

CONFLEX/MMFF94 の水素結合ポテンシャル関数の改良

○高田康仁¹, 小畑繁昭¹, 中山尚史^{1,2}, 大田一男², 後藤仁志^{1,2}¹豊橋技術科学大学大学院工学研究科 (〒441-8580 豊橋市天伯町雲雀ヶ丘 1-1)²コンプレックス棟 (〒141-0021 品川区上大崎 2-16-19 アイオス目黒駅前ビル 6F)

【はじめに】

有機化合物で構成される分子性結晶は、van der Waals (vdW) 相互作用と静電相互作用を主な凝集力として結晶構造を形成しているが、特に、結晶中における分子の配置や配向の決定には、水素結合相互作用の強い指向性が関わっている。このため、有機結晶の多形構造を定量的に解析しようとする場合、vdW 相互作用や電荷-電荷相互作用に適用される等方的なポテンシャル関数で評価するだけでなく、水素結合や多極子相互作用に対応する特別な関数項を導入することによって、結晶場をより異方性を強めた分子ポテンシャルとして記述した方が、よい結果を得られる傾向にある[1,2].

一方、我々が開発している CONFLEX では、孤立真空中や気相中の分子構造、エネルギー、および振動数を、他の分子力場より高い精度で再現でき、かつ比較的単純な相互作用関数形で分子ポテンシャルを記述しているため大規模高速計算に適していることから、MMFF94 を標準分子力場として採用している。ところが、MMFF94 の水素結合相互作用項には、vdW 相互作用と同じ関数形が適用されているため、多数の水素結合がある分子や結晶に対しては、あまり良い結果が得られないことがある。

そこで本研究では、CONFLEX/MMFF94 における水素結合ポテンシャル関数と関連パラメータの改良を行うことにした。

【方法】

まず、酢酸を基本としたカルボン酸系を標的に改善を試みることにした。酢酸の単量体として二つの配座異性体、カルボン酸系の結晶中で観測される基本モチーフとして、酢酸の Dimer, Catemer, Chain の三種類の多量体モデル構造を考える (Fig. 1)。これらの基準構造と基準エネルギーを得るため、MP2/6-31+G(d,p)による構造最適化を行い、MP4(SDQ)/6-311+G(2d,p)でエネルギーを評価した。

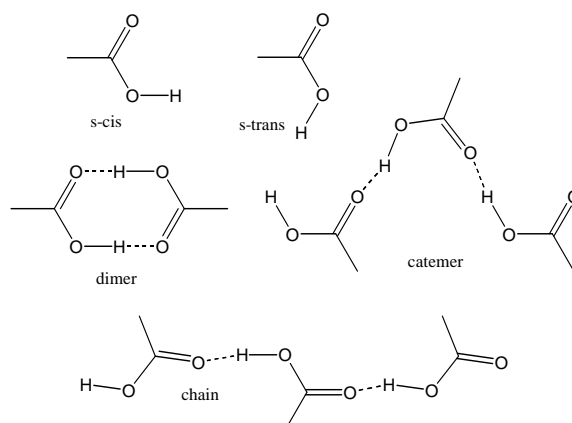


Fig. 1 Conformers and characteristic motifs of carboxylic acids observed in crystals

MMFF94 に対しては、従来の vdW 相互作用関数の引力項に、水酸基 O-H 結合長の伸縮率と cosin 関数を乗じた新しい関数形を用いて水素結合相互作用を評価することにした (Eq. 1, Fig. 2)。また、静電相互作用については、標準の Bond Charge Increment (BCI) 法と、独自に開発している NQEq 法で決定された原子電荷を用いた場合など複数の評価法を試みた。

$$E_{\text{HB}ij} = \epsilon_{ij} \left(\frac{1.07R_{ij}^*}{R_{ij} + 0.07R_{ij}^*} \right)^7 \left(\frac{1.12R_{ij}^{*7}}{R_{ij}^7 + 0.12R_{ij}^{*7}} - 2 \frac{R_{X-H}}{R_{X-H}^0} \cos \beta \right) \quad (1)$$

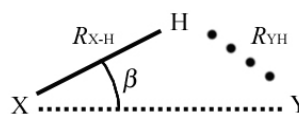


Fig. 2 Definition of internal coordinates for hydrogen bonding interaction

【結果と考察】

詳細な解析、およびパラメータ最適化後の評価について、ポスター発表において行う。

- [1] S. Obata, H. Goto, *J. Comput. Chem. J.*, in press.
 [2] W. T. M. Mooij, F. J. J. Leusen, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **3**, 5063-5066 (2001).