

NeoGRRM による反応経路発見数の直線的な増大

○渡邊 啓正¹, 時子山 宏明¹, 大野 公一¹

¹量子化学探索研究所

¹watanabeh@iqce.jp

序 ポテンシャル表面上の化学構造（平衡構造 EQ、遷移構造 TS）の自動探索（GRRM）はポテンシャルの非調和下方歪を利用する ADDF 法[1]によって可能となった。GRRM プログラムでは、多原子系のポテンシャルエネルギー超曲面上の一点の電子状態計算（一点計算）を多数回繰り返すため、計算時間が一般に全体として大規模となる。NeoGRRM 法[2]はこの計算時間を大幅に短縮する。既に 256 コアクラスタ環境における全体的な計算速度について報告している[3]。本稿では自動探索最中における探索結果の経時的傾向について報告する。**GRRM プログラム** GRRM プログラムでは、EQ の周囲の反応経路の探索（1 点周り探索）を繰り返して EQ, TS, IRC 及び解離経路を芋づる式に自動探索する。

NeoGRRM プログラム NeoGRRM は GRRM プログラムを用いて 1 点周り探索を複数ノードで並列に行う。これには次の 3 点の対応が行われる。

- (1)各ノードで行う探索がノード間で重複しないよう全体の探索を合理的に管理する。
- (2)探索に要する計算時間と比べてノード間のデータ通信時間をできるだけ短縮する。
- (3)多数のノードで別々に探索した結果を統合する。

NeoGRRM プログラムは、特定の結合状態のみを探索可能とする BondCondition オプションに新たに対応するなど、利便性や探索効率を向上させる開発が継続されている。

EQ および TS の発見数の経時的傾向 C₆H₆ の反応経路自動探索における、経過時間に対する EQ の累積発見数（重複を除く）を図 1 に示す。同様に TS について図 2 に示す。探索開始から 8~206 時間後までの間、EQ・TS とも累積発見数が直線的に増加した。GRRM の並列性が元来非常に高く、利用できるコアの数に比例して新しい EQ が出続けるためと考えられる。8 時間後までと 206 時間後より後では、対象となる未探索 EQ の数によって制限されて、ゆるやかになると理解できる。EQ の数に応じて、その周囲の探索（ADDF）が開始され、その進行につれて TS が見つかるため、EQ の経過と同様に、TS についてもほぼ直線的に発見数が増加すると理解できる。

探索結果の経時的傾向 時子山らは GRRM/SCC-DFTB で 500 日かけて C₆H₆ の EQ 探索を行い、B3LYP での構造最適化で 2004 個の EQ を得た[4]。今回の RHF での全面探索では 2727 個の EQ を得ており、1236.5~1732.4 kJ/mol の領域で EQ 発見数が増加した（図 3）。これは、低エネルギーから優先的に探索してゆく ADDF の振舞いに合致する。

[1] K. Ohno and S. Maeda, Chem. Phys. Lett. 384(4-6), 277-282 (2004).

[2]大野 公一、マルチノード対応 GRRM プログラムの開発、第 16 回理論化学討論会、1P05(2013)。

[3]渡邊 啓正、大野 公一、大規模並列環境における NeoGRRM の反応経路自動探索の性能評価、第 19 回理論化学討論会、2P43(2016)。

[4]H. Tokoyama, H. Yamakado, S. Maeda and K. Ohno, Chem. Lett. 43(5), 702-704 (2014); Bull. Chem. Soc. Jpn. 88, 1284-1290 (2015)。

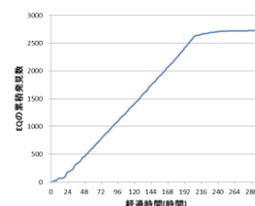


図 1. EQ 累積発見数の推移

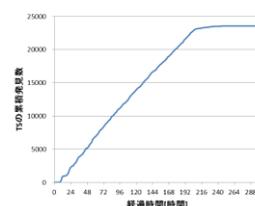


図 2. TS 累積発見数の推移

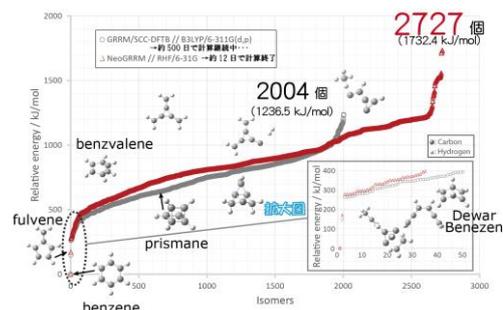


図 3. EQ 数曲線の経時的比較