

人工力誘起反応(AFIR)法の周期系への拡張:

炭素の結晶構造探索への適用

○高木 牧人¹, 前田 理^{2,3}, 武次 徹也²¹北大院総合化学, ²北大院理, ³JST-CREST

m.takagi@mail.sci.hokudai.ac.jp

【序論】 結晶は様々な多形を持ち、その構造に応じた特異な性質を持つ。理論科学では、結晶構造を予測するということが重要な課題となっている^[1]。本研究では有機反応などの解析に使われている反応経路自動探索法の1つである人工力誘起反応法(Artificial Force Induced Reaction: AFIR)法^[2,3]を周期境界条件(Periodic Boundary Condition: PBC)を考慮したDFT法に拡張し、炭素の結晶構造探索を行った。

【計算手法】 結晶構造の記述には周期境界条件を用いた。単位格子は平行六面体であり、3つのTransition Vector (TV)で記述できる。1つのTVは (x, y, z) の3変数で記述できるので、原子数が N 個のとき3次元のPBCが課された場合は $3N + 3$ 個の自由度を持つことになる。ポテンシャルエネルギーのTVに関する微分は応力テンソルを変換することで得た。同様に2次元結晶では $3N$ 次元、1次元結晶では $3N - 3$ 次元の空間の探索を行えば良い。本研究では2次元や1次元結晶のみの構造探索も行った。また、単位格子の取り方には任意性があるため、周期系に対する同一判定法を開発し、実装した。本計算にはGRRMプログラム開発者版を利用し、エネルギーとエネルギー勾配、応力テンソルはSIESTAプログラムを用いたDFT計算により求めた。汎関数はPBEを使用し、基底関数はDZPを用い、Grimmeのempirical dispersion^[4]を考慮した。

【結果】 まず、3次元結晶について1つのランダムに生成した構造から探索を行い、 C_4 / 単位格子の結晶構造探索を行った。次に、ここで得られた構造を初期構造として、 C_8 / 単位格子の探索を行った。この結果、ダイヤモンドやグラファイトなど先行研究で報告されている安定な構造(図1)を探索した上で、新奇な安定構造を発見した。2次元結晶と1次元結晶については当日報告する。

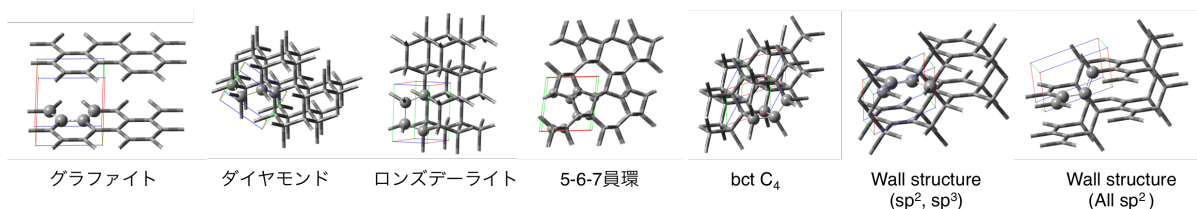


図1. 探索で見つかった先行研究で報告されている安定な構造

[1] A. R. Oganov, et al., *J. Phys.: Condens. Matter*, **20**, 064210, (2008), [2] S. Maeda, et al., *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **15**, 3683 (2013), [3] S. Maeda, et al., *J. Comput. Chem.*, **35**, 166 (2014), [4] S. Grimme, *J. Comput. Chem.*, **27**, 1787, (2006)