

博士学位申請論文公開講演会

日時：2016年2月5日（金）16：00～

場所：物理会議室（C207）

申請者：伊東 真吾（TB 研）

題目：強結合近似密度汎関数模型に基づくレプリカ交換傘サンプルシミュレーションによるフタロシアニン鉄複合体の生成の研究

主論文の概要

計算機シミュレーション分野において未だに大きな課題として、計算コストの短縮という問題が存在する。課題解決の為に、計算機物理学や生物物理学の分野においては、非ボルツマン因子による人工的な統計力学的集団を用いることにより、ポテンシャルエネルギー空間上の自由酔歩を実現することを可能とした拡張アンサンブル法と呼ばれる計算手法が開発されてきた。

一方、理論物理化学の分野においては、量子計算の一部を実験から得られた経験的なパラメータに置き換える手法や、電子密度の汎関数を用いて電子の状態を計算することで計算速度を高速化した密度汎関数法などが開発されてきた。

申請者は、異なる分野において開発されてきたこれらの手法を組み合わせることができるようにするために、量子化学計算において利用されている"DFTB+"という名の計算パッケージに、拡張アンサンブル法の1つであるレプリカ交換傘サンプル法を導入した（この"改良型 DFTB+"パッケージは以下"DFTB+/REM"と呼ぶことにする）。"DFTB+/REM"パッケージの計算精度を確認するために、マロンアルデヒド分子中のプロトン移動反応について強結合近似密度汎関数模型に基づいたレプリカ交換傘サンプルシミュレーションを行った。さらに計算結果に対して他の計算パッケージを用いて同様の系で計算した結果との比較を行った。比較の結果、"DFTB+/REM"は十分な計算精度を持つことが示された。

また、レプリカ交換傘サンプル法と強結合近似密度汎関数法の組み合わせの有効性を示すために、従来の量子化学計算のみでは形成に至らなかった、フタロシアニン鉄錯体を4つのフタロニトリル分子と1つの鉄原子より形成する計算を、"DFTB+/REM"において強結合近似密度汎関数模型に基づいたレプリカ交換傘サンプルシミュレーションを用いて行った。結果として、フタロシアニン鉄錯体が形成されることが示された。また、計算トラジェクトリーの解析により、この分子の形成過程の律速となっているであろう、中間体と示唆される構造を見出した。