

# 巨大分子系の量子化学計算と次世代スーパーコンピュータへの期待

北浦和夫 産業技術総合研究所・計算科学研究部門

## 1. はじめに

*ab initio* 電子状態計算は、系のサイズの 3~4 乗に比例して必要な計算機資源が増大するため、系が大きくなるにつれて急激に困難になる。そのため、巨大分子・分子系の計算を目指して、計算機資源が系のサイズに比例する程度に収まる計算法（リニアスケールリング法またはオーダー  $N$  法）の開発が進められている。これらが実用になれば、数万原子系の計算が可能になると期待されている。一方、標準的方法で約 5,000 原子からなる蛋白質の DFT 計算が行われ、現時点での世界記録となっている<sup>1</sup>。このように、大規模分子系の計算法の開発は着実に発展しているが、これらの方法で、数千から数万原子系の計算が日常的に行える時代がくるのは少し先になると思われる。一方、私たちは、巨大分子のための近似的計算法として、フラグメント分子軌道（FMO）法を開発している<sup>2</sup>。これは分子を分割して部分ごとに計算するという方法であるが、従来の類似法に比べて精度を大幅に向上させることに成功した。本方法は超並列計算に適しており、現時点でも数万原子系の計算が数日程度で計算できる。実際、池上らは光合成反応中心複合体（約 20000 原子）の RHF/6-31G\* レベルの計算に成功した。

## 2. FMO 法

FMO 法は、分子を  $N$  個のフラグメントに分割し、フラグメント（以下、モノマーと呼ぶ）とフラグメントペア（以下、ダイマー）について、ほぼ通常の *ab initio* MO 法と同じ計算を行い、これらのモノマーとダイマーの全エネルギー（それぞれ、 $E_I$  と  $E_{IJ}$  とする）を用いて、全系の全エネルギー（ $E$ ）を次式で計算する方法である。

$$E = \sum_I E_I + \sum_{I>J} (E_{IJ} - E_I - E_J)$$

双極子モーメントなどのプロパティも同様に計算できる。FMO 法のモノマーとダイマーの計算は標準の *ab initio* MO 法の分子計算とほぼ同じである。違いは、これらを他のフラグメントの作る静電ポテンシャルのもとで解くことと射影演算子による終端処理を行うことだけである。

FMO 法では、モノマーやダイマーをほぼ独立に計算できるため、効率よく並列計算を行うことができる。簡単にいえば、 $N$  個のモノマーは並列で、 $N(N-1)/2$  個のダイマーも並列で計算できる。また、個々のモノマーやダイマーは、通常の *ab initio* MO と同様の並列計算ができる。FMO 法のプログラムではこのような 2 段階の並列化を行っているため、数百から 1,000 台の計算機でも効率よく並列計算を行うことができる。FMO 計算のプログラム

は、Fedorov らにより GAMESS<sup>4</sup> に、また、中野らにより ABINIT-MP<sup>5</sup> に組み込まれてそれぞれ公開されている。

FMO 法は、高精度化・汎用化に向けて Fedorov らにより拡張され、フラグメントのトリマー計算を加えて高精度化した三体展開法 (FMO3 法)、各種電子相関理論、系を領域に分けて、それぞれに異なった波動関数/基底関数を適用できる Multilayer FMO 法 (MFMO 法) が開発されている (表)。また、古明地らにより FMO 法を用いた分子動力学法 (FMO-MD)、が開発されている<sup>3</sup>。

