

プロトンの量子波動性に支配された物性の理論制御に向けた Nuclear-Electronic Orbital 法の精度追求

(中央大学¹・分子科学研究所²) ○元木 康平¹・森 寛敏^{1,2}

Pursuit of accuracy of the Nuclear-Electronic Orbital Method for the theoretical control of molecular properties governed by the quantum wave nature of protons (¹*Chuo University*, ²*Department of Theoretical and Computational Molecular Science, Institute for Molecular Science*) ○Kohei Motoki,¹ Hirotooshi Mori^{1,2}

Momentum for new theoretical drug discovery and functional material design is increasing, aiming at higher functionality by focusing on protons' quantum wave nature to suppress side reactions. In drug discovery and material design, high-precision physical property prediction based on quantum chemical calculations under the Born-Oppenheimer approximation has been established. However, to predict the phenomenon dominated by the quantum wave nature of protons, high-precision quantum chemistry calculations beyond the Born-Oppenheimer approximation are required.

The purpose of this study is to focus on the Nuclear-Electronic Orbital (NEO) method as a quantum chemistry calculation method considering the quantum wave nature of protons and to pursue its accuracy. This time, we calculated the tunneling splitting value by combining the NEO method with various basis sets and methodologies for the molecule that causes tunneling splitting of the energy level by the intramolecular proton transfer reaction and compared it with the measured value. The accuracy was evaluated. The calculation level used was a set of NEO-CI with electronic and nuclear basis sets of cc-pVDZ and DZSPDN. Systematically changing the active orbitals, it has been shown that tunneling splittings at zero point levels can be evaluated in high accuracy with only several cm⁻¹ level errors (see Table 1).

Keywords : *Nuclear-Electronic Orbital; Proton-Electron correlation; Accuracy assessment; Tunneling Splitting*

プロトンの量子波動性に着目することで副反応を抑制し高機能化を狙った、新たな理論創薬・機能材料設計の機運が高まりつつある。従来、創薬・材料設計分野では、Born-Oppenheimer 近似下の量子化学計算に基づく高精度物性予測が確立されてきた。しかし、プロトンの量子波動性に支配された現象を予測するには、Born-Oppenheimer 近似を超えた高精度量子化学計算が必要となる。

本研究の目的は、プロトンの量子波動性を考慮した量子化学計算法として、Nuclear-Electronic Orbital (NEO) 法に注目し、その精度を追求することである。今回は、分子内プロトン移動反応によって、エネルギー準位のトンネル分裂を起こす分子を対象に、NEO 法を種々の基底関数・方法論と組み合わせつつトンネル分裂値を計算し、実測値と比較することで、その精度を評価した。計算レベルは NEO-CI とし、電子および原子核基底関数には cc-pVDZ および DZSPDN を用いた。系統的に活性空間を変化させた検討を行った結果、零点振動準位におけるトンネル分裂値は、実測値に対して数 cm⁻¹ 単位での比較が可能であることが分かった (表 1)。

表 1 NEO 法を用いて算出されたトンネル分裂値 (cm⁻¹)

	トロポロン	マロンアルデヒド
NEO-CI	1.1	24.1
実験値 ¹⁾	1.0	21.6

1) Atom Tunneling Phenomena in Physics, Chemistry and Biology, T.Miyazaki, Springer, 2004