

任意の分子や原子がとる結晶構造をその多形も含めて予測することは、今日でも完全な解決はなされていない。筆者及び共同研究者の時子山宏明(和歌山大)、前田理(京都大)、大野公一(豊田理研)は昨年度¹⁾、この問題を解決するため、2004年に大野、前田によって開発された超球面探索法(SHS法:Scaled Hypersphere Search algorithm)と *ab initio* 計算を適用することを提唱し、その有効性を提示した。これらの結果と現状について報告する。本研究では、SHS法を固体構成要素の原子座標に対してと同様に、結晶の格子ベクトルに対しても適用することにより、結晶全体としての平衡構造や遷移構造を自動探索している。計算には部分的に、計算科学研究センターの電子計算機を使用した。図1に、単位格子内に炭素原子を4個置いて出発することにより、これまでに見つめられた平衡構造(EQ0~EQ7)と遷移構造(TS0~TS6)を示す。EQ6とEQ7はそれぞれ実在するダイヤモンドとグラファイトに対応する。現在、計算時間の短縮のためDFTB+²⁾を使用することも検討している。

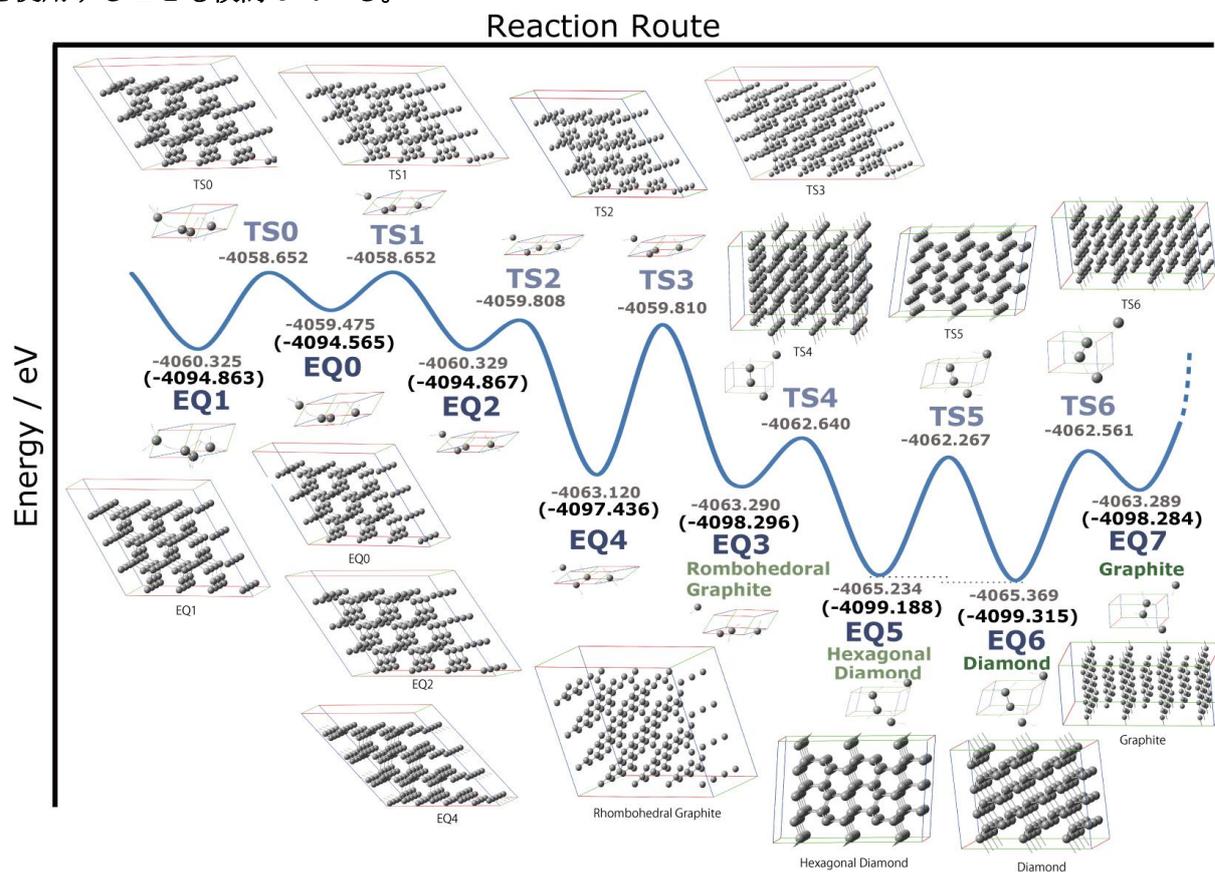


図1. 炭素原子の集団がつくる結晶構造の予測(4C/unit; EQ0~EQ7、TS0~TS6)

単位格子当りのエネルギーの計算には Gaussian03(周期的境界条件適用可能)を用い、SVWN5/STO-3G を使用。

また求めた EQ 構造について、B3LYP/STO-3G を用いてエネルギーの値を精密化したものを括弧内に表示。

References:

- 1) 山門、時子山、前田、大野、分子科学討論会 2009、2P133; 山門、時子山、前田、大野、化学反応経路探索シンポジウム('09.9.25、豊田理研); H.Yamakado, H.Tokoyama, S.Maeda and K.Ohno, APCTCC-4(21-23 Dec. 2009, Port Dickson, Malaysia) abstract, PP54; 山門、時子山、前田、大野、日本化学会第 90 春季年会、2010 年、3E1-42
- 2) B.Aradi, B.Hourahine and Th.Frauenheim, *J. Phys. Chem.A*, 2007, 111(26),5678