

相互作用ポテンシャルの解析から化学反応の量子化学探索へ

(北大 WPI-ICReDD) 前田 理

smaeda@eis.hokudai.ac.jp

化学反応は、ポテンシャルエネルギー曲面 (PES) を調べることによって理解、もしくは、予測することができる。PES は、系の形状を変数とするエネルギーの関数である。そのため、PES を調べることにより、系の形状変化とエネルギー変化の関係を議論することができる。また、PES を用いることで、与えられた条件 (温度や時間) の下での系の形状変化をシミュレーションすることも可能である。一方、PES は複雑な多変数関数であり、その総当たりの取り扱いの計算量は系の大きさに対して指数関数的に増加してしまう。その増加は劇的であり、スーパーコンピュータ等による改善だけでは全く不十分である。そこで、実用的なツールを開発するにあたり、物理化学的な知見を活用した探索範囲の大幅カットが不可欠である。講演者は、大野公一教授 (初代量子化学探索研究所長) の下での卒論・修論研究[1]で培った原子分子の相互作用 PES に関する物理化学的知見、すなわち、軌道間相互作用 (主に、重なるの原理とエネルギー差の原理に基づく) が PES の形状に及ぼす影響に関する知見をもとに人工力誘起反応 (AFIR) 法[2]を着想し、さらに、超高効率な速度論解析法[3]を組み合わせることで、実用的な量子化学探索法を実現した[4]。同様の考え方は、博論研究において開発した非調和下方歪み追跡 (ADDF) 法[5]にも見られる。本講演では、これらについて解説する。

- [1] S. Maeda, M. Yamazaki, N. Kishimoto, K. Ohno, An Overlap Expansion Method for Improving *Ab Initio* Model Potentials: Anisotropic Intermolecular Potentials of N₂, CO, and C₂H₂ with He*(2³S)., *J. Chem. Phys.*, **2004**, *120*, 781-790.
- [2] S. Maeda, K. Morokuma, A Systematic Method for Locating Transition Structures of A + B → X Type Reactions., *J. Chem. Phys.*, **2010**, *132*, 241102 (4 pages).; S. Maeda, K. Morokuma, Finding Reaction Pathways of Type A + B → X: Toward Systematic Prediction of Reaction Mechanisms., *J. Chem. Theory Comput.*, **2011**, *7*, 2335-2345.
- [3] Y. Sumiya, Y. Nagahata, T. Komatsuzaki, T. Taketsugu, S. Maeda, Kinetic Analysis for the Multistep Profiles of Organic Reactions: Significance of the Conformational Entropy on the Rate Constants of the Claisen Rearrangement., *J. Phys. Chem. A*, **2015**, *119*, 11641-11649.
- [4] S. Maeda, Y. Harabuchi, H. Hayashi, T. Mita, Toward *Ab Initio* Reaction Discovery Using the Artificial Force Induced Reaction Method., *Annu. Rev. Phys. Chem.*, **2023**, *74*, 287-311.
- [5] K. Ohno, S. Maeda, A Scaled Hypersphere Search Method for the Topography of Reaction Pathways on the Potential Energy Surface., *Chem. Phys. Lett.*, **2004**, *384*, 277-282.