

水素系の量子化学 — 量子多成分系分子理論の開発 —

○ 立川 仁典

横浜市立大学大学院生命ナノシステム科学研究科

(〒235-0033 横浜市金沢区瀬戸 2 2 - 2)

E-mail: tachi@yokohama-cu.ac.jp

水素結合系やプロトン（水素）移動反応など、多くの過程において水素原子核の量子力学的性質が重要であることが見出されている。また H/D 同位体効果に伴う、例えば水素結合型強誘電体における大きな相転移温度や構造変化など、従来の第一原理手法だけでは直接評価することのできない同位体置換による物性変化も多く報告されている。そこで我々は、このような問題に対して理論的にアプローチすべく、核・電子混合系を量子力学的に取り扱うための量子多成分系分子理論を開発してきた。具体的には、波動関数レベルでの (I)多成分系分子軌道(MC_MO)法[1]、(II)多成分系量子モンテカルロ(MC_QMC)法[2]、(III)多成分系密度汎関数(MC_DFT)法[3]、さらには温度効果をも考慮できる(IV)第一原理経路積分分子動力学(*ab initio* PIMD)法[4]、である。

本発表では、このような量子多成分系分子理論の概観を述べたのち、いくつかの具体的計算例を紹介したい。まず初めに多成分系分子軌道(MC_MO)法を用いた水素結合型強誘電体における大きな同位体効果へのアプローチ[5]を述べる。その後、経路積分法を用いた低障壁水素結合系の理論解析を取り上げ、 H_3O_2^- イオン[6]およびポルフィセン分子[7]における幾何学的同位体効果やその温度依存性を報告したい。

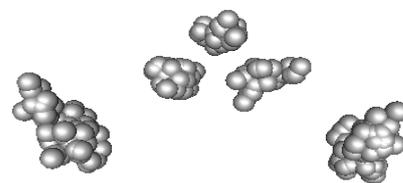


Figure 1. Schematic illustration of path integral approach.

References:

- [1] T. Ishimoto, M. Tachikawa, and U. Nagashima, **J. Chem. Phys.**, *128*, 164118 (9pages) (2008). K. Koyanagi, Y. Takeda, T. Oyamada, Y. Kita, and M. Tachikawa, **Phys. Chem. Chem. Phys.**, (2013) in press.
- [2] Y. Kita, R. Maezono, M. Tachikawa, M. Towler, and R. J. Needs, **J. Chem. Phys.**, *131*, 134310 (6pages) (2009), *135*, 054108 (5pages) (2011).
- [3] T. Udagawa and M. Tachikawa, **J. Chem. Phys.**, *125*, 244105 (9pages) (2006).
- [4] K. Suzuki, M. Tachikawa, and M. Shiga, **J. Chem. Phys.**, *132*, 144108 (7pages) (2010). M. Daido, Y. Kawashima and M. Tachikawa, **J. Comput. Chem.**, (2013) in press.
- [5] T. Ishimoto and M. Tachikawa, **Prog. Theor. Chem. Phys.**, (2013) in press.
- [6] M. Tachikawa and M. Shiga, **J. Am. Chem. Soc. (Communication)**, *127*, 11908 (2005). K. Suzuki, M. Shiga, and M. Tachikawa, **J. Chem. Phys.**, *129*, 144310 (8pages) (2008).
- [7] T. Yoshikawa, S. Sugawara, T. Takayanagi, M. Shiga, and M. Tachikawa, **Chem. Phys.**, *394*, 46-51 (2012).