

金城学院大学 ○中川節子 Royal Institute of Technology Pekka Mark、Hans Ågren
naka@kinjo-u.ac.jp

過去四半世紀、溶液や生体系の分子シミュレーションでは、二体ポテンシャルが主に使用されてきたが、コンピュータの演算速度の向上に伴い、タンパクや核酸などのシミュレーションにおいても、多体効果を取り込む分極力場が検討されるようになってきた。分極力場の利用に先立って、分極率パラメータの開発が必要となるが、量子化学計算から自動的にパラメータを決定する方法(分極一電子ポテンシャル最適化法(POP 法))が既に提案されており、実際的な方法として使用できることも一因である。¹⁾ここでは、力場開発に利用できる分子内分極を考慮した方法について検討した。

POP 法は、分子表面にテスト電荷を置き、それによる分極を分子表面にてモニターし、分子の多中心分極率を最適化する方法である。量子化学計算の過程で、分子内分極は暗黙のうちに取り込まれているので、SCF 前後の電荷密度変化をうまく再現し得ると共に、力場として利用できる簡単な誘起双極子を採用することができる。このようなモデルとして、等方的に分極する原子分極モデル(a)とボンドに沿って分極する異方的なモデル(b)、更に両者を結合したモデル(ab)について検討し、abが合理的なモデルであることを示してきた。¹⁾ 一方、分子内の誘起分極を一つの過程として捉えれば、明示的に分子内分極を取り込むモデルも POP 法で扱うことができる。

分子内分極を考慮したモデルは古くから、経験的に原子分極パラメータを決定する方法として検討されており、近接した誘起双極子間のダンピングに関していくつかのモデルが Thole によって提案された。²⁾ また、点双極子の代わりに Drude 振動子を用いる場合も近年報告されており、ここでは異なるダンピングモデルが使用されている。³⁾ そこで、これらのモデルについて、POP 法で分極パラメータを決定し、核酸塩基複合体のエネルギー計算に適用し比較検討を行った。計算には、MP2/6-31+G*を参照として用いた。表に示すように、Thole Exp 1 タイプでは、モデルabと同程度の良好な結果が得られた。

表 ワトソン-クリック型シトシン-グアニンペアの相互作用エネルギー、双極子モーメント、静電ポテンシャルに関する分極モデルの比較

Model	Dumping Type	E	E_{plz}	Dipole Moment	Rmsd ESP
a		-28.6	-9.3	6.3	2.5 (16)
b		-27.5	-8.2	6.5	1.6 (10)
ab		-28.4	-9.1	6.4	1.7 (11)
Applequist		-29.1	-9.9	5.4	1.3 (9)
Thole	Exp 1	-29.6	-10.4	6.3	1.6 (11)
Thole	Exp 2	-34.3	-15.1	6.5	2.4 (15)
Drude	Exp 3 1-2, 1-3	-24.8	-5.5	5.7	2.6 (17)
$E_{es}+E_{vdw}$		-19.3		4.6	2.4 (16)
MP2/6-31+G*		-27.5		6.1	0.7 (4)
MP2/6-311++G(3df,2pd)		-30.0		5.8	

単位) 相互作用エネルギー:kcal/mol、双極子モーメント:debye、
Rmsd 静電ポテンシャル:kcal/mol. 括弧内は相対的 rmsd:%.

1. S. Nakagawa, N. Kosugi, Chem. Phys. Let., 210, 180 (1993); S. Nakagawa, J. Comput. Chem., in press (2007).
2. J. Applequist, J.R. Carl, K-K. Fung, J. Am. Chem. Soc. 94, 2952 (1972); B.T. Thole, Chem. Phys. 59, 341 (1981).
3. E. Harder, V.M. Anisiimov, I.V. Vorobyov, P.E.M. Lopes, S.Y. Noskov, A.D. MacKerell, B. Roux, J. Chem. Theo. Comp. 2, 1586 (2006).