

量子分子動力学プログラムの新規解析モジュールの開発

遠藤 明¹, 小野寺 拓¹, 鈴木 愛², 坪井秀行¹, 畠山 望¹, 高羽洋充³,
久保百司⁴, 宮本 明^{2,3,1}

¹ 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-1302)

² 東北大学未来科学技術共同研究センター (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-10)

³ 東北大学大学院工学研究科化学工学専攻 (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-1302)

⁴ 東北大学大学院附属工エネルギー安全科学国際研究センター (〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-11-701)

【緒言】

当研究室ではこれまでに、電子状態変化を伴う化学反応ダイナミクスを高速に計算可能な Tight-binding 量子分子動力学シミュレータ Colors の開発と応用[1], 超高速化量子分子動力学法の開発と表面反応解析への応用[2]を進めてきた。最近, Colors に基づく基準振動解析などの解析モジュールの新規開発などを進めている。ここでは, 新規開発された基準振動解析モジュールについて紹介する。

【方法】

基準振動解析モジュールのフローを図 1 に示す。分子や結晶について得られる原子間振動の情報を理論的に求める手法として、古くから GF 行列法[3]が知られている。ここでは、コーディングの容易さから、デカルト座標による基準座標行列 \mathbf{x} と力の定数行列 \mathbf{F} を用いる Fx 行列法[4]を用いた。力の定数行列 \mathbf{F} は、あらかじめ構造最適化計算をした分子・結晶モデルについて、原子 1 個につき 6 方向移動させながら動かした原子にかかる力の数値微分を計算し、これを原子間相互作用エネルギーの二次微分とみなして決定した。行列 \mathbf{F} と \mathbf{x} に関する行列の一般化固有値問題を解くこと

で得られる振動モード j の固有値 λ_j と真空中の光の速度から振動波数 ν_j を算出する。一般化固有値問題の解法として、LAPACK の *dsygv* サブルーチン[5]を利用した。赤外吸収強度は双極子モーメントの座標に関する微分から、ラマン散乱強度は Finite Field 法[6]に基づき分極率テンソルの座標に関する微分を求めることで算出した。

【結果】

現時点で、直線型 3 原子分子である CO₂ 分子についてテスト計算したところ、非対称伸縮振動モードにおいて赤外吸収ピークが出現しラマン散乱ピークが消失すること、対称伸縮振動モードにおいて赤外吸収ピークが消失しラマン散乱ピークが出現することを確認している。また、基準座標から振動状態を確認するため、可視化ツール RYUGA [7]に対応した構造ファイル出力も行えるようになっている。発表当日は、本ツールの妥当性など議論したい。

参考文献

[1] K. Kasahara et al., *Electrochem. Solid-State Lett.*, **9** (2006) A490. [2] Md. K. Alam et al., *J. Phys. Chem. C*, **113** (2009) 7723. [3] E. B. Wilson, Jr., *J. Chem. Phys.*, **7** (1939) 1047. [4] 日本化学会編, *実験化学講座(続)10 赤外吸収スペクトル*, 丸善, (1964) 465. [5] <http://www.netlib.org/lapack> [6] D. R. Fredkin et al., *J. Chem. Phys.*, **78** (1983) 7077. [7] R. Miura et al., *Catal. Today*, **23** (1995) 409.

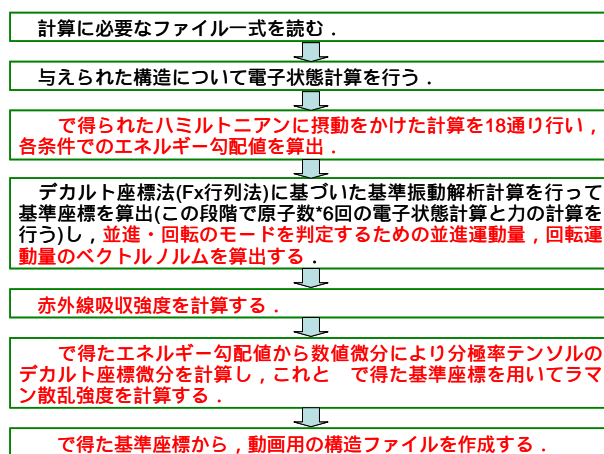


図 1. 基準振動解析モジュールの流れ。