

文章编号: 2096-1618(2024)01-0056-05

# 量子动力学框架在 Lennard-Jones 团簇结构优化中的应用

王旭, 王鹏, 吕林桃

(西南民族大学计算机工程与技术学院, 四川 成都 610041)

**摘要:** Lennard-Jones 团簇结构优化是在物理化学和材料科学领域经常遇到的优化问题, 由于原子之间的相互作用具有高度的复杂性, 因此常用来检验算法性能。量子动力学是一种具有完整数学框架且非常有效的理论模型, 量子动力学框架(QDF)已经被证明在复杂问题中具有很强的竞争力。在不引入任何先验知识的基础上, 使用 QDF 在 Lennard-Jones 团簇结构优化问题中进行求解, 探讨 QDF 在具有高度复杂的解空间的团簇问题中的性能。将 QDF 与差分进化算法、骨架烟花算法进行对比, 比较最低能量、能量分布和时间精度等。实验结果表明, 在 Lennard-Jones 团簇结构优化问题中, 可接受时间内 QDF 取得优于其他两种算法的最低能量。QDF 是一种具有潜力的解决框架。

**关键词:** 量子动力学; 量子动力学框架; Lennard-Jones 团簇; 全局优化; 优化算法

**中图分类号:** TP311.5

**文献标志码:** A

**doi:** 10.16836/j.cnki.jcui.2024.01.010

## 0 引言

文献[1]根据优化算法在量子动力学模型提出基本迭代操作, 称为量子动力学框架(quantum dynamics framework, QDF)。QDF 虽然被提出的时间不长, 但是该框架已经被证实是一种具有潜力的基本框架, 在 Ackley、Levy 和 Sphere 等 6 个标准测试函数上, QDF 的性能甚至超过了 SPSO2011、CLPSO 和 BBF-WA 等主流算法。

从理论上研究团簇最低能量结构是一项巨大的挑战, 随着团簇中原子数量的增加, 其结构变得更加复杂, 这意味着局部极小值的数量呈指数增长, 这类求原子团簇结构最优的问题称为 NP 难问题[2]。对于这类问题, 发展高效的启发式算法具有重要的意义, Lennard-Jones 势函数是其中最为典型的代表。Lennard-Jones 势函数的模型简单, 但是具有大量的局部极值很难取得最稳定的结构, 对于优化算法而言, 在复杂势能面中搜索全局最小值仍然是一个极具挑战的难题。此外对于检测优化算法的解空间性能具有非常重要的作用, 成为优化算法效率的重要检验工具[3]。

在解决 NP 难问题方面, 主要提出两类优化算法: 精确算法和启发式算法。精确算法通常可以保证找到全局最优解, 但是在面对大规模问题时算法复杂度往往非常巨大, 因此很难在合理的时间内得到结果。而启发式算法则更注重在合理时间内尽可能接近全局最优解, 即使不能保证找到全局最优解, 也能给出较好的次优解。本文使用的 QDF 属于启发式算法。目前好的算法绝大多数都引入了对函数领域问题的先验知识[4], 为验证 QDF 本身的性能不引入任何先验知识, 目的是探索 QDF 在具有高度复杂的解空间的 Len-

nard-Jones 团簇问题中的应用的可能性及效果。

## 1 Lennard-Jones 团簇

Lennard-Jones 团簇优化受到广泛而深入的研究, 通过 Lennard-Jones 势能相互作用, 原子间的结构和稳定性得到准确的描述, 如低温下的稀有气体团簇[5]。此外, Lennard-Jones 势函数还被广泛应用于检测算法的优化性能, 因为它是一个复杂的势能面, 包含大量的局部极小值, 对于优化算法而言是一个具有挑战性的问题。

Lennard-Jones 势函数只考虑原子之间的范德华力相互作用, 其势能函数的数学表达式[6]如下:

$$V(r) = 4\varepsilon \left[ \left( \frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^{12} - \left( \frac{\sigma}{r_{ij}} \right)^6 \right] \quad (1)$$

式中,  $n$  表示原子个数,  $r_{ij}$  通过原子坐标直接得到表示各对原子( $i, j$ )间的距离。  $\varepsilon$  表示二聚体势阱深,  $\sigma$  是平衡距离, 在全局优化问题中, 通常使  $\varepsilon = 1.0, \sigma = 1.0$ [7]。Lennard-Jones 势函数图象如图 1 所示, 其中横坐标表示原子间距离, 纵坐标表示原子间势能[8]。从图中可以观察到 Lennard-Jones 势函数的势能随着  $r_{ij}$  的变化而变化, 当  $r_{ij}$  达到平衡位置  $\sigma$  时, Lennard-Jones 势能达到最大值  $\varepsilon$ [9]。

