

平成 22 年 4 月 29 日現在

研究種目：基盤研究(B)
研究期間：2007~2010
課題番号：19350012
研究課題名(和文) DNA シーケンスと導電性の関係の理論化学的研究
研究課題名(英文) Study on theoretical chemistry to the relationship between DNA sequence and electronic conductivity.

研究代表者

青木 百合子 (AOKI YURIKO)
九州大学・大学院総合理工学研究院・教授
研究者番号：10211690

研究代表者の専門分野：理論化学
科研費の分科・細目：基礎化学・物理化学
キーワード：電子状態・生体高分子・導電性

1. 研究計画の概要

量子化学計算は小さな分子に対して成功を遂げたものの、ランダム高分子やアモルファス固体等の、非周期的な巨大系に対しては無効である。よって、不規則凝集系でも、その電子状態を超効率的にしかも精度良く計算できる計算プログラムを完成させ、生体機能をミクロな立場から機能設計できる方法を構築する。現在開発段階にある Elongation 法をさらに発展させ、電子論的な立場からミクロな視点で機能メカニズムを明らかにし、新規機能性バイオポリマーの設計を行う。そのために、まず高精度で電子状態を記述するために電子相関効果を Elongation 法導入するとともに、蛋白質のアミノ酸配列、DNA の塩基配列データと関連情報、立体構造、機能データを体系的に処理し、解析するための機能設計プログラムを構築し応用を行う。

一方で、高分子の導電性を議論するためには、有限系オリゴマーの電子状態からエネルギーバンドを抽出する方法の構築が必要である。そのための基礎方法論の構築と、高分子系への応用を行い、導電性を解析するためのツールを構築する。

2. 研究の進捗状況

本研究は、生体機能の解明を行うための応用を目指しているものの、応用を可能とするためのエンジン作りに主眼を置いた基究である。よって、まず DNA などの巨大生体高分子を意識した方法論の構築と定式化を行い、それに基づいたプログラミングのあとに応用が可能となるため、これまで基盤の構築に多くのエネルギーを投入してきた。基盤となる方法論の開発に多くの時間を要し、最終

年度に応用に取り掛かる状況にある。よって基礎的手法の構築については、一部の課題を残してほぼ完成の域に入っており、これから実際の生体系の機能解明に向けた応用を行う予定である。一方で、物質の導電性を議論するために、本方法で得られる有限系の電子状態からエネルギーバンドを抽出する手法を構築した。これにより巨大系に対しても容易にバンド構造を描き HOMO-LUMO ギャップを算出できるとともに、領域軌道基底の局所状態密度の計算により、DNA のそれぞれのシーケンス上の局所バンド構造が得られる手法を開発した。ただし個々の方法論を独立に開発している状況にあるため、現在これらのルーチンを統合している段階にある。

3. 現在までの達成度

①基礎方法論の開発については当初の計画以上に発展しているが、実際の応用計算については少々遅れている。

(理由) 本方法を、限られた系だけでなく、あらゆる生体系に対して応用を可能とするためには、まず方法論を一般化することの方が重要であることを認識したため、基盤の構築に多くのエネルギーを割いた。

本方法は、一次元系のみならず、絡み合いタンパク質などの三次元系にも適用可能となるよう根本的に手法を変え、プログラムを開発した。また、本法では軌道を局在化しながら系の電子状態を伸長させるものであるが、これまでは、系全体に広がってしまう軌道が出てくると、途端に計算精度が落ちるといった難点があった。よってこれまでは非局在系への高精度計算が困難であったが、非局在軌道を自動選択して相互作用計算に含める

