

DFTB および REUS を用いたマロンアルデヒドのプロトン移動計算
Calculation of proton transfer in malonaldehyde using DFTB and REUS

伊東真吾¹、Stephan Irle²、岡本祐幸¹

Shingo Ito, Stephan Irle and Yuko Okamoto

¹名古屋大学大学院理学研究科物質理学専攻（物理）、²名古屋大学 WPI-ITbM・
理学部物質理学専攻（化学）

¹Department of Physics, Graduate School of Science, Nagoya University, Nagoya, Aichi 464-8602, Japan,

²WPI-Institute of Transformative Bio-Molecules and Department of Chemistry, Graduate School of Science, Nagoya University, Nagoya, Aichi 464-8602, Japan

計算機を用いて分子の構造やその構築過程を予測する方法には、ニュートン力学を用いた分子動力学法や第一原理計算に基づく量子化学計算法などが存在する。近年、この二つの手法を組み合わせた QM/MM-MD 法が開発され、計算結果の予測精度ははるかに向上した。しかしながら、この計算方法は大型の系の計算にはまだ時間がかかるという難点を抱えている。そこで我々は、この QM/MM-MD 法に、系の広い領域をサンプリングできる手法である拡張アンサンブル法の 1 つ、レプリカ交換傘サンプリング法^[1] (REUS) を用いるとともに、QM 領域の計算に高速な量子化学計算法である Self-Consistent-Charge DFTB^[2]を用いた計算を開始した。

まず手始めとして本手法を用いて、実験データ^[3]および他の計算手法^[4,5]によるデータが出ているマロンアルデヒドの計算を行うとともに、マロンアルデヒドの酸素間におけるプロトン移動に関する自由エネルギー計算が精度良く行えるかどうかを確認した。現時点では、未だ計算の途中であるが、プロトンの酸素間転移が確認されている。

本計算により、QM/MM-REUS-MD の計算結果が実験値と高精度で一致することが確認されたら、ATP 合成酵素における ATP 合成および、加水分解過程の計算に移りたいと考えている。

[1] Y. Sugita, A. Kitao, and Y. Okamoto, J. Chem. Phys. 113, 6042 (2000).

[2] M. Elstner, D. Porezag, G. Jungnickel, J. Elsner, M. Haugk, Th. Frauenheim, S. Suhai, and G. Seifert, Phys. Rev. B **58**, 7260 (1998); b) M. Gaus, Q. Cui, M. Elstner, J. Chem. Theory Comput. **7**, 931 (2011).

[3] S.L. Baughcum, R.W. Duerst, W.F. Rowe, Z. Smith, E. Bright Wilson, J. Am. Chem. Soc. 103(1981)

[4] Shaumo Sadhukhan, David Muñoz, Carlo Adamo, Gustavo E. Scuseria, Chemical Physics Letters 306 (1999).

[5] Yoshiharu Mori, Yuko Okamoto, PHYSICAL REVIEW E **87**, 023301 (2013)-