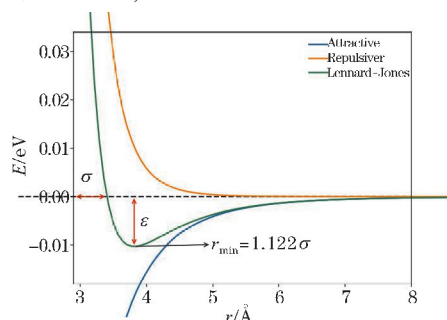


图1 氩原子 Lennard-Jones 势能随原子间距离变化关系

目前,主要用于求解这一优化问题使用的代表性算法包括:遗传算法(GA)<sup>[10-11]</sup>、自适应免疫优化算法(AIOA)<sup>[12]</sup>、粒子群优化算法(PSO)<sup>[13-14]</sup>、动态格点搜索算法(DLS)<sup>[15-16]</sup>、差分进化算法(DE)<sup>[17-18]</sup>及其他一些算法。对于 1000 个原子以内的 Lennard-Jones 势能团簇,在剑桥晶体库(CCD)中收录了已知的最优结构和最低能量。

## 2 量子动力学框架

量子动力学是一种具有完整数学框架且非常有效的理论模型,QDF 是基于量子动力学下的框架,引入正态采样、均值替换和尺度下降等操作,具有更高的搜索效率和更全面的搜索空间,其基本流程图如图 2<sup>[19]</sup>。

本文使用多种群 QDF 进行实验。随机采样的原子初始定义域大小为  $[\sqrt[3]{-0.62 \times \text{clustersNum}}, \sqrt[3]{0.62 \times \text{clustersNum}}]$  的球内,其中 clustersNum 是团簇中原子的数目。QDF 的迭代过程可以被看作是由  $k$  个独立的采样个体组成的多尺度正态群体采样过程<sup>[1]</sup>,通过这种方式,QDF 在解空间内进行搜索,寻找全局最优解。

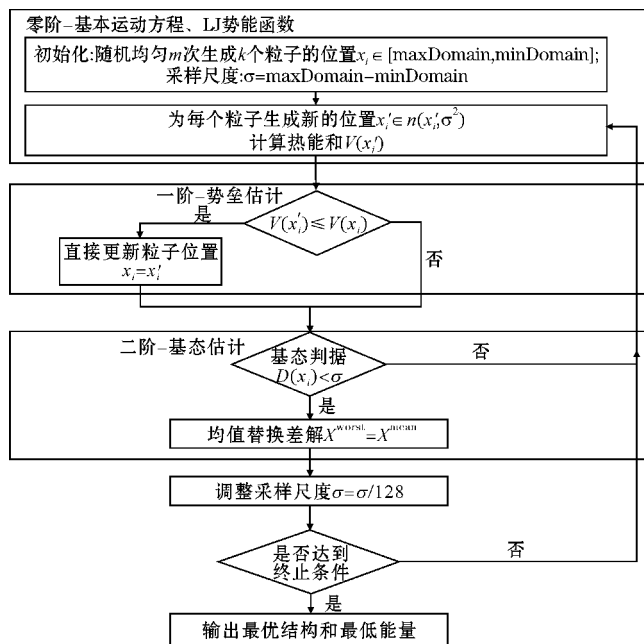


图2 QDF 在 Lennard-Jones 中应用的流程图

首先,重复  $m$  次对  $k$  个采样个体在定义域中随机初始化作为初始点,根据式(1)计算当前团簇的势能之和作为初始势能;然后,采用 Box-Muller 方法在定义域中生成 DIM 维新的正态分布采样点,正态采样标准差  $\sigma$  的初始值设为  $\text{maxDomain} - \text{minDomain}$ ,可以在一定程度上控制定义域范围的大小,定义域大小可以根据情况进行调整。进行正态采样时,对越界和重合的粒子进行重新采样,根据新的采样点重新计算当前势能和,选取  $m$  次采样中最小的势能和。

