

3Bp10

振動数計算によるスペクトルパターンからのフラーレン分子異性体の構造同定
(産総研産業技術総合研究所 グリッド研究センター)

○ 西川武志、伊藤智、長嶋雲兵、関口智嗣

C₆₀ フラーレン kg 単位の日産が可能になり工業化が現実のものとなりつつある。副生成物としての高次フラーレンも相当な量が存在するものの C₆₀ や C₇₀ には存在しない構造異性体が存在し、これら単離、同定が困難であるため高価であり工業化の目処は立っていない。高次フラーレンは内部に金属を内包するものが得られて居り産業応用の可能性には期待するものが多い。したがって高次フラーレンが大量に合成され、安価に提供されるためには速く安く異性体の同定が行える手段が不可欠である。我々は IR・Raman スペクトルによる同定が有力な手段であると考え、これを証明するために 24 種類の構造異性体が存在する C₈₄ フラーレンを例に量子化学計算による振動数解析から得たスペクトルパターンによってフラーレンの構造異性体の同定が実用可能であることを示す。

これまでの研究から C₈₄ フラーレン分子の異性体のエネルギー安定性判定、振動解析には半経験的分子軌道計算法では不十分であることが判明している[1-3]。非経験的分子軌道計算において最小基底系(STO-3G)、スプリットバレンス系(3-21G、D95V)を用いた計算でも不十分であり、B3LYP/6-31G*レベルの計算が実験値と比較可能な質を提供することが判明している(図1)。しかしながら西川等が最後に C₈₄ の振動数解析を報告した4年前では当時の最高速のワークステーションを利用して1分子の計算に3か月以上を要したため実用的ではなかった[3]。

さらに量子化学の非専門家である高次フラーレンの生成を行う実験家が異性体の同定をスペクトルの実測値と非経験的分子軌道計算の結果を比較して行う際には非経験的分子軌道計算プログラムとして Gaussian シリーズを利用するケースが多いが、このような大規模計算で必要とするメモリ割り当て量、ディスク使用量などを見積もることが困難なため、振動数解析のための計算が1ヶ月ほど経過したところで資源不足で中断してしまう例などが見られる。計算機自体はこの4年に顕著な性能向上があり1 CPUあたり4倍高速になり、クラスタ構成でシステムの CPU 数も増加し計算のスループットは向上した。しかし実際の計算現場では、計算条件設定では上記のような資源要求量の見積りが困難なことが見受けられ、計算センターでは計算時間の上限が数週間に渡るような計算を想定しておらず、計算時間制限に縛られないように自前の計算機クラスタを計算を主目的としない実験家がメンテナンスすることは困難である。

このような問題を解決するために我々はグリッド技術を用いて量子化学計算や計算機科学の専門家のノウハウを用いて計算内容に即した計算資源の割り振りを行う「Quantum Chemistry GRID/Gaussian Portal」を構築した[4-7]。本システムを利用すれば量子化学の非専門家でも、Web インターフェース経由で多数のクラスタ計算機を意識することなく簡単に、かつ専門家のノウハウの適用により適切な計算条件で能率的に所望の量子化学計算の結果が得られる。

