|vx) \right\} \end{aligned}$$

## SXCI要素

$$\begin{aligned} \langle i \rightarrow t|\hat{H}'|j \rightarrow u \rangle &= \left\{ \delta_{ij} \left[ \frac{1}{2} m_t m_u (1 - \delta_{tu}) + m_t \delta_{tu} \right] F_{tu} - \delta_{tu} m_t F_{ij} \right\} / \sqrt{m_t m_u} \\ \langle i \rightarrow t|\hat{H}'|j \rightarrow a \rangle &= \delta_{ij} \sqrt{\frac{m_t}{2}} F_{at} \\ \langle i \rightarrow t|\hat{H}'|u \rightarrow a \rangle &= 0 \\ \langle i \rightarrow a|\hat{H}'|j \rightarrow b \rangle &= \delta_{ij} F_{ab} - \delta_{ab} F_{ij} \\ \langle i \rightarrow a|\hat{H}'|t \rightarrow b \rangle &= -\delta_{ab} \sqrt{\frac{n_t}{2}} F_{ti} \\ \langle t \rightarrow a|\hat{H}'|u \rightarrow b \rangle &= \left\{ \delta_{tu} n_t F_{ab} - \delta_{ab} \left[ \frac{n_t n_u}{2} (1 - \delta_{tu}) + n_t \delta_{tu} \right] F_{tu} \right\} / \sqrt{n_t n_u} \end{aligned}$$

# Super-CIの密度行列

$$|SX\rangle = c_0|0\rangle + \sum_{ia} c_{ia}|i \rightarrow a\rangle + \sum_{ta} c_{ta}|t \rightarrow a\rangle + \sum_{it} c_{it}|i \rightarrow t\rangle$$

再規格化

$$a_0 = c_0$$

$$a_{ia} = c_{ia}/\sqrt{2}$$

$$a_{ta} = c_{ta}/\sqrt{n_t}$$

$$a_{it} = c_{it}/\sqrt{m_t}$$

$$D_{ij}^{SX} = 2\delta_{ij} - 2 \sum_a^{(V)} a_{ia} a_{ja} - \sum_{tu}^{(A)} a_{it} a_{ju} (2\delta_{tu} - D_{tu})$$

$$D_{it}^{SX} = a_0 \sum_u^{(A)} a_{iu} (2\delta_{tu} - D_{tu}) - \sum_a^{(V)} a_{ia} \sum_u^{(A)} a_{ua} D_{ut}$$

$$D_{ia}^{SX} = 2a_0 a_{ia}$$

$$D_{ab}^{SX} = \sum_i^{(I)} 2a_{ia} a_{ib} + \sum_{tu}^{(A)} a_{ta} a_{ub} D_{tu}$$

$$D_{ta}^{SX} = a_0 \sum_u^{(A)} a_{ua} D_{tu} + \sum_i^{(I)} a_{ia} \sum_u^{(A)} a_{iu} (2\delta_{tu} - D_{tu})$$

$$D_{tu}^{SX-1} = D_{tu} + \sum_{vx}^{(A)} (P_{vxtu} - D_{vx} D_{tu}) \left[ \sum_a^{(V)} a_{va} a_{xa} - \sum_i^{(I)} a_{iv} a_{ix} \right]$$

$$D_{tu}^{SX-2} = \sum_i^{(I)} 2a_{iu} a_{it} - \sum_i^{(I)} a_{iu} \sum_v^{(A)} a_{iv} D_{tv} - \sum_i^{(I)} a_{it} \sum_v^{(A)} a_{iv} D_{uv}$$

$$D_{tu}^{SX} = D_{tu}^{SX-1} + D_{tu}^{SX-2}$$

密度行列の対角化にはJacobi法を使用

# CASSCFプロトタイプの計算例#1

- ・6-31G\*\*基底(6d)
- ・6電子6軌道の設定
- ・DALTON&G16と一致

CH<sub>2</sub> - <sup>1</sup>A<sub>1</sub>

初期軌道はRHF

```
**** CASSCF ITERATION HAS CONVERGED FORTUNATELY ****
```

ITR.	CASCI-ENERGY	SX-CI-ENERGY	REF. COEF.	MAX. COEF.	MAX. -BLB.
1	-38.8985636	-0.0205440	0.9945763	0.0574341	0.1068327
2	-38.9285185	-0.0058269	0.9983179	0.0374376	0.0592220
3	-38.9350812	-0.0006323	0.9998560	-0.0087524	0.0170022
4	-38.9359150	-0.0000963	0.9999778	-0.0043110	0.0094611
5	-38.9360501	-0.0000215	0.9999948	0.0016838	0.0034131
6	-38.9360805	-0.0000058	0.9999985	0.0009955	0.0022166
7	-38.9360885	-0.0000017	0.9999995	-0.0004233	0.0009230
8	-38.9360907	-0.0000006	0.9999998	-0.0002866	0.0005290
9	-38.9360914	-0.0000002	0.9999999	0.0002431	0.0002634
10	-38.9360916	-0.0000001	1.0000000	-0.0001556	0.0001608
11	-38.9360916	0.0000000	1.0000000	-0.0001344	0.0001399
12	-38.9360917	0.0000000	1.0000000	0.0000934	0.0000929

CH<sub>2</sub> - <sup>3</sup>B<sub>1</sub>

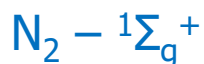
初期軌道はROHF

```
**** CASSCF ITERATION HAS CONVERGED FORTUNATELY ****
```

ITR.	CASCI-ENERGY	SX-CI-ENERGY	REF. COEF.	MAX. COEF.	MAX. -BLB.
1	-38.9326111	-0.0123985	0.9969204	0.0504743	0.1082961
2	-38.9524151	-0.0039559	0.9991099	-0.0266557	0.0552069
3	-38.9576135	-0.0006399	0.9998610	-0.0125265	0.0274025
4	-38.9584553	-0.0000847	0.9999815	-0.0034187	0.0070341
5	-38.9585735	-0.0000155	0.9999965	-0.0012396	0.0028563
6	-38.9585965	-0.0000039	0.9999991	0.0006377	0.0013085
7	-38.9586024	-0.0000011	0.9999997	-0.0003701	0.0008377
8	-38.9586042	-0.0000004	0.9999999	0.0002179	0.0004897
9	-38.9586048	-0.0000001	1.0000000	-0.0001605	0.0003670
10	-38.9586050	0.0000000	1.0000000	-0.0001053	0.0002364
11	-38.9586051	0.0000000	1.0000000	0.0000702	0.0001583

# CASSCFプロトタイプの計算例#2

- ・6-31G\*\*基底(6d)
- ・6電子6軌道の設定
- ・DALTON&G16と一致
- ・R=1.10976Å



初期軌道はRHF

```
**** CASSCF ITERATION HAS CONVERGED FORTUNATELY ****
ITR.   CASCI-ENERGY  SX-CI-ENERGY  REF. COEF.   MAX. COEF.   MAX. -BLB.
  1    -109.0098436  -0.0227114    0.9958586    0.0517184    0.1476598
  2    -109.0332498  -0.0169561    0.9961517   -0.0627454    0.1155621
  3    -109.0379574  -0.0182111    0.9923571    0.1190064    0.1380152
  4    -109.0382044  -0.0026695    0.9992630    0.0256787    0.0390800
  5    -109.0425791  -0.0021365    0.9995043    0.0233834    0.0471756
  6    -109.0465451  -0.0047633    0.9990247    0.0290170    0.0712042
  7    -109.0573393  -0.0074492    0.9987071   -0.0421599    0.1191108
  8    -109.0686491  -0.0040153    0.9993103   -0.0230350    0.0798931
  9    -109.0750923  -0.0019226    0.9996428    0.0207491    0.0556599
 10    -109.0780380  -0.0006322    0.9998791   -0.0089836    0.0254307
 11    -109.0789756  -0.0001654    0.9999687    0.0058997    0.0144203
 12    -109.0792221  -0.0000436    0.9999919   -0.0020492    0.0053221
 13    -109.0792888  -0.0000132    0.9999976    0.0013306    0.0034992
 14    -109.0793096  -0.0000046    0.9999992    0.0005742    0.0019156
 15    -109.0793169  -0.0000017    0.9999997    0.0004649    0.0015629
 16    -109.0793196  -0.0000006    0.9999999   -0.0002411    0.0008094
 17    -109.0793206  -0.0000002    1.0000000    0.0001879    0.0006310
 18    -109.0793210  -0.0000001    1.0000000   -0.0000957    0.0003224
 19    -109.0793212    0.0000000    1.0000000    0.0000736    0.0002470
 20    -109.0793212    0.0000000    1.0000000   -0.0000373    0.0001259
```

- ・MP2自然軌道を使うと13回で収束
- ・レベルシフトはやや強めに導入
- ・IJQCはレベルシフト無しで22回で収束

# CASSCFプロトタイプの計算例#3

[FeO]<sup>2+</sup> – 5Δ

初期軌道は5重項の  
ROHF軌道、ただし1つ  
の弱占有軌道はMP2の  
自然軌道でセット

\*\*\*\* CASSCF ITERATION HAS CONVERGED FORTUNATELY \*\*\*\*

ITR.	CASCI-ENERGY	SX-CI-ENERGY	REF. COEF.	MAX. COEF.	MAX. -BLB.
1	-1335.8573521	-0.2027905	0.9702389	-0.1217245	0.4080728
2	-1336.1386123	-0.0470472	0.9922214	0.0611149	0.2184676
3	-1336.2103921	-0.0138344	0.9972994	0.0389764	0.0854950
4	-1336.2359218	-0.0073801	0.9983123	-0.0354049	0.0787111
5	-1336.2498457	-0.0043881	0.9989254	-0.0283865	0.0590904
6	-1336.2577781	-0.0024865	0.9993641	-0.0239681	0.0483806
7	-1336.2621855	-0.0013857	0.9996346	0.0189172	0.0369537
8	-1336.2646267	-0.0007774	0.9997902	-0.0147759	0.0277779
9	-1336.2659954	-0.0004418	0.9998786	0.0116561	0.0217888
10	-1336.2667742	-0.0002544	0.9999291	0.0089286	0.0160559
11	-1336.2672232	-0.0001480	0.9999583	0.0070604	0.0128473
12	-1336.2674848	-0.0000868	0.9999754	0.0053885	0.0094594
13	-1336.2676383	-0.0000512	0.9999854	0.0042533	0.0076085
14	-1336.2677290	-0.0000303	0.9999913	0.0032491	0.0056381
15	-1336.2677828	-0.0000180	0.9999948	-0.0025546	0.0045148
16	-1336.2678147	-0.0000107	0.9999969	-0.0019556	0.0033784
17	-1336.2678338	-0.0000064	0.9999982	-0.0015321	0.0026823
18	-1336.2678451	-0.0000038	0.9999989	0.0011749	0.0020287
19	-1336.2678519	-0.0000023	0.9999993	-0.0009181	0.0015944
20	-1336.2678559	-0.0000014	0.9999996	0.0007046	0.0012187
21	-1336.2678584	-0.0000008	0.9999998	0.0005496	0.0009475
22	-1336.2678598	-0.0000005	0.9999999	-0.0004221	0.0007323
23	-1336.2678607	-0.0000003	0.9999999	0.0003292	0.0005638
24	-1336.2678612	-0.0000002	0.9999999	0.0002527	0.0004399
25	-1336.2678615	-0.0000001	1.0000000	0.0001966	0.0003346
26	-1336.2678617	-0.0000001	1.0000000	0.0001512	0.0002641
27	-1336.2678618	0.0000000	1.0000000	0.0001177	0.0001994
28	-1336.2678618	0.0000000	1.0000000	0.0000906	0.0001588

- 6-31G\* (6d,10f)
- 10電子8軌道
- R=1.7346Å

占有数

1.8003  
1.8003  
1.5608  
1.1936  
1.1936  
1.0033  
1.0033  
0.4445

CSF展開のDALTONとはエネルギーと占有数分布が一致

# CASSCFプロトタイプの計算例#4

[FeO]<sup>2+</sup> - 3Δ

初期軌道は5重項の  
CASSCF軌道

\*\*\*\* CASSCF ITERATION HAS CONVERGED FORTUNATELY \*\*\*\*

ITR.	CASCI-ENERGY	SX-CI-ENERGY	REF. COEF.	MAX. COEF.	MAX. -BLB.
1	-1336.2567900	-0.0073784	0.9987478	-0.0207470	0.0460534
2	-1336.2691291	-0.0029545	0.9994209	0.0214186	0.0511378
3	-1336.2738359	-0.0011107	0.9997582	-0.0150086	0.0315333
4	-1336.2756725	-0.0004914	0.9998856	-0.0096407	0.0201978
5	-1336.2765047	-0.0002419	0.9999408	0.0083376	0.0162935
6	-1336.2769213	-0.0001282	0.9999675	-0.0053286	0.0100955
7	-1336.2771447	-0.0000715	0.9999814	-0.0050102	0.0093849
8	-1336.2772705	-0.0000414	0.9999890	-0.0032339	0.0058240
9	-1336.2773436	-0.0000246	0.9999934	-0.0031166	0.0057158
10	-1336.2773872	-0.0000148	0.9999960	-0.0020293	0.0035911
11	-1336.2774136	-0.0000091	0.9999975	-0.0019726	0.0035707
12	-1336.2774297	-0.0000056	0.9999985	0.0012888	0.0022888
13	-1336.2774397	-0.0000035	0.9999990	0.0012523	0.0022471
14	-1336.2774459	-0.0000022	0.9999994	0.0008201	0.0014768
15	-1336.2774498	-0.0000014	0.9999996	-0.0007950	0.0014182
16	-1336.2774523	-0.0000009	0.9999998	-0.0005209	0.0009530
17	-1336.2774538	-0.0000005	0.9999999	-0.0005038	0.0008947
18	-1336.2774547	-0.0000003	0.9999999	0.0003305	0.0006119
19	-1336.2774553	-0.0000002	0.9999999	0.0003194	0.0005664
20	-1336.2774557	-0.0000001	1.0000000	-0.0002093	0.0003890
21	-1336.2774560	-0.0000001	1.0000000	-0.0002019	0.0003584
22	-1336.2774561	-0.0000001	1.0000000	0.0001326	0.0002430
23	-1336.2774562	0.0000000	1.0000000	0.0001291	0.0002312
24	-1336.2774563	0.0000000	1.0000000	-0.0000838	0.0001511

占有数

1.9930

1.9809

1.3281

1.3281

1.0142

0.9998

0.6779

0.6779

CSF展開のDALTONとはエネルギーと占有数分布が一致

# CASSCFプロトタイプの計算例#5

[FeO]<sup>2+</sup> - <sup>7</sup>Δ

初期軌道は5重項の  
CASSCF軌道

\*\*\*\* CASSCF ITERATION HAS CONVERGED FORTUNATELY \*\*\*\*

ITR.	CASCI-ENERGY	SX-CI-ENERGY	REF. COEF.	MAX. COEF.	MAX. -BLB.
1	-1336.2522135	-0.0059031	0.9988913	-0.0231976	0.0425194
2	-1336.2609563	-0.0018114	0.9996025	0.0214751	0.0484437
3	-1336.2639223	-0.0007779	0.9998141	0.0154332	0.0289155
4	-1336.2652365	-0.0003769	0.9999057	0.0087869	0.0178215
5	-1336.2658864	-0.0002011	0.9999476	-0.0088915	0.0162613
6	-1336.2662371	-0.0001132	0.9999694	0.0053974	0.0098891
7	-1336.2664362	-0.0000649	0.9999823	0.0054318	0.0096991
8	-1336.2665513	-0.0000392	0.9999891	0.0032681	0.0056810
9	-1336.2666210	-0.0000245	0.9999930	0.0025714	0.0043965
10	-1336.2666647	-0.0000148	0.9999958	-0.0020210	0.0034333
11	-1336.2666912	-0.0000094	0.9999973	0.0018098	0.0030603
12	-1336.2667081	-0.0000058	0.9999983	0.0012594	0.0021324
13	-1336.2667185	-0.0000037	0.9999989	0.0013337	0.0022641
14	-1336.2667252	-0.0000024	0.9999993	-0.0007566	0.0013068
15	-1336.2667295	-0.0000015	0.9999996	0.0008440	0.0014346
16	-1336.2667322	-0.0000010	0.9999997	-0.0004680	0.0007890
17	-1336.2667339	-0.0000006	0.9999998	0.0004618	0.0007729
18	-1336.2667350	-0.0000004	0.9999999	0.0002657	0.0004527
19	-1336.2667358	-0.0000002	0.9999999	-0.0003605	0.0006183
20	-1336.2667362	-0.0000002	1.0000000	0.0001903	0.0003165
21	-1336.2667365	-0.0000001	1.0000000	0.0002343	0.0004028
22	-1336.2667367	-0.0000001	1.0000000	-0.0001331	0.0002257
23	-1336.2667368	0.0000000	1.0000000	0.0001510	0.0002601
24	-1336.2667369	0.0000000	1.0000000	0.0000902	0.0001556

占有数

1.8937

1.8937

1.1056

1.1056

1.0007

1.0007

1.0000

1.0000

CSF展開のDALTONとはエネルギーと占有数分布が一致

# NEVPT2: CASSCFの後の動的相関補正

JOURNAL OF CHEMICAL PHYSICS

VOLUME 117, NUMBER 20

22 NOV

## *n*-electron valence state perturbation theory: A spinless formulation and an efficient implementation of the strongly contracted and of the partially contracted variants

Celestino Angeli and Renzo Cimiraglia<sup>a)</sup>*Dipartimento di Chimica, Università di Ferrara, Via Borsari 46, I-44100 Ferrara, Italy*

Jean-Paul Malrieu

*IRSAMC, Laboratoire de Physique Quantique, Université Paul Sabatier, 118 route de Narbonne, 31062 Toulouse Cedex, France*

(Received 26 April; accepted 27 August 2002)

The *n*-electron valence state perturbation theory is reformulated in a spin-free formalism, concentrating on the “strongly contracted” and “partially contracted” variants. The new formulation is based on the introduction of average values in the unperturbed state of excitation operators which bear resemblance with analogous ones occurring in the extended Koopmans’ theorem and in the equations-of-motion technique. Such auxiliary quantities, which allow the second-order perturbation contribution to the energy to be evaluated very efficiently, can be calculated at the outset provided the unperturbed four-particle spinless density matrix in the active orbital space is available. A noticeable inequality concerning second-order energy contributions of the same type between the strongly and partially contracted versions is proven to hold. An example concerning the successful calculation of the potential energy curve for the Cr<sub>2</sub> molecule is discussed. © 2002 American Institute of Physics. [DOI: 10.1063/1.1515317]

- ・ CASCI空間を内部縮約 ⇒ 4体密度行列が必要
- ・ 自由度の高い「一部短縮」の方が信頼性は高め
- ・ DMRGとしないので、活性軌道数は14までを想定

- ・ S.C.でU.I.なMRPT
- ・ 侵略状態は無し
- ・ 8タイプの励起パターン
- ・ 強縮約と一部縮約の2種
- ・ 式は極めて複雑
- ・ CSFベースで式を整理
- ・ ファイルレス実装が可能

No.	Label	Ex. Type	Inact.	Act.	Vir.
1	V(0)	$ij \rightarrow ab$	-2	0	2
2	V(+1)	$ij \rightarrow xa$	-2	1	1
3	V(-1)	$ix \rightarrow ab$	-1	-1	2
4	V(+2)	$ij \rightarrow xy$	-2	2	0
5	V(-2)	$xy \rightarrow ab$	0	-2	2
6	V(0)'	$ix \rightarrow ya$	-1	0	1
7	V(+1)'	$ix \rightarrow yz$	-1	1	0
8	V(-1)'	$xy \rightarrow za$	0	-1	1

