

Полная исследовательская публикация Тематический раздел: Квантово-химические исследования.
Идентификатор ссылки на объект – ROI: jbc-01/17-52-12-28 Подраздел: Физическая органическая химия.
Цифровой идентификатор объекта – <https://doi.org/10.37952/ROI-jbc-01/17-52-12-28>
Публикация доступна для обсуждения в рамках функционирования постоянно действующей интернет-конференции “*Бутлеровские чтения*”. <http://butlerov.com/readings/>
УДК 544.18: 544.43: 519.688. Поступила в редакцию 19 декабря 2017 г.

Оболочка P-AutoExtremum(G) для автоматизации итерационного алгоритма исследования ППЭ с помощью программы Gaussian

© Шамов^{1*} Александр Георгиевич, Егоров²⁺ Даниил Леонидович,
и Храпковский³ Григорий Михайлович

¹ Управление информатизации; ² Научно-исследовательский отдел компьютерной химии;

³ Кафедра катализа. Казанский национальный исследовательский технологический университет.

ул. К. Маркса, 68. г. Казань, 420015. Республика Татарстан. Россия.

Тел.: (843) 231-42-53. E-mail: egorovdl2015@yandex.ru

*Ведущий направление; +Поддерживающий переписку

Ключевые слова: квантово-химический расчет, переходное состояние, поверхность потенциальной энергии, пути реакции, PGrida, Gaussian, P-AutoExtremum, энергии, энтальпии и свободные энергии активации, акватермолиз, программное обеспечение.

Аннотация

При изучении механизмов химических реакций самые трудоемкие вычисления связаны с исследованием поверхности потенциальной энергии (ППЭ), в частности, с построением путей реакций (ПР) от найденных переходных состояний (ПС) к реагентам и продуктам реакции. Авторы данной работы предложили использовать в исследовании механизмов реакции несколько программ, чтобы воспользоваться преимуществами каждой из них. Была создана программа-оболочка P-AutoExtremum для программы PGrida, автоматизирующая процесс исследования элементарного акта химической реакции, включая поиск ПС, построение ПР от ПС к реагентам и продуктам и оптимизацию геометрии последних. Финальным этапом расчета элементарной стадии химической реакции является составление отчета с помощью программы P-Analysis. Следующим шагом исследования механизма реакции является расчет элементарного акта более точным методом функционала плотности с использованием программы Gaussian 09W (G09W). К сожалению, на этом этапе возникли технические проблемы, связанные с закликиваниями при расчете путей реакции и оптимизации геометрии реагентов и продуктов реакции. Отчасти они были преодолены путем применения опции LQA для ключевого слова IRC при расчете ПР и замены метода ωB97XD на ωB97X при расчете ППЭ. Для сокращения затрат машинного времени и повышения надежности вычислений при поиске экстремумов на ППЭ авторами была создана программа-оболочка P-AutoExtremum(G). Она выполняет серию запусков программы G09W с опциями CalcFC и MaxCycle=N, в которых N задается управляющей оболочкой по определенному пользователем правилу. Геометрия молекулы в исходной точке задается пользователем, в дальнейшем берется из ранее завершившегося расчета. Если заданное число итераций оптимизации геометрии в G09W превышено, оболочка вычисляет новое значение N и заново вызывает G09W. Процесс прекращается при локализации экстремума на ППЭ с заданной точностью либо при превышении заданного в оболочке максимального числа вызовов G09W. Опыт применения описанной оболочки для поиска экстремумов в плохо сходящихся задачах акватермолиза серосодержащих соединений показал ее эффективность: использованный алгоритм успешно работает, а количество аналитических вычислений матрицы вторых производных при локализации экстремума сокращается в 5-10 раз.