

1点周りの反応経路自動探索

大野 公一

個々の化合物が他の物質にたやすく変化する（異性化したり分解したりする）かどうかは、その化合物の安定性・品質維持や安全性の観点から、非常に重要ですが、それを予備知識なしに調べあげることは、GRRM プログラム以外のソフトウェアでは、ほぼ不可能といえるぐらい困難です。

GRRM では、FirstOnly という Option があり、1つの構造（1点）の周囲の反応経路だけを簡便に調べることができます。1点周りの分解経路（DC）や遷移状態（TS）がわかるので、その化合物の安定性が調査でき、また、TS を超えてどんな物に変化しやすいかも調べられるので、化合物の安定性・品質維持や安全性の問題解決に大いに役立ちます。

1点周りの FirstOnly 探索を、制限をつけずにやれば、一番低い TS だけでなく非常に高い TS も全面的に探索できるので、高温の条件にさらされた場合の安定性・品質維持や安全性の調査にも役立ちますが、探索時間が長くなります。室温付近では高い TS は不要なのでその探索を省略すると、探索時間を桁違いに短縮できます。低い TS の優先探索は、ADDF では Option の LADD 値を小さくすることで、AFIR では GAMMA 値を小さくするとことで、簡単に実施できて便利です（低エネルギー優先探索では、制限無しと比べて探索時間が 1/10～1/100 以下になります）。

1点周りの反応経路探索を、新たにみつかった構造のそれぞれに適用していくと、最終的に、同じ化学式で表されるすべての構造とそれらの間の反応経路を網羅して、その化学式の反応経路世界地図（これを Global Reaction Route Map といい、GRRM という名称の由来になっています）が求められます。もちろん、1点周り探索を多数回行うには、時間がかかるかもしれませんが、各 1点周り探索は、独立して行えるので、多数のコアをもつ計算機で並列処理する（NeoGRRM やその機能が搭載された GRRM-Basic や GRRM-Neo11 を用いる）と飛躍的に探索時間が短縮されます（たとえば、1年かかったものが 10 日程度になる）。したがって、GRRM プログラムを多数のコアをもつ計算機で利用できれば、各化学式についての全面的反応経路自動探索（全面探索）を、現実的な時間で実行することができます。

全面探索の場合も、エネルギーが低い領域を優先してエネルギーの高い領域を省略する（ADDF では Option の LADD 値を小さくし、AFIR では GAMMA 値を小さくする）と、大幅に探索時間を短縮（低エネルギー優先探索では、制限無しと比べて探索時間を 1/10～1/100 以下に）できるので、反応スキームの設計や解析を手軽に進めることができて、たいへん便利です。

参考データ： ベンゼン B3LYP/6-31G*

| | |
|------------------------------------|---------------------------|
| ADDF 全面探索（1 node 16 コア） | 数年？（推定約 3 年） |
| ADDF 全面探索（マルチ node 256 コア NeoGRRM） | 1570.73 時間 EQ1644 TS13489 |
| ADDF 1点周り（制限無し、1 node 16 コア） | 107.9 時間 EQ11 TS8 |
| ADDF 1点周り（LADD=10、1 node 16 コア） | 7836 秒=2.2 時間 EQ3 TS2 |
| ADDF 1点周り（LADD=2、1 node 16 コア） | 1415 秒=23.6 分 EQ2 TS1 |