# NEVPT2で出てくる有効ハミルトニアンの1例

- これはまだ簡単な方
- 活性軌道空間の縮約が大変
- 4体密度行列の処理まで必要
- 作業配列導入で8重ループに

$$S(C)_{atuv}^{a't'u'v'} = \delta_{aa'} \{S^{(C)}\}_{t'v',u';tv,u}$$

$$\{S^{(C)}\}_{t'v',u';tv,u} = \Lambda_{v'u',t't,uv}$$

$$H'(C)_0^{a't'u'v'} = \sum_q h_{a'q}^{eff} \gamma_{v'u',t'q} - \sum_q Z_{a'q} \gamma_{v'u',t'q} + \sum_{qrs} (a'q|rs) \Lambda_{v'u',t'q,rs}$$

$$H_0(C)_{atuv}^{a't'u'v'} - E_0 S(C)_{atuv}^{a't'u'v'} = \delta_{aa'} [\Delta F_a^{(C)} \{S^{(C)}\}_{t'v',u';tv,u} + \{\Delta H_D^{(C)}\}_{t'v',u';tv,u}]$$

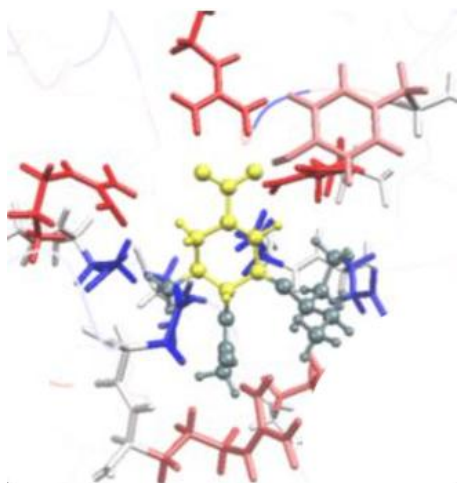
$$\Delta F_a^{(C)} = f_a$$

$$\begin{aligned} \{\Delta H_D^{(C)}\}_{t'v',u';tv,u} = & [-h_{tu}^{eff} \gamma_{v'u',t'v} + \sum_p h_{pu}^{eff} \Lambda_{v'u',t't,pv} - \sum_q h_{vq}^{eff} \Lambda_{v'u',t't,uq} \\ & - \sum_q h_{tq}^{eff} \Lambda_{v'u',uv,t'q} + \delta_{t'v} \sum_q h_{tq}^{eff} \gamma_{v'u',uq} \\ & + Z_{tu} \gamma_{v'u',t'v} + \sum_q Z_{vq} \Lambda_{v'u',t't,uq} - \delta_{t'v} \sum_q Z_{tq} \gamma_{v'u',uq} + \sum_q Z_{tq} \Lambda_{v'u',uv,t'q} \\ & - \sum_{pq} (pq|tu) \Lambda_{v'u',t'v,pq} - \sum_{pq} (pu|tq) \Lambda_{v'u',t'q,pv} + \sum_{qs} (vq|ts) \Lambda_{v'u',t's,uq} \\ & - \sum_{ps} (pu|vs) \Lambda_{v'u',t't,ps} + \delta_{t'v} \sum_{pqs} (pq|ts) \Lambda_{v'u',us,pq} \\ & + \sum_{pqr} (pq|ru) \Pi_{v'u',t't,rv,pq} - \sum_{pqs} (pq|ts) \Pi_{v'u',uv,t's,pq} - \sum_{pqs} (pq|vs) \Pi_{v'u',t't,us,pq}] \end{aligned}$$

# FMOとマルチスケールシミュレーション

# 各スケールの分子シミュレーション

## ◇量子化学 (FMO)

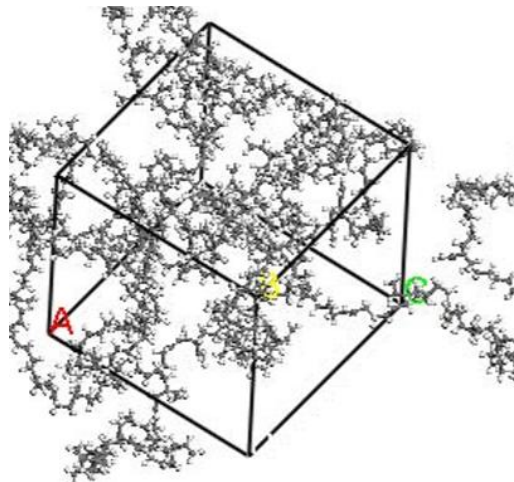


### [電子状態の計算]

- ・タンパク質とリガンドの相互作用
- ・結晶中の分子間相互作用

Å単位

## ◇分子動力学

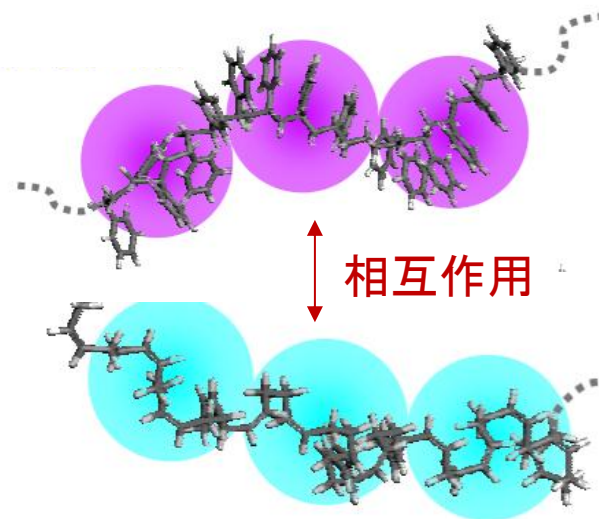


### [原子単位の運動]

- ・結晶のパッキング
- ・弾性率(応力-ひずみ)
- ・ガラス転移点の挙動

数nm単位

## ◇粗視化シミュレーション



### [原子集団単位の運動]

- ・長時間の運動
- ・リポソームの融合
- ・ポリマーの相分離

数10~100nm単位

粗視化粒子間の相互作用をFMOを使って算出

## 粗視化シミュレーションのパラメータを算定する試み

The Journal of Physical Chemistry B &gt; Vol 122/Issue 1 &gt; Article

Subscribed


Cite Share Jump to Expand

ARTICLE | December 29, 2017

## Fragment Molecular Orbital Based Parametrization Procedure for Mesoscopic Structure Prediction of Polymeric Materials

Koji Okuwaki<sup>†</sup>, Yuji Mochizuki<sup>\*††</sup> , Hideo Doi<sup>†</sup>, and Taku Ozawa<sup>§</sup>

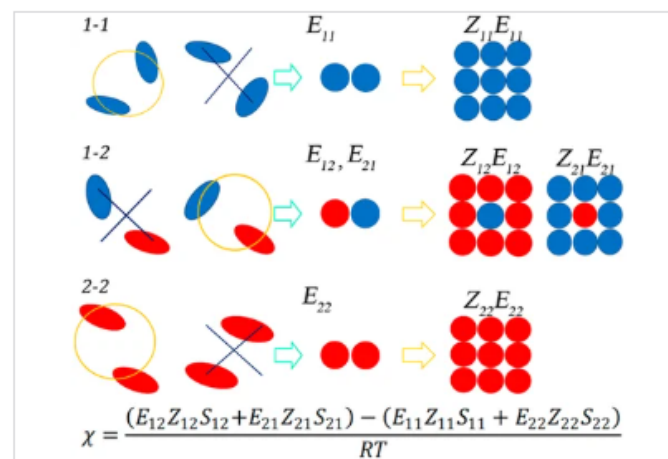
View Author Information ▾

 Open PDF

- ・ 粒子間の有効相互作用 ( $\chi$ ) パラメータの非経験的算定を提案
- ・ シミュレーションの信頼性/汎用性を向上させる意図
- ・ 異方性の考慮も改良ポイント

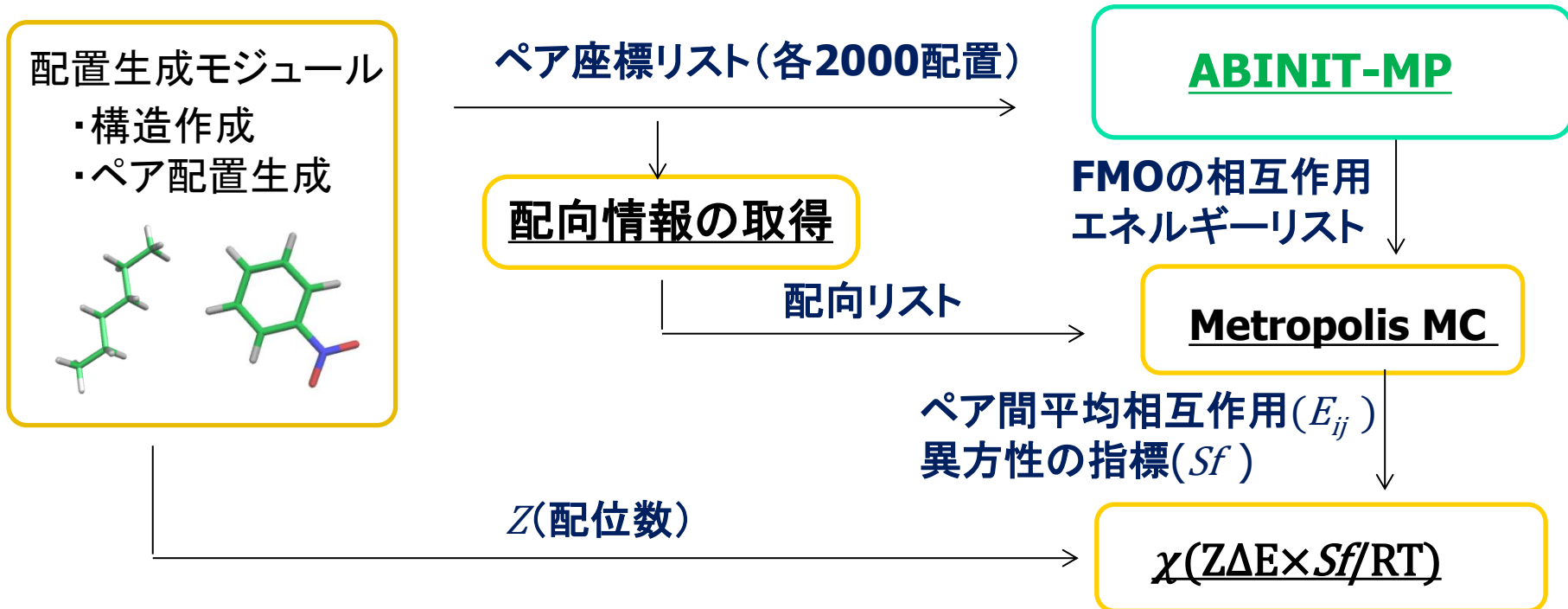
## Abstract

In the analyses of miscibility behaviors of macromolecules and polymers, dissipative particle dynamics (DPD) simulations are generally performed. In these simulations, the so-called  $\chi$  parameters describing the effective interactions among particles are crucial. It has been known that such parameters can be obtained within the classical or empirical force field frameworks. However, there is a potential problem that charge transfer and polarization occasionally occur. Additionally, satisfactory reference parameters are not available for some cases. Therefore, we developed a new procedure to evaluate the set of parameters by using the ab initio fragment molecular orbital (FMO) method which can provide the set of interaction energies among segments as polymer units. Moreover, we evaluated the anisotropy of molecules by using the FMO-based effective interaction parameters for three standard binary mixture systems (hexane–nitrobenzene, polyisobutylene–diisobutyl ketone, and polyisoprene–polystyrene). The calculated values showed good agreement with the experimental values with about 10% errors.



# FMO計算に基づくパラメータ算定のワークフロー

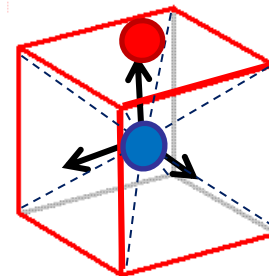
## ◆配置生成からパラメータ算出処理までの自動化



## ◆異方性の指標( $Sf$ )の導入:

- ・特定の配向で強い相互作用を示す系: 平均相互作用を過大評価
- ・MC法採用配置の配向の偏りから相互作用をスケールリング

⇒単純な二成分系の相転移臨界温度が実験と良好な一致

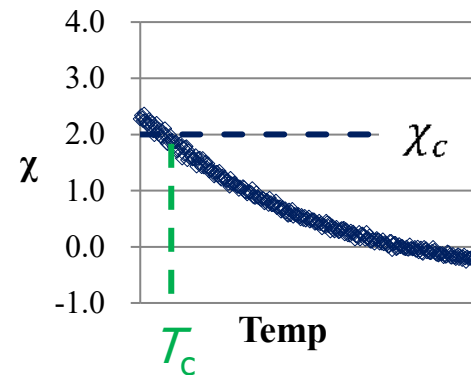


ワークフローを汎用システム化してリリース (名称はFCEWS)

# FMOによる算定値の検証

◇温度上昇： $\chi$ が減少（一般的に）→相溶しやすく  
 臨界点（相が分離しなくなる閾値）の温度  $T_c$ ：実験と比較

臨界点  $\chi$  ( $\chi_c$ )  $\chi_c = \frac{(\frac{1}{\sqrt{n_a}} + \frac{1}{\sqrt{n_b}})^2}{2}$   $n_a, n_b =$  各成分の重合度  
 重合度： $\frac{\text{ポリマー分子量 (Mw)}}{\text{セグメント分子量}}$



Hexane - Nitrobenzene

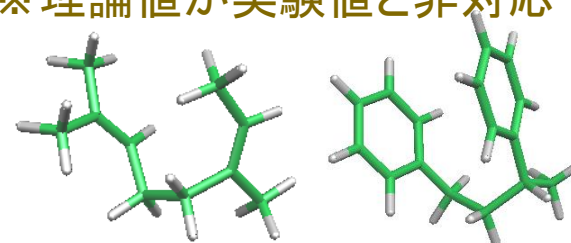
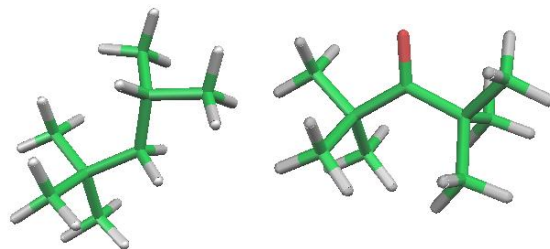
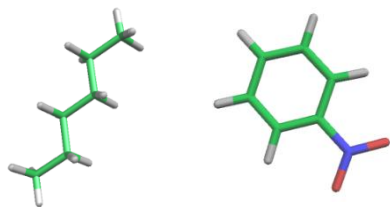
Diisobutyl ketone - Polyisobutylene

Polyisoprene - Polystyrene

Tc(K)		
$\chi_c$	exptl.	FMO
2.0	293	286

Tc(K)				
Mw	$\chi_c$	exptl.	FMO	
22700	0.57	292	328	
285000	0.52	319	346	
6000000	0.50	329	354	

Mw		Tc(K)		
pip	ps	$\chi_c$	exptl.	FMO
1000	1000	0.34	243	255
2000	2700	※0.15	329	420
2700	2100	0.15	408	420
2700	2700	0.12	448	489



実験値を10%程の誤差で再現

※理論値が実験値と非対応

# DPDシミュレーション

- ・ 散逸粒子動力学 (DPD) は粗視化シミュレーション手法の1つ
- ・ メゾスケールの構造・配置空間を効率よく探索可能
- ・ 4成分の力からなる運動方程式、「粒子間のすり抜け」が可能
- ・  $\chi$ パラメータは保存力に反映、スケール因子による転換 (DPDシミュレーション結果の信頼性/精度を大きく左右)
- ・ 結合の記述、角度保持などの拘束パラメータも適宜印加

$$\mathbf{f}_i = \sum_{j \neq i} (\mathbf{F}_{ij}^C + \mathbf{F}_{ij}^D + \mathbf{F}_{ij}^R + \mathbf{F}_{ij}^S)$$

Four components of force

$$\mathbf{F}_{ij}^C = \begin{cases} -a_{ij}(r_c - r_{ij})\mathbf{n}_{ij} & r_{ij} < r_c \\ 0 & r_{ij} \geq r_c \end{cases}$$

Conservative force (cut-off)

$$a_{ij} = (a_{ii} + a_{jj})/2 + 3.27\chi_{ij}$$

Conversion from Chi-parameter

$$\mathbf{F}_{ij}^D + \mathbf{F}_{ij}^R$$

Dissipative and random forces

$$\mathbf{F}_{ij}^H = C(r_e - r_{ij})\mathbf{n}_{ij}$$

Harmonic force

$$\mathbf{F}_{ij}^M = 2K_M\alpha e^{-\alpha(r_{ij}-r_e)} \left( e^{-\alpha(r_{ij}-r_e)} - 1 \right) \mathbf{n}_{ij}$$

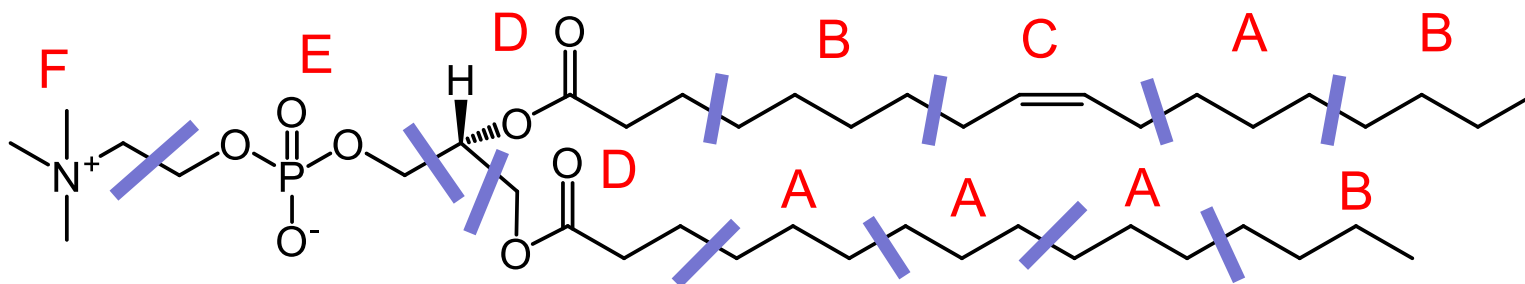
Morse force

$$\mathbf{F}_{ij}^S = \mathbf{F}_{ij}^H + \mathbf{F}_{ij}^M$$

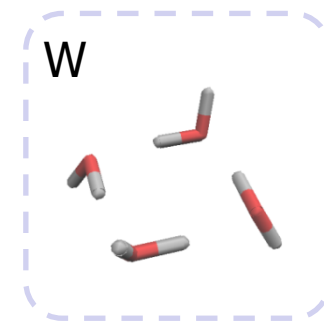
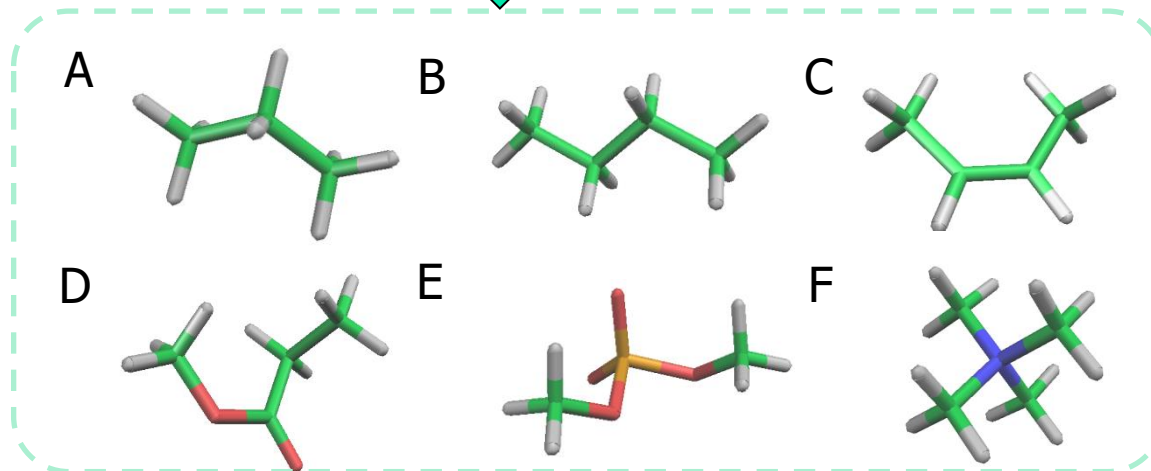
FMO-DPDでは $a_{ij}$ にFCEWSで決めた $\chi$ パラメータを使う