当日は、本システムを利用して得られた C₈₄ の 24 種の構造異性体の量子化学計算の赤外スペクトルパターンによる同定について報告する。

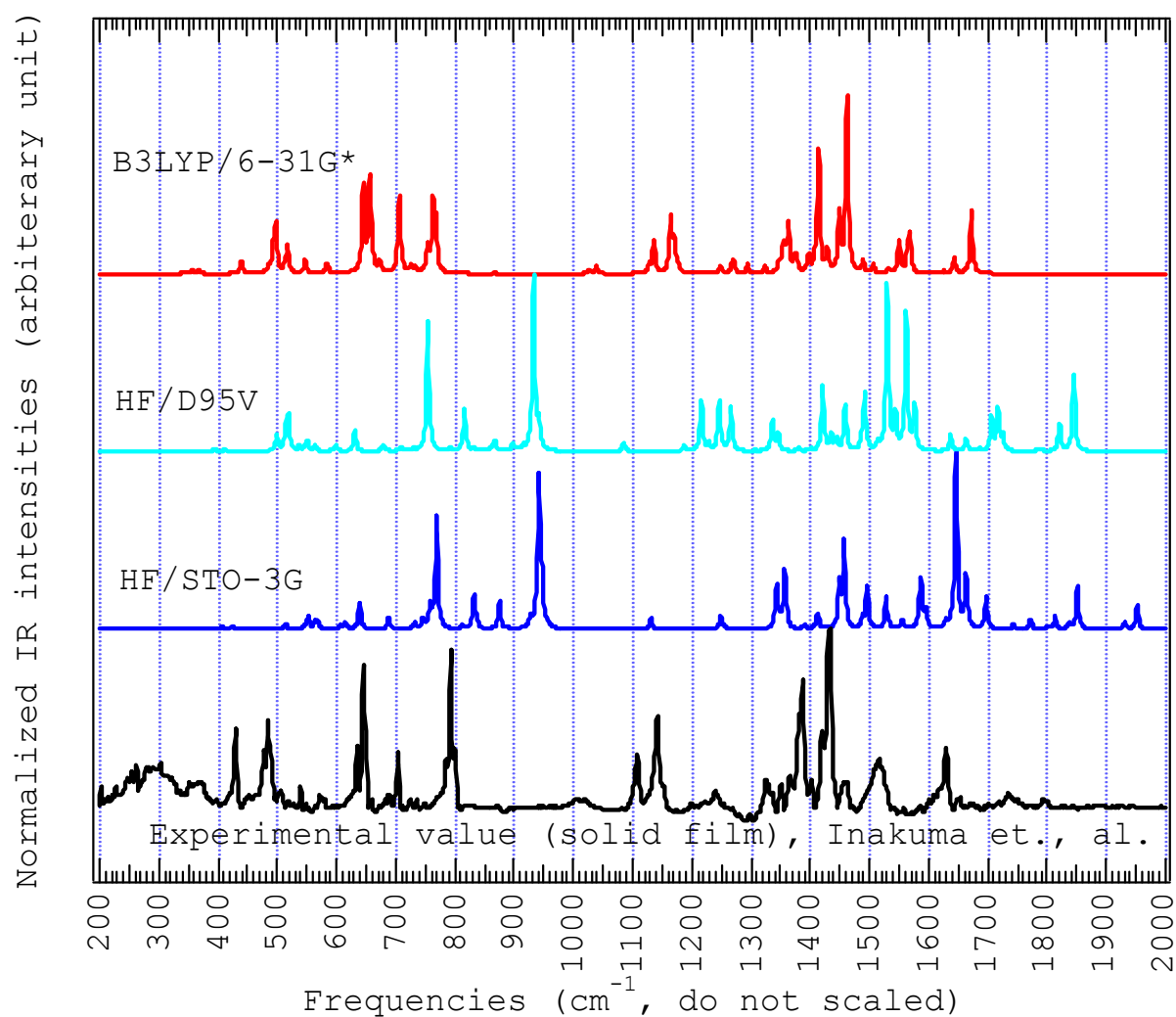


図1 $\text{C}_{84}(23), D_{2d}$ 構造異性体の様々なレベルの量子化学計算による赤外スペクトルパターン（計算値に半値幅 5cm の Lorentzian broadening を適用し実験値と比較）

- [1] Nishikawa, T., Aoyagi, M., The 15th Fullerene Symposium, P2A-12 (Jul. 1998).
- [2] Nishikawa, T., Aoyagi, M., The 16th Fullerene Symposium, P2A-13 (Jan. 1999).
- [3] T. Nishikawa, T. Kinoshita, S. Nanbu, M. Aoyagi, J. Mol. Str.(THEOCHEM), 461-462(1999)453-461.
- [4] 西川武志、長嶋雲兵、関口智嗣、情報処理学会研究報告、HPC-90-8, 43-48(2002)
- [5] 西川武志、長嶋雲兵、関口智嗣、情報処理学会研究報告、HPC-92-8, 43-48(2002)
- [6] Lecture Notes in Computer Science (LNCS), Vol. 2659, pp.244-253 (2003)
- [7] 量子化学グリッド概要 <http://unit.aist.go.jp/grid/QCgrid/>