

## 3P091

### FMO 法による大規模 DFT 計算の収束性に関する研究

(北九大<sup>1</sup>、院環境工学研究科<sup>2</sup>) ○相卓志<sup>1,2</sup>、野上敦嗣<sup>1</sup>

A study on the convergence of the large-scale DFT calculations by FMO method

(Kitakyusyu Univ.<sup>1</sup>, Graduate School of Environmental Engineering<sup>2</sup>) ○Ai Takashi<sup>1,2</sup>, Nogami Atushi<sup>1</sup>

#### 【目的】

タンパク質や DNA などの生体系大規模分子の電子状態計算は莫大な計算機リソースを要するため、従来は半経験的手法が中心であったが、フラグメント分子軌道(FMO)法など大規模分子を小さな部品分子に分割する計算法が開発されてからは、第一原理計算も可能になり生体分野の研究へ適用も進んでいる。FMO 法は第一原理計算汎用ソフトである GAMESS にも組み込まれ、HF 法、DFT 法および MP2 法の並列計算も利用可能になっている。DFT 法は分子の安定構造を高精度に求めることが可能であり Gaussian では構造最適化の標準的手法と用いられているが、GAMESS では DFT 法の SCF 計算の収束性が劣り、分子が大きくなると収束が困難となる。本研究では原子数 200~2000 超までの大規模分子を用いて、GAMESS-FMO における DFT 計算の収束性を調べた。一般に原子数が 100 以上になるとデフォルト収束条件で全てダイマー計算を収束させるのが困難になるが、DIIS、SOSCF など SCF 法の切り替え条件や HF 計算から DFT 計算への移行条件など計算制御条件を調整し収束状況を調べた。DFT 法の結果と HF、MP2 を比較する。また、構造最適化計算の収束性についても報告する。

#### 【計算法】

GAMESS はアイオワ州立大学配布のソースプログラムを使用し、FMO 計算データ作成には Facio を用いた。分子データは Facio 配布サイトの FMO tutorials で用意されている中から原子数 200~2200 の 4 種類の分子を用意した。FMO 計算は 1 残基分割(R1)、2 残基分割(R2)で行い、分割なしの場合と比較した。分割は Facio の自動分割機能を使った。表 1 に計算に用いた分子の概要を示す。FMO/R1 はすべての分子で DFT と HF の比較を行い、小さな分子(1a1p、1adx)については MP2 を加えて、R2 までの比較と、構造最適化計算も試みた。基底関数は 6-31G(d)とした。計算機は、Xeon E5-2687W (3.10GHz)の計 16 コアの CPU で、メモリは 128GB である。

表 1. FMO 計算に用いた分子

ファイル名	化合物名	原子数	電子数	基底関数	R1	R2
1a1p	C <sub>66</sub> H <sub>100</sub> O <sub>17</sub> N <sub>23</sub> S <sub>2</sub>	208	824	1828	11	6
1adx	C <sub>179</sub> H <sub>252</sub> O <sub>69</sub> N <sub>45</sub> S <sub>7</sub>	552	2314	5032	36	17
1aph	C <sub>258</sub> H <sub>387</sub> O <sub>80</sub> N <sub>65</sub> S <sub>6</sub> + 48H <sub>2</sub> O	940	3624	7853	98	76
1fkb	C <sub>578</sub> H <sub>915</sub> O <sub>172</sub> N <sub>147</sub> S <sub>4</sub> + 129H <sub>2</sub> O	2203	8138	17812	238	186

### 【計算結果】

DFT 計算を収束させるために調整した計算パラメータは ETHRSH(DIIS 開始条件)、SWDIIS(HF から DFT への移行条件)、SWOFF(DIIS から SOSCF への切り替え条件)である。これらは規定値のままだとモノマー計算でも収束しない場合があった。なお、ETHRSH はマニュアル記載の推奨値 2.0 で固定し、SCF 回数の上限値は 500 まで拡大した。最終的に全ての分子のダイマー計算で収束させることに成功した設定値を表 2 に示す。FMO/HF 計算では分子が小さいため、SWDIIS と SWOFF は既定値でも収束したが、フラグメント分割なしの計算では収束できずに表 2 の設定が必要となった。

表 2. GAMESS-FMO 計算の収束条件

		SWDIIS	SWOFF	MAXIT
FMO/DFT	1a1p/R1	5.00E-03	※5.00E-03	150
	/R2	5.00E-05	5.00E-07	300
	1adx/R1	5.00E-04	5.00E-08	350
	/R2	5.00E-03	1.00E-07	350
	1aph/R1	5.00E-03	5.00E-08	400
	1fkb/R1	1.00E-07	5.00E-07	500
noFMO/DFT	1a1p	5.00E-04	1.00E-06	150
	1adx	5.00E-04	1.00E-06	450
noFMO/HF	1a1p	5.00E-04	1.00E-06	150
	1adx	5.00E-04	5.00E-08	400

※SWOFF を設定しない場合この値がデフォルト値になる

表 3 に計算結果のまとめを示す。DFT 計算は HF 計算に比べてダイマー計算の負担が大きく、収束した場合でも SCF 回数が非常に大きい。FMO 法の計算時間は、フラグメント分子が小さい 1 残基分割の方が 2 残基分割の方より 2 倍前後高速であった。一方、計算精度は 2 残基分割の方が高いはずであるが、全エネルギーを分割なしの計算結果と比較すると大きな差はなかった。構造最適化計算は、数回の繰返しは可能であるが、分子の構造変化とともに収束困難なダイマーが変化し、その度に計算パラメータを変化させることが必要となった。

表 3. DFT 及び HF 計算結果の比較

		HF			DFT		
		noFMO	FMO/R1	FMO/R2	noFMO	FMO/R1	FMO/R2
1a1p	FMO/SCF回数	17	18	18	109	25	25
	dimer最大SCF	-	20	21	-	18	264
	全エネルギー	-5877.0059	-5876.9530	-5876.9757	-5906.0837	-5905.9671	-5905.9811
	CPU計算時間	10212	2257	3698	14667	4003	9816
1adx	FMO/SCF回数	174	30	21	393	38	29
	dimer最大SCF	-	19	21	-	195	332
	全エネルギー	-17321.0344	-17321.5316	-17321.5695	-17404.2718	-17403.8802	-17403.8262
	CPU計算時間	284994	11400	22269	677429	22154	52484
1aph	FMO/SCF回数	-	23	-	-	31	-
	dimer最大SCF	-	20	-	-	225	-
	全エネルギー	-	-26324.2703	-	-	-26524.8992	-
	CPU計算時間	-	17560	-	-	34022	-
1fkb	FMO/SCF回数	-	26	-	-	34	-
	dimer最大SCF	-	32	-	-	253	-
	全エネルギー	-	-54693.6393	-	-	-54981.3014	-
	CPU計算時間	-	83214	-	-	163705	-