# POPC脂質膜へのFMO-DPDの応用#1

POPC: 頭部にコリンを有する代表的なリン脂質



分子内を小分子に分割 ⇒ 「部品」として再利用可能



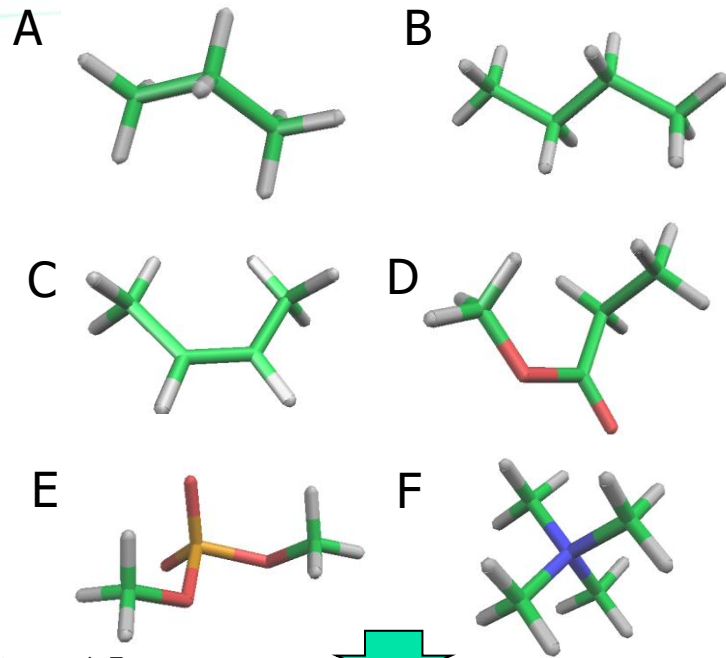
水を含めた7成分間、21ペアのパラメータ算定

- ・溶媒効果(Poisson-Boltzmann)を取り入れた二分子モデル計算
- ・計算レベル: FMO2-MP2-PB/6-31G<sup>+</sup>、各ペア2000配座

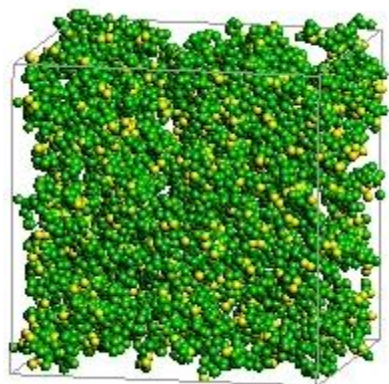
# POPC脂質膜へのFMO-DPDの応用#2

各成分間の $\chi$ (300K)

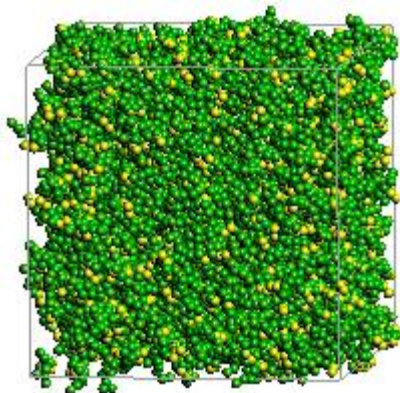
	B	C	D	E	F	W
A	-0.18	-0.23	1.39	4.75	4.76	12.08
B		-0.61	0.71	5.46	5.81	12.66
C			1.18	4.81	5.74	10.56
D				1.99	-4.00	9.73
E	● 親水部(E,F)				2.55	-6.64
F	● 疎水部(A,B,C,D)					6.00



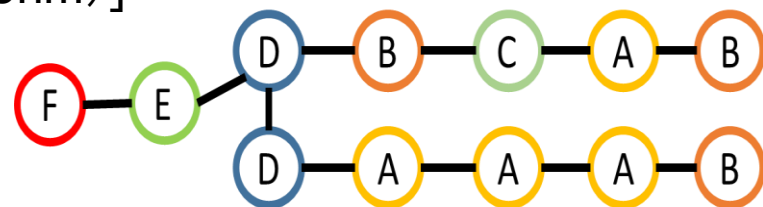
◇DPDシミュレーション[cognac, 約80000粒子(1辺21.3nm)]



脂質13%:ベシクル



脂質20%:膜



- ・親水部(E,F,W)同士:親和性大
- ・疎水部(A,B,C)同士:親和性大
- ・親水部-疎水部:親和性小

傾向を再現

⇒経験的パラメータなしで構造の再現

# POPC脂質膜へのFMO-DPDの応用#3

## 膜面積

観測条件	観測方法	結果 ( $\text{\AA}^2$ )
303K	Diffuse X-ray scattering	68.3 [1]
293K	neutron and X-ray scattering	62.7[2]
303K	neutron and X-ray scattering	64.3 [2]
300 K	DPD	69.4[3]

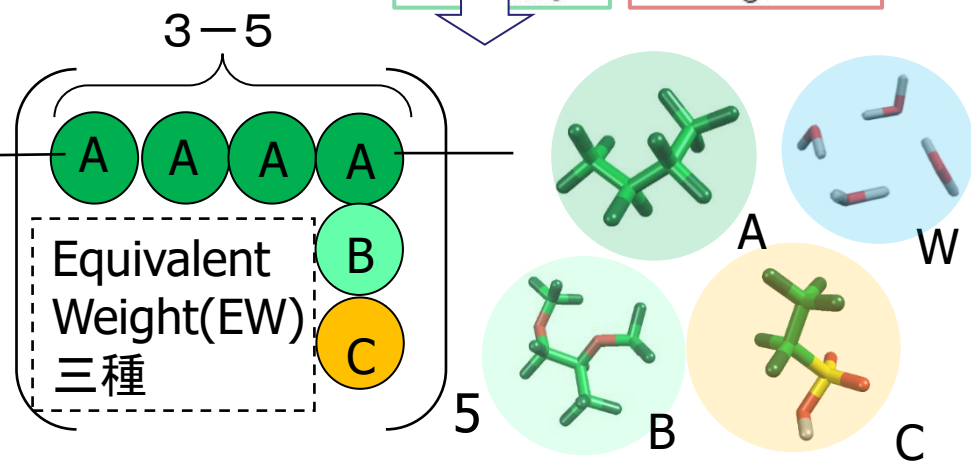
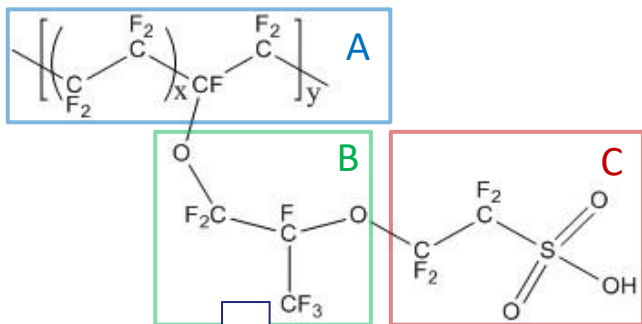
## 膜厚

実測[4](H-NMR) 2.58 (nm)  
 疎水基の膜厚 2.8 (nm)

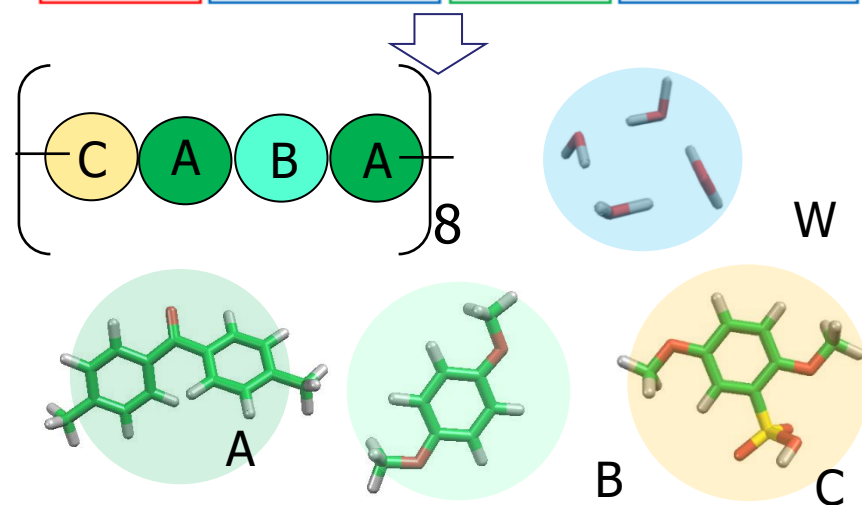
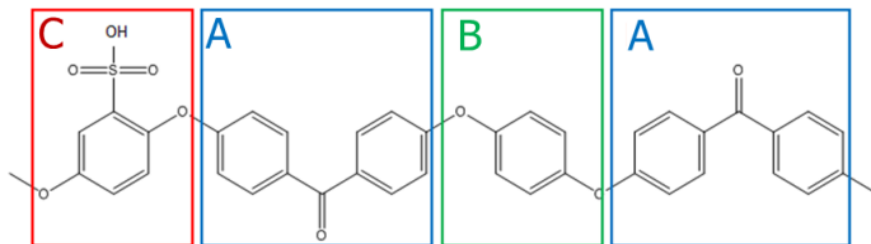
実験値をほぼ再現

# 高分子電解質膜へのFMO-DPDの応用#1

## ◇Nafion



## ◇SPEEK



## ◇粒子間パラメータ算定

- 分子内を小分子に分割(上図)
- 水分子を含めた4成分間の $\chi$ 値算定

## ◇DPD設定

- 約80000粒子(1辺21.3nm)
- $\Delta t=0.05$ , 10000step(約75ns)

各ペア計算配座数:2000

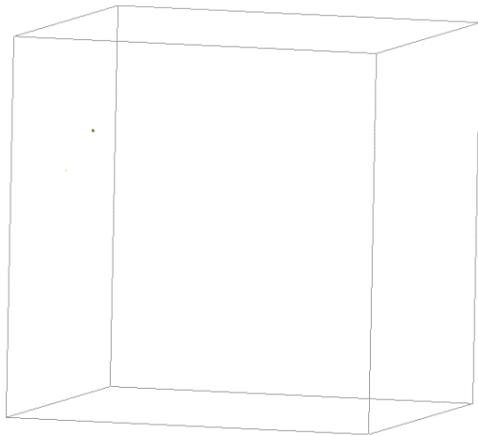
セグメント構造最適化:B97D/6-31G†

計算レベル:FMO2-MP2/6-31G†

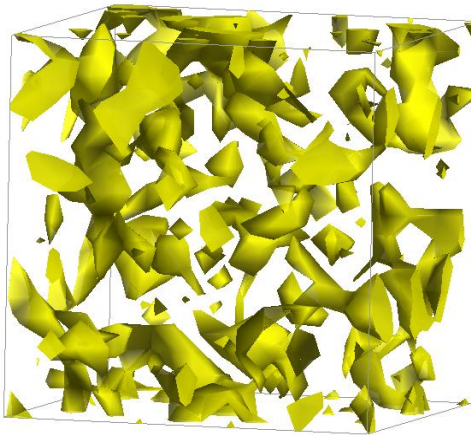
水含有率を10-30%で変更し、得られた構造を検証

# 高分子電解質膜へのFMO-DPDの応用#2

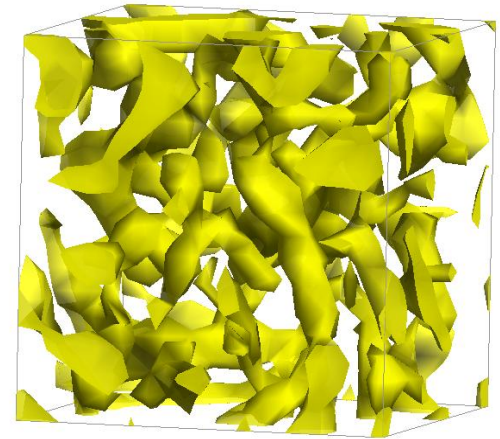
T=0



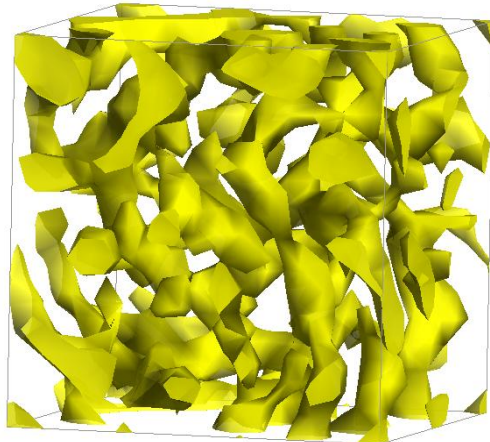
T=10



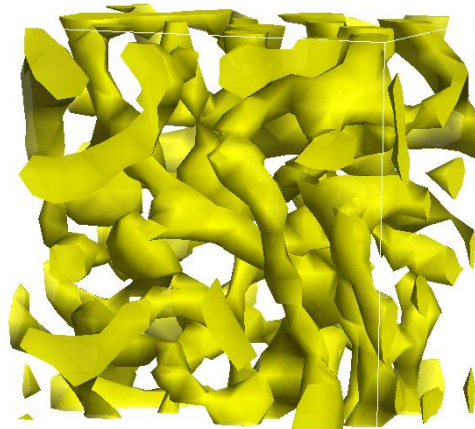
T=50



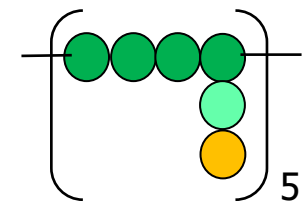
T=100



T=500



Nafion(b) 水20%  
水密度分布(等値面0.4)



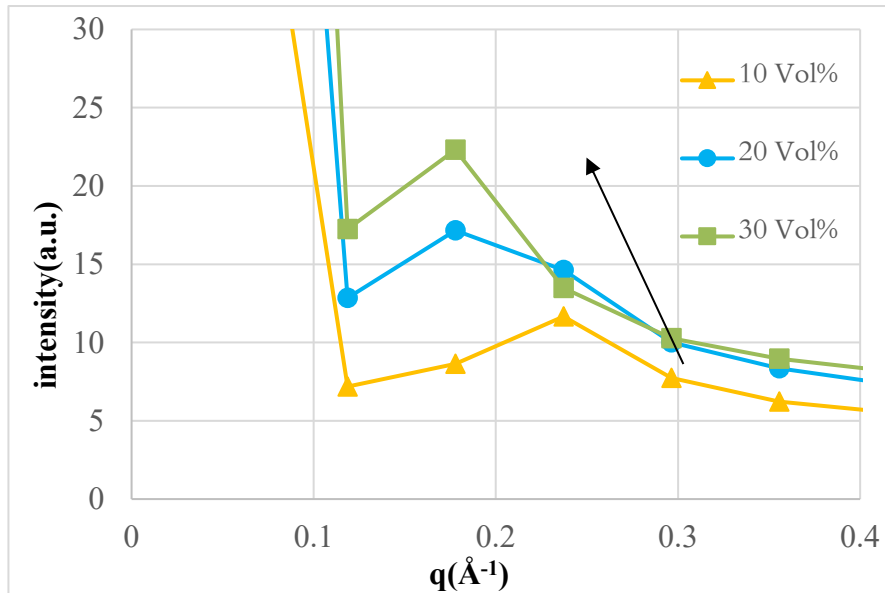
**時間と共にクラスターが連結**

# 高分子電解質膜へのFMO-DPDの応用#3

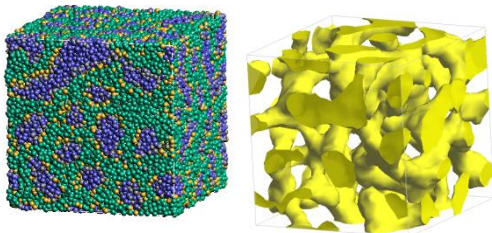
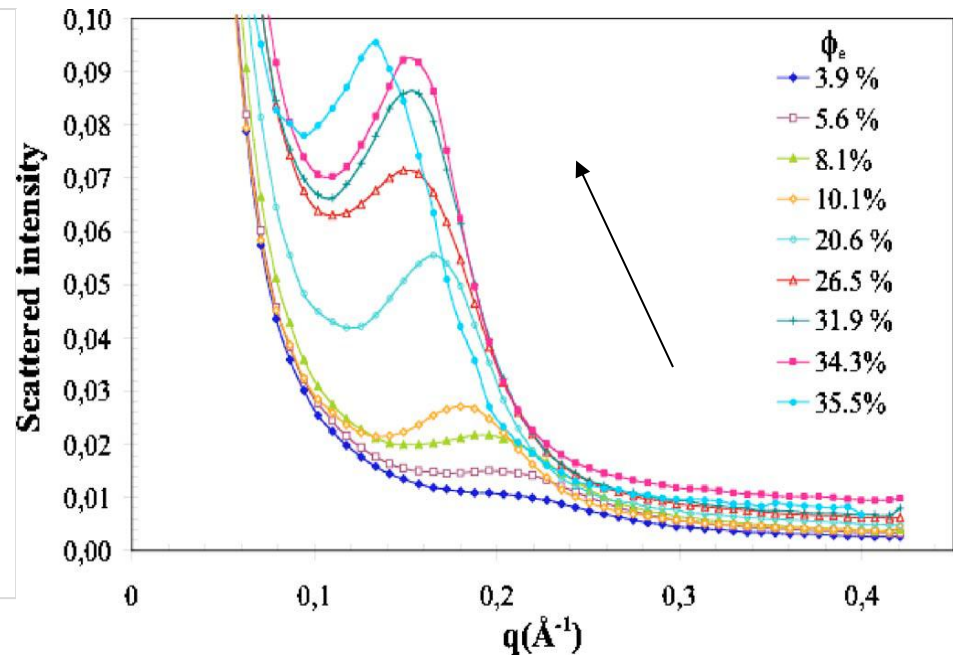
## 小角散乱

[1] F. Xu et al., *J. Electrochem. Soc.*, **154** (2007) B1389.

