

3P144

液体アンモニア中の分子間プロトン移動についての量子古典混合系シミュレーション

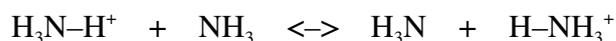
(名大工) ○庄司光男、山田篤志、岡崎進

mshoji@mail.apchem.nagoya-u.ac.jp

プロトン移動反応は生体内など凝縮系中でしばしば起こる化学反応であるが、プロトン核の量子化を考慮して動力学シミュレーションをすることは未だ難しい。特にゼロ点振動やトンネル効果などの量子効果はダイナミクスに大きな影響を及ぼすと考えられるが、粒子数や量子化次元数が大きくなるとすぐに計算量が膨大になってしまう。そのため、有効な方法論の開発が重要となっている。

我々はこれまでに量子古典混合系に基づくプロトン移動反応の分子動力学シミュレーション法の開発を行ってきた。本研究では実在系での分子間プロトン移動反応を展開するにあたり、アンモニア液体中でのプロトン移動反応を取り扱った。その第一歩として、1次元モデル系(図1(a))やいくつかのモデル系で量子分子動力学シミュレーションを行った。アンモニウム分子間でプロトン移動反応を記述できるように Multi State Empirical Valence Bond 法[1]を用いて反応ポテンシャル面を構築した。量子化した振動状態間での非断態遷移には Surface Hopping 近似[2]を用いた。図1に1次元モデル系(NH...N)での計算結果を示す。Hは核の量子化を行いNは古典粒子としてバネで繋げている。温度が低いときはトンネル移動を中心とする反応が起こり(b), 温度が高いときは熱活性による反応が頻繁に起こっている(c)ことを確認した。

本方法をアンモニア-アンモニウムイオン間(図2)の分子間プロトン移動反応



に適用し、移動プロトン核の三次元量子化の効果についての適用を試みた。詳細は当日報告する。

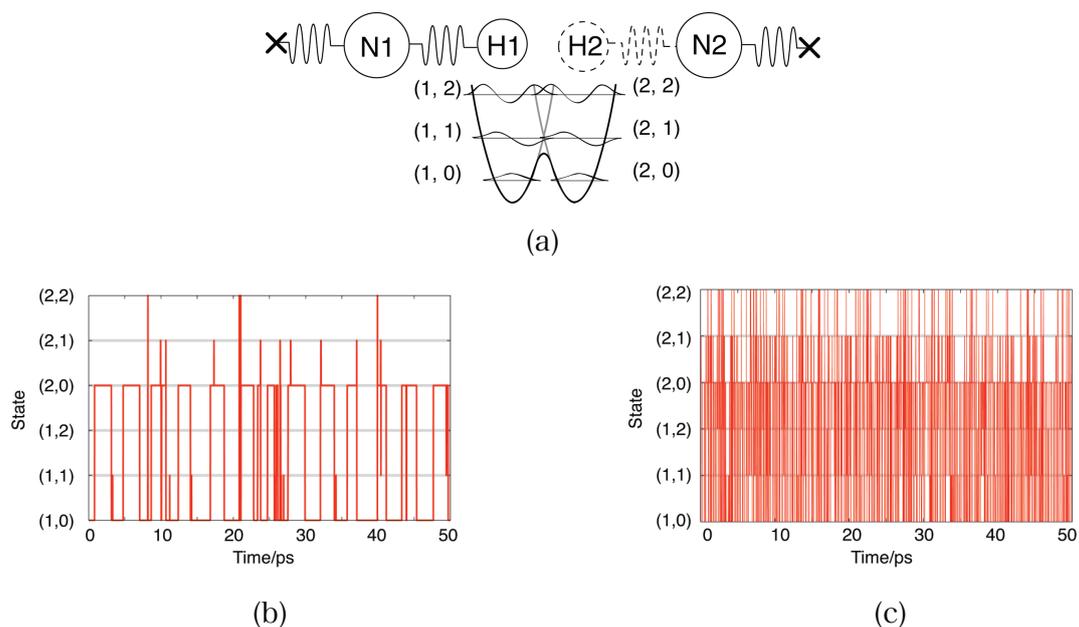


図 1. 量子古典混合近似による 1 次元プロトン移動ダイナミクス.; (a) 1 次元モデル系 (NH...N), 温度が低いとき(b)と高いとき(c)での状態遷移.

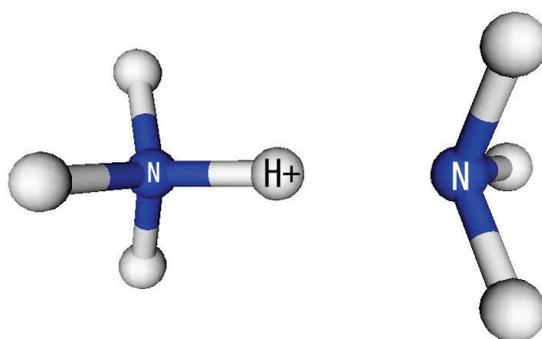


図 2. アンモニア-アンモニウムイオン間の分子間プロトン移動反応。中心のプロトン核のみを 3 次元量子化している。

[1] R. Vuilleumier, D. Borgis, CPL 284, 71(1998).

[2] (a) A. Yamada, S. Okazaki, JCP 124, 094110(2006). (b) A. Yamada, S. Okazaki, 128, 044507(2008).