在迭代过程中,通过对采样个体的标准差进行监

控,当前正态采样标准差  $\sigma$  大于  $k$  个采样个体的标准差时,意味着这  $k$  个采样个体在当前尺度下已经相对稳定,已经收敛到这个尺度的基态。这时采用这  $k$  个采样个体中位置均值替换其中最差的个体,同时调整采样尺度变为原来的  $1/128$ ,以进入下一轮更小尺度的迭代过程。以上过程重复进行,直到满足最大迭代次数或者小于设定精度后结束,这些操作使 QDF 能够有效地搜索全局最优解。

## 3 结果与讨论

为全面分析多种群 QDF 在 Lennard-Jones 中的性能表现,选取烟花算法(FWA)的衍生版本 BBFWA<sup>[20]</sup>及 DE<sup>[17]</sup>作为对照组,进行比较和评估。

所有的算法将在 Lennard-Jones 势函数方程式上进行,每组实验重复 30 次,以保证实验结果的可靠性,单次运算的最大迭代次数限制为 1000000 次,实验维度设置为  $3 \times n$ ,其中  $n$  表示原子个数。实验环境为 Intel(R) Core(TM) i7-6700 CPU @ 3.40 GHz  $\times 8$ , 15.6 GiB。为确保每种基础版本算法的一致性,本文参考了官方的标准值参数进行对比实验,统一每种算法的种群数为 4。具体实验数据见表 1,其中 Mean 表示能量均值, Best 表示能量最优,最优的实验结果在表 1 中用粗体标注。由表 1 可以看出,通过与 DE 算法、BBFWA 算法等常见算法的比较,在  $n$  为 2 ~ 15 时,QDF 每组结果更接近于 CCD 中已经收录的最低能量,QDF 对于 Lennard-Jones 团簇结构优化问题具有更高的优化能力。

为更详细和直观地分析实验过程中的数据,如图 3 所示绘制了每种算法每组实验中重复 30 次的数据的箱体图。箱体图是一种常用的统计图形,可以展示数据整体的分布情况。图 3 中横轴代表 3 种算法,纵轴是原子间能量值,图中的红点代表异常值,而箱子的宽度反映数据的波动程度,箱子越宽,说明数据波动越大,数据整体的稳定性越低。通过观察图 3,可以看出 DE 算法的多数图形箱体宽度较大并且出现一些红点异常值,相比之下,BBFWA 算法箱体图相对较窄,且异常值较少,而 QDF 的箱体图明显窄于其他两种算法,并且出现较少的异常值。这些箱体图清晰地展示了 QDF 在 Lennard-Jones 中的准确性和稳定性的优势。通过图中数据分布分析得到 QDF 采用正态采样使数据分布更加随机,采用均值替换策略减小数据波动程度,使平均水平更加稳定,异常值出现的次数也在可接受的范围内,在 Lennard-Jones 中求解的范围较稳定。从实验结果分析,由于 QDF 采用了量子动力学模型,因此在处理具有高度复杂结构和高维度解空间的问题时,具有完整数学框架且非常有效的理论模型处理 Lennard-Jones 团簇结构优化问题能发挥出更好的优化性能。

表 1 Lennard-Jones 势函数方程式各算法基础版本 30 次重复实验的平均值和最优

| <i>n</i> | Energy     | QDF               |                   | DE         |            | BBFWA      |                  |
|----------|------------|-------------------|-------------------|------------|------------|------------|------------------|
|          |            | Mean              | Best              | Mean       | Best       | Mean       | Best             |
| 2        | -1.000000  | <b>-1.000000</b>  | <b>-1.000000</b>  | -0.938661  | -0.999999  | -0.999998  | <b>-1.000000</b> |
| 3        | -3.000000  | <b>-3.000000</b>  | <b>-3.000000</b>  | -1.858518  | -2.959309  | -2.938364  | -2.969720        |
| 4        | -6.000000  | <b>-5.999807</b>  | <b>-5.999815</b>  | -1.868450  | -4.725855  | -4.947517  | -5.278910        |
| 5        | -9.103852  | <b>-9.101795</b>  | <b>-9.101964</b>  | -1.242850  | -5.585898  | -6.388995  | -6.916243        |
| 6        | -12.712060 | <b>-12.700930</b> | <b>-12.706540</b> | 22.583760  | -7.084413  | -8.198591  | -8.459505        |
| 7        | -16.505384 | <b>-16.490000</b> | <b>-16.490000</b> | -5.959137  | -8.049055  | -10.338219 | -10.975519       |
| 8        | -19.821489 | <b>-19.785960</b> | <b>-19.790680</b> | -1.297656  | -8.802247  | -10.471709 | -12.089157       |
| 9        | -24.113360 | <b>-24.059720</b> | <b>-24.063170</b> | 42.683470  | -9.454836  | -11.273944 | -12.933663       |
| 10       | -28.422532 | <b>-28.257550</b> | <b>-28.272240</b> | 19.482345  | -11.087689 | -12.312878 | -14.178890       |
| 11       | -32.765970 | <b>-32.542680</b> | <b>-32.555460</b> | 62.380012  | -11.750024 | -9.145081  | -15.420803       |
| 12       | -37.967600 | <b>-37.569610</b> | <b>-37.704110</b> | 104.517065 | -12.629847 | -11.333914 | -16.282064       |
| 13       | -44.326801 | <b>-43.247650</b> | <b>-43.787930</b> | 19.611639  | -12.909293 | -3.030469  | -16.751925       |
| 14       | -47.845157 | <b>-47.194110</b> | <b>-47.215540</b> | 129.749997 | -14.097872 | -0.606091  | -20.952934       |
| 15       | -52.322627 | <b>-51.056300</b> | <b>-51.585690</b> | 93.636217  | -15.307316 | -12.833145 | -20.986953       |

