

FMO-MO 法を用いた大規模分子軌道計算

稲富雄一^{1,2}、梅田宏明^{1,2}、渡邊寿雄^{1,2}、櫻井鉄也^{2,3}、長嶋雲兵^{1,2}

1; 産総研計算科学 2; 科技振 CREST 3; 筑波大システム情報

【はじめに】 タンパクなどの巨大分子に対する分子軌道 (MO) 計算を高速に行うために、我々はフラグメント分子軌道 (FMO) 法に基づいた MO の定義を提案し (FMO-MO 法) 得られる MO エネルギーや MO 形状の精度が、従来の MO 法と遜色ないことを示してきた。FMO-MO は、(1) 分子全体の密度行列を求めるための FMO 計算、(2) 分子全体の Fock 行列 (重なり行列) 計算、および、(3) MO エネルギー (固有値) MO 係数 (固有ベクトル) を求めるための一般化固有値問題求解 (対角化) という 3 つの段階で計算が行われる。このうち、(1) (2) は並列処理に適しているため、並列化による高速計算が効率よく行える。また、(3) の対角化については、MO 法で広く用いられている、いわゆる直接法は、並列処理による高速化が難しいが、櫻井らが提案した櫻井-杉浦法 (以降、櫻井法) は並列化が容易であり、決められた範囲に存在する固有値と対応する固有ベクトルを求められる、といった特徴を持つ、FMO-MO 法向きの計算手法である。この櫻井法を実際に FMO-MO 計算に適用する場合には、固有値の存在範囲を推定する必要がある。そこで今回、FMO-MO 計算の最初に行う FMO 法で得られたフラグメント (モノマー) およびフラグメントペア (ダイマー) の固有値が、FMO-MO 法の固有値の存在範囲推定に使えるかどうかを検証した。

【結果と考察】 Figure に Lysozyme (基底関数 STO-3G、129 アミノ酸残基、1,961 原子、6,005 軌道) に対する FMO-MO 法で得られた固有値、および、FMO 法のモノマー、ダイマー計算で得られた固有値の分布を示す。これを見ると、HOMO、LUMO に対応する固有値の存在位置が、モノマーやダイマーの結果で、ある程度まで近似されていることが分かる。また、この分子は +6 の電荷を持つため、固有値の位置が負の方向に若干シフトしているが、モノマーとダイマーの固有値も、このような状況を適切に反映して、負の方向にシフトしていることがわかる。さらに、HOMO-LUMO 間のギャップが、モノマー、ダイマーの固有値分布にも存在している。したがって、FMO 法で得られるモノマー、ダイマーの固有値分布を調べることで、FMO-MO 法での (分子全体の) 固有値の存在範囲を推定することが可能であることが分かった。

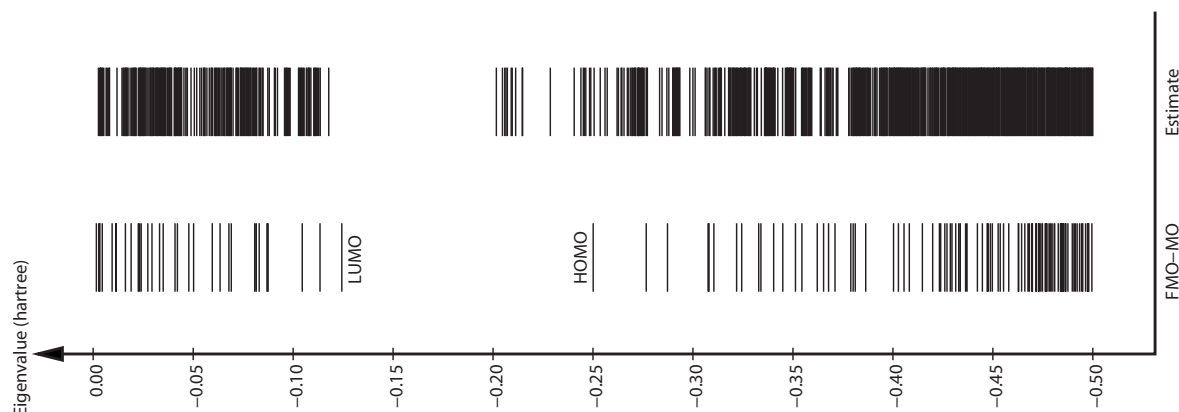


Figure: Eigenvalue distribution of Lysozyme in FMO-MO and FMO methods.
(Basis set: STO-3G, bottom: in FMO-MO method, top: estimated values by FMO method)