

結合分極を考慮した NQEq パラメータの新規決定手法

○中山尚史、後藤仁志

豊橋技術科学大学 (〒441-8580 愛知県豊橋市天伯町雲雀ヶ丘1-1)

【序論】分子シミュレーションにおいて、用いる力場に含まれる静電相互作用の精度が、シミュレーション計算の信頼性に対して大きな影響を与えることが知られている。我々は以前から、有機分子の双極子能率を再現するようにパラメータを分割・最適化しかつ計算を高速化した新規電荷平衡法（以下NQEq）[1,2]の開発を行っており、またこのNQEqをMerck Molecular Force Field [3]（以下MMFF）の静電相互作用部分に導入したMMFF/NQEqの構築[2,4]も進行中である。

しかしながら従来のNQEq法では、特に電気陰性度の高い原子が同じ原子に複数結合した際に、計算値と実験値が大きく異なる場合がたびたび生じていた。これは、同じ原子タイプであっても結合している原子の種類が異なることで、最適なパラメータが異なるためと考えられる。一方MMFFでは、各原子への電荷の割り当てをその原子を含む結合に対する分極パラメータの足し合わせにより決定する結合電荷増分（bond-charge increment, BCI）法を採用している[3]。これは各結合の分極を考慮した手法であり、かつ同じ原子タイプでも結合する原子のタイプが異なることで電荷の値が変わるため、分子内の電荷分布をより良く再現することに成功している。

そこで本研究では、BCI法に基づいた手順でNQEq法のパラメータを決定する計算手法を構築し、かつ各原子タイプと結合タイプに対して最適なパラメータを決定した。またそれらを用いて電荷分布および双極子能率を計算し、*ab initio*分子軌道計算の値と比較した。

【パラメータ決定手法】図1にエタノールを例としたパラメータ決定の手順を示す。まず各原子タイプ（ χ_C 、 χ_O 、 χ_H ）および結合（ χ_{CO} 、 χ_{OH} ）にパラメータを割り振り、次にそれらを元にして計算に用いる各原子のパラメータを決定する。パラメータは、220種の分子構造についてMP2/6-31G**計算によって求めた双極子能率の各方向成分を再現するように最適化した。

【結果】456種の分子構造について、NQEq法で求めた双極子能率の各方向成分（868）と、MP2/6-31G**計算で求めたものとの比較を図2に示す。RMSD値は0.22と極めて良好であり、したがって本手法は精度の高い静電相互作用計算を実現していると考えられる。今後はこの新規手法を導入したNQEq法を用いて、高精度かつ汎用性の高い力場の構築を行う予定である。

【参考文献】

- [1] A. K. Rappé, W. A. Goddard III, *J. Phys. Chem.*, 1991, **95**, 3358.
 [2] 中山、長嶋、後藤、*機能材料*, 2005, 25 (11), 13.
 [3] T. A. Halgren, *J. Comput. Chem.*, 1996, **17**, 490; 520; 553; 587; 615; T. A. Halgren, *J. Comput. Chem.*, 1999, **20**, 720; 730.
 [4] Nakayama, N.; Obata, S.; Goto, H. In *Proceedings of 230th ACS National Meetings*, Washington, DC, 2005.

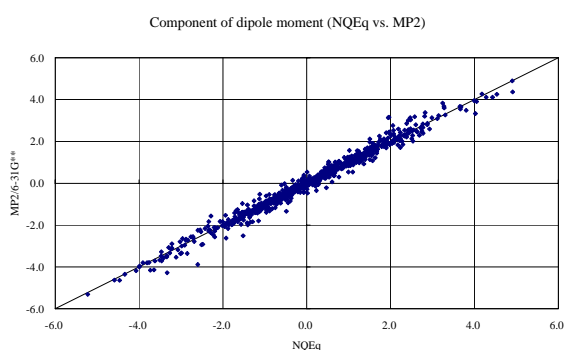
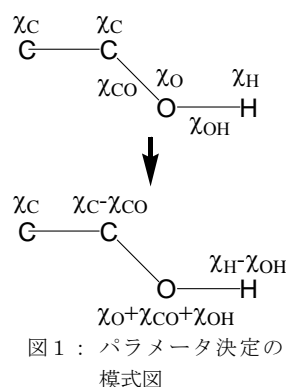


図2: 双極子能率の各方向成分の計算値