图 4 统计了每种算法每组实验中重复 30 次的平均迭代时间,单位为秒,图中横轴代表 3 种算法,纵轴是原子数,颜色越浅的区域代表消耗的时间越少。可以看出,QDF 平均迭代时间不及 BBFWA 算法,小于

DE 算法平均迭代时间。通过 QDF 采用的机制,整体上采用尺度下降方法进入了下一轮更小尺度的迭代过程,在当前精度的结果下,得到的时间处于可接受范围内。

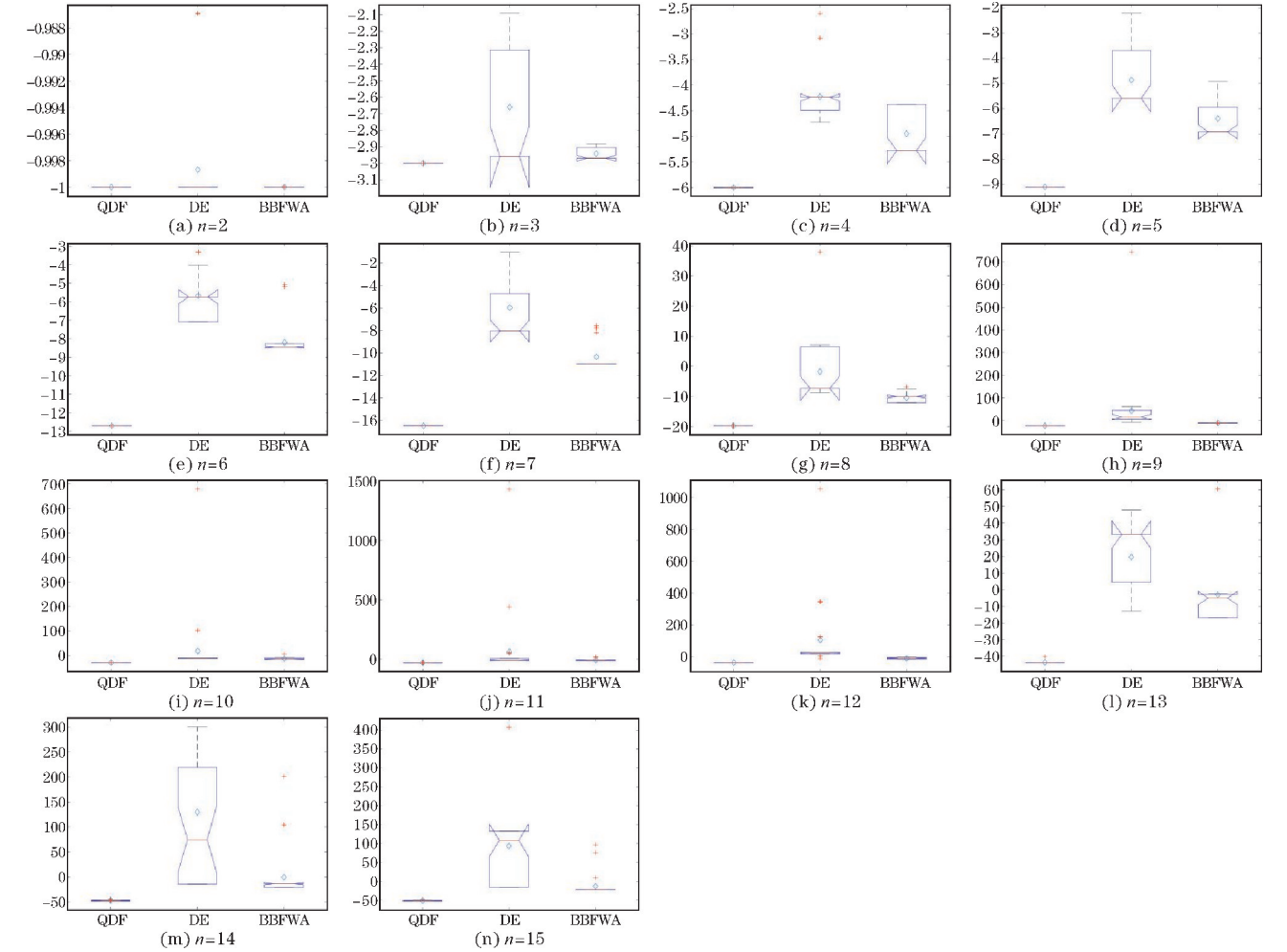


图 3 各算法在 Lennard-Jones 势函数上重复 30 次实验箱体图



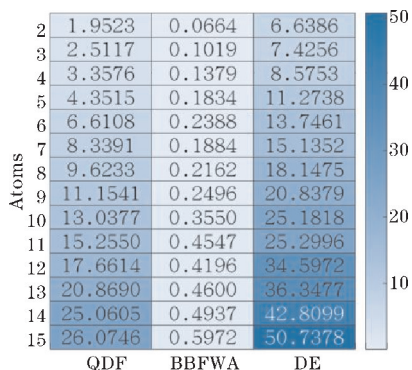


图 4 各算法在 Lennard-Jones 势函数上的时间热力图

图 5(a)、(b)、(c)为原子个数分别为 3、5、9 个的 CCD 晶体库中最优团簇结构图,图 5(d)、(e)、(f)为原子个数分别为 3、5、9 个的 QDF 取得的最优团簇结构图,可以看出它们的原子形态存在一些差异。虽然在 QDF 中没有使用物理化学建模方法,但是它仍然能够在最低能量附近找到近似的最优解。由于 CCD 晶体库中的团簇结构是通过实验得到的,而 QDF 是通过计算得到的,因此,在最优结构上存在一些原子排列的差距。尽管存在这些差异,QDF 仍然展现了在 Lennard-Jones 势函数寻找最优团簇结构的能力。