ことにより、計算精度の大幅な改善が得られたという大きな進歩があった。さらに電子相関効果や励起状態計算の導入も行った。これらの開発により応用性は広がり、方法論的にもほぼ達成しているが、まだ幾つか課題が残されている。DNA のホットスポットなどに適用するためには、大規模系を効率よく構造最適化する必要があり、Elongation 法に組み込んだ領域局在化軌道基底のエネルギー勾配法のさらなる高精度化と高効率化が必要となる。現状では、他の類似方法よりは格段精度は良いものの本プロジェクトの基準としては十分とは言えないため、現在も改良を行っている。また、導電性評価の手法の構築は一次元系に対してはほぼ終了しているので、これを Elongation 法に組み込むことにより、通常の周期境界条件を用いる計算に頼らなくても容易にバンド構造を描くことができるようになった。本方法を Elongation 法によって計算した DNA の電子状態と結び付け、構造と導電性の関係の議論にも適用する予定である。

上記の DNA などの大規模生体系を目指した高精度高速計算法とエネルギーバンド抽出法の発展状況は、それぞれ当初の計画をかなり上回る成果であり、予想外の展開もあったが、その分応用に踏み切ることには遅れをとっている感があることは否めない。

4. 今後の研究の推進方策

(1) Elongation 法の三次元系への発展や、電子相関効果の導入はほぼ完成しており、一方で、有限系オリゴマーの電子状態からエネルギーバンドを抽出する方法、また Elongation 法から得られる領域局在化軌道を変換するだけで、対角化することなく全系の固有値を効率的に得る方法、非局在系に対しても精度よく演算出来る手法も構築したが、それぞれが独立に働いている状態にある。これらを統合することにより一般化することが今後の応用に向けた推進方策である。

(2) 本方法を応用に向けてより有効にするために、領域局在化軌道基底による局所的構造最適化法の精度と計算効率についてさらなる改良を行い、A-type, B-Type, λ -Type DNA, 種々のタンパク質やイオンチャンネルなどへの応用を行うとともに、機能解析を行うことが課題である。

(3) 大規模系への応用にはスーパーコンピュータを利用した並列計算が必須である。本方法を並列用にプログラミングし、研究室レベルの並列計算機で並列効率を検証するとともに、九大情報基盤研究開発センターを利用することにより、大規模並列計算に取り組む予定である。

5. 代表的な研究成果

[雑誌論文] (計 30 件)

① Y. Orimoto, F. L. Gu, A. Imamura, and Y. Aoki, Efficient and accurate calculations on the electronic structure of B-type poly(dG)-poly(dC) DNA by elongation method: First step toward the understanding of the biological properties of aperiodic DNA, *J. Chem. Phys.*, 126(21), 215104, 1-7,2007.

② Y. Aoki, F. L. Gu, Y. Orimoto, S. Suhai and A. Imamura, Elongation Method Applied to Aperiodic Systems - Random Polypeptides, High Spin Alignment, Polymer in Solvent, and DNA, *Computational Methods in Science and Engineering: Theory and Computation: Old Problems and New Challenge, Lectures Presented at the ICCMSE 2007*, 963(1), 120-137,2007.

③ A. Pomogaeva, B. Kirtman, F. L. Gu, and Y. Aoki, Band structure built from oligomer calculations, *J. Chem. Phys.*, 128(7), 074109 1-7,2008.

④ M. Makowski, J. Korchowiec, F. L. Gu, and Y. Aoki, Describing Electron Correlation Effects in the Framework of the Elongation Method-Elongation-MP2: Formalism, Implementation and Efficiency, *J. Comput. Chem.*, 31(8), 1733-1740,2009.

⑤ M. Miura and Y. Aoki, Linear-scaled excited state calculations at Linear Response Time-Dependent Hartree-Fock theory, *Mol. Phys.*, 108(2), 205-210, 2010.

[学会発表] (計 30 件)

① Y. Aoki and F. L. Gu, Generalized Elongation Method: From One-Dimension to Three-Dimension, International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering: Theory and Computation: Old Problems and New Challenge, International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering 2009.

[その他]

青木, 高精度非線形光学材料理論設計法の開発, 未来材料, 8(10), 36-45, 2008. 10.,2008.