### FMO-DPDシミュレーション (動径分布からフーリエ変換)



### 実験データ[1]

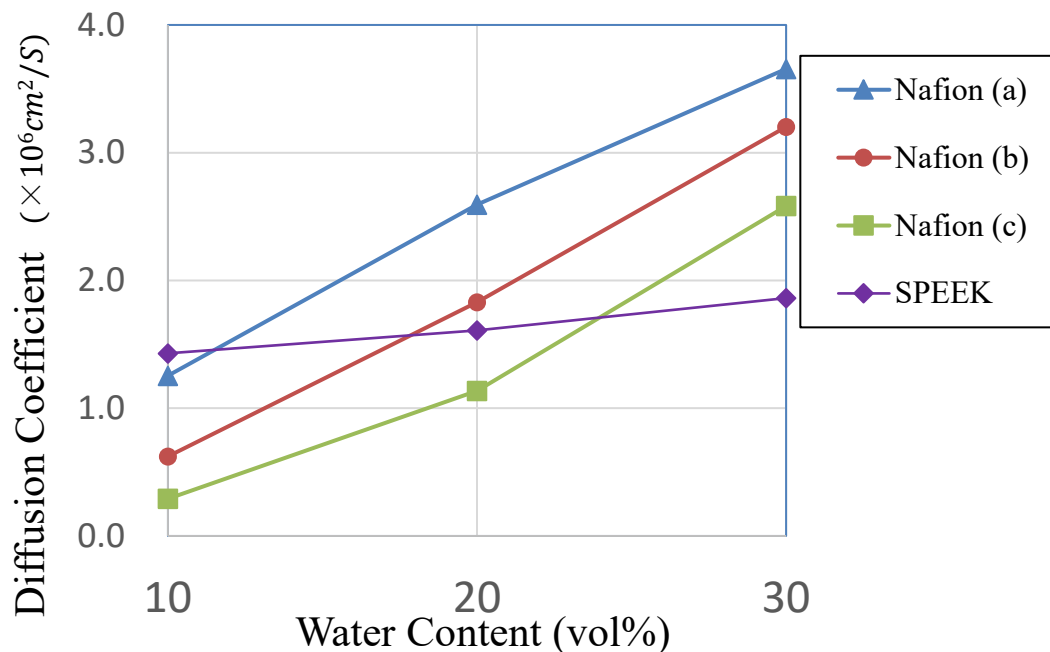


- ・ピーク位置( $0.2 \text{ \AA}^{-1}$ 付近)と、水分量の増加によるシフト相関が実験と一致(クラスター由来: ionomer peak)
- ⇒本シミュレーションの信頼性を裏打ちする結果

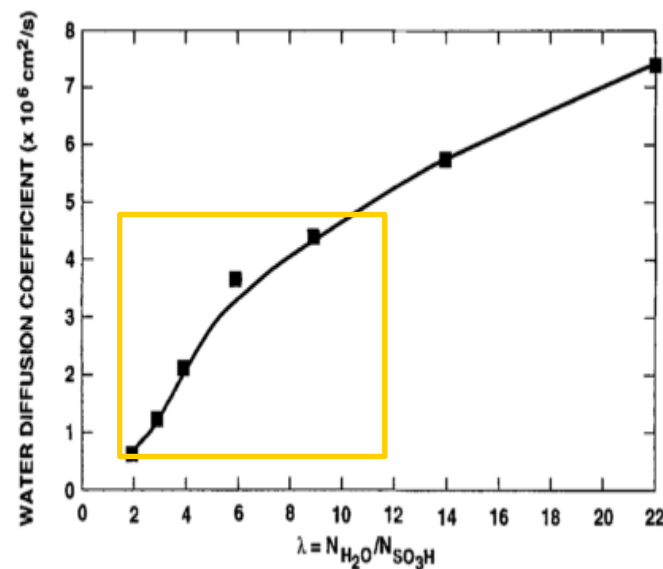
# 高分子電解質膜へのFMO-DPDの応用#4

## 水分子の拡散係数

FMO-DPDシミュレーション  
(MSDから算定)



実験データ(ナフィオン)



Nafion: 10 vol% – 30 vol%  $\Rightarrow \lambda$  (number of  $\text{H}_2\text{O}/\text{SO}_3\text{H}$ ) = 2.5 – 10 に相当

実験値:  $0.8 \times 10^{-6}$  -  $4.5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$

計算値:  $0.6 \times 10^{-6}$  -  $3.2 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$

妥当な一致

SPEEK: 水増加による増加が少ない  $\Rightarrow$  クラスターの連結度が低いことを示唆

# 高分子電解質膜へのFMO-DPDの応用#5

[1] J.J. Fontanella et al., *Macromolecules* **29** (1996) 4944.

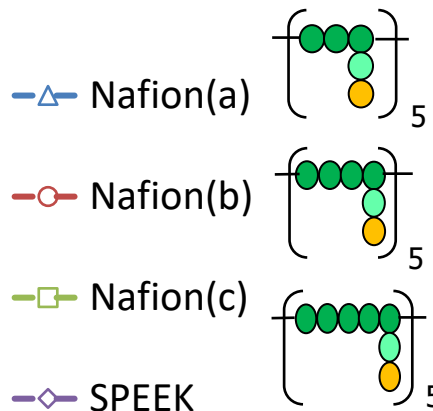
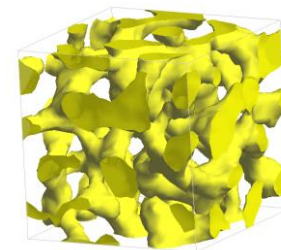
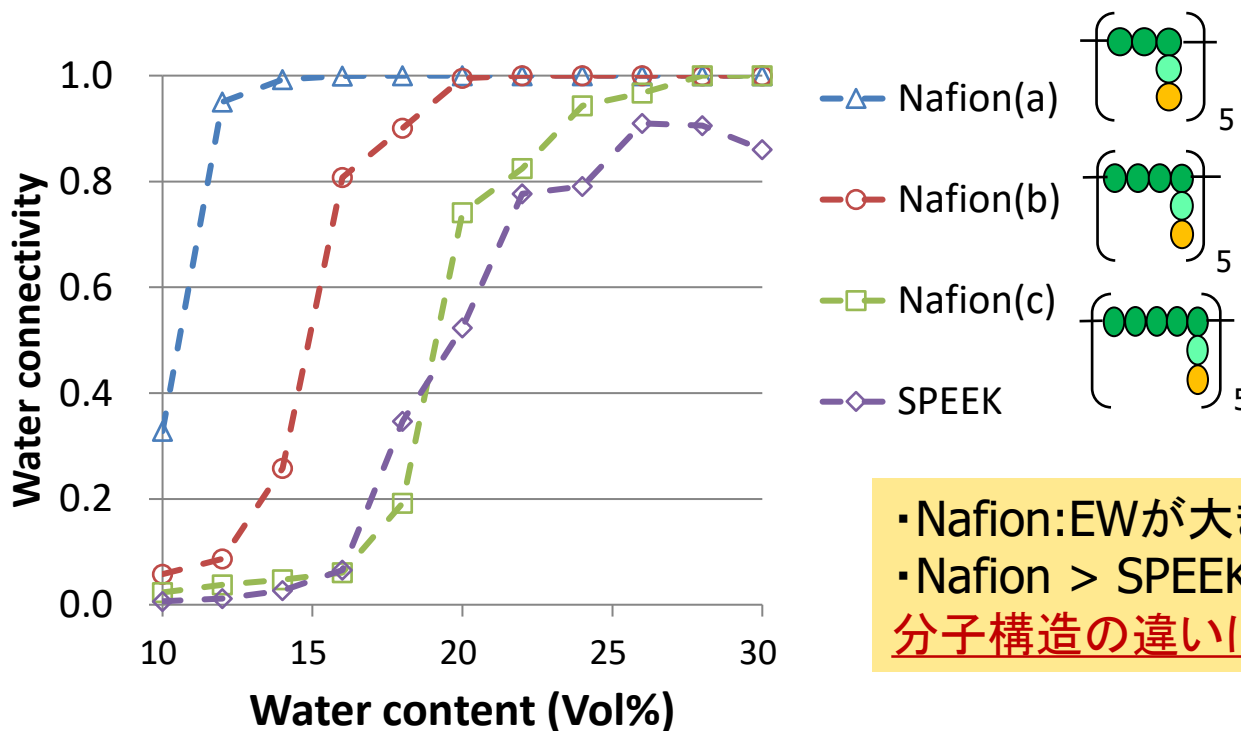
[2] X. Wu et al., *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.* **49** (2011) 1437.

## ◇水粒子の平均連結率の算定

含水率10-30%の間で、水クラスタの連結度の変化を比較

クラスタの連結: 隣接水粒子の距離で判定(水の第一配位圏)  
シミュレーション後半, 100 stepごとの平均構造を評価

水含有率による水クラスタ連結率の変化



cf. 実測値[2]  
(conductivity)  
・Nafion 10%  
・SPEEK 30%

・Nafion:EWが大きい=電導度低[1]

・Nafion > SPEEK[2]

分子構造の違いによる差: 定性的に再現

# パーシステントホモロジー(PH)による解析

## Feature vectorization of microphase-separated structures in polymeric materials using dissipative particle dynamics and persistent homology for machine learning applications †



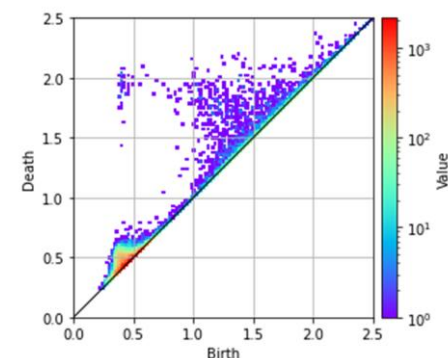
Yukito Higashi,<sup>a</sup> Koji Okuwaki,<sup>ib bc</sup> Yuji Mochizuki,<sup>id bd</sup> Tsuyohiko Fujigaya,<sup>id \*aef</sup> and Koichiro Kato,<sup>id \*ae</sup>

⊕ Author affiliations

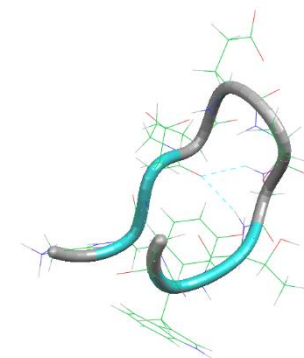
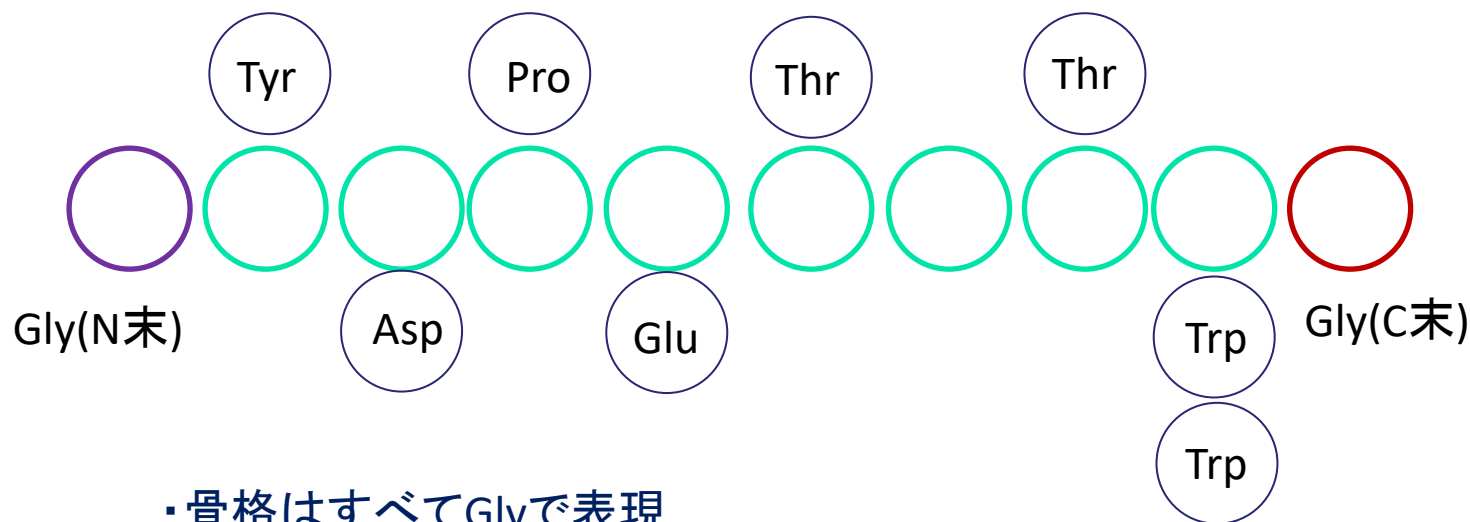
- ・ 数種の電解質膜の水クラスターの構造をPHで検討
- ・ DPD結果のデータ科学的な解析の事例(MI文脈)

### Abstract

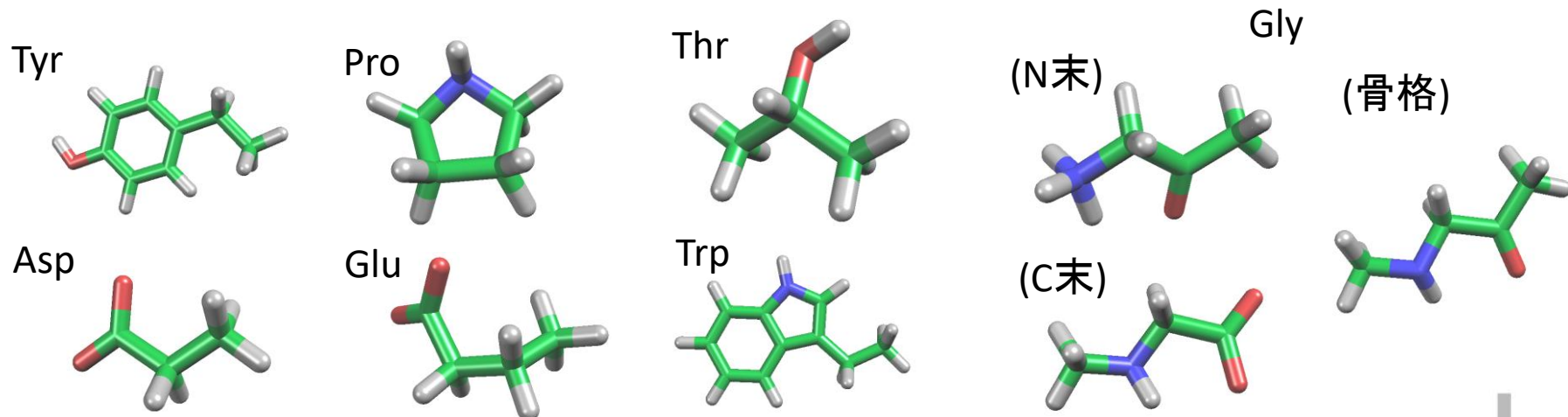
Recently, materials informatics (MI) has gained attention as an efficient approach for materials development. However, its application to polymers has been limited owing to the complexity and significance of the higher-order structures unique to these materials. This study focuses on microphase-separated structures, among the higher-order structures, as they influence many functional polymeric materials that support modern society. To implement MI that accounts for specific higher-order structures, such as microphase-separated structures, these structures must be quantified and converted into features. This approach addresses a gap in current materials informatics, in which traditional methods do not adequately account for the complex structures of polymers. Persistent homology (PH), a topological data analysis method, was used to extract features from the microphase-separated structures of polymeric materials. A coarse-grained simulation method known as dissipative particle dynamics (DPD) was used to generate the microphase-separated structures for PH analysis. The method was validated using electrolyte membranes for fuel cells, where microphase-separated structures are critical. Topological feature extraction was successfully performed on Nafion™ and its analogs, Aquivion® and Flemion™. Additionally, the correlation between the extracted features and proton conductivity was analyzed using unsupervised machine learning, which indicated that these features can be used to predict proton conductivity. The combination of DPD and PH can effectively convert microphase-separated structures into features. This method may be applicable to a wide range of polymeric materials influenced by microphase-separated structures, as it is not limited to proton exchange membranes or proton conductivity. This research marks a significant step toward advancing polymer informatics by incorporating the microphase-separated structures of polymers.



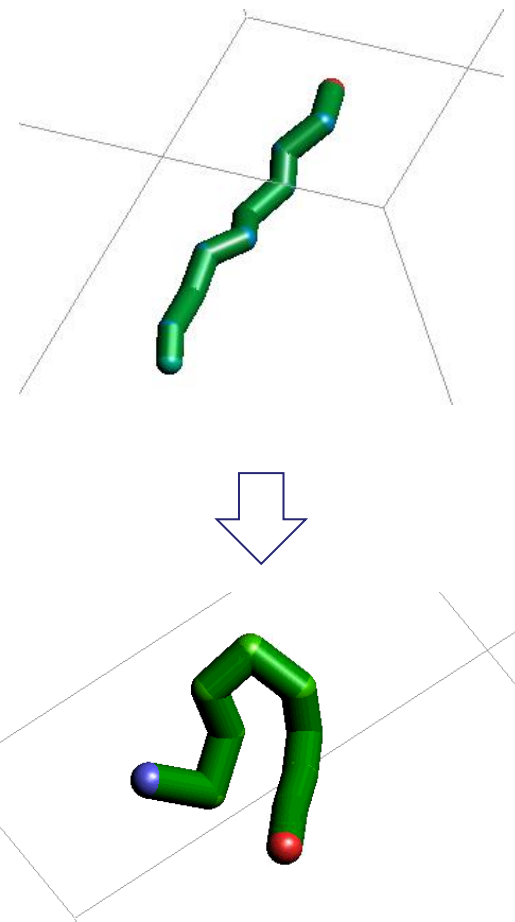
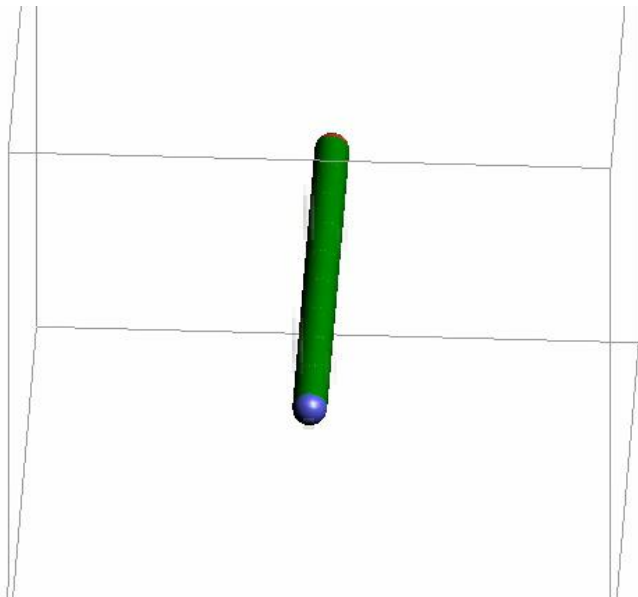
# ChignolinのDPDによるフォールディング#1



- ・骨格はすべてGlyで表現
- ・非結合ポテンシャル: 各残基の小分子構造を作成しパラメータ作成(下図)
- ・結合ポテンシャル: 1-2(bond), 1-3(angle), 1-4(torsion)ポテンシャルを定義



## ChignolinのDPDによるフォールディング#2

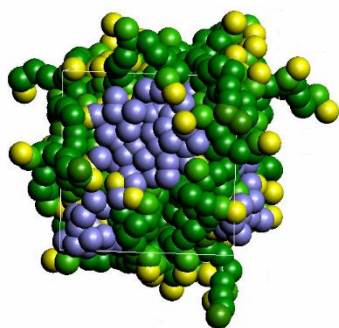


- ・直線状に初期構造を配置(骨格のみ表示)

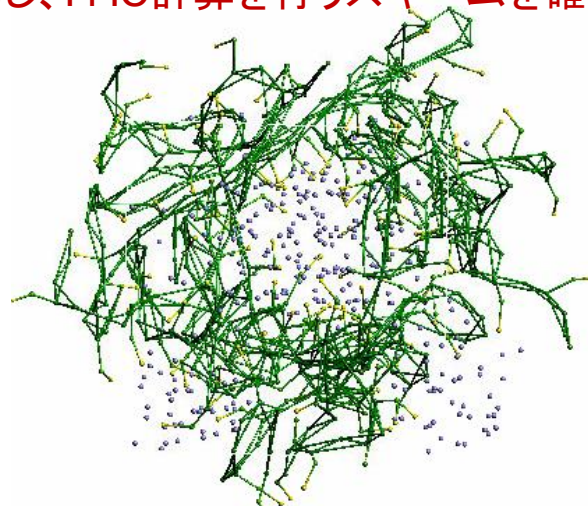
ヘアピン状の構造を再現: 高速(計1000粒子/6秒(8proc))

# リバースマッピング

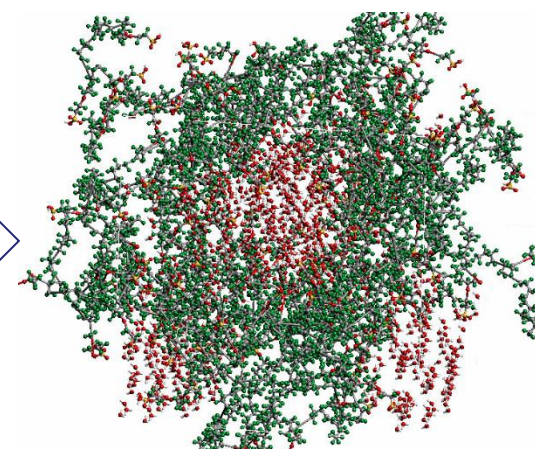
◇DPD結果を再原子化し、FMO計算を行うスキームを確立してシステム化 (DSRMS)



