

課題名 (タイトル) :

非断熱遷移を考慮した ab initio 分子動力学法の開発

利用者氏名 : 大谷 優介

理研での所属研究室名 : 計算科学研究機構 量子系分子科学研究チーム

1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

Ab initio 分子動力学 (AIMD) 法は分子シミュレーション法の一つである。ab initio 電子状態計算によって原子核に働く力を計算し、その力をもとに原子核のニュートンの運動方程式を解き、分子運動をシミュレートする方法である。あらかじめ力場などのパラメータを設定する必要がなく、物理法則に基づいた非経験的な化学反応シミュレーションが可能である。AIMD 法は多くの計算コストを要するが、近年のコンピュータ性能の向上に伴って広く用いられており、様々な化学反応シミュレーションが行われている。

しかしながら ab initio 分子動力学法は原子核の量子効果と非断熱遷移を考慮していないという欠点がある。プロトン移動反応ではトンネル効果などの核の量子効果が重要な役割を果たす。また、光化学反応など電子励起状態を経由するような化学反応では非断熱遷移が重要な役割を果たす。これらの効果を厳密に考慮したシミュレーションは現在のコンピュータ性能でも不可能であるため、AIMD 法のような実行可能な手法の枠組み内で適切に考慮する方法が必要になる。

そこで本申請では非断熱遷移を取り扱うことができる ab initio 分子動力学法の開発に取り組む。

2. 具体的な利用内容、計算方法

非断熱遷移を考慮する方法として Decay of Mixing 法を採用し、ab initio 分子動力学プログラムの開発を行った。

3. 結果

Decay of Mixing 法のプログラム実装を半分ほど終えた。

4. まとめ

Decay of Mixing を採用し、非断熱遷移を考慮した ab initio 分子動力学法の開発を行った。

5. 今後の計画・展望

今年度開発したプログラムを用いて非断熱遷移が重要となる化学反応のシミュレーションを行い、化学反応メカニズムの解明を試みる。計算対象としては光化学反応を予定している。

6. 利用研究成果が無かった場合の理由

今年度はプログラム開発に大半の時間を費やし、応用計算を行うことが出来なかったため研究成果を出すことができなかった。