

半経験論分子軌道法を利用した反応経路自動探索ツールの開発

(¹原子力機構; ²分子研)

太田幸宏¹, Sergi Ruiz-Barragan^{1,2}, 町田昌彦¹, 志賀基之¹

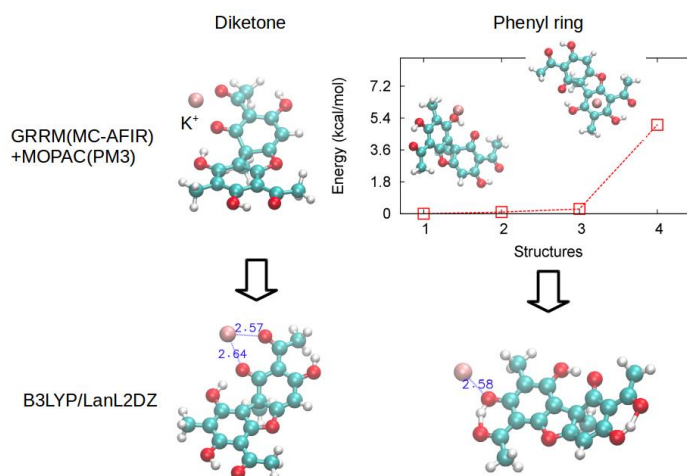
系統的な化学反応経路探索は、原理的な関心に加え、多彩な応用（例えば、触媒反応予測、材料に対する原子・分子の化学吸着特性予測）に繋がるため、その実装に向け様々な計算手法が研究されている。Global reaction route mapping (GRRM) [1,2] は、こうした課題の解決に導く自動探索手法として注目を集め、多くの事例に適用されている。本発表では、中・大規模分子系における反応経路自動探索の効率化を目指し、半経験的分子軌道法 MOPAC [3,4] に基づく GRRM の利用を可能とする計算コード開発について報告する。さらに、ウスニン酸 ($C_{18}H_{16}O_7$)、セルロース ($C_6H_{10}O_5$) 等の有機分子におけるカチオン吸着サイト探索に関して、その適用事例を報告する。

コード開発は GRRM14 [1] の利用を念頭に実施された。ポテンシャル情報を得るために GRRM14 で要求される分子のエネルギー・勾配データは、MOPAC で計算された後、開発コードを通じて GRRM14 側へ引き渡される仕組みである。

計算例として、ウスニン酸に

におけるカチオン吸着サイト探索の結果を示す (右図)。MC-AFIR 法に基づきカチオン捕縛構造を生成・探索した。結果、ケトン基または水酸基まわりにカチオンが束縛された構造が安定構造の候補となった。その後、密度汎関数法 (B3LYP/LanL2DZ) による再最適化により、こうした構造が最安定構造であることが最終的に確認された。こうして、低レベル計算の MOPAC を用いて段階的に安定構造を絞り込むことで、密度汎関数法 (あるいは、*ab initio* 法) を直接用いるよりも計算効率が良くなることが期待される。

本研究を進めるにあたり、前田理 准教授 (北大) より受けた助言に感謝します。



[1] S. Maeda *et al.*, see <http://grrm.chem.tohoku.ac.jp/GRRM> (11 Apr. 2014).

[2] S. Maeda, K. Ohno, K. Morokuma, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 15, 3683 (2013).

[3] MOPAC2012, J. J. P. Stewart, Stewart Computational Chemistry, Version 15.180L

[4] J. D. C. Maia *et al.*, *J. Chem. Theory Comput.* 8, 3072-3081 (2012).