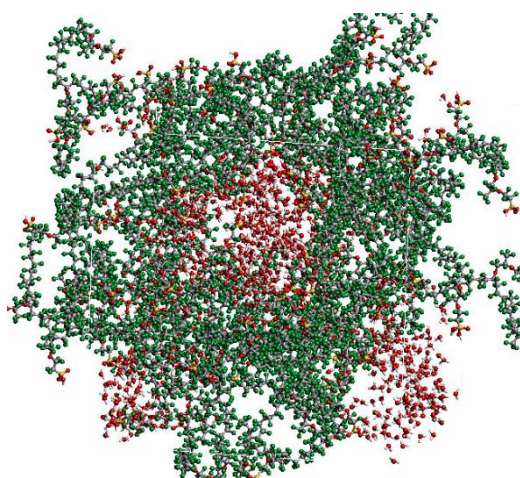
DPD結果  
(約1000粒子)



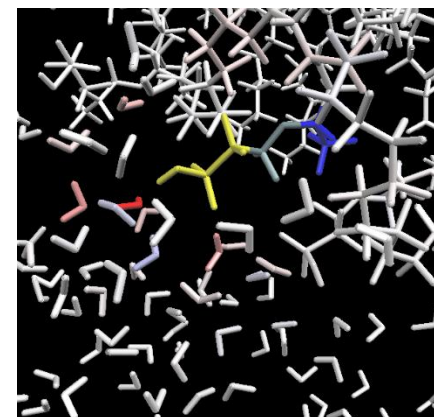
アフィン変換 (体積拡大)



原子化  
(約10000原子)

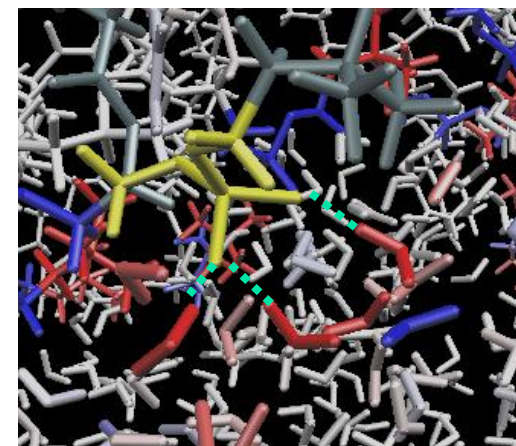
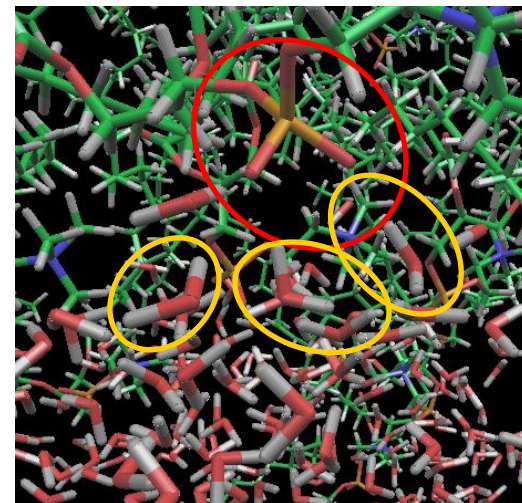
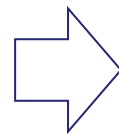
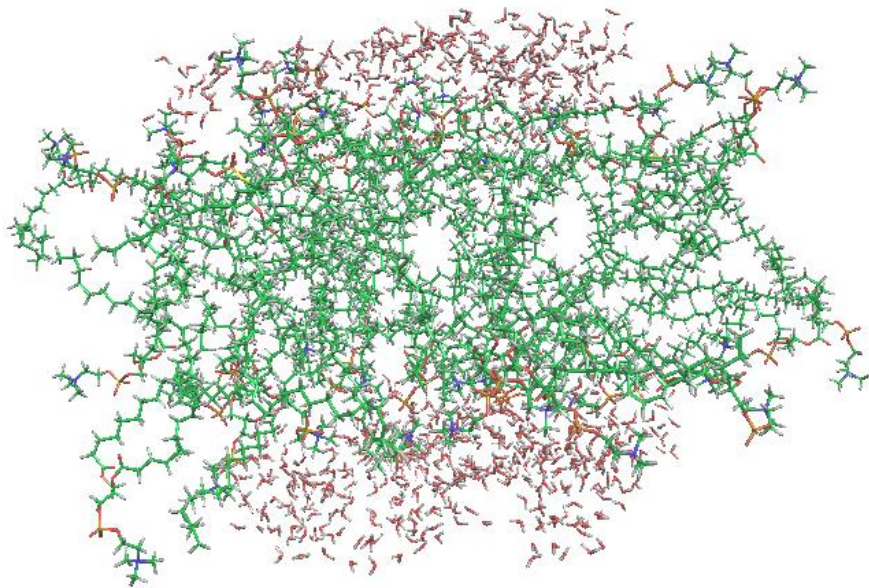


MDによる緩和 (NPT)



FMO (IFIE解析)

# リバースマッピングによる解析例：POPC膜



MD結果から一部分を切り出してFMO  
(MP2/6-31G(d')) 6000原子:7200秒(80proc)

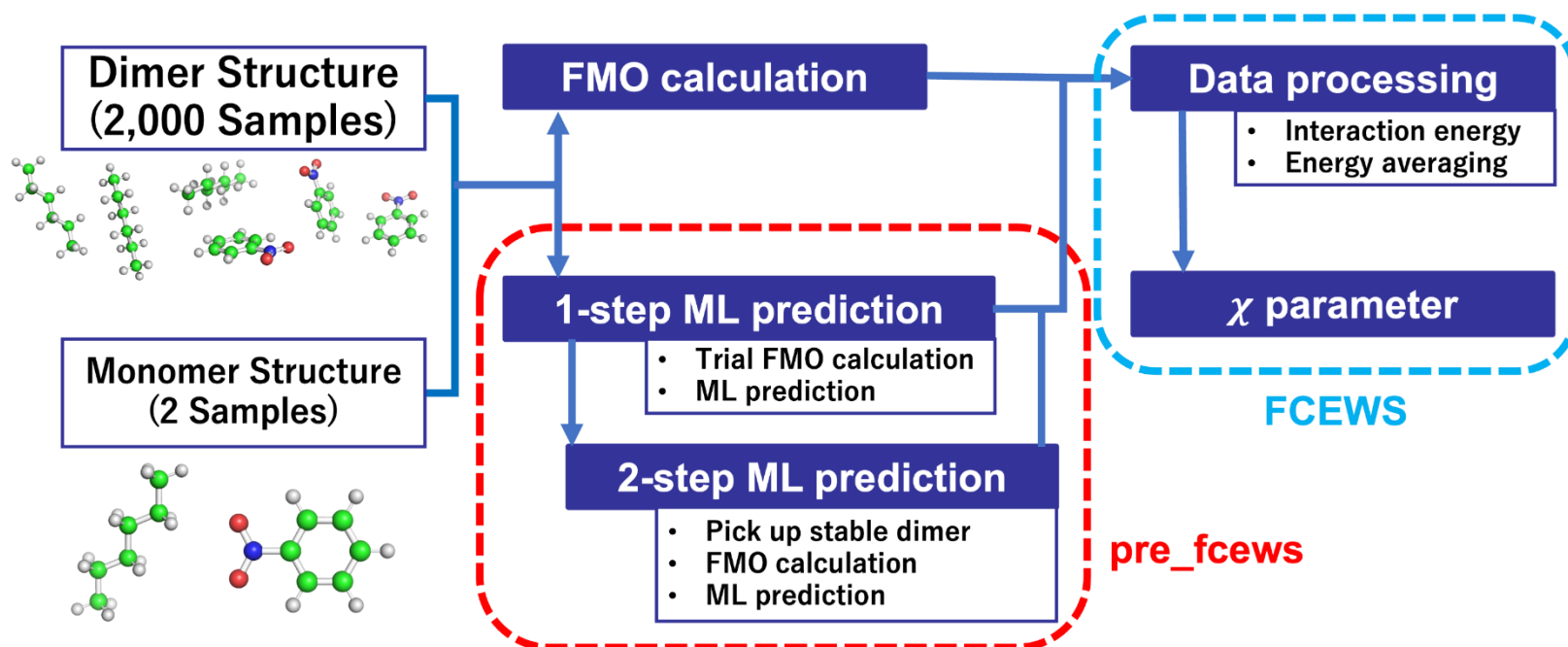
リン酸部-水間のIFIE: **-27.83kcal/mol**

妥当な相互作用エネルギー

# 機械学習による $\chi$ パラメータ算定の効率化

## pre\_fcwvs

- ・FCEWSを用いた $\chi$ パラメータ算定において、FMO計算の実行回数を減らすべく作成されたワークフローシステム
- ・2,000構造のうちの一部のFMO計算の結果を教師データとし、その他の構造の相互作用エネルギーの予測を行う
  - ⇒ 得られたエネルギー予測値を利用して $\chi$ の算定を行う



# 相互作用エネルギーの予測手法

ランダムフォレストを使用

## ■ pre\_fcwssにおける2つの予測手法

### 1-step method

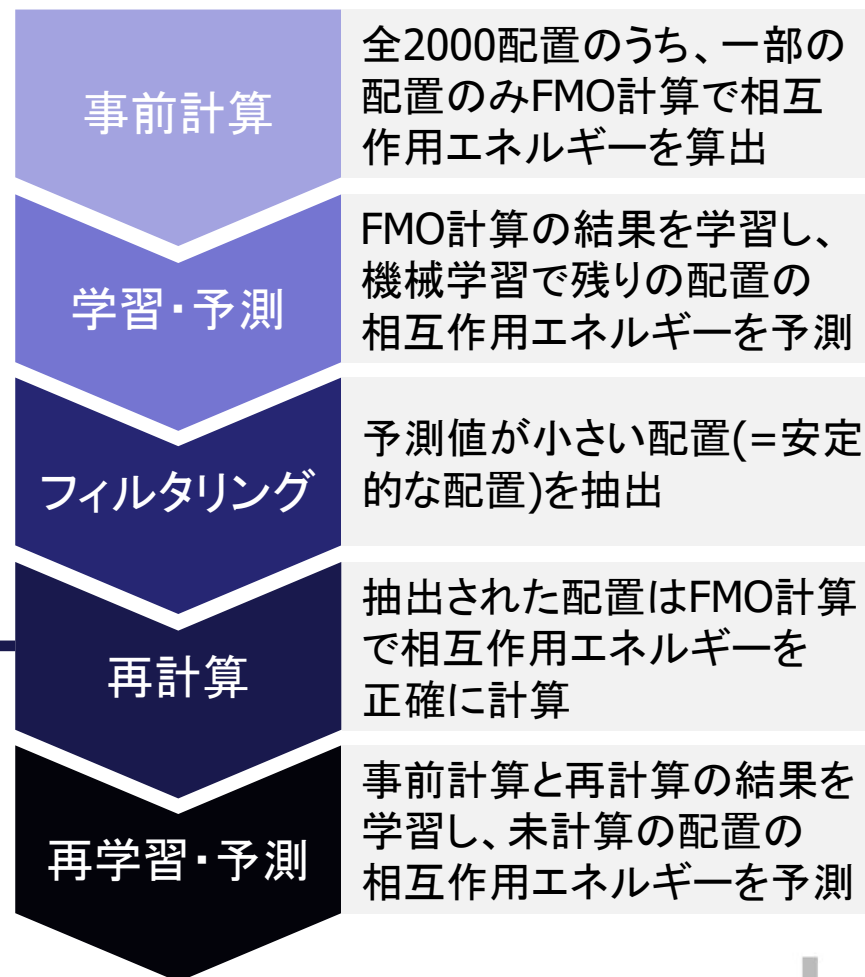


平均相互作用エネルギーやスケージングファクターの計算には、ボルツマン因子による重みがかかる。

⇒ **安定的な配置は重みが大きく、誤差の影響も大きいのでFMO計算値を使用。**

正確な値が欲しい配置を機械学習で探索できることが2-step methodの最大のメリット

### 2-step method



# ヘキサン-ニトロベンゼン系(300K)での予測

## ■ "1-step method"を用いた場合

- ・ FMO計算を行う構造数(=学習データの数)を変え、予測を行った

	250	500	1,000	1,500	2,000(計算値)
$\chi$	1.1	3.3	2.5	1.3	2.06

- ⇒ 学習データの数に関係なく誤差が大きい
- ⇒ ボルツマン因子によって、予測が困難な構造の誤差が大きく影響

## ■ "2-step method"を用いた場合

- ・ FMO計算を行う構造数を変え、予測を行った
- ・ 「100構造FMO計算→残りを予測→その内100構造を再計算」⇒100+100

	100+100	250+250	500+500	2,000(計算値)
$\chi$	2.26	2.21	2.08	2.06

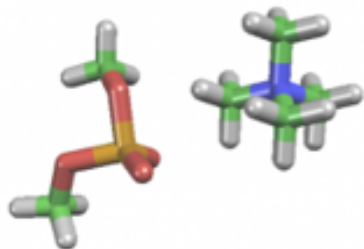
- ⇒ 少ない学習データでも高い精度で $\chi$ パラメータを予測可能
- ⇒ ジョブ数は500+500で1/2、250+250で1/4に抑えることができる

# FMO-DPDシミュレーションの双方向性

J-OCTAとの連携がベース

FCEWS  
(Parametrization)

ABINIT-MP



pre\_fcwvs  
(ML-based assistance)

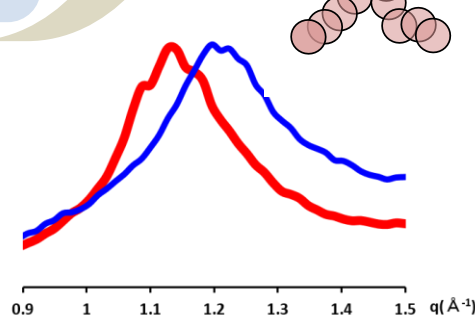
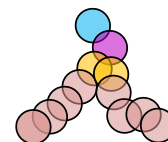
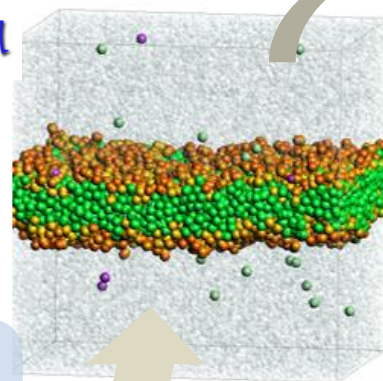
FMO  
Calculation

Parametrization

$$\chi = \frac{Z\Delta ES}{RT}$$

DPD simulation

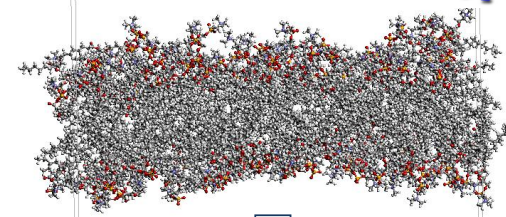
OCTA



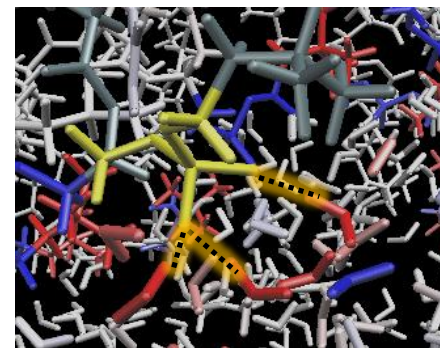
DSRMS  
(Reverse mapping)

All-atom MD

OCTA



FMO calculation  
ABINIT-MP



# Xパラメータ算定に「富岳」の計算力を活用

## ■ hp210261-「富岳」一般機動的課題: 2021年11月～2022年11月

- ・ FCEWSによるFMO-DPDシミュレーションを「**社会実装**」できないかを試金石的に検討
- ・ 立教大が主導、JSOLが幹事、産学連携を意図
- ・ 参加企業は{東レ、東洋紡、日本触媒、ブリヂストン}
- ・ 月イチでのZoomによる会合
- ・ 半期で助走段階は終了、後期で各社が**個別テーマ**に取り組み

## ■ hp230016/hp240013/hp250009/hp260008-「富岳」産業課題: 2023年4月～2027年3月

- ・ 産学連携のアクティビティを維持、FCEWS/ABINIT-MP等は随時更新
- ・ 慶應大が技術サポートと応用計算で参加（荒井規允先生ら）
- ・ 企業ではパナソニックインダストリーが新たに参加
- ・ 各社毎のテーマを**発展的に継続**
- ・ JSOLはシステム開発/改良と運営
- ・ 立教大では応用物理のナノバイオテクノロジー系の応用計算を実施
- ・ 2026年度からはpre\_fcwvsやPINNモデルの**AI4S要素**を強化

## ■ hp230375-「富岳」一般機動的課題: 2023年10月～2024年10月

- ・ サンプル数の収束性を検証、セグメントの構造変動と**多体効果**の考慮

# 取り組み例：慶應義塾大学

ナノ粒子にグラフトされた高分子の違いによるエマルションの安定構造をDPDで評価

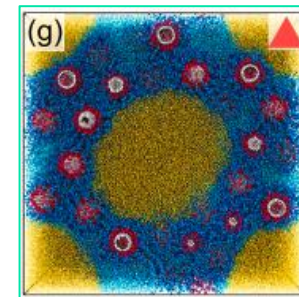
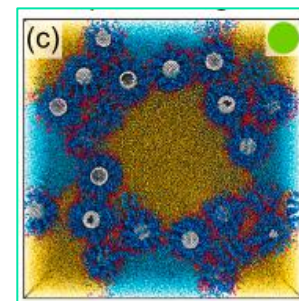
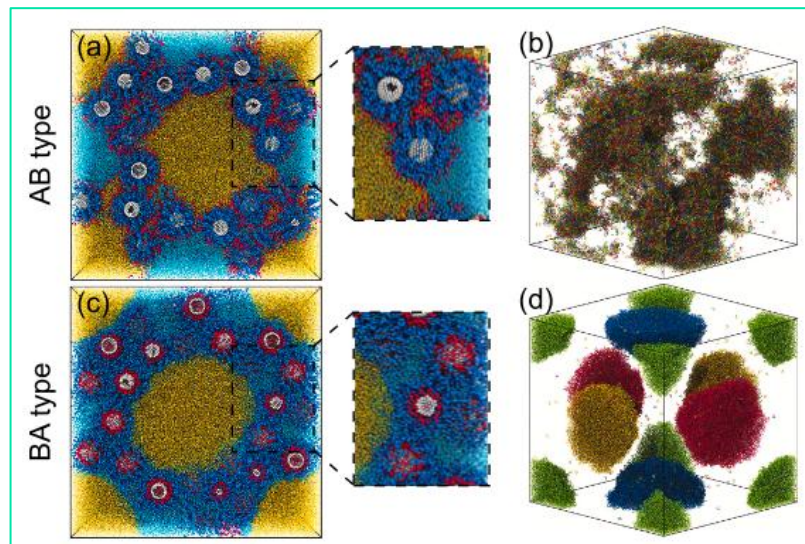
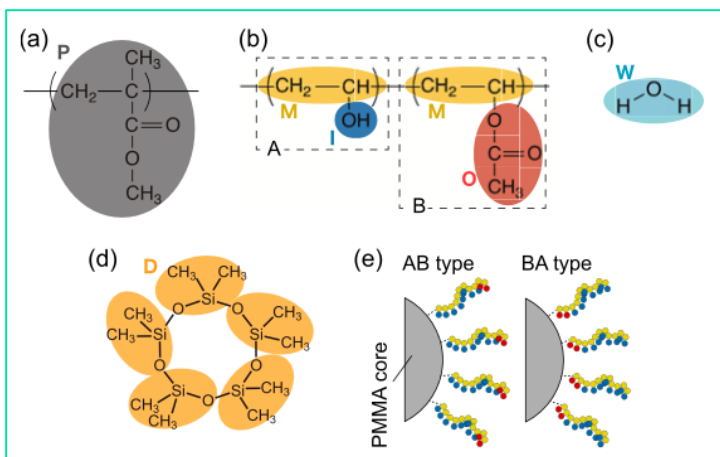
## Effects of grafting architecture of amphiphilic polymer-grafted nanoparticles on stabilization mechanisms of concentrated emulsions

