

1. 緒言

近年、コンピュータの高速化に伴い、ab initio MO 法を基にした分子動力学計算が行われるようになってきた。特に取り扱う分子系が小さい場合その信頼性が高くなり種々の有効な知見が得られる。しかし、溶媒中の分子の反応などの挙動を取り扱う場合、溶媒を含めた系全体を現存の ab initio MO 法で取り扱うことは現在の高速計算機を用いても難しい問題がある。そのため、誘電体モデル、ONIOM, QM/MM 法等の近似法がしばしば用いられている。しかし、これらの近似方法は精度や理論モデルなどに問題点がある場合がある。そこで、我々は最近全系の ab initio MO 計算の近似法 (IMiCMO) を提案した。この方法、及びこれを用いた反応等への応用を報告する。

2. 理論計算

IMiCMO 法 (Integrated Ab Initio Multicenter Molecular Orbital Method) : IMiCMO 法では取り扱う系全体を個々の分子に分割する。これは反応により分子に対する原子の組み合わせが変化することに対応するためである。分子に分割された後、1つの分子を目的分子とし、この目的分子に隣接している分子を隣接分子、それ以外の分子を環境分子として定義する。目的分子と隣接分子を QM で、環境分子を点電荷で近似し、計算し目的分子に働く力を求める。これを全て

の分子について行ない系全体の力を求める。この力に基づいて分子動力学計算を行う。

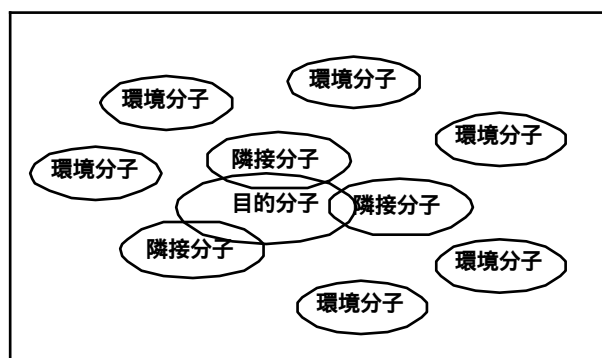
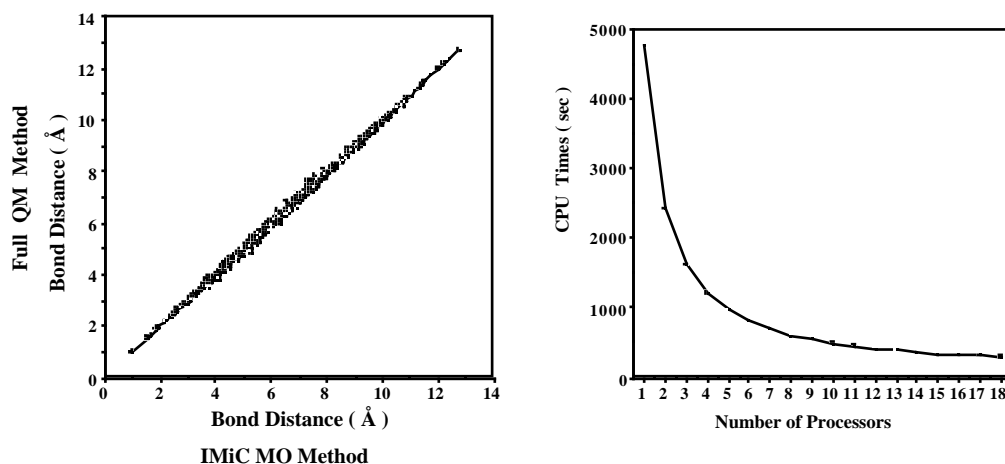


図-1. IMiCMO モデル

3. 結果及び考察

IMiCMO 法と Full QM 法による分子の構造最適化に対する精度の比較を下の図に示す。



これは $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_{14}$ のクラスターである。また、 $(\text{H}_2\text{O})_{100}$ の系の並列化の効率をも示した。