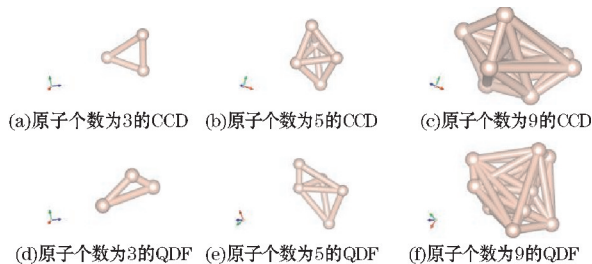


图 5 CCD 和 QDF 最优团簇结构结构对比图

4 结束语

采用量子动力学框架 QDF,对 Lennard-Jones 团簇优化问题进行研究。QDF 基于量子动力学框架,利用正态采样、均值替换和尺度下降等操作寻找全局最优解,在 Lennard-Jones 团簇优化中得到的最低能量精度表现取得了不错的效果。将 QDF、BBFWA 和 DE 算法的基础版本进行比较,从算法效率上看,QDF 相对于 DE 算法速度较快且最低能量精度较高;相对于 BBFWA 算法速度较慢,但是精度更高。

在 Lennard-Jones 团簇优化中,由于目前的 QDF 版本只是简单排列的编码求解,并没有使用物理化学建模,因此 QDF 的实际应用还受到一定的限制。可以看出 QDF 优点是可以处理高维度和非线性问题,同时在解决 NP 难问题方面具有巨大的潜力,接下来如何

进一步的提高算法效率还是一个值得仔细研究的问题。此外,QDF 基础版本的应用为未来改进框架优化提供基本依据,这意味着可以在当前版本的基础上进一步改进和优化 QDF,以实现更广泛的应用。

参考文献:

[1] 王鹏,陈雅琴,辛翌,等. 优化算法的量子动力学探讨[J]. 西南民族大学学报,2021,47(3):288-269.