Kojiro Suzuki <sup>a</sup>, Yusei Kobayashi <sup>a,b,\*</sup>, Takashi Yamazaki <sup>c</sup>, Toshikazu Tsuji <sup>c</sup>, Noriyoshi Arai <sup>a</sup>

<sup>a</sup> Department of Mechanical Engineering, Keio University, 3-14-1, Hiyoshi, Kohoku-ku, Yokohama 223-8522, Kanagawa, Japan

<sup>b</sup> Faculty of Mechanical Engineering, Kyoto Institute of Technology, Matsugasaki, Sakyo-ku, 606-8585 Kyoto, Japan

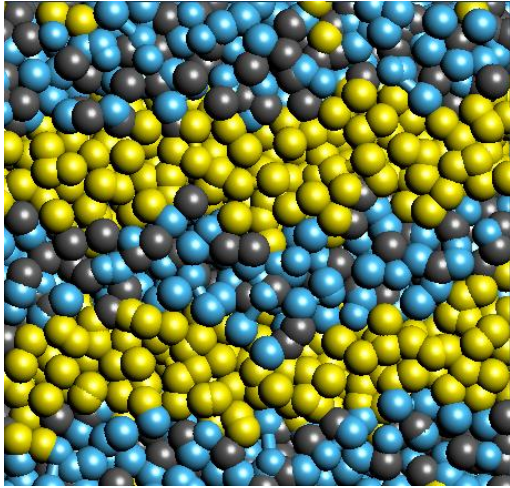
<sup>c</sup> KIRIN Central Research Institute, Kirin Holdings Company, Limited, 2-26-1 Muraoka-Higashi, Fujisawa 251-8555, Kanagawa, Japan



# 取り組み例：東洋紡

MELと水との微視的描像の取得

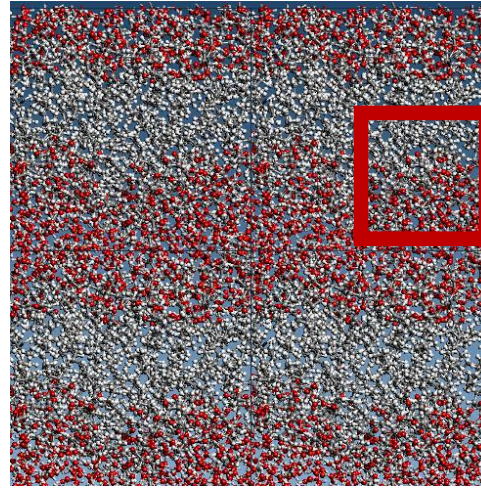
DPD



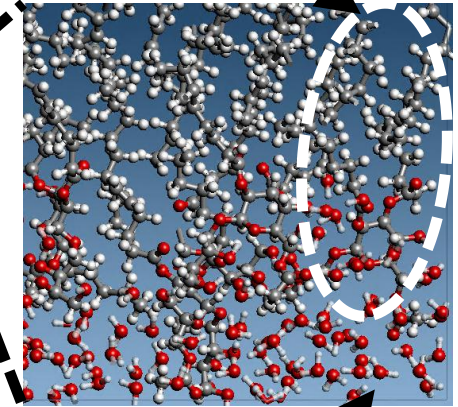
リバース  
マップ



全原子

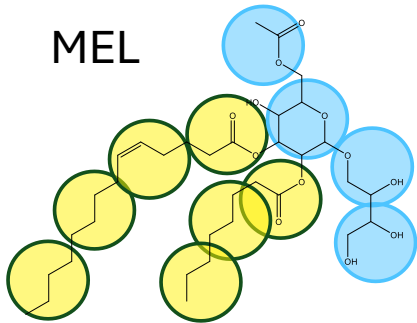


MEL



水

MEL



青：親水部  
黄：疎水部  
灰：水

灰：炭素C  
赤：酸素O  
白：水素H

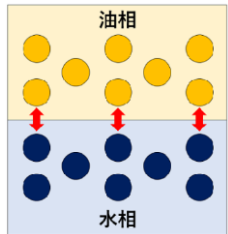
「富岳」でFCEWSを用いて計算した相互作用パラメータでMELがラメラ構造を形成  
→DPDの構造をもとにリバースマップを実施し、全原子モデルのラメラ構造を再現

MEL: マンノシルエリスリトールリピッド

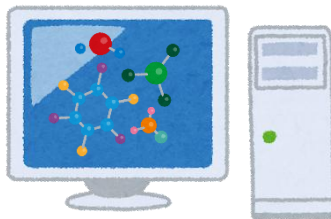
# 取り組み例: 東レ

FCEWSの活用方法の探索

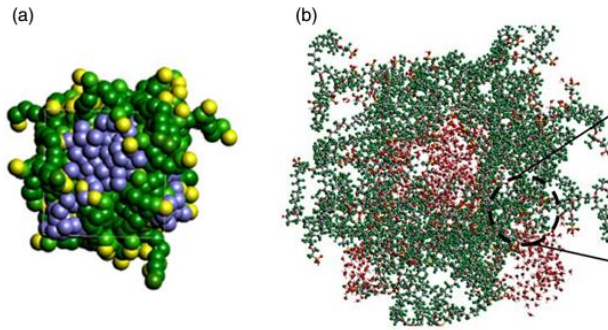
## DPD & 物性値算出



## パラメータによる候補探索

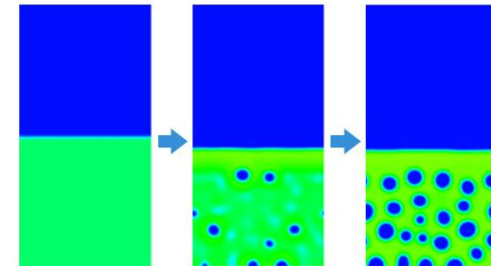


## DPD & リバースマッピング

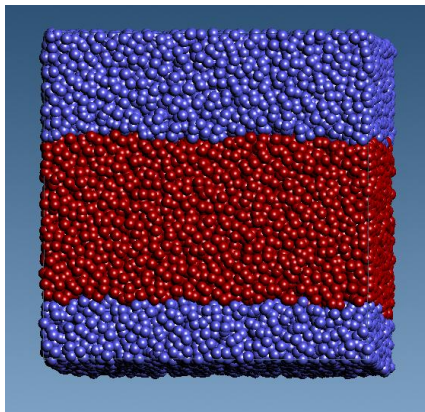


Jpn. J. Appl. Phys. 62, 110902 (2023)

## 相分離シミュレーション



## 界面張力の計算



オクタン 10000 分子  
水分子 90000 分子

正しい取り扱い  
オクタン 1 分子 → 3 粒子

総粒子数 60000 粒子

$$\sigma_{\text{calc}} = 4.81\text{E}+01 \text{ [dyn * cm}^{-1}\text{]}$$
$$\text{[dyn * cm}^{-1}\text{]} = 10^{(-3)}\text{[N * m}^{-1}\text{]} = 10^{(-3)}\text{[kg * s}^{-2}\text{]}$$

実験値の 51.7 [dyn/cm]

(A.Maiti and S. McGrother, J. Chem. Phys., 120, 3, 15 (2004))

## パラメータによる代替品探索 (産業応用)

素材に対する  $\chi$  パラメータの算出  
→ 複数のポリマーを購入し、実験による検証

# 取り組み例: 日本触媒

手法の基礎開発

Macromolecules > Vol 58/Issue 22 > Article

Subscribed

” Share Jump to Expand

ARTICLE | November 5, 2025

## Iterative Integral Equation Analysis to Predict Solvation Thermodynamics in Coarse-Grained Polymer Melts Using MARTINI Models

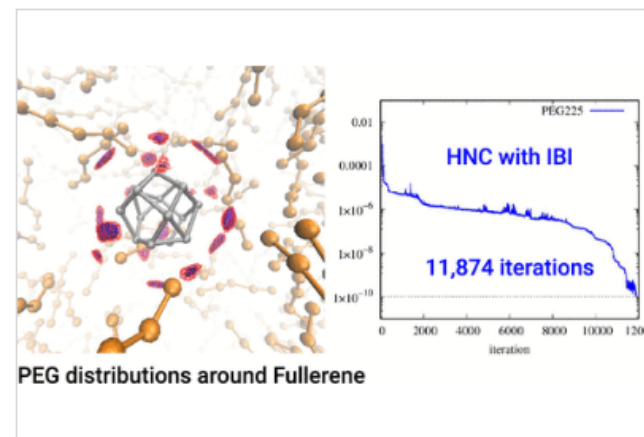
Ryosuke Ishizuka\*

Open PDF

Supporting Information (1)

### Abstract

Predicting the solvation thermodynamics of a solute in polymer melts at a coarse-grained (CG) level is important in diverse fields of macromolecular science. This knowledge supports the development of predictive CG models and the design of novel polymeric materials. However, accurately and efficiently calculating solvation thermodynamics in such complex systems remains a significant challenge. We present an application of the integral equation theory in combination with the iterative Boltzmann inversion (IBI) method to predict the solvation thermodynamics of three small molecules, including water, acetonitrile, and C<sub>60</sub>, in poly(ethylene glycol) (PEG) melts. To enhance computational efficiency, we further develop an efficient algorithm based on the direct inversion in the iterative subspace (DIIS) to solve the IBI-based integral equations. The analysis is performed within the framework of the MARTINI 3 force field. We demonstrate that our approach accurately incorporates the intrachain pair correlation functions of polymer chains and successfully predicts the liquid structure of PEG melts and solvation thermodynamics of the three molecules through a comparison with molecular dynamics (MD) simulations. We further investigate how the solvation thermodynamics of water depends on the PEG chain length and temperature. The obtained results reveal that PEG melts with longer chains at lower temperature are less favorable solvents for water. Finally, we discuss some necessary improvements and outline potential applications of our approach.



# 取り組み例: JSOL

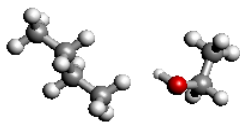
FCEWS-MB開発

- 半自動で多体配置を生成 -> 会合エネルギー評価をするシステム整備
- パラメータを計算したい2セグメントを準備し、一括でエネルギー評価
- FMO計算: 会合体の計算から分子あたりの相互作用を抽出可能(IFIE)

## (i) セグメント構造の座標準備 (.xyz)

```

11
@@  A_propane  @@
C      -1.278  -0.231  0.000
C      -0.000  0.628  -0.000
C      1.278  -0.231  -0.000
  
```



## (ii) 分子情報取得

Open Babel

結合情報

原子力場名(GAFF)

ABINIT-MP

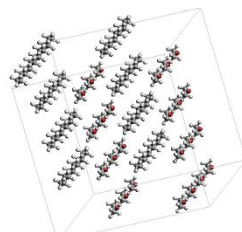
部分電荷(RESP)



## (iii) MD初期配置生成

同種/異種 計4種

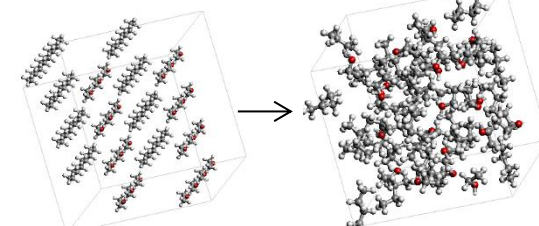
力場パラメータ割り当て



## (iv) MDによる構造緩和

OCTA (COGNAC)

NPT -> NVT

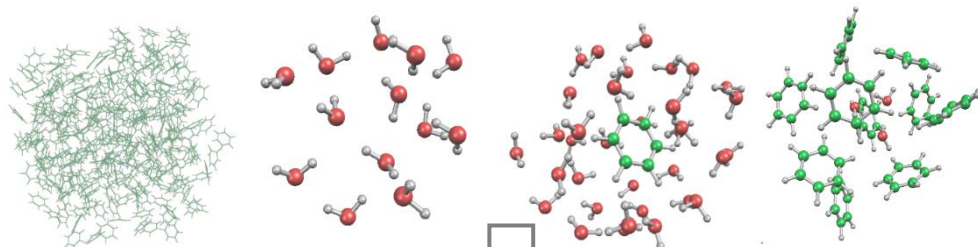


## (v) FMO計算用構造セットアップ

(vi) FMO計算

(vii) 分子ごとの会合相互作用算出

ABINIT-MP

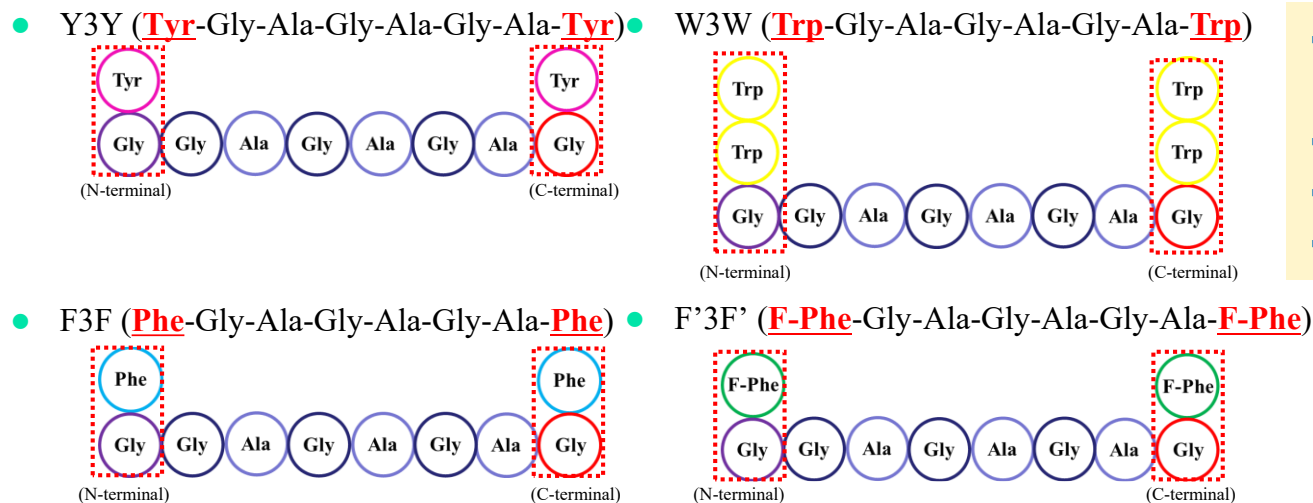


(viii)  $\chi$ パラメータ取得

$$\chi = \{(Z_{AB}E_{AB} + Z_{BA}E_{BA}) - (Z_{AA}E_{AA} + Z_{BB}E_{BB})\}/2$$

# 取り組み例：立教大学

## ナノバイオテクノロジー関係



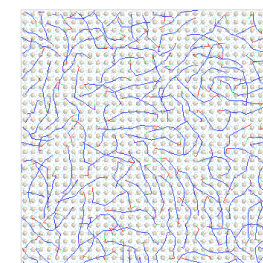
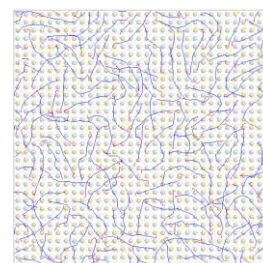
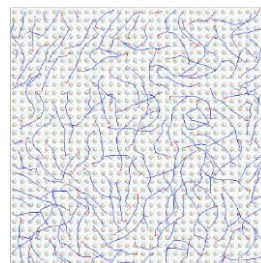
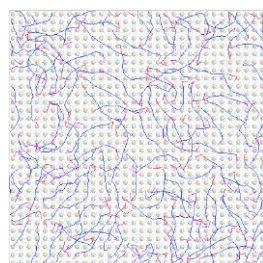
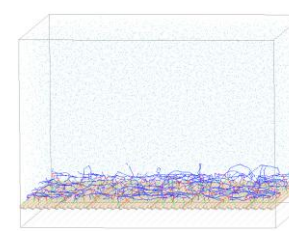
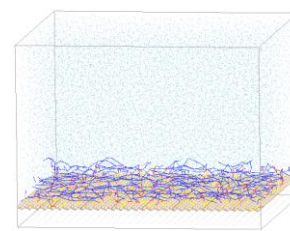
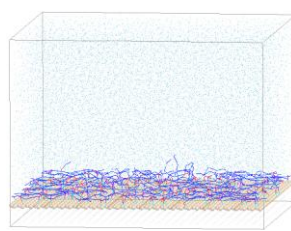
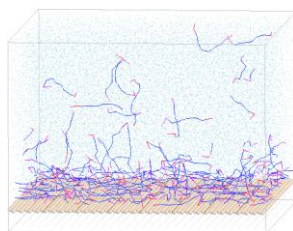
- ・ 科学大の早水研のグラフェン吸着ペプチドのDPD解析
- ・ グラフェンはPAHでモデル化
- ・ WとFは独自に設定
- ・ 進行中

Y3Y

F3F

W3W

F'3F'



# FMO-DPD関係の論文リスト

## ■ 計算手法

- (1) "Prediction of quantitative interaction energy from low-cost FMO calculation by machine learning", H. Doi, R. Yoshine, S. Matsuoka, K. Okuwaki, and Y. Mochizuki\*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **64** (2025) 077001.
- (2) "Development of reverse mapping system bridging dissipative particle dynamics and fragment molecular orbital calculation", K. Okuwaki, H. Doi, T. Ozawa, and Y. Mochizuki\*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **62** (2023) 110902.
- (3) "Machine learning to improve efficiency of non-empirical interaction parameter for dissipative particle dynamics (DPD) simulation", H. Doi\*, S. Matsuoka, K. Okuwaki, R. Hatada, S. Minami, R. Suhara, and Y. Mochizuki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **62** (2023) 070901.
- (4) "フラグメント分子軌道(FMO)法を用いた散逸粒子動力学シミュレーションのための有効相互作用パラメータ算出の自動化フレームワーク", 奥脇弘次\*, 土居英男, 望月祐志, *J. Comp. Chem. Jpn.*, **17** (2018) 102. (JCCJ論文賞)
- (5) "Fragment Molecular Orbital-based Parameterization Procedure for Mesoscopic Structure Prediction of Polymeric Materials", K. Okuwaki, Y. Mochizuki\*, H. Doi, and T. Ozawa, *J. Phys. Chem. B*, **122** (2018) 338.

## ■ 応用計算(抜粋)

- (1) "DPD simulation and FMO interaction analysis for electropore generated by voltage application on POPC membrane", K. Okuwaki, R. Nakajima, H. Doi, K. Sumitomo, and Y. Mochizuki\*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **65** (2026) 090903.
- (2) "Feature vectorization of microphase-separated structures in polymeric materials using dissipative particle dynamics and persistent homology for machine learning applications", Y. Higashi, K. Okuwaki, Y. Mochizuki, T. Fujigaya, and K. Kato\*, *Dig. Discov.*, **4** (2025) 1339.
- (3) "DPD simulation to reproduce lipid membrane microdomains based on fragment molecular orbital calculations", H. Doi\*, Y. Osada, Y. Tachino, K. Okuwaki, M. W. S. Goh, R. Tero, and Y. Mochizuki, *Appl. Phys. Expr.*, **17** (2024) 055001.
- (4) "Dissipative particle dynamics simulation for peptoid nanosheet with non-empirical parameter set", Y. Tachino, K. Okuwaki, H. Doi, K. Akisawa, and Y. Mochizuki\*, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **62** (2023) 090902.
- (5) "Folding simulation of small proteins by dissipative particle dynamics (DPD) with non-empirical interaction parameters based on fragment molecular orbital calculations", K. Okuwaki, H. Doi, K. Fukuzawa, and Y. Mochizuki\*, *Appl. Phys. Expr.*, **13** (2020) 017002.
- (6) "Theoretical Analyses on Water Cluster Structures in Polymer Electrolyte Membrane by Using Dissipative Particle Dynamics Simulations with Fragment Molecular Orbital Based Effective Parameters", K. Okuwaki, Y. Mochizuki\*, H. Doi, S. Kawada, T. Ozawa, and K. Yasuoka, *RSC Adv.*, **8** (2018) 34582.
- (7) "Dissipative particle dynamics (DPD) simulations with fragment molecular orbital (FMO) based effective parameters for 1-Palmitoyl-2-oleoyl phosphatidyl choline (POPC) membrane", H. Doi\*, K. Okuwaki, Y. Mochizuki, T. Ozawa, and K. Yasuoka, *Chem. Phys. Lett.*, **684** (2017) 427.

