

# GRRMにおけるLADDf法の限定探索オプションLADDの効率

(和歌山大学<sup>1</sup> 豊田理化学研究所<sup>2</sup>) 高田谷吉智<sup>1</sup>, 山門英雄<sup>1</sup>, 大野公一<sup>2</sup>

**[序]**超球面探索法[1]により、4原子以上では不可能とされてきた化学反応経路の全面自動探索は可能になったが、原子数が増えると探索時間が非常に長くなる。非調和下方歪み(ADD)の大きい経路を優先して探索する Large ADD following(LADDf)法を用いると探索効率は上がるが限定的な探索になる。そこでLADDf法のオプションを変化させ探索の効率を調べた。

**[方法]**探索はGRRM11[2]を用いた。LADDはADDの大きい経路を何番目まで辿るかの指定であり、ADDは振動数の平方根でスケールした基準座標で記述した調和ポテンシャルと実際のポテンシャルの差である。NRUNは、乱数を用いて原子を一定の範囲内にばらまき、自動発生させる数の指定である。全面探索が既知のBCNOS分子[3]についてLADDとNRUNを変化させ、EQ1個あたりに要する探索時間、エネルギー分布を調べた。

**[結果・考察]**図1にNRUN=1,5,20,50でLADDを変化させたときのEQ1個あたりの探索時間を示した。LADDの値を小さくするとEQの探索される数は減るが、一個あたりの探索時間は短くなり、またNRUNを増やすと時間は減っていく傾向が見られる。図2はNRUN=5、LADD=1~4と変化したときのエネルギー分布図であり、LADD=1以降は増加分をプロットした。エネルギーは、最安定構造を0kJ/molとした相対エネルギーで表示した。LADD=1で最安定構造(SCNBO)を探索できておらず、LADD=2で初めて探索されている。図3はLADD=1、NRUN=1,2,5,10,20,30,50の場合であり、図の構成は図2と同様である。NRUN=30では300kJ/mol以下の安定構造の全てが探索された。

**[結論]**LADDが低い値でも、比較的安定な構造は概ね見つけられ探索時間も短い。今回のように最安定構造を見落としてしまう可能性がある。そのため、効率よく探索を行うためには、NRUN=5のときはLADDを3以上で、LADD=1で行うときはNRUN=30以上にするのが良いと考えられる。

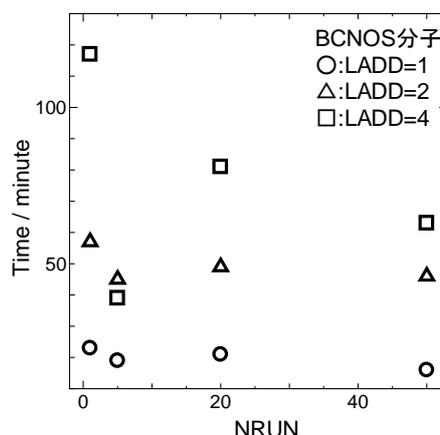


図1.EQ1個あたりの探索時間(分)

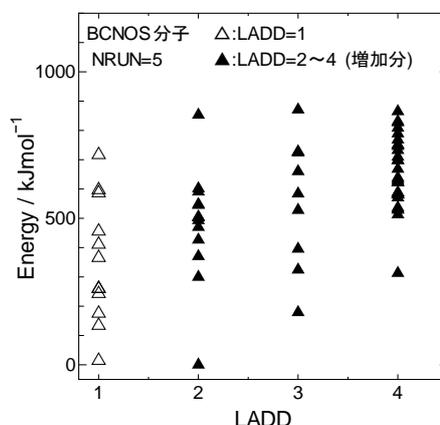


図2.NRUN=5について、各LADDを変化させたときのエネルギー分布

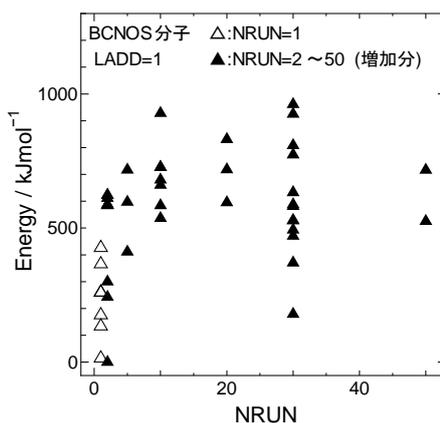


図3.LADD=1について、各NRUNを変化させたときのエネルギー分布

[1] K. Ohno and S. Maeda, Chem. Phys. Lett. **348**, 277 (2004); S. Maeda and K. Ohno, J. Phys. Chem. **A109**, 5724 (2005); K. Ohno and S. Maeda, J. Phys. Chem. **A110**, 8933 (2006).

[2] 大野公一, 長田有人, 前田理, 諸熊奎治, 第14回理論化学討論会, 岡山 (2011), 2D1b.

[3] Koichi Ohno and Yuto Osada, "Advances in the Theory of Quantum Systems in Chemistry and Physics", Springer, 381-394 (2012).