

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 量子シミュレーション技術による未知の生体電子移動/機能発現の探索

2. 個人研究者名

鬼頭 宏任（神戸大学 大学院システム情報学研究科 特命准教授／科学技術振興機構 さきがけ研究者）

3. 事後評価結果

磁気応答、嗅覚、酵素の酸化ストレス損傷防御など、未だその微視的メカニズムが明らかになっていない生体機能では、未知の生体電子移動反応によって引き起こされる量子的現象が深く関わっていると考えられている。本研究では第一原理量子化学計算を基にしたタンパク質中の電荷移動シミュレーション技術を開発・適用することで、未知の生体電子移動反応を探索し、量子性を利用した生体機能発現機構を発見することを目指した。

[どのような量子性をどのように扱ったのか]

- ・電荷ホッピング移動を、長距離補正密度汎関数理論(DFT)法で解析
- ・非平衡性(遅い構造緩和の凍結)を考慮した電荷ホッピング移動シミュレーション
- ・タンパク質中長距離電子トンネル移動を、フラグメント分子軌道(FMO)法で解析

[達成状況とインパクト]

鬼頭研究者は、長距離補正 DFT 法の分子軌道相互作用について、電荷ホッピング移動の電荷移動積分を、低計算コストかつ高精度に評価することが可能なことの実証に成功した。具体的には、光合成反応中心や磁気応答に関与するクリプトクロム中の高速電子移動反応に対して、中間状態の非平衡性を定量的に取り込んだ電荷ホッピング移動シミュレーションに取り組んだ。特に電荷ホッピング移動の反応速度の支配因子である移動積分項を、長距離補正密度汎関数理論法のフロンティア軌道相互作用として、高精度かつ効率的に計算する方法を考案している。そして公開されている移動積分ベンチマーク分子セットで検証し、他の論文報告結果を凌いで最も良い精度が得られたなど、電子移動の理解について格段に精度が上がっていると思われる。また、モデルコアポテンシャル(MCP)法、分極連続体モデル(PCM)法、DFT法を組み合わせたFMO法を利用することで、遷移金属反応中心、溶媒環境効果、電子相関を取り込んだ電子トンネル移動経路探索と、その経路間の量子干渉効果解析が可能であることを見いだしており、当初の目的1であったシミュレーション技術の構築は目的を達成できたと評価できる。一方、新しい電子移動を見いだすことは相手となる蛋白質に依存するので見つからない場合が多いため、当初の解析対象が変更したことについては、構造情報の不足などであれば仕方ないであろう。シミュレーション技術の実行可能性および優位性を検証した上で、難しい提案課題に取り組まれることを期待したい。

本研究からどのような生命現象の量子現象にアプローチできる手法もしくは理論であるかの方向性について、鬼頭研究者は、遷移金属反応中心が関与する電子トンネル移動現象の量子干渉効果、特に金属・配位チオレートの結合距離の変化で電子ドナー軌道が大きく変化し電子移動経路とその間の干渉効果も大きく変化することを指摘している。また、最近報告された近年報告されたCRY4構造データに電荷移動シミュレーションを適用することも提唱している。今後、さきがけ研究で得られたシミュレーション技術のさまざまな応用先を開拓し、実験グループとの共同研究を展開して実際の分光データを再現し、未知の生体量子現象の発見や磁覚の現実的な理論検証に発展することを期待する。