

プロジェクト名(タイトル):

## 超重要素錯体の相対論的量子化学計算

利用者氏名:

○笠松良崇(1)、渡邊瑛介(1)

理研における所属研究室名:

(1)仁科加速器科学研究センター 核化学研究チーム

## 1. 本プロジェクトの研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

原子番号 100 番以降の超重要素は、強い相対論効果の影響により、同族元素から予測される性質から逸脱した化学的性質を持つことが予測されている。ニホニウムが発見と命名に代表されるように理化学研究所仁科加速器科学研究センターは超重要素科学における世界的なプレゼンスを発揮しているが、なかでも我々核化学研究チームではこれまでに発見されたラザホージウムなどの超重要素の化学的性質を調べるべく、核化学・放射化学的手法に基づく化学研究を行ってきた。超重要素の原子核は低生成率、短寿命であることから化学実験を行うことは難しく、また化学実験から得られる情報も吸着材への吸着率などごく簡単な物理量のみである。このように実験での取り扱いが極めて難しい超重要素の化学研究においては、計算化学シミュレーションが極めて強力なツールとなる。

本年度は、昨年度ベンチマーク計算を行った  $\text{No}^{2+}$  の水和挙動のシミュレーションを行い、水溶液中における  $\text{No}^{2+}$  の水和構造を理論的に調べた。

## 2. 具体的な利用内容、計算方法

$\text{M}^{2+}-32\text{H}_2\text{O}$  ( $\text{M}=\text{Ca}, \text{Sr}, \text{No}$ ) クラスターモデルを初期構造として構築した。エネルギー最小化の後、NVT 一定のアンサンブルで  $T=300\text{K}$  の温度条件のもと第一原理分子動力学シミュレーションを行った。B3LYP/Stuttgart-RSC(for M atom)/def2-SVP(for H, O atom)レベルの密度汎関数理論に基づく量子化学計算をすべての逐次構造に対して行った。時間ステップは  $\Delta t=0.5\text{ fs}$  として、20000 ステップの計算を行った。ソフトウェアは NTChem を用いた。

## 3. 結果

$\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{No}^{2+}$  すべてのシミュレーションにおいて全電子エネルギーが平衡に到達するのに 2.5 ps 要したため、それ以降の 7.5 ps のトラジェクトリを解析した。得られた  $\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{Sr}^{2+}$  の水和構造パラメータは、先行する研究で得られた値と

よく一致していた。得られた動径分布関数から、 $\text{No}^{2+}$  の第一水和圏の平均配位数は 7.5、 $\text{No}^{2+}-\text{O}$  原子間の平均距離は 2.48 Å と求まった。この水和距離は  $\text{Ca}^{2+}$  と  $\text{Sr}^{2+}$  との中間の値であり、過去に行われた陽イオン交換実験から示唆される順序と一致した。

## 4. 今後の計画・展望

現在、タイムステップを変化させたり、初期構造を微妙に変化させたりした場合に MD 計算で得られる構造パラメータのばらつきについて現在調査中である。さらに、 $\text{Cl}^-$  イオンなど無機配位子との水溶液中の相互作用についても今後系統的に調べていく予定である。

2021 年度 利用研究成果リスト

**【ポスター発表】**

○渡邊瑛介、笠松良崇、中西諒平、大高咲希、中嶋隆人、篠原厚、『第一原理分子動力学計算によるノーベリウムの水和構造の理論研究』、日本放射化学会第 65 回討論会(2021) (オンライン、ポスター2P02) 2021 年 9 月 22-24 日