

1P15

演 題	メッシュ法を用いた I_h 対称フラレンの構造最適化について	
発 表 者 (所 属)	○新井 広満、成田 進、野村 泰志、森川 鐵朗* (信州大学繊維学部、*上越教育大学自然系)	
連 絡 先	〒386-8567 長野県上田市常田 3-15-1 信州大学繊維学部 素材開発化学科 TEL 0268-21-5397	
キ ー ワ ー ド	構造最適化、対称性、対称操作、座標変換行列	
開 発 意 図 適 用 分 野 期 待 効 果 特 徴 な ど		
環 境	適 応 機 種 名	
	O S 名	Mac OSX
	ソ ー ス 言 語	Mathematica 及び Gaussian03
	周 辺 機 器	
流 通 形 態 (右 の い ず れ か に ○ を つ け て く だ さ い)	・日本コンピュータ化学会の無償利用 ソフトとする ・独自に頒布する ・ソフトハウス、出版社等から市販 ・ソフトの頒布は行なわない ・その他 ○未定	具 体 的 方 法

1.序論

分子の構造最適化は必然的にその系の全エネルギー計算を伴う。そのために、分子中の原子の座標を決定しなければならない。原子の個数が n の分子では決定すべき座標の総数は $3n$ となる。対称性の良い分子ではこの座標の数を劇的に減らすことができる。対称性を利用するこの考え方をを用いて渋谷らは I_h 対称 C_{60} Fullerene (以後 C_{60} する) の構造最適化を INDO 法を用いて行った[1]。その結果 C_{60} では決定すべき座標の数が 180 から 2 に減ることを指摘した。しかし、彼等の方法は C_{60} に存在する結合距離を直接パラメーターとしたため I_h 対称 Higher Fullerene (C_{80} , C_{180}) や I 対称 Higher Fullerene (C_{140}) に適用することはできなかった。なぜなら、 C_{80} 、 C_{140} 、 C_{180} では結合距離以外にもパラメーターを決定しなければならないからである。本研究ではこれらの Higher Fullerene について『対称性の維持』を考慮したメッシュ法、symmetry adopted mesh method を提案し、これら分子系の構造最適化を行った。そして、従来の構造最適化で得られる全エネルギーと比較した。

2.方法

I_h 対称 Fullerene(C_{60}, C_{80}, C_{180})及び I 対称 Fullerene(C_{140})における対称操作の座標変換行列を求める。対称操作の基本である軸のまわりの回転、及び鏡映面は方向余弦(l, m, n)を用いて表される。 I_h 対称性では生成元である5回回転及び3回回転と inversion の積を表す2つの変換行列から I_h 対称における変換行列120個全てを求められることが知られている[2]。 I 対称については生成元である5回回転及び3回回転の積を表す2つの変換行列から60個すべてを求めることができる。任意の原子座標にこれらの変換行列を作用させることで I_h 対称及び I 対称を満たす分子座標が得られ、任意の原子座標をうまくとることで求めたい分子($C_{60}, C_{80}, C_{140}, C_{180}$)の座標を調整できる。任意の原子座標の数は $C_{60}, C_{80}, C_{140}, C_{180}$ の順に2,3,7,5である。メッシュ法を用いて各分子について候補を数千程度用意した。これらを Gaussian03 上で近似方法として AM1 を用いたシングルポイントエネルギー計算で生成エネルギーを求めた。それらの中の最低エネルギーのものを Gaussian03 の最適化構造でのそれと比較した。 C_{80} 、 C_{140} は open shell (4重縮重で MO 対称性は g) であり計算が困難になるため、電子を6つ加えるか電子を2つ取り除くかして closed shell にした状態で計算を行う。本研究では前者を用いて計算を行った。

本研究でメッシュ法を用いた理由として、従来の構造最適化に比べ微分係数などの計算をせずにするため計算が簡単になる、さらに、並列計算が可能であるため計算時間を短縮できる可能性があるなど挙げておく。

3.結果

得られた最適化構造の生成エネルギーを下表に示す。 C_{60} 、 C_{80}^{6-} 、 C_{140}^{6-} ではこの値が一致していることが分かる。しかし、 C_{180} では相違が見られたが、Gaussian03に対する相違は0.164%程度であった。Gaussian03による構造最適化について詳細に調べてみた。Gaussian03の計算で、縮重しているべき MO エネルギー準位にズレが見受けられた。一方、本研究の方法では MO エネルギー準位にズレは見られなかった。つまり、厳密に I_h 対称を満たしたものが得られた。エネルギーは若干高くなっているが構造最適化が成されたと考えた。

表 構造最適化の生成エネルギー (kcal/mol)

	Gaussian03 の計算	本研究
C_{60}	421.6	421.6
C_{80}^{6-}	641.9	641.9
C_{140}^{6-}	720.2	720.2
C_{180}	732.8	734.0

【参考文献】

- [1] Tai-Ichi SHIBUYA and Masaaki YOSHITANI, Chem. Phys. Letters **137** (1987) 13-16
- [2] T.HARA et al., International Journal of Quantum Chemistry **85** (2001) 136-161