# FMOと量子シミュレーション

# 量子化学のコミュニティからの量子計算への「期待」

## 理論化学会のアンケートのまとめ

<https://www.rkk-web.jp/future/>

整理 No	テ マ	予測年	重要度
1101	量子コンピュータによる大規模計算を利用した材料開発が可能になる	2039	4.63
1102	量子コンピュータにおける化学反応の解析及び予測が可能になり、工業スケールの反応シミュレーションを担うようになる	2043	4.50
1103	量子化学計算に量子コンピュータが汎用的に使われる	2043	4.43
1104	理論計算において、量子コンピュータの利用者数が古典コンピュータの利用者数を超える	2050	4.17
1105	量子誤り訂正を実現した量子計算機が実現し、厳密に近い量子化学計算が可能となる	2039	4.00
1106	機械学習の記述子として量子コンピュータによる量子化学計算が用いられ、効率的かつ高精度な化合物探索が可能になる	2037	3.88
1107	古典的コンピュータでは実行不可能な量子化学計算を、量子コンピュータ実機を用いて実行でき、量子化学計算分野での量子超越性が実証される	2029	3.25

実用化は10年以上先 (FTQCが前提)

# 量子コンピュータ向けの量子化学手法

量子位相推定

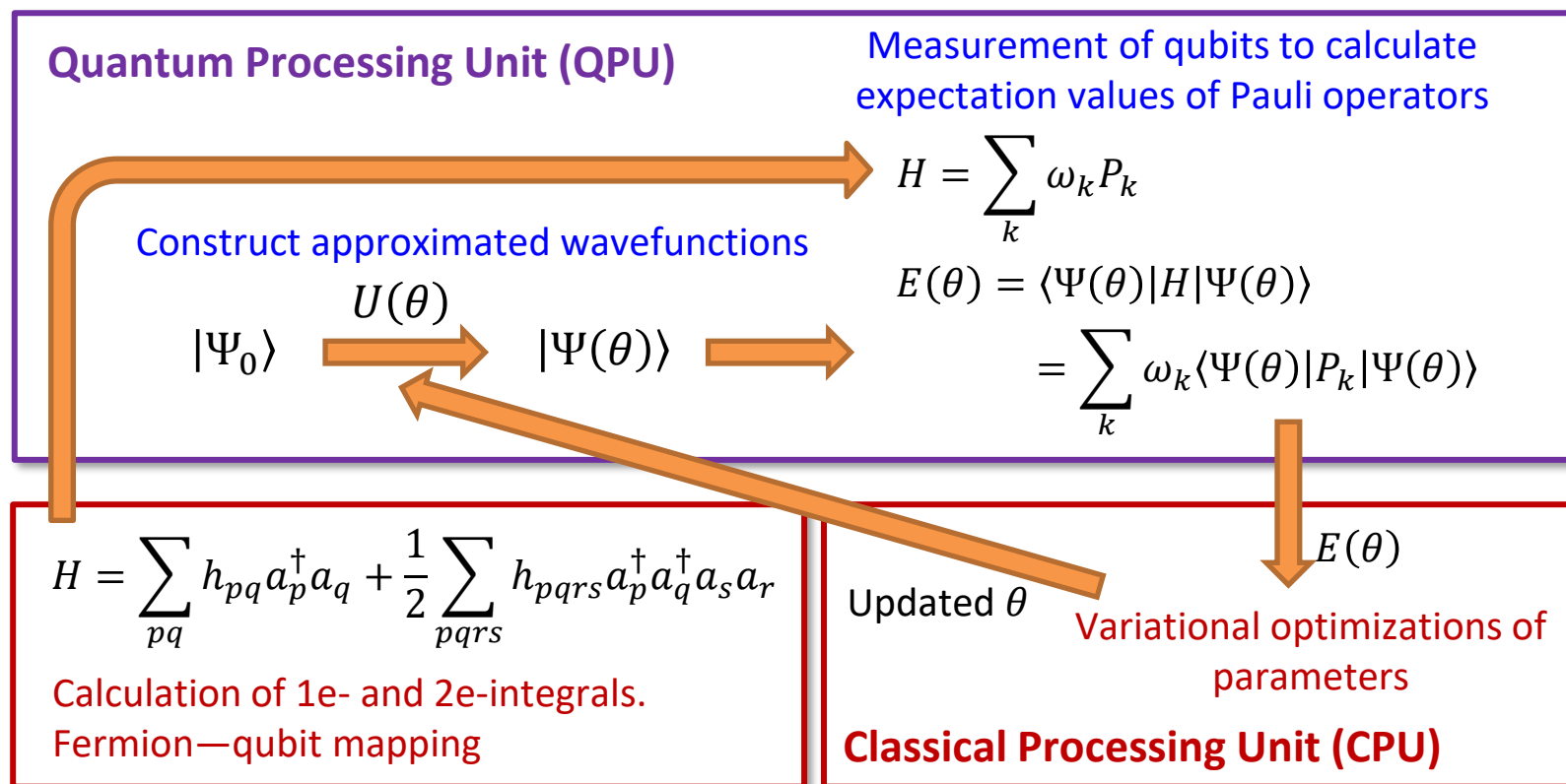
変分的量子固有値求解

	Quantum Phase Estimation (QPE) <sup>[1]</sup>	Variational Quantum Eigensolver (VQE) <sup>[2]</sup>
<b>Computation</b>	Fully quantum except for preprocessing (HF, MOint, etc)	Quantum–Classical hybrid
<b>Wave function</b>	Full-CI or CAS-CI	UCC or heuristic ones
<b>Energy</b>	Eigenvalue	Expectation value
<b>Quantum circuit</b>	Deep	Shallow
<b>Computational cost scaling against the energy precision <math>\epsilon</math></b>	$1/\epsilon$	$ w_{\max} ^2/\epsilon^2$
<b>Exponential speedup against classical counterpart</b>	Yes	Unknown
	$U \Psi\rangle = e^{-iHt} \Psi\rangle$ $= e^{-iEt} \Psi\rangle$ $= e^{-i2\pi\phi} \Psi\rangle$	$ \Psi(\theta)\rangle = U(\theta) \Psi_0\rangle$ $E(\theta) = \langle\Psi(\theta) H \Psi(\theta)\rangle$

[1] A. Aspuru-Guzik et al, *Science* **2005**, 309, 1704. [2] A. Peruzzo et al, *Nat. Comm.* **2014**, 5, 4213.

# VQE(Variational Quantum Eigensolver)の求解

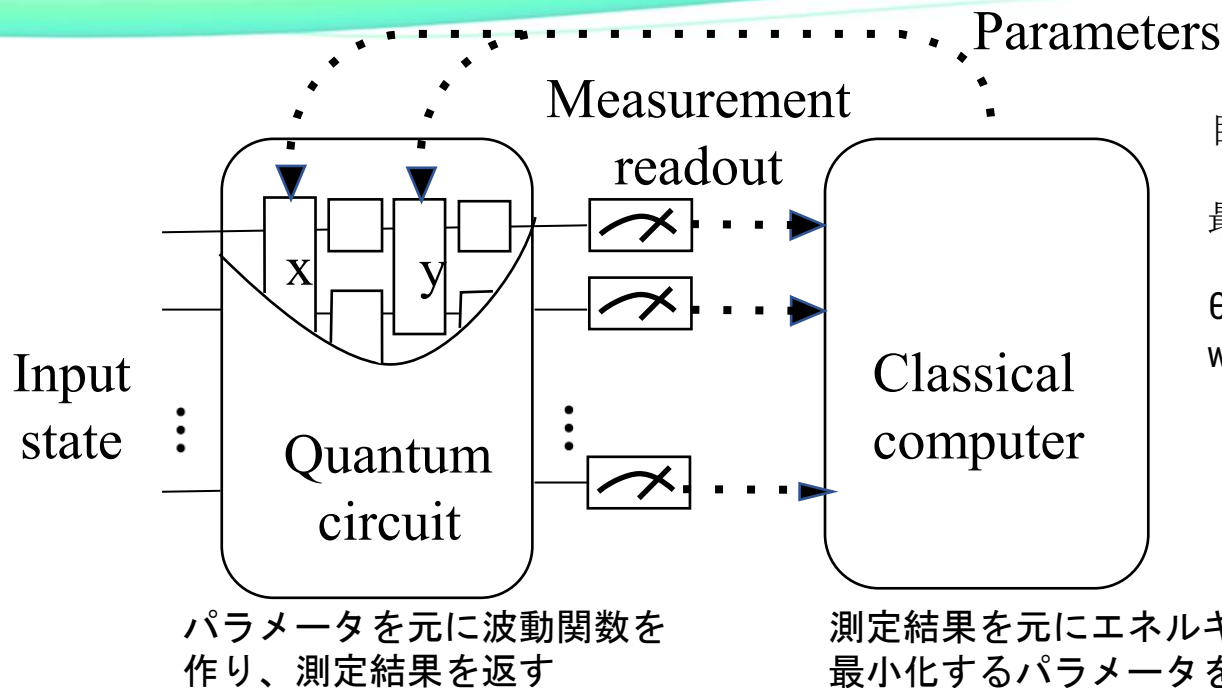
*A quantum–classical hybrid approach that is executable on noisy intermediate-scale quantum (NISQ) devices*



$$U(\theta)|\Psi_0\rangle = |\Psi(\theta)\rangle$$

Parametrized quantum circuits defined through “ansatzes” controls accuracy of the approximated wave function

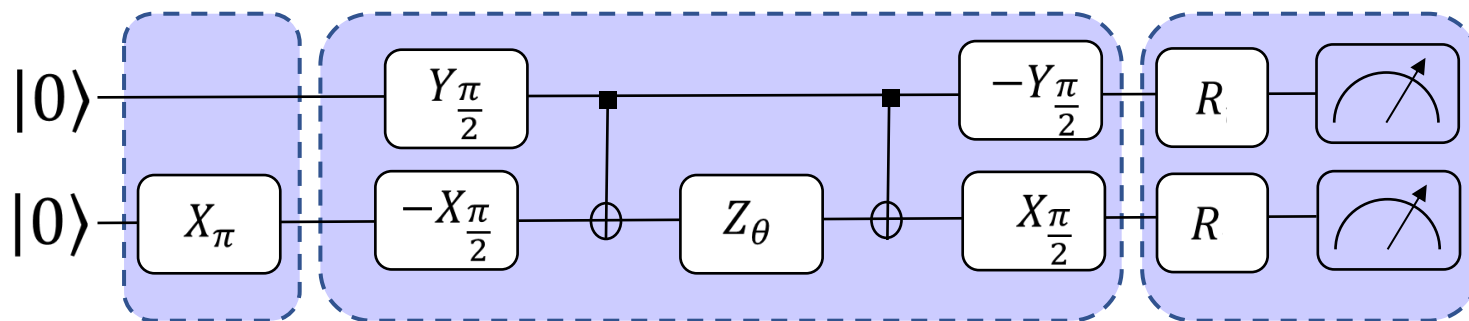
# VQEの量子回路の例



目的: ハミルトニアンHの  
最小固有値を得る  
最小化:  $\langle \Psi(\theta) | H | \Psi(\theta) \rangle$

```

θ ← random()
while 未収束:
    θを元に量子回路を作成
    量子コンピュータで回路を計算
    測定結果からエネルギーを計算
    エネルギーを最小化するよう
    新たなθを計算
    
```



1. Prepare Hartree-Fock (mean-field) reference state.
2. Implement unitary coupled-cluster (UCC) ansatz.
3. Apply necessary post-rotations for energy estimation.

# 量子計算に分割系のアプローチを導入する提案

<https://arxiv.org/abs/1806.01305>

## Towards the Practical Application of Near-Term Quantum Computers in Quantum Chemistry Simulations: A Problem Decomposition Approach

Takeshi Yamazaki,<sup>\*</sup> Shunji Matsuura,<sup>†</sup> Ali Narimani,<sup>‡</sup> Anushervon Saidmuradov,<sup>§</sup> and Arman Zaribafiyan,<sup>¶</sup>  
*1QB Information Technologies (1QBit), 458-550 Burrard Street, Vancouver, BC, Canada, V6C 2B5*  
(Dated: June 6, 2018)

With the aim of establishing a framework to efficiently perform the practical application of quantum chemistry simulation on near-term quantum devices, we envision a hybrid quantum–classical framework for leveraging problem decomposition (PD) techniques in quantum chemistry. Specifically, we use PD techniques to decompose a target molecular system into smaller subsystems requiring fewer computational resources. In our framework, there are two levels of hybridization. At the first level, we use a classical algorithm to decompose a target molecule into subsystems, and utilize a quantum algorithm to simulate the quantum nature of the subsystems. The second level is in the quantum algorithm. We consider the quantum–classical variational algorithm that iterates between an expectation estimation using a quantum device and a parameter optimization using a classical device. We investigate three popular PD techniques for our hybrid approach: the fragment molecular-orbital (FMO) method, the divide-and-conquer (DC) technique, and the density matrix embedding theory (DMET). We examine the efficacy of these techniques in correctly differentiating conformations of simple alkane molecules. In particular, we consider the ratio between the number of qubits for PD and that of the full system; the mean absolute deviation; and the Pearson correlation coefficient and Spearman’s rank correlation coefficient. Sampling error is introduced when expectation values are measured on the quantum device. Therefore, we study how this error affects the predictive performance of PD techniques. The present study is our first step to opening up the possibility of using quantum chemistry simulations at a scale close to the size of molecules relevant to industry on near-term quantum hardware.

# FMOと量子計算 (VQE-UCCSD) を繋いだ1報

Journal of  
**COMPUTATIONAL  
CHEMISTRY**

RESEARCH ARTICLE | Open Access |

## Size-consistency and orbital-invariance issues revealed by VQE-UCCSD calculations with the FMO scheme

Kenji Sugisaki , Tatsuya Nakano, Yuji Mochizuki

First published: 25 May 2024 | <https://doi.org/10.1002/jcc.27438>

SECTIONS

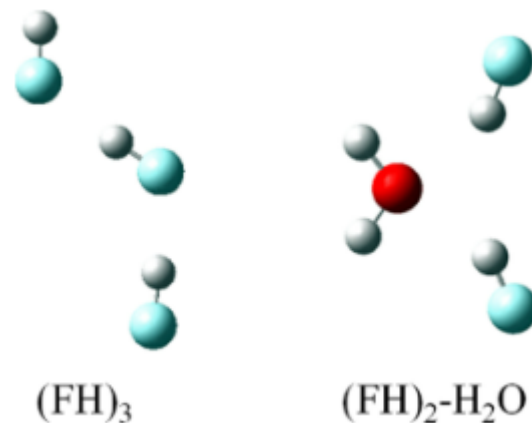
PDF TOOLS

- ・「不老」タイプII上でcuQuantumを使用
- ・ 相関計算部分をUCCSD計算で置き換え
- ・ 2つの水素結合系でテスト、STO-3G基底
- ・ 積分と軌道はABINIT-MPから取得
- ・ cuQuantumシミュレータのGPU加速は7倍
- ・ 実はFMO-CCSD(T)より数万倍遅い
- ・ size-consistencyやorbital-invarianceの問題を提起
- ・ Trotter分解のエラーが顕在化
- ・ スライス幅を変えて外挿すると良い
- ・ 局在化軌道を使う方がベター

### Abstract

The fragment molecular orbital (FMO) scheme is one of the popular fragmentation-based methods and has the potential advantage of making the circuit shallow for quantum chemical calculations on quantum computers. In this study, we used a GPU-accelerated quantum simulator (cuQuantum) to perform the electron correlation part of the FMO calculation as unitary coupled-cluster singles and doubles (UCCSD) with the variational quantum eigensolver (VQE) for hydrogen-bonded (FH)<sub>3</sub> and (FH)<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O systems with the STO-3G basis set. VQE-UCCSD calculations were performed using both canonical and localized MO sets, and the results were examined from the point of view of size-consistency and orbital-invariance affected by the Trotter error. It was found that the use of localized MO leads to better results, especially for (FH)<sub>2</sub>-H<sub>2</sub>O. The GPU acceleration was substantial for the simulations with larger numbers of qubits, and was about a factor of 6.7–7.7 for 18 qubit systems.

2026/6/11



# 分子積分の準備とスピン系ハミルトニアンへの転換

## ■ 第二量子化ハミルトニアン

ハミルトニアンを**生成/消滅演算子**で表現  
参照配置の決定

- ⇒ 基底関数積分でHF計算
- ⇒ GAMESSやPySCFを使って実行
- 積分を求解後の**分子軌道の添字**に変換

$$\mathcal{H}_{elec(BO)} = - \sum_{i=1}^N \frac{1}{2} \nabla_i^2 - \sum_{i=1}^N \sum_{A=1}^M \frac{Z_A}{r_{iA}} + \sum_{i=1}^N \sum_{j>i}^N \frac{1}{r_{ij}}$$

$$\mathcal{H}_{sq} = \sum_{p,q} h_{pq} c_p^\dagger c_q + \frac{1}{2} \sum_{p,q,r,s} G_{pqrs} c_p^\dagger c_q^\dagger c_s c_r$$

## ■ スピン系のハミルトニアンに転換

**ビット数の節約**は重要、対称性の印加

- ⇒ BK(Bravyi-Kitaev)変換など
- ⇒ OpenFermionなどで実行

$$\mathcal{H}_{BK} = h_0 I + h_1 X_0 Z_1 X_2 \dots + h_{13} Z_1 Z_3 + h_{14} Z_2 \dots$$

## ■ VQE-UCCSDの実行

クラスター変数の反復計算による最適化

- ⇒  **Trotter分解** で指数因子を近似
- ⇒ COBYLAやPowell法
- ⇒ Cirqなどを利用

cuQuantumなどシミュレータで**GPU加速**

$$e^{x(A+B)} = \lim_{n \rightarrow \infty} \left( e^{\frac{x}{n}A} e^{\frac{x}{n}B} \right)^n$$

- ・ AとBは実際は演算子なので非可換
- ・ nを無限にするのは不可能、打ち切り
- ・ 演算子の並び/順番にも注意
- ・ 被最適化変数の位相関係にも依存

# size-consistencyとorbital-invariance

## ■ size-consistencyとは？

- $E[(H_2)_n] = n \cdot E[H_2]$  / 相互作用の無い $H_2$ の系
- 電子相関エネルギーが電子数 $N$ でスケールされる (同じ近似度)
- 相互作用エネルギーや反応熱の評価に本質的な性質
- クラスタ展開(CC)や多体摂動論(MBPT)はOK

## ■ orbital-invarianceとは？

- unitary-invarianceとも言う
- 占有軌道空間、仮想軌道空間のユニタリ変換に対する不変性
- 正準軌道(CMO)と局在化軌道(LMO)で同じエネルギーを与える

B

Sum of monomer energies

$$E^{\text{FMO}} = E_A + E_B + E_C$$

FMOではどちらも満足しないと不可!!

