

量子化学計算に基づく自動ポテンシャルフィッティング機能を実装した分子動力学計算プログラムの開発と応用

○ 三浦隆治¹, 鈴木 愛², 坪井秀行¹, 畠山 望¹, 遠藤 明¹,
高羽洋充¹, 久保百司¹, 宮本 明^{2,1}

¹ 東北大学大学院工学研究科(〒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 6-6-11-1302)

【緒言】より実験研究に効果的な分子シミュレーションを行うためには、計算モデルの大規模化が重要である。分子動力学(MD)法は比較的大規模な計算が可能であるが、電子の移動を取り扱わないため、化学反応を考慮した検討が困難である。一方、量子化学計算は化学反応を考慮することができるが、比較的計算コストが高く、大規模モデルの計算が難しい。そこで既存の MD 計算プログラムに、計算の進行状況に応じて量子化学計算プログラムを呼び出し、その結果に基づいてポテンシャルを自動的に最適化する機能を実装することで、化学反応を考慮した分子動力学計算を試みた。

【方法】プログラム開発は一般的な Linux (UNIX) 環境で行い、ソースコードは ANSI 準拠の C 言語で記述した。Linux 環境であれば稼働する高い互換性を実現するため、標準のライブラリのみを使用した。開発のベースとなる MD 計算プログラムには、これまで当研究室で開発してきた New-RYUDO を、呼び出す量子化学計算プログラムには同じく COLORS を用いた。

【結果と考察】COLORS の計算結果から、各原子の電荷をそのまま利用するとともに、原子間エネルギーが負の場合は Morse ポテンシャル(式1)を、正の場合は近接交換反発ポテンシャル(式2)を用いて、それぞれポテンシャルカーブが一致するようにパラメータ D_{ij} または a_{ij} を調整させた。この概念を Morse ポテンシャルを例にして図1に示す。これにより比較的高速な最適化を実現した。計算中に COLORS を呼び出すタイミングとしては、一定の計算ステップ間隔のほか、任意の2原子の接近時などを設定できるようにした。これにより、計算の厳密さと計算速度のバランスを取りやすくなった。図2に本プログラムを用いた水分子による Si 表面酸化過程の計算結果を示す。Si 表面に吸着した水分子が、後から来た水分子を介することで、OH 基と H 原子に解離して Si 原子に結合する様子が観察された。以上から、本研究により量子化学計算結果を応用した分子動力学計算がより容易になったといえる。

$$E_{ij} = D_{ij} \{ \exp[-2\beta_{ij}(r-r_{ij})] - 2\exp[-\beta_{ij}(r-r_{ij})] \} \quad (\text{式1})$$

$$E_{ij} = f_0 b_{ij} \exp\left(\frac{a_{ij}-r}{b_{ij}}\right) \quad (\text{式2})$$

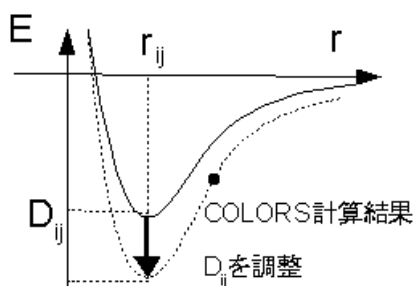


図1. Morse ポテンシャルのフィッティング

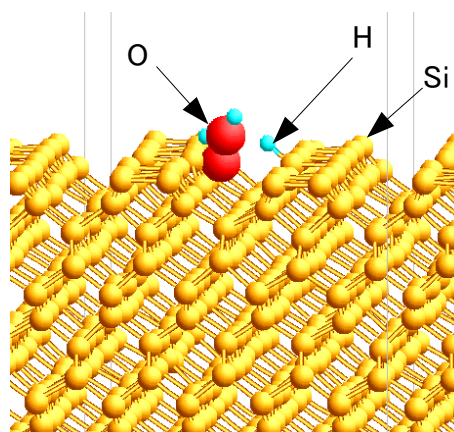


図2. H₂O/Si 表面の計算