

FMO-UHF 法の実装とその応用計算

(アドバンスソフト株式会社)○日野 理, 谷森 奏一郎, 小川 哲司, 小林 将人, 長谷川 浩司

【序】

巨大分子を対象とした量子化学的手法の開発は、現在の分子科学における最もホットな研究テーマのひとつとなっており、多くのグループによって精力的に研究が行われている。FMO(Fragment Molecular Orbital)法[1]も、そうした手法の一つである。FMO 法は、巨大分子をいくつかの部分分子(フラグメント)に分割し、各フラグメントに対して行った量子化学計算の結果を最後に統合することによって、全分子の情報を生成するものである。この手続きによって、FMO 法は効率的な巨大分子の量子化学計算を実現している。特筆すべきは、FMO 法が GAMESS[2]、NWchem[3]、および ABINIT-MP[4]などの一般に公開された量子化学計算プログラムに実装されているということである。これによって、タンパク質やDNAなどの生体分子に関する量子化学的研究[5]が数多く報告されるようになって来た。

しかし、これまでの FMO 法は、いずれも閉殻構造を仮定した実装が主体であり、開殻構造計算を行うことに難点があった。金属元素を含むタンパク質の計算や、電荷を持ったリガンドとタンパク質の相互作用解析を行うためには、開殻構造にも対処できる方法の実装が必要である。そこで、本研究では、もっとも簡便に上記の要請を充たすことができるUHF(Unrestricted Hartree-Fock)法をFMO法に実装し(FMO-UHF)、簡易なテスト計算による計算精度の検証を行う。

【方法および実装】

閉殻構造を想定した FMO 法のフラグメント分割は、基本的に、フラグメントに偶数個の電子数 n を配分することによって行われる。これに対し、FMO-UHF では奇数個の電子数を配分することを許容し、また α 電子数と β 電子数の差 Δn を指定することを要求する。二つ目の作業は、フラグメントにおけるスピン角運動量の z 成分を決定することと等価である。モノマーSCC(Self-Consistent Charge)計算では、与えられた n と Δn を用いて各フラグメントで UHF 計算 ($\Delta n = 0$ の場合は RHF(Restricted Hartree-Fock)計算)を行い電子密度を決定する。その後のダイマー計算では、それを構成する二つのフラグメントにおける n と Δn の和によって、UHF または RHF 計算を行って、エネルギーおよび電子密度を決定する。この定式化は、全てのフラグメントで任意に開殻構造を作ることができるという柔軟性を与える。我々の FMO-UHF は、ダイマーレベルまでの FMO2-UHF であり、ABINIT-MP に実装された。

【予備的な結果】

テスト計算では、グリシン 15 量体の α ヘリックス(図1)に関する 3 重項状態の FMO-UHF および通常の UHF 計算を行った。FMO-UHF 計算では、図1の緑色の部分のフラグメントが 3 重項をとるとし

て計算を行った。基底関数は、6-31G*を用いた。FMO-UHF による全エネルギーおよび $\langle S^2 \rangle$ は、-3177.8238hartree と 2.0425549 であった。これに対して、通常の UHF 計算では、-3177.8259hartree と 2.0427554 を与えた。いずれも、計算誤差はミリ atomic unit のレベル以下であり、FMO-UHF が、このテスト計算においては実用に耐えるものであることが分かった。講演では、方法および実装について詳しく述べ、また FMO-UHF と通常の UHF 計算によって得られる計算結果とのより詳細な比較を行う予定である。

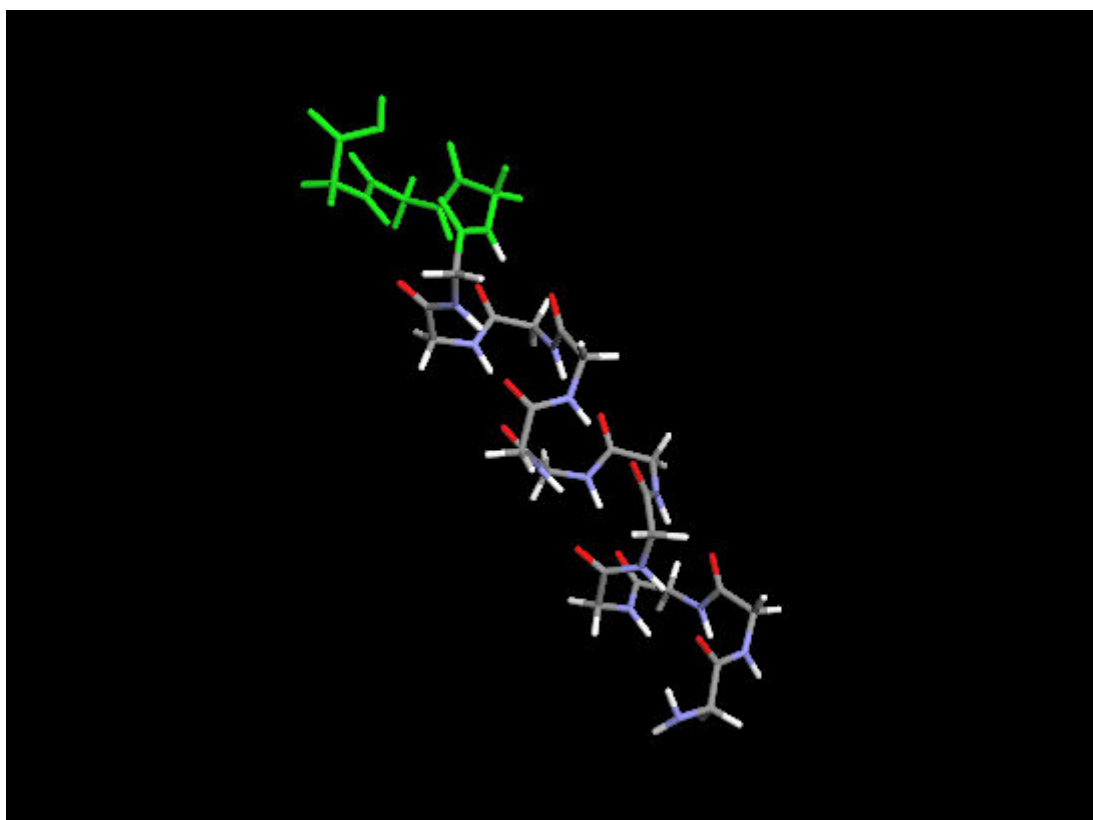


図1. グリシン 15 量体の α ヘリックス。緑色で示した部分が、3 重項を取ると仮定して FMO-UHF 計算を行った。

【参考文献】

- [1] K. Kitaura, E. Ieko, T. Asada, T. Nakano, and M. Uebayashi, Chem. Phys. Lett. **313** (1999) 701.
- [2] M.W.Schmidt, et.al., J. Comput. Chem. 14 (1993) 1347.
- [3] E. J. Bylaska, et.al., "NWChem, A Computational Chemistry Package for Parallel Computers, Version 5.0" (2006), Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington 99352-0999, USA.
- [4] T. Nakano, T. Kaminuma, T. Sato, K. Fukuzawa, Y. Akiyama, M. Uebayasi, and K. Kitaura, Chem. Phys. Lett. **351** (2002) 475.
- [5] K. Fukuzawa, K. Kitaura, K. Nakata, T. Kaminuma, T. Nakano, Pure Appl. Chem. **75** (2003) 2405.