表 拡張 FMO 法の一覧

方法	コメントと参考文献
<b>FMO2-RHF</b>	original 2-body expansion RHF method Kitaura et al., <i>Chem. Phys. Lett.</i> , 313, 701-706 (1999)
<b>FMO3-RHF</b>	generalized FMO to include explicit 3-body contribution. Fedorov et al., <i>J. Chem. Phys.</i> , 120, 6832-6840 (2004)
<b>FMO2,3-DFT</b>	FMO-based density functional theory. Fedorov et al., <i>Chem. Phys. Lett.</i> , 389, 129-134 (2004)
<b>FMO2-MP2</b>	FMO-based 2nd order Møller-Plesset perturbation theory. Fedorov et al., <i>J. Chem. Phys.</i> , 121, 2483-2490 (2004).
<b>FMO2-MCSCF</b>	FMO-based multi-configuration SCF method. Fedorov et al., <i>J. Chem. Phys.</i> , 122, 54108-54117 (2005)
<b>FMO2,3-CC</b>	FMO-based coupled cluster theory. Fedorov et al., <i>J. Chem. Phys.</i> , 123, 134103-134112 (2005)
<b>FMO-CIS</b>	FMO-based configuration interaction singles. Mochizuki et al., <i>Chem. Phys. Lett.</i> , 406, 283-288 (2005).
<b>MFMO</b>	FMO-based ONIOM like multilayer method. Fedorov et al., <i>J. Phys Chem. A</i> , 109, 2638-2646 (2005)
<b>FMO/PCM</b>	FMO combined with polarisable continuum model (PCM). Fedorov et al., <i>J. Comp. Chem.</i> in press.

### 3 . FMO 法による大規模分子の計算例

現在までに行われた最大規模の計算として、以下のものがあげられる。

#### ( 1 ) 一点計算

- ・RHF・・・光合成反応中心蛋白質 ( 約 20,000 原子系。図 1 ) の FMO2-RHF/6-31G\* 計算。計算時間は、Opteron 600 CPU で 3 日 ( 使用プログラムは GAMESS)。池上ら、*Proc. Supercomputing 2005*。

- MP2・・・コリスレートミューターゼ(約 5,500 原子系。図 2 )の FMO2-MP2/6-31(+) $G^*$  計算。計算時間は、92 台の Pentium4 PC で 90 時間 (GAMESS)。石田ら、*J. Phys. Chem. B*, 110, 1457-1463 (2006)。
- CCSD(T)・・・(H<sub>2</sub>O)<sub>32</sub> クラスタの FMO2-CCSD(T)/cc-pVQZ (3,680 基底)の計算。8 台の Pentium4 PC で 2 週間 (GAMESS)。Fedorov ら、*J. Chem. Phys.*, 123, 134103-134112 (2005)。

( 2 ) 構造最適化計算

- バクテリオロドプシン(3,800 原子系。図 3 )の FMO2-RHF/3-21(+) $G$  レベルでの全構造パラメータの最適化計算。HITACHI 8000 256 CPU で 2 ヶ月 (GAMESS)。

( 3 ) 励起状態

- 125 アミノ酸残基からなる蛋白質の MFMO-CIS/6-31 $G$  計算。望月ら、*Chem. Phys. Lett.*, 406, 283 (2005) (ABINIT-MP)。
- 水和ホルムアルデヒド CH<sub>2</sub>O(H<sub>2</sub>O)<sub>81</sub> の近似的 FMO2-EMO-CCSD/arg-cc-pVDZ 計算。平田ら、*Mol. Phys.*, 103, 2255 (2005) (NWChem)。

