

Gentlest Ascending Dynamics 法に基づく遷移状態探索コードの開発

(¹RIST 神戸センター; ²原子力機構)

太田幸宏¹, 志賀基之²

化学反応経路探索は計算化学における重要な課題の一つであり、触媒反応探索や材料設計など様々な応用につながる。この課題は(典型的には高次元の)ポテンシャルエネルギー平面における非線形最適化問題として定式化されるため、探索対象および問題設定に応じた適切なアルゴリズムの構築が重要である[1]。本発表では、鞍点探索アルゴリズムとして提案された **Gentlest Ascending Dynamics (GAD)** 法 [2] を分子系における遷移状態探索に適用するためのコード開発について報告する。

GAD 法の基本的なアイデアは、最小値探索アルゴリズムである最急降下法における勾配項を修正することで、(局所)安定状態から遷移状態に向けてポテンシャルを登るような **uphill step** を実現することである。勾配項はポテンシャルの各点においてヘシアン¹の最小固有値に対する固有ベクトルを利用することで修正される。こうした仮想的なダイナミクスの不動点はモース指数 1 の鞍点に対応することが証明された[2]。アルゴリズムでは、修正された最急降下法とヘシアン¹の固有ベクトルを近似的に生成する方程式とを結合させて解くことで鞍点探索が実行される。

コード開発は PIMD [3] に基づき実施された。原子に作用する力の計算には SMASH [4]が利用され、PIMD-SMASH インターフェイス [5]を通して GAD 法における勾配項が計算される。コードの妥当性検証のため、ビニルアルコール ($\text{CH}_2=\text{CHOH}$) における分子内プロトン移動、またシアン化水素 (HCN) における異性化に付随する遷移状態の探索を HF/STO-3G で実施した。発表では、収束性向上にむけた取り組みや分散並列処理による遷移状態探索の実装についても議論する予定である。

本成果の一部は理化学研究所のスーパーコンピュータ「京」を利用して得られたものです (課題番号: hp170282)。

[1] F. Jensen, *Introduction to Computational Chemistry* 3rd ed. (Wiley, 2017) Chap.13.

[2] W. E. and X. Zhou, *Nonlinearity* 24, 1831 (2011).

[3] PIMD; <http://ccse.jaea.go.jp/ja/download/pimd/>

[4] SMASH; <http://smash-qc.sourceforge.net>

[5] S. Ruiz-Barragan, K. Ishimura, and M. Shiga, *Chem. Phys. Lett.* 646, 130 (2016).