

(O₂)_n(n=2,3,4)の構造探索

○浜口孔希¹、山門英雄²、大野公一^{3,4}

(和歌山大学大学院システム工¹、和歌山大学システム工²、量子化学探索研究所³、東北大院理⁴)

[序論] 酸素分子 O₂ が集まった (O₂)_n(n=2,3,4) になったとき、どのような形状をとるか超球面探索法(Scaled Hypersphere Search method : SHS 法)^[1]により調べた。現在までの探索では、電荷は中性、スピン多重度は 1 として行っている。n=2,3,4 の時いずれも環状分子が見つかり、過去の報告と同様な構造が見られた。

[計算方法] 我々は O₄、O₆、O₈ の構造探索をするにあたって、化学反応自動探索プログラム GRRM11^[2]を用いた。SHS 法とは振動固有値の平方根でスケールされた基準座標において、実ポテンシャルと調和ポテンシャルとの差：非調和下方歪み(Anharmonic Downward Distortion : ADD)がより大きくなる経路を優先的に探索し、平衡構造(EQ)の周りの反応経路を辿り、遷移構造(TS)を見つけ、その先にある EQ を自動探索することが出来る方法である。エネルギー計算には Gaussian 09 を使い、計算レベルは MP2/6-31G とした。探索時の条件で、各 EQ まわりの ADD の大きな経路から順番に 3 つ辿るという指定 (LADD=3)および乱数を用いてある範囲内に原子をばらまき、1 個の初期構造を発生させるオプション(NRUN=1)を付して探索を行った。

[計算結果] これまでの探索の結果、O₄ は EQ が 1 個と TS が 2 個、また O₆ と O₈ は EQ が 1 個と TS が 1 個ずつ見つかり、いずれの計算も END が出ている。O₄ と O₆ および O₈ のいずれもクラウン型構造をもつ EQ 構造がそれぞれ見つかった。分子構造と結合長、対称性を以下の図 1 に示す。これらの分子形状は既に報告されている O₄^[3]と O₆^{[3][4]}、O₈^{[4][5]}と整合している。

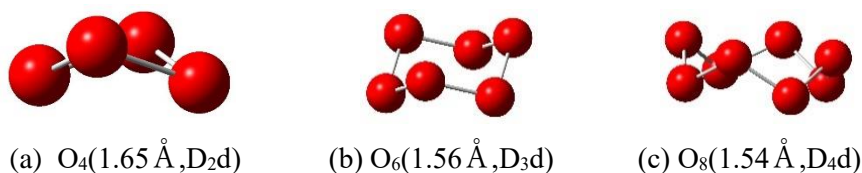


図 1 O₄ と O₆、O₈ のそれぞれの EQ 構造

[1] K. Ohno, S. Maeda, Chem. Phys. Lett., 384, 277 (2004); S. Maeda, K. Ohno, J. Phys. Chem. A, 109, 5742 (2005); K. Ohno, S. Maeda, J. Phys. Chem. A, 110, 8933 (2006).

[2] 大野公一、長田有人、前田理、諸熊奎治、第 14 回理論化学討論会(2011) 2D1b.

[3] Oleg B. Gadzhiev, Stanislav K. Ignatov, Mikhail Yu. Kulikov, Alexander M. Feigin, Alexey G. Razuvaev, Peter G. Sennikov, and Otto Schrems, J. Chem. Theory Comput., 2013, 9 (1), pp. 247–262.

[4] G. Fortea, G.G.N. Angilell, N.H. March, R. Pucci, Phys. Lett.A, Volume 377, Issues 10–11, 1 April 2013, pp. 801–803.

[5] A.J. Ochoa-Callea, A. Ramirez-Solis Chem. Phys. Lett., Volume 592, 30 January 2014, pp. 326–329.