

# Název: Implementace a testování iteračního algoritmu pro nalezení optimálních parametrů deštníkového vzorkování v zeolitických systémech

## Abstrakt:

Řada fyzikálních nebo chemických procesů probíhajících v zeolitických systémech se vyznačuje vysokou aktivační energií, která činí ergodické vzorkování těchto přechodů pomocí rovnovážné molekulové dynamiky (equilibrium molecular dynamics, EMD) výpočetně nedostupným v rozumném čase. K řešení tohoto problému se využívají metody vylepšeného vzorkování, které přidávají umělé zkreslení k přirozenému potenciálu systému. Deštníkové vzorkování (umbrella sampling, US) je jednou z těchto metod zkreslené MD, která slouží k získání profilu potenciálu střední síly (potential of mean force, PMF) podél prostoru kolektivní proměnné (collective variable, CV), tj. projekce volné energie na tuto CV, pro procesy s vysokou aktivační bariérou. Deštníkové vzorkování se skládá z několika zkreslených MD simulací omezených harmonickými potenciály se středem v různých bodech prostoru CV, ze kterých se následně rekonstruuje PMF. Konvergence US však silně závisí na několika hyperparametrech, jako je vhodný počet zkreslených simulací, jejich umístění a konstanty síly harmonického omezení. Postup optimálního zpřesnění mřížky (optimal grid refinement, OGR<sub>e</sub>), který navrhli Borgmans et al.[?] pro nalezení optimálních středů harmonických omezení a jejich silových konstant, byl v této práci znovu implementován s určitými vylepšeními a úpravami. Konkrétně byl při následném zpracování místo metody vážené histogramové analýzy (weighted histogram analysis method, WHAM) použit vícestavový Bennetův akceptační poměr (multistate Bennet acceptance ratio, MBAR) a byl zahrnut automatický výpočet reakčních a aktivačních volných energií po konstrukci PMF. Naše implementace metody OGR<sub>e</sub> byla otestována na dvou zeolitových systémech: difúzi dimeru platiny skrze osmičlenný kruh chabazitu a na protonu přeskakujícím v chabazitu. Molekulárně-dynamické simulace byly v této práci provedeny s využitím předem natrénovaných potenciálů neuronové sítě (neural network potentials, NNP) s přesností odpovídající metodám DFT[?, ?]. Implementace OGR<sub>e</sub> se ukázala jako úspěšná při získávání dostatečně přesných PMF profilů a Helmholtzových aktivačních i reakčních volných energií pro naše testovací systémy. Hodnoty hyperparametrů algoritmu OGR<sub>e</sub> byly úspěšně měněny s cílem nalézt jejich hodnoty, které zajišťují výpočetní přesnost i efektivitu.

## Klíčová slova:

Vylepšené vzorkování, Deštníkové vzorkování, Iterativní algoritmus, Potenciál střední síly, Důležitostní vzorkování, Volná energie, Zeolit