[2] 黄文奇,许如初. 近世计算理论导引—NP 难问题的背景、前景及其求解算法研究[M]. 北京: 科学出版社,2006:18-70.

[3] 蔡文生,林翼,绍学广. 团簇研究中的原子间势函数[J]. 化学进展,2005(4):588-596.

[4] 赖向京,许如初,黄文奇. Lennard-Jones 团簇最低能量构型的预测[J]. 中国科学·化学,2011,41(7):1137-1144.

[5] Locatelli M,Schoen F. Efficient algorithms for large scale global optimization: Lennard-Jones clusters[J]. Computational Optimization and Applications, 2003,26:173-190.

[6] 倪海文. 团簇基态结构预测的高效启发式算法[D]. 武汉:华中科技大学,2011.

[7] 喻恺亮. 兰纳—琼斯团簇结构的模糊全局优化研究[D]. 杭州:浙江大学,2019.

[8] 赖向京. 原子团簇结构预测的现实途径—高性能启发式算法[D]. 武汉:华中科技大学,2012.

[9] Wales D J,Scheraga H A. Global optimization of clusters, crystals, and biomolecules[J]. Science, 1999,285(5432):1368-1372.

[10] Daven D M,Tit N,Morris J R,et al. Structural optimization of Lennard-Jones clusters by a genetic algorithm[J]. Chemical Physics Letters, 1996,256(1-2):195-200.

[11] Song S,Gao S,Chen X,et al. AIMOE:Archive information assisted multi-objective evolutionary strategy for ab initio protein structure prediction[J]. Knowledge-Based Systems,2018,146:58-72.

[12] Cheng L,Cai W,Shao X. A connectivity table for cluster similarity checking in the evolutionary optimization method[J]. Chemical Physics Letters, 2004,389(4-6):309-314.

[13] Zhou J,Li W,Zhu J. Particle swarm optimization computer simulation of Ni clusters[J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China,

2008,18(2):410–415.

[ 14 ] Mai G,Hong Y,Fu S,et al. Optimization of Lennard-Jones clusters by particle swarm optimization with quasi-physical strategy[J]. Swarm and Evolutionary Computation,2020,57:100710.

[ 15 ] Shao X,Cheng L,Cai W. A dynamic lattice searching method for fast optimization of Lennard-Jones clusters[J]. Journal of Computational Chemistry, 2004,25(14):1693–1698.

[ 16 ] 吴夏,程文. 动态格点搜索的改进算法用于团簇结构快速优化[J]. 计算机与应用化学, 2014,31(8):917–920.

[ 17 ] Qin A K,Huang V L,Suganthan P N. Differential evolution algorithm with strategy adaptation for global numerical optimization[J]. IEEE Transactions on Evolutionary Computation,2008,13(2):398–417.

[ 18 ] Ahmad M F,Isa N A M,Lim W H,et al. Differential evolution: A recent review based on state-of-the-art works[J]. Alexandria Engineering Journal,2022,61(5):3831–3872.

[ 19 ] 王鹏,王方. 量子视角下的智能优化算法综述[J]. 电子科技大学学报,2022,51(1):2–15.

[ 20 ] Li J,Tan Y. The bare bones fireworks algorithm: A minimalist global optimizer[J]. Applied Soft Computing,2018,62:454–462.

Application of Quantum Dynamics Framework to Lennard-Jones

Cluster Structure Optimization

WANG Xu, WANG Peng, LYU Lintao

( College of Computer Science and Engineering, Southwest Minzu University, Chengdu 610041, China )

**Abstract:** Lennard-Jones cluster structure optimization is a common optimization problem in the fields of physical chemistry and materials science. With the complex interactions between atoms, it serves as a benchmark for evaluating algorithm performance. Quantum Dynamics Framework (QDF) is highly competitive in complex problems. Without introducing any prior knowledge, QDF was used to solve the Lennard-Jones cluster structure optimization problem, exploring the performance of QDF in cluster problems with highly complex solution spaces. The QDF was compared with the differential evolution algorithm and the bare bones fireworks algorithm in terms of lowest energy, energy distribution, and time accuracy. The experimental results show that QDF achieves the lowest energy in the acceptable time than the other two algorithms in the Lennard-Jones cluster optimization problem. The research results indicate that QDF is a potential framework for the Lennard-Jones cluster structure optimization problem.

**Keywords:** quantum dynamics; quantum dynamics framework; Lennard-Jones cluster; global optimization; optimization algorithm