

課題名 (タイトル) :

長距離補正密度汎関数法を用いた経路積分分子動力学シミュレーション

利用者氏名 : ○川島 雪生

所属 : 計算科学研究機構 研究部門 平尾計算化学研究ユニット

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

分子クラスターは分子間力により数個～数百個の分子が集合した状態であり、単分子ともバルクとも異なる物性などを示す上に、分子間相互作用や水素結合の精密な解析を行えるため、理論、実験の両面から研究が盛んに行われている。近年、イオン-水の水素結合を持つような分子クラスターにおいて、イオン-水間水素結合では核の量子揺らぎの効果が大きく、水素結合の構造や三次元構造形成において無視できないことが明らかになりつつある。本研究では、より複雑な三次元構造を持つアニオン水クラスターに着目する。

アニオン水クラスターは溶媒和電子のモデルとして研究が盛んに行われている。溶媒和電子が水とどのように相互作用するかなど水和構造を明らかにする上でアニオン水クラスターの研究は必要不可欠である。アニオン水クラスターの生成においてマジックナンバーが観測されているが、水六量体アニオンクラスターは安定に存在することが知られており、実験より二つの安定構造が提案されている(Hammer *et al.*, *J. Phys. Chem. A* (2005))。水六量体アニオンクラスターの電子状態計算を行ったところ、実験で提案された構造の一つは光電子スペクトルの実験結果と一致しなかった(Yagi *et al.* *J. Phys. Chem. A* (2008))。即ち、異なる異性体の存在が示唆された。アニオン水クラスターにおいて通常よりも強く短い水素結合の存在がこれまで明らかにされている。このような水素結合を正確に記述するためには電子状態と原子核の量子揺らぎの双方を精度よく計算する必要がある。しかし、既存研究では原子核の量子揺らぎの効果は無視されてきた。

原子核の量子揺らぎを記述できる手法として経路積分分子動力学シミュレーションは大変強力である。そのためには複数の電子状態計算を同時に行い、シミュレーションを実行する必要があるが、電子状態計算のコストがボトルネックとなる。そこで、電子状態を効率よく計算できる長距離補正密度汎関数法を用いた経

路積分分子動力学シミュレーションを行うことで、電子状態と原子核の量子揺らぎの双方を精度よく計算することを試みる。また、複数の電子状態計算を同時に計算しつつ分子動力学シミュレーションを行うため、計算量は非常に多くなり、スーパーコンピュータは大変有用となる。

本研究では、シミュレーションを用いて、実験結果を再現するような新たな三次元構造の探索を行う。水六量体アニオンクラスターにおいて核の量子揺らぎが三次元構造形成にどのような影響を与えるかについて明らかにすることを目的とする。核の量子揺らぎを考慮することによって新しい異性体が見つければ学術的にインパクトは高い。

2. 利用がなかった場合の理由

今年度は現在に至るまで、主にアルゴリズムや計算プログラムの開発に取り組んでおり、スーパーコンピュータが必要不可欠となる応用計算を実行しなかったため、利用していない。

しかし、所有している PC クラスタでのテスト計算は終了している。来年度は応用計算を行い、可能であればひスーパーコンピュータを使わせて頂きたいと考えている。