

深海熱水電気化学触媒反応による生命起源の分子機構探求

課題責任者

岡田 賢 海洋研究開発機構 超先鋭研究開発部門 超先鋭研究開発プログラム

著者

岡田 賢^{*1}, 小野 重明^{*2}

^{*1}海洋研究開発機構 超先鋭研究開発部門 超先鋭研究開発プログラム, ^{*2}海洋研究開発機構 海域地震火山部門 火山・地球内部研究センター

キーワード：量子化学計算, 第一原理計算, 並列計算, 分子構造, 生命の起源

1. はじめに

初期地球で生命がどのように誕生したかは、未だに議論が尽きない。いずれにせよ、窒素、二酸化炭素、水が主成分である地殻表面にて、なんらかの化学反応が起き、アミノ酸、核酸塩基、生体エネルギー通貨などが生産されたはずである。化学反応のシナリオとして、大気中での放電[1]、大陸表面での潮汐[2]、水中での金属触媒反応[3]などが想定されてきた。近年、深海の熱水活動域にて、熱水噴出孔の表面に数百 mV 程度の電位が発生していることが明らかとなった。[4]酸素酸化を除く生体内での化学反応が概ね±0.5 V 程度であることを鑑みれば、深海熱水噴出孔でも無幾電気化学的に反応が進行し、生命を構成する有機分子が生み出されていた可能性がある。

深海が生命誕生の場であったことを明確に示すためには、(1) どのような反応が起こったか(反応経路)、(2) どのような環境条件なら反応が進行できるか(反応条件)、(3) どの程度の時間で生命誕生に必要な有機分子が蓄積されるか(反応速度)、(4) 生成物は逆反応により分解し、他の分子へと変化するか(逆反応速度)などを明らかにする必要がある。これらをすべて算出するためには、個々の反応を具体的に観測し、反応速度定数を求める必要がある。深海熱水噴出孔説では、電気化学的触媒機構を考慮する必要に加えて、(5) 深海熱水噴出孔を構成する主成分である硫化鉄物は電位により構造変調を受けるはずだが、どのような構造を取るか(表面構造)という疑問も明らかにする必要がある。すなわち、部分的に酸化還元を受けた硫化鉄物表面が、どのように二酸化炭素などの無機分子を吸着し、高度な有機化合物への構造変化を電気化学的に触媒するかを明らかにする必要がある。

著者らはこれまで、海洋研究開発機構の Data Analyzer システム(DA)にて、深海熱水噴出孔周辺での化学反応や化学種についての研究を行ってきた。DA35-50%が2022年度で運用終了することに伴い、地球シミュレータ(ES)への移行が促されていた。その第1段階として、ESでもDAと同様の化学的精度および計算速度で分子化学計算が行えるかの評価を行った。第四世代のESは汎用CPU計算機としての性能も高いことが特徴とされており、本検討結果は、ESが市販ソフトウェアでの高速計算に適すること

の証左にもなる。

2. 実行速度の比較

化学計算を行うためのソフトウェアとしては複数のものが存在する。今回は、その中でも分子軌道法に基づく Gaussian 16[5]および平面波による第一原理計算に基づく Vienna ab initio simulation package (VASP, 5.4)[6]の実装および比較を行った。

単一ノードを用いた Gaussian での計算では、ESでの実行時間はDAの35-50%程度であり、見目の高速化が達成された。一方、総コア実行時間はDAより3-33%伸びていた(図1)。実行時間の短縮は、浮動小数点演算回数はDAでは40コアで3 TflopsだったのがESでは128コアで4.6 Tflopsに増加したと概ね一致する。一方で、分子軌道法では自己無撞着場(SCF)計算を並列化し、これが完了したときに同期と総和計算を行うが、並列数が多い場合には同期過程で待ち時間が発生するため、これがコア数加味で計算時間が伸びた原因であると考えられる。特に、ソケット間で通信をさせる場合に計算効率の低下が顕著であった。一方、スレッド並列数はほとんど計算効率に影響を与えなかった。DAとESで得られた全電子エネルギーの差は1 kcal/mol以下であり、化学的精度での議論を行う上で問題がないことが確認できた。

