

グランドカノニカルモンテカルロ法におけるつり合いを満たす 挿入削除バイアス法の開発と機械学習ポテンシャルへの適用

(東大院工) ○池田 龍志・菅野 智也・中山 哲

Development of General Formulation of Biasing Particle Insertion/Deletion for Grand Canonical Monte Carlo Method and Its Application to Machine Learning Potentials (¹*Graduate School of Engineering, The University of Tokyo*) ○Tatsushi Ikeda, Tomoya Kanno, Akira Nakayama

The surfaces and interfaces of materials are sites of various chemical transformations, and investigating the behavior of solutes and solvents at interfaces where bonds are recombined is important from an academic and engineering perspective. Recent developments in machine learning potentials (MLPs)¹ and other computational techniques have made it possible to perform reactive molecular simulations on an unprecedented scale. Although the grand canonical Monte Carlo (GCMC) method is effective for equilibrium state structure sampling without fixing the chemical composition, there are some cases where the GCMC method for electronic state calculations and MLPs does not satisfy the appropriate balance conditions, such as the introduction of structure optimization, especially in surface chemistry. Aiming to extend the GCMC method to reactive systems, we have developed the modified cavity bias (MCB) method that reformulates the cavity bias method to satisfy detailed balance². We report the results of applying this method to hydrogen adsorption on metal surfaces, in combination with an MLP trained to specialize in energy differences in particle number changes.

Keywords : *Monte Carlo Simulation; Grand Canonical Ensemble; Surface Adsorption*

物質の表面・界面は様々な化学変換の場であり、結合の組み換えのある界面での溶質・溶媒の振る舞いを調べることは触媒反応や腐食・研磨などの側面で学術的・工学的に重要となる。近年の機械学習ポテンシャル (MLP)¹などの開発によりこれまでにない規模の反応性のある分子シミュレーションが可能になってきている。化学組成を固定せずに平衡状態構造サンプリングを行う場合グランドカノニカルモンテカルロ (GCMC) 法が有効であるものの、電子状態計算や MLP の GCMC 法への適用については特に表面化学において構造最適化の安易な導入など適切なつり合い条件を満たさない誤ったものが散見される。我々は反応性がある系への GCMC 法の拡張を目指し、キャビティバイアスバイアス法を詳細つり合いを満たすように再定式化した修正キャビティバイアス (MCB) 法を開発した²。これと粒子数変化におけるエネルギー差に特化させて訓練した MLP を組み合わせ、金属表面への水素吸着に適用した結果を報告する。

1) E. Kocer, et al., *Annu. Rev. Phys. Chem.* **2022**, 73, 163. 2) T. Ikeda and A. Nakayama. *J. Chem. Theory Comput.* **2024**, 20, 9364.