A

$$+ (E_{A+B} - E_A - E_B) + (E_{B+C} - E_B - E_C) + (E_{C+A} - E_C - E_A)$$

C

Interaction energy for fragments A-B

Interaction energy for fragments B-C

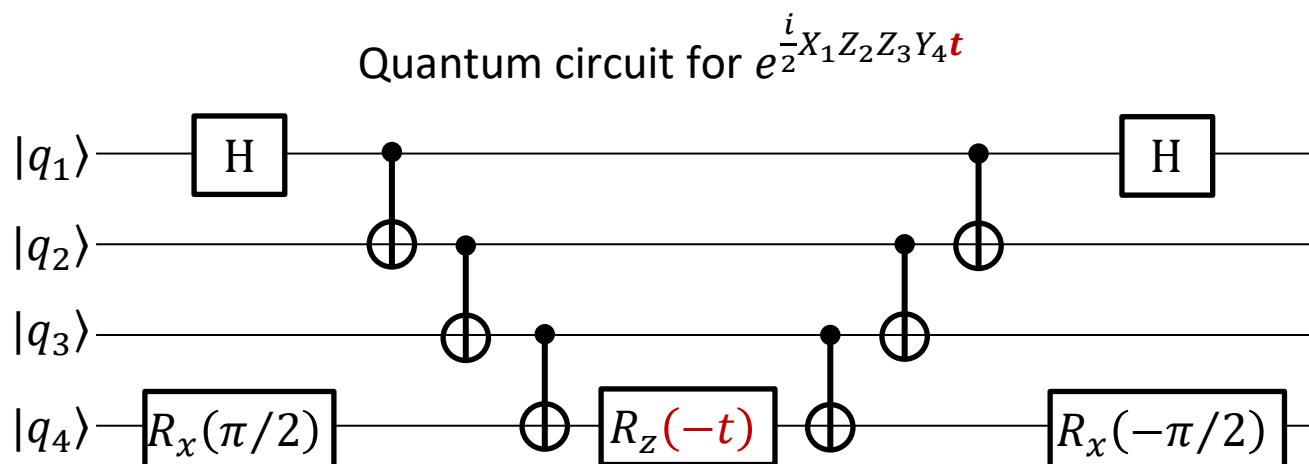
Interaction energy for fragments C-A

$$E = \sum_{I>J} E_{IJ} - (N_f - 2) \sum_I E_I$$

# Trotter分解によるエラー

Trotter decomposition (first-order)

$$e^{(A+B+\dots+Z)} \approx e^A e^B \dots e^Z$$



**Difference in sign of excitation amplitude = Difference in rotating direction**

**The quantum states corresponding to the UCCSD wavefunction are not identical under Trotter decomposition!**



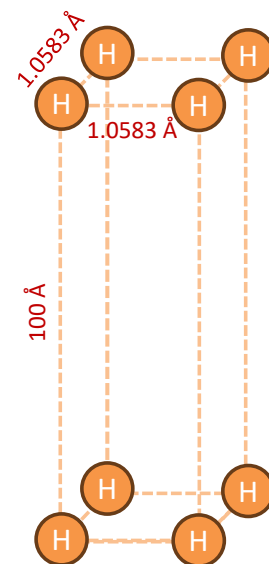
# Trotter分解の外挿によるエラー低減

First-order Trotter decomposition 
$$e^{\sum_{j=1}^J c_j P_j} = \left[ \prod_{j=1}^J e^{\frac{c_j P_j}{M}} \right]^M$$

Second-order Trotter decomposition 
$$e^{\sum_{j=1}^J c_j P_j} = \left[ \prod_{j=1}^J e^{\frac{c_j P_j}{2M}} \prod_{j=J}^1 e^{\frac{c_j P_j}{2M}} \right]^M$$

$\Delta E_{\text{UCCSD-FCI}}/\text{kcal mol}^{-1}$

Unit	First-order					Second-order	w/o Trotter
	$M = 1$	$M = 2$	$M = 3$	$M = 4$	$M = 5$	$M = 1$	
Monomer	0.8102	0.8101	0.8099	0.8100	0.8100	0.8101	0.8118
Dimer (LMO)	1.6207	1.6200	1.6203	1.6204	1.6205	1.6206	1.6236
Dimer (CMO)	5.0319	1.9139	1.7141	1.6681	1.6496	2.0172	1.6234



# JCC誌の中でも閲覧数の多い論文に(2025年)

杉崎先生に深謝

## WILEY Top viewed article



Congratulations to:  
**Yuji Mochizuki**

Whose work has been recognized as a top viewed article\* in:

*Journal of Computational Chemistry*

**Size-consistency and orbital-invariance issues revealed by VQE-UCCSD calculations with the FMO scheme**

\* Among work published in *Journal of Computational Chemistry* between January 1, 2024 - December 31, 2024, view count taken at 12 months after publication.

# VQEでの古典部分の大コスト性を示した1報

JOURNAL ARTICLE

## Concurrent processing of VQE-UCCSD calculations with the FMO scheme

Hideo Doi, Kenji Sugisaki, Tatsuya Nakano, Takahiro Katagiri, Yuji Mochizuki ✉

Author Notes

*Chemistry Letters*, Volume 54, Issue 8, August 2025, upaf145,<https://doi.org/10.1093/chemle/upaf145>

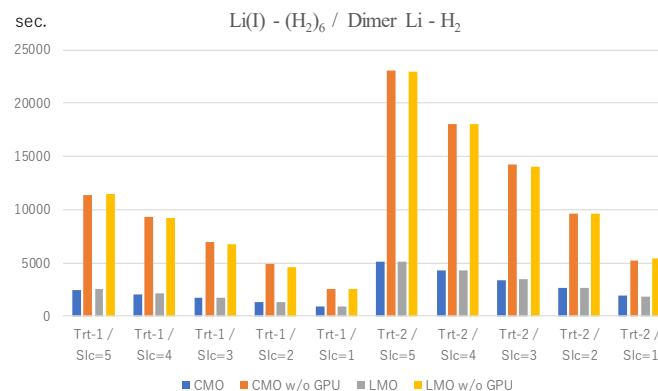
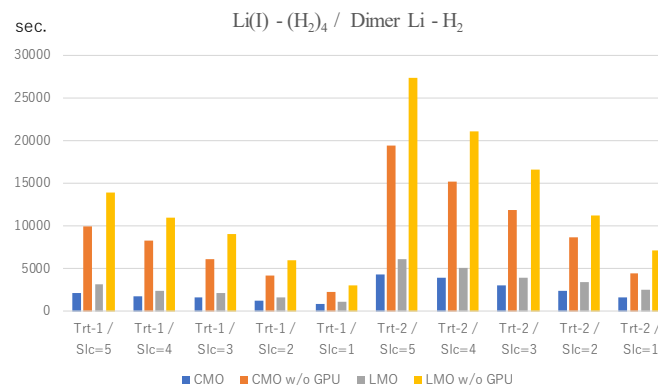
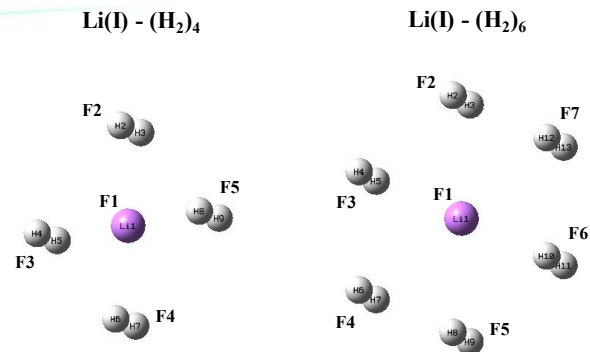
Published: 22 July 2025 Article history ▾

PDF Split View Cite Permissions Share ▾

### Abstract

The fragmentation-based method has attracted interest as a way to reduce the computational cost of quantum chemical computations. Using the variational quantum eigensolver (VQE) of unitary coupled cluster singles and doubles (UCCSD), concurrent processing was used alongside the fragment molecular orbital scheme for the  $\text{Li(I)}-(\text{H}_2)_n$  ( $n = 4$  and 6) clusters on a supercomputer with a graphical processing unit (GPU)-accelerated quantum simulator. Energy and timing data of VQE-UCCSD are presented to highlight issues in practical applications.

- ・「不老」タイプII上でcuQuantumを使用
- ・Trotterスライスと次数を変えた計算を同時並行処理
- ・GPUの加速は4倍程度
- ・古典部分の処理がむしろ深刻なボトルネック



# タンパク質の畳み込み

## ■ タンパク質の畳み込み

- ・ “アンフィンゼンのドグマ” (タンパク質の安定な立体構造は、そのアミノ酸配列によって一意に定まる)
- ・ 立体構造  $\Leftrightarrow$  機能の同定、タンパク質間の相互作用解析、創薬のターゲット
- ・ 構造決定法: X線、NMR、AlphaFold、分子シミュレーション(MD、DPD)

## ■ 目的

- ・ 量子コンピュータによるタンパク質の畳み込みモデルの扱い
- ・ Aspuru-Guzikらによる先行研究(2次元格子モデルのトレース (下は要約))
- ・ 残基間の相互作用はMJの実験由来のパラメータ
- ・ blueqatクラウド環境の量子シミュレータを利用
- ・ IonQ実機も試行的に使用

Lattice protein folding models are a cornerstone of computational biophysics. Although these models are a coarse grained representation, they provide useful insight into the energy landscape of natural proteins. Finding low-energy three-dimensional structures is an intractable problem even in the simplest model, the Hydrophobic-Polar (HP) model. Description of protein-like properties are more accurately described by generalized models, such as the one proposed by Miyazawa and Jernigan (MJ), which explicitly take into account the unique interactions among all 20 amino acids. There is theoretical and experimental evidence of the advantage of solving classical optimization problems using quantum annealing over its classical analogue (simulated annealing). In this report, we present a benchmark implementation of quantum annealing for lattice protein folding problems (six different experiments up to 81 superconducting quantum bits). This first implementation of a biophysical problem paves the way towards studying optimization problems in biophysics and statistical mechanics using quantum devices.

# タンパク質の格子モデルのシミュレーション#1

Journal of Computer Chemistry, Japan -International Edition,  
Vol. 9, 2022-0036 (2023)

©2023 Society of Computer Chemistry, Japan

## General Paper

## Lattice Folding Simulation of Peptide by Quantum Computation

Rui SAITO<sup>1</sup>, Koji OKUWAKI<sup>1</sup>, Yuji MOCHIZUKI<sup>1,2\*</sup>, Ryutaro NAGAI<sup>3</sup>, Takumi KATO<sup>3#</sup>,  
Kenji SUGISAKI<sup>4,5,6</sup>, Yuichiro MINATO<sup>3</sup>

1) Department of Chemistry and Research Center for Smart Molecules, Faculty of Science, Rikkyo University, 3-34-1 Nishi-ikebukuro, Toshima-ku, Tokyo 171-8501, Japan

2) Institute of Industrial Science, The University of Tokyo, 4-6-1 Komaba, Meguro-ku, Tokyo 153-8505, Japan

3) blueqat Inc., 2-24-12 Shibuya, Shibuya-ku, Tokyo 150-6139, Japan

4) Department of Chemistry, Graduate School of Science, Osaka Metropolitan University, 3-3-138 Sugimoto, Sumiyoshi-ku, Osaka 558-8585, Japan

5) JST PRESTO, 4-1-8 Honcho, Kawaguchi, Saitama 332-0012, Japan

6) Centre for Quantum Engineering, Research and Education (CQuERE), TCG Centres for Research and Education in Science and Technology (TCG CREST), First Floor, Tower 1, Bengal Eco Intelligent Park (Techna), Block EM, Plot No 3, Sector V, Salt Lake, Kolkata, 700091, India

\*Email: [fullmoon@rikkyo.ac.jp](mailto:fullmoon@rikkyo.ac.jp)

#Present Address: NTT DATA Corporation, Toyosu Center Bldg. Annex, 3-9, Toyosu 3-chome, Koto-ku, Tokyo 135-8671, Japan

(Received: October 14, 2022; Accepted for publication: December 19, 2022; Online publication: April 3, 2023)

Computational protein folding has attracted considerable interest over the years, including molecular simulations and artificial intelligence assisted methods. On the other hand, research and development of quantum computer hardware and software have been thriving recently. In this paper, we report a case study of peptide (PSVKMA) folding based on a two-dimensional lattice model, by using both the blueqat quantum simulator (called AutoQML) and the IonQ quantum device. As a result, it was found that the actual device was still susceptible to noises.

# タンパク質の格子モデルのシミュレーション#2

Quadratic Unconstrained Binary Optimization (QUBO) & Quantum Approximate Optimization Algorithm (QAOA)

## ■対象

- ・ 6つのアミノ酸(Pro-Ser-Val-Lys-Met-Ala)から成るPSVKMAペプチド
- ・ 格子モデルでエネルギー関数を設定
- ・ PSKVの畳み込みを固定して、MとAの向きを最適化
- ・ 量子アニーリング的なQUBOをVQE的なQAOAで求解
- ・ 正解は”001”

$$E(q) = E_{Back}(q) + E_{Overlap}(q) + E_{Pair}(q)$$



$$E(q) = -1 - 4q_2 + 9q_0q_2 + 9q_1q_2 - 16q_0q_1q_2$$

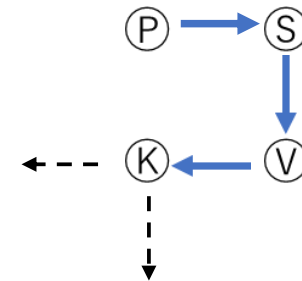
(3体項をアニーリングで扱うのは大変)

```
from blueqat import vqe
from blueqat.pauli import qubo_bit as q

hamiltonian = -1 - 4*q(2) + 9*q(0)*q(2) + 9*q(1)*q(2) - 16*q(0)*q(1)*q(2)
step = 5

result = vqe.Vqe(vqe.QaoaAnsatz(hamiltonian, step)).run()
print(result.most_common(12))
```

Back: 戻った時のペナルティ  
Overlap: 重なった時のペナルティ  
Pair: 残基対の相互作用



(01 00 10  $q_0$  0  $q_1q_2$ )

相互作用	$\Delta E$
$\textcircled{P} \text{ III } \textcircled{K}$	-1
$\textcircled{P} \text{ III } \textcircled{A}$	-2
$\textcircled{S} \text{ III } \textcircled{M}$	-3
$\textcircled{V} \text{ III } \textcircled{A}$	-4

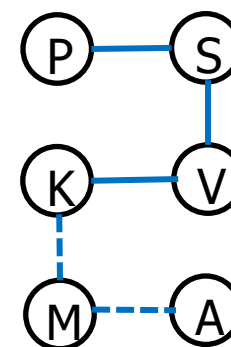
# タンパク質の格子モデルのシミュレーション#3

## 3量子ビット

シミュレータとIonQ実機の比較 (QAOA Step数:5)

測定結果	サンプリング確率 (シミュレータ)	サンプリング割合 (IonQ, shots=100)
001	0.991	0.41
111	0.004	0.13
000	0.003	0.10
110	0.002	0.06
101	0.000	0.06
011	0.000	0.12
100	0.000	0.10
010	0.000	0.02

(01 00 10  $q_0$  0  $q_1$   $q_2$ )



想定解

$(q_0, q_1, q_2) = [0, 0, 1]$

共に今回の想定解 '001' が最も高い確率でサンプリングされており、最適化がなされている。ただしIonQの結果では、想定解以外のサンプリング確率がシミュレータと比較して高い。

**IonQ実機では「ノイズの影響を受けやすい」と言える**

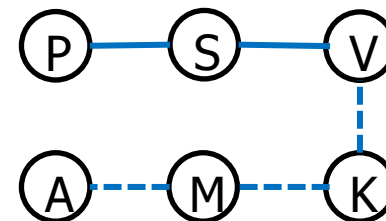
# タンパク質の格子モデルのシミュレーション#4

## 5量子ビット

5量子ビットの問題に置き換え、同様の比較 (QAOA Step数:5)

測定結果	サンプリング確率 (シミュレータ)	サンプリング割合 (IonQ, shots=100)
01010	0.187	0.04
10010	0.112	0.05
01000	0.096	0.05
11101	0.092	0.01
10000	0.089	0.03
00100	0.087	0.02
01001	0.045	0.02
...		

(01 01 0  $q_0$   $q_1$   $q_2$   $q_3$   $q_4$ )



想定解

$$(q_0, q_1, q_2, q_3, q_4) \\ = [0, 1, 0, 1, 0]$$

共に今回の想定解 '01010' をサンプリングする確率は3量子ビット時より低い。

→ 問題サイズが大きくなり、最適化が難しくなった影響

IonQの結果にはさらにハードウェアのノイズが影響し、想定解とその他でサンプリング確率にほぼ差がない。

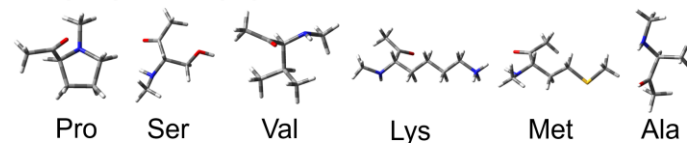
→ 実機をうまく活用するためにどうするかといった問題提起につながる。

# タンパク質の格子モデルのシミュレーション#5

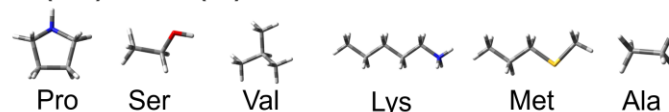
FCEWSを使って $\chi$ パラメータを算出

- ① MJモデル (PDBの畳み込み構造から演繹した経験的パラメータ)
- ② FMO-MP2/6-31G(d') 側鎖のみモデル (水和は考慮せずに決定)
- ③ FMO-MP2(PB)/6-31G(d') 主鎖+側鎖モデル (PB水和を印加)
- ④ FMO-MP2(PB)/6-31G(d') 側鎖のみモデル (同上)

MP2(PB)/6-31G(d') Main+Side chain



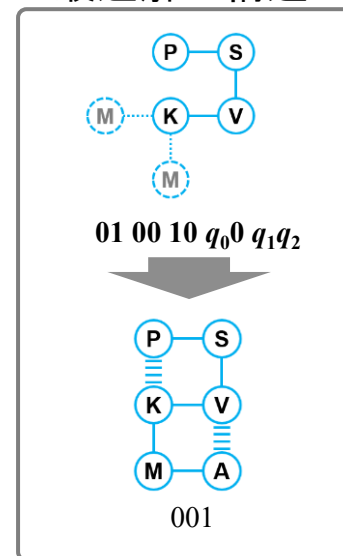
MP2(PB)/6-31G(d') Side chain



3次以上の量子ビット積を「そのまま」扱うHOBOでシミュレーション(HOBOTANを利用)

Seq.	MJ model	FMO-MP2/6-31G(d') Side chain	FMO-MP2(PB)/6-31G(d') Main + Side chain [Present]	FMO-MP2(PB)/6-31G(d') Side chain [Present]
<b>QUBO</b>				
001	<b>0.667(-4)</b>	<b>0.653(-12)</b>	<b>0.654(-4)</b>	<b>0.614(-3)</b>
111	0.333(-2)	0.347(-1)	0.346(-3)	0.386(-2)
Time (s)	1.6	1.6	1.6	1.6
<b>HOBO</b>				
001	<b>0.752(-4)</b>	<b>0.744(-12)</b>	<b>0.744(-4)</b>	<b>0.754(-3)</b>
111	0.248(-2)	0.255(-1)	0.255(-3)	0.246(-2)
100	0.000(0)	0.000(0)	0.000(0)	0.000(0)
010	0.000(0)	0.000(0)	0.001(0)	0.000(0)
Time (s)	2.1	2.0	2.0	2.0

最適解の構造



【1000ショットを10回実行】

赤字:最適解の確率 () :エネルギー値

QUBO: TYTAN(Ver.0.1.1) / HOBO: HOBOTAN(Ver.0.1.2)

NVIDIA T4 GPU利用 / T\_num(フリップ繰り返し数) = 2000

HOBO > QUBOの傾向

# まとめ

# ABINIT-MPによるFMO計算（その2）

## ◇MD-FMO連携計算

「富岳」では数百残基は完全にルーチン実行、数千残基も可能  
入力データの作成と結果データの解析処理にはPythonツールを活用

## ◇AI4Sコンテキスト

サロゲートモデリングによる低コスト化（sp関数基底はGPUに好適）  
（重要）結果の「自動抽出/解釈」を指向、DB蓄積とカ場抽出などの利活用

## ◇GPU対応

ABINIT-MPはMP2エネルギーまで達成  
「富岳NEXT」向けのFMO-XはMP2エネルギー微分まで実装予定

## ◇その他展開

マルチスケールシミュレーションの現状、開殻・多参照系への今後の対応

長時間のご聴講、お疲れさまでございます。ありがとうございました。