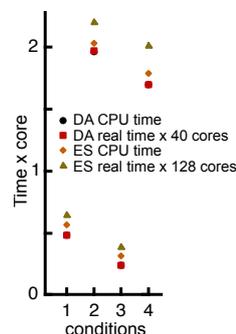


図1 単一ノード内での計算性能比較。同一の計算をDAでは40 core、ESでは128 coreで行い、プログラムで計測したCPU時間を実時間とCPU数の積と比較した。

複数ノードを用いたVASPでの計算では、総コア実行時間はDA(計160コア、12 Tflops相当)よりもES(計256コア、9.2 Tflops相当)の方が長時間であったが、増加時間は浮動小数点演算性能に比例していた(表1)。また、同一の計算をコア数およびプロセス数を変えてESで計算し

たところ、コア数およびプロセス数増大に伴い計算時間の短縮が見られた(表2)。なお、いずれの計算においても、得られた全電子エネルギーにはDAでの計算結果と比べて1 meV/原子以下の差が生じており、化学的精度での議論を行う上で問題がないことが確認できた。

表1 複数ノードでの計算性能比較[秒]

Condition	1	2
DA	1309.2	206.7
ES	2026.8	360.4

表2 並列条件による計算性能比較。

No. of cores	128	128	256	256	256
No. of processes	1	64	1	16	128
time [s]	399.4	298.7	117.0	116.0	115.0

以上の結果から、ESでも各種量子化学計算が実行可能であることが示された。今後は、これらの量子化学計算環境を利用した生命起源における分子進化メカニズム探索を行っていく予定である。

文献

[引用番号] 著者氏名, “表題”, 雑誌名巻(号), ページ, (年月).

[1] S. L. Miller, H. C. Urey, “Organic Compound Synthesis on the Primitive Earth”, *Science*, 130 (3370), 245-251 (1959).

[2] S. Becker, C. Schneider, H. Okamura, A. Crisp, T. Amatov, M. Dejmek, T. Carell, “Wet-dry cycles enable the parallel origin of canonical and non-canonical nucleosides by continuous synthesis”, *Nat. Commun.* 9, 163 (2018).

[3] K. B. Muchowska, S. J. K. Varma, J. Moran, “Synthesis and breakdown of universal metabolic precursors promoted by iron”, *Nature*, 569, 104107 (2019).

[4] M. Yamamoto, R. Nakamura, T. Kasaya, H. Kumagai, K. Suzuki, “Spontaneous and Widespread Electricity Generation in Natural Deep-Sea Hydrothermal Fields”, *Angew. Chem. Int. Ed.* 56, 5725-5728 (2017).

[5] M. J. Frisch, G. W. Trucks, H. B. Schlegel, G. E. Scuseria, M. A. Robb, J. R. Cheeseman, G. Scalmani, V. Barone, G. A. Petersson, H. Nakatsuji, X. Li, M. Caricato, A. V. Marenich, J. Bloino, B. G. Janesko, R. Gomperts, B. Mennucci, H. P. Hratchian, J. V. Ortiz, A. F. Izmaylov, J. L. Sonnenberg, D. Williams-Young, F. Ding, F. Lipparini, F. Egidi, J. Goings, B. Peng, A. Petrone, T. Henderson, D. Ranasinghe, V. G. Zakrzewski, J. Gao, N. Rega, G. Zheng, W. Liang, M. Hada, M. Ehara, K. Toyota, R.

Fukuda, J. Hasegawa, M. Ishida, T. Nakajima, Y. Honda, O. Kitao, H. Nakai, T. Vreven, K. Throssell, J. A. Montgomery, Jr., J. E. Peralta, F. Ogliaro, M. J. Bearpark, J. J. Heyd, E. N. Brothers, K. N. Kudin, V. N. Staroverov, T. A. Keith, R. Kobayashi, J. Normand, K. Raghavachari, A. P. Rendell, J. C. Burant, S. S. Iyengar, J. Tomasi, M. Cossi, J. M. Millam, M. Klene, C. Adamo, R. Cammi, J. W. Ochterski, R. L. Martin, K. Morokuma, O. Farkas, J. B. Foresman, and D. J. Fox, “Gaussian 16, Revision B.01”, Gaussian, Inc., Wallingford CT (2016).

[6] G. Kresse, J. Furthmüller, “Efficient iterative schemes for ab initio total-energy calculations using a plane-wave basis set”, *Phys. Rev. B Condens Matter*, 4 (16), 11169-11186 (1996).