

研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		分子間振動の粗視化理論を利用した分子結晶の多形安定性評価法の構築			
研究テーマ (欧文) AZ		Diagnosis for the stability of crystalline polymorphs utilizing a theory for coarse-graining intermolecular vibration			
研究氏 代表名 者	カタカナ CC	姓) ホウジョウ	名) ヒロヒコ	研究期間 B	2016 ~ 2018 年
	漢字 CB	北條	博彦	報告年度 YR	2018 年
	ローマ字 CZ	Hirohiko	Houjou	研究機関名	東京大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		東京大学 生産技術研究所・准教授			
概要 EA (600 字~800 字程度にまとめてください。)					
<p>本研究は、分子結晶中の分子間振動(ソフトモードフォノン)の観点から、結晶多形の熱力学的な安定性を評価する方法を構築することを目的とした。本研究は、(1)当研究室で開発された一般化 GF 法に基づいて、分子結晶のフォノンバンドを計算できるような環境を構築する;(2)実測された結晶構造について分子の充填構造を解析し、熱力学的な安定性との関連を調べる、という二つのアプローチからなる。項(1)については理論の定式化はほぼ完了し、プログラムに実装する前段階まで到達した。しかし、一般化 GF 法による粗視化計算においては、分子間振動と分子内振動のカップリングを慎重に考慮する必要があり、計算の信頼度を保ちつつ粗視化度を設定する際の客観的な判断基準が必要であることがわかった。本研究ではこの問題を解決することを優先し、粗視化モデルの忠実度指標(fidelity index)を提案するに至った。項(2)に関してハロゲン置換されたサリチリデンアニリンの類縁体群の結晶構造を網羅的に探索したところ、これらの分子群はハロゲン原子の種類や置換位置を変えることによって同形・異形を含む種々の結晶構造を与えることがわかった。これらの結晶構造中ではハロゲン原子間の短距離近接が共通してみられ、その分子配列パターンは大きく二種に分類された。これらの分子群の間では任意の割合で固溶体ができることが示唆され、構成成分の組成によっては固相間相転移を示すものもあった。このような分子群は、分子間相互作用と多形安定性との関係を調べるのに適していると考え、ハロゲン原子を含むモデル化合物をもちいて分子間相互作用のパラメータを抽出することを試みた。Gaussian09 および CRYSTAL14(ソフトウェア)による計算を進めてきたが、計算時間と精度のバランスの良い条件を検討するのに時間がかかり、目的は十分に達成されていない。</p>					
キーワード FA	分子間振動	粗視化	結晶多形	ソフトモードフォノン	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA									
研究機関番号 AC					シート番号									

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 ^{GB}	Indices to evaluate the reliability of coarse-grained representations of mixed inter/intramolecular vibrations							
	著者名 ^{GA}	M. Isogai and H. Houjou	雑誌名 ^{GC}	Journal of Molecular Modeling					
	ページ ^{GF}	24:221, 1~8	発行年 ^{GE}	2	0	1	8	巻号 ^{GD}	24
雑誌	論文標題 ^{GB}								
	著者名 ^{GA}		雑誌名 ^{GC}						
	ページ ^{GF}	~	発行年 ^{GE}					巻号 ^{GD}	
雑誌	論文標題 ^{GB}								
	著者名 ^{GA}		雑誌名 ^{GC}						
	ページ ^{GF}	~	発行年 ^{GE}					巻号 ^{GD}	
図書	著者名 ^{HA}								
	書名 ^{HC}								
	出版者 ^{HB}		発行年 ^{HD}					総ページ ^{HE}	
図書	著者名 ^{HA}								
	書名 ^{HC}								
	出版者 ^{HB}		発行年 ^{HD}					総ページ ^{HE}	

欧文概要^{EZ}

This study aimed at establishing a method to evaluate the thermodynamic stability of crystalline polymorphs in terms of intermolecular vibration (soft mode phonon) in the molecular crystals. This study is composed of two parts: (1) to establish a scheme to calculate the phonon band based on the generalized GF method that we developed; (2) to investigate the molecular packing structures of some real crystals and find out its relation to thermodynamic stability. For (1), we almost completed the formulation of the theory, which is ready for being programmed. However, we noticed that the generalized GF method needs to take coupling terms between inter- and intramolecular vibrations into account carefully and that it requires an objective criterion to set the coarse-graining level with keeping the reliability of the calculations. In this study, we put a priority on solving this problem and led to proposing a fidelity index for coarse-grained models. For (2), the crystal structures of some halogen-substituted salicylideneanilines were thoroughly explored, revealing that these molecules allow various crystal structures including isomorphs and heteromorphs depending on halogen elements and substitution positions. We observed commonly in these crystal structures a short contact between halogen atoms, by which the patterns of the molecular arrangement were roughly classified in two. Also, it was suggested that arbitrary combinations from these molecules gave solid solutions, some of which showed solid-solid phase transition. We considered that this group of molecules was suitable for examining the relation between intermolecular interaction and polymorph's stability, and attempted to collect the parameters for the intermolecular force for halogenated model compounds. Use of Gaussian09 and CRYSTAL14 software, however taking us time to optimize the balance of the computational cost and accuracy, has not yet allowed us satisfactory results.