

反応分子動力学計算ソフトウェア

ReaxFF 2018 リリース



SCM社製 AMS (Amsterdam Modeling Suite、パッケージ全体の名称を ADF から AMS に変更しました) の反応 MD