

# 1G3b 全原子分極の水モデルを用いた水クラスター (H<sub>2</sub>O)<sub>n</sub> (n=3,4,5)の理論化学的研究

(広島大理<sup>1</sup>・広島大院理<sup>2</sup>・広島大QuLiS<sup>3</sup>)

○赤瀬 大<sup>1</sup>・相田 美砂子<sup>2,3</sup>

【序】水クラスターは有限温度では水素結合パターンで分類できる多くの異性体が存在する。本研究では、モンテカルロシミュレーションによって形成したNVTアンサンブルから各水素結合パターンの自由エネルギー、内部エネルギー、双極子モーメント等の平均値を算出し、パターンによる相互作用エネルギーの違い、またその原因を明らかにする。

【手法および結果】水ポテンシャルには、全原子上に分極率をおいたTTM2-R[1]に、近距離に作用する反発項を加えたものを用いた。このポテンシャルでは、内部エネルギーは  $U^{\text{total}} = U^{\text{pair}} + U^{\text{chg}} + U^{\text{pol}}$  により表される。ここで、右辺第一項と第二項の和が二体相互作用、第三項は誘起双極子モーメントに起因する多体相互作用に相当する。

シミュレーションのステップごとに、水素結合パターンに分類し各物理量の平均を求めた。水素結合パターンによって二体と多体の相互作用エネルギーが、それぞれ、大きく異なり、水素結合パターンの違いが誘起双極子モーメントの違いを表すことが見いだされた。n=3の場合、最も内部エネルギーの安定なDで多体相互作用の寄与が最大になっている。

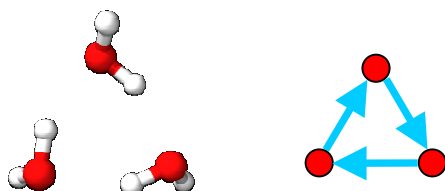


Fig.1 水クラスターの水素結合パターンを表す有向グラフ

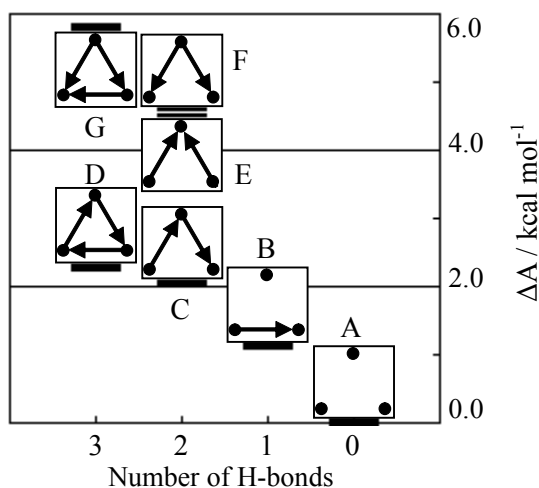


Fig.2 300Kにおける水三量体の相対ヘルムホルツ自由エネルギー

Table1. 相互作用エネルギー(kcal mol<sup>-1</sup>)と双極子モーメント(D)

pattern	ΔA	n	U <sup>total</sup>	二体	多体	PD	ID	TD
A	0.00	0	-0.18	-0.16	-0.01	3.01	0.02	3.02
B	1.11	1	-3.87	-3.18	-0.69	3.06	0.42	3.32
C	2.03	2	-9.35	-7.21	-2.14	2.56	0.61	2.98
D	2.26	3	-12.25	-8.71	-3.54	1.56	0.21	1.58
E	4.52	2	-6.57	-5.61	-0.95	2.81	0.38	3.10
F	4.56	2	-6.57	-5.47	-1.11	2.66	0.44	2.96
G	5.80	3	-7.72	-6.25	-1.47	3.67	0.55	4.16

n : Number of H-bonds PD : permanent dipole moment ID : induced dipole moment TD : total dipole moment

[1] C. J. Burnham and S. S. Xantheas, J. Chem. Phys., **116**, 1500 (2002).