

2003

大域的ポテンシャル表面の量子化学自動探索に基づく埋蔵分子の発掘

○大野公一^{1,2,3}、佐藤寛子³、岩本武明²

¹量子化学探索研究所(〒108-0022 東京都港区海岸 3-9-15)

²東北大学大学院理学研究科(〒980-8578 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-3)

³国立情報学研究所(〒101-8430 東京都千代田区一ツ橋 2-1-2)

【緒言】

既に存在が知られている物質は9000万種類にも達しているが、原子で構成される物質の可能性は、ほとんど無限にあり、わずか12個の原子を一行に並べるだけでも $12!/2 \approx 2$ 億4千万種類にもなる。従って、既知の物質は化学の可能性のごく一部に過ぎない。すなわち、未知の物質がまだ大量に眠っており、いわば化学の世界の大地に「埋蔵」されたままになっている。本研究では、ポテンシャル表面の自動探索を可能にしたADDアルゴリズム搭載のGRRMプログラム[1]を用い、 H_4C_4 、 H_4C_6 などについて、大域的ポテンシャル表面自動探索を行った結果と、その結果の解析を踏まえて最近見いだされた興味深い炭素分子[2]・炭素周期構造について報告する。

【方法】

GRRMプログラムには、ポテンシャル表面上の平衡点EQからその周囲に存在する遷移構造TSを自動的に見つけ出し、EQ-TS-EQの連鎖を自動的に系統的にたどることで大域的ポテンシャル表面上のEQやTSを全面的に自動探索する機能が搭載されている。平衡点EQの周囲のポテンシャルは、放物線型の調和ポテンシャルをレファレンスに取ると、TSを超えて別のEQに行く反応経路でも、直接解離経路DCに至る経路でも、反応の進行につれて、必ずポテンシャルが下方に歪み、非調和下方歪み(anharmonic downward distortion: ADD)を発生する(図1中段)。EQを中心とする超球面上での実際のポテンシャルの極小点がADDの極大方向を示すので、超球面のサイズを拡大しながらADD極大方向を追跡してEQの周囲の反応経路をエネルギーの高い方へたどり(図1右上)、EQの周囲のTSを自動的に見つけ出すことができる。TSがみつかったら、そこから通常の最急降下法で下って行けばその先にあるEQへの経路が定まる。このようなEQ-TS-EQの連鎖を自動的にたどることで、大域的ポテンシャル表面を探索し、反応経路のネットワーク(図1下)を全面的に暴き出すことができる。

電子状態計算にはGaussian 09を用い、反応経路探索には最新版のGRRM14を用いた。GRRMの探索結果は、Jmol, Graphviz, gnuplotなどの可視化ソフトを自動的に利用する可視化プログラムGRRM-GDSPを用いて解析した。そのほか、電子密度解析にはAIM2000を使用した。

【結果】

B3LYP/6-31Gレベルで H_4C_4 の全面探索を16コアの計算機で行ったところ、688時間でEQ32個、TS171個が得られた。その全容は、図2左のようにブラウザで閲覧でき、個々のEQの構造をJmol画像として観察できるとともに、各EQにつながるTSとその先のEQが、Jmol画像へのリンク付でリストされており、全体の反応

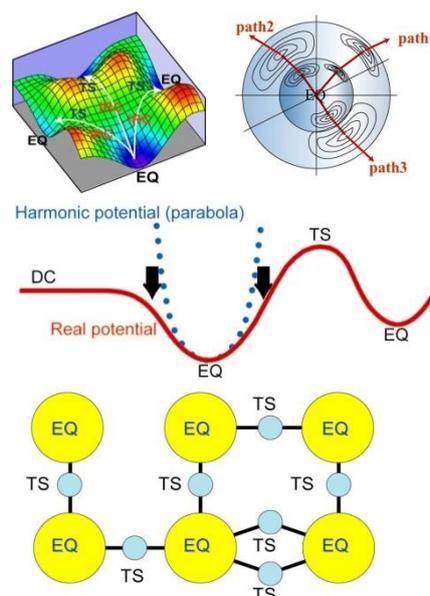


図1 ADDアルゴリズムに基づく反応経路自動探索

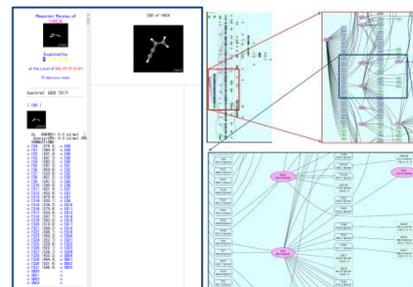


図2 GRRM-GDSPによる探索結果の可視化

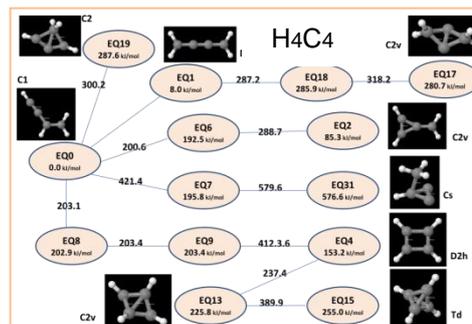


図3 H_4C_4 の主要な探索結果