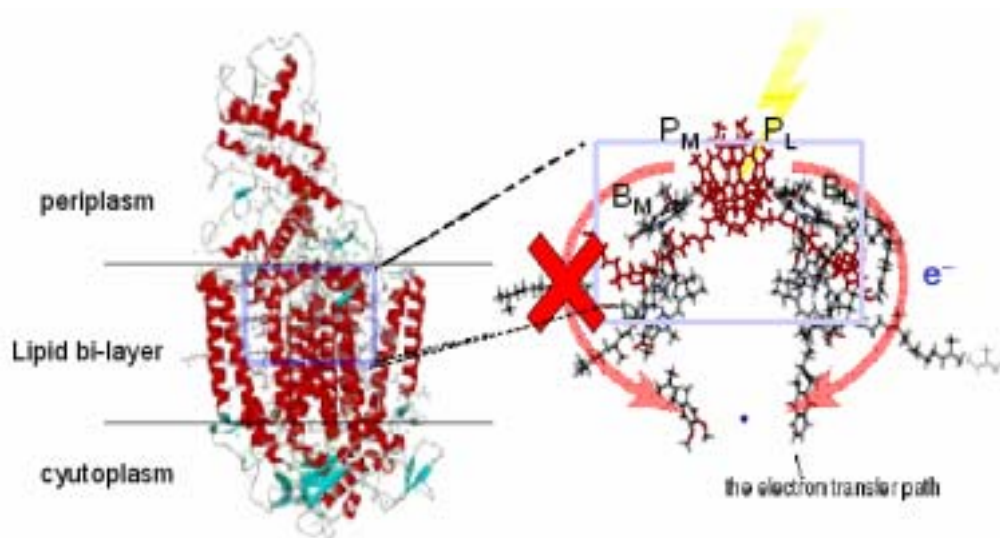


図 1 紅色細菌の光合成反応中心蛋白質複合体。

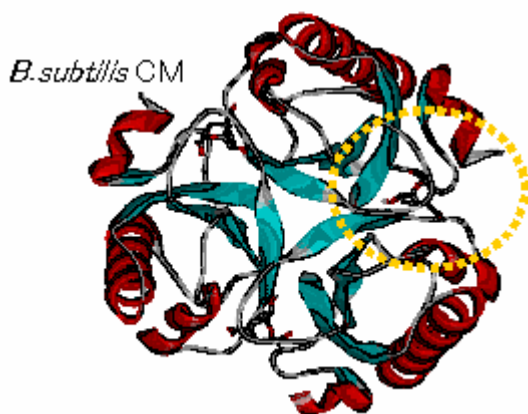
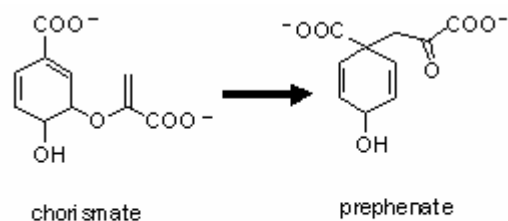


図2 コリスメートミューターゼ

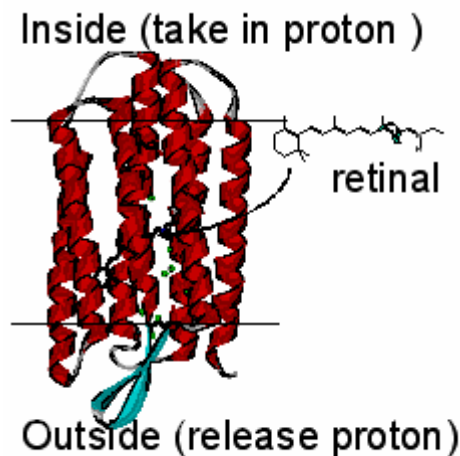


図3 バクテリオロドプシン

#### 4. 次世代スーパーコンピュータへの期待

以上に述べたように、巨大生体分子の電子状態計算法として、私たちが開発している方法は、数千原子分子の1点計算や構造計算については、ほぼ実用段階に到達している。しかし、生体高分子の構造・機能の研究に広く応用するには、モンテ・カルロ法や分子動力学法によるシミュレーションを行うことが不可欠である。このような計算は、最低でも構造最適化計算の10~100倍以上の計算時間が必要となるため、次世代ペタフロップス級のスーパーコンピュータを待たなければならない。

#### 参考文献

1. T.Inaba et al., In *WATOC 2005 conference proceedings*, C. Esterhuysen et al. Eds, 145.
2. FMO 関連情報は、<http://staff.aist.go.jp/d.g.fedorov/>を参照。
3. Y.Komeiji, T.Nakano, K.Fukuzawa, Y.Ueno, Y.Inadomi, T.Nemoto, M.Uebayasi, D.G.Fedorov, K.Kitaura, *Chem.Phys.Lett.*, **372**, 342-347 (2003).
4. <http://www.msg.ameslab.gov/GAMESS/GAMESS.html>
5. <http://www.fsis.iis.u-tokyo.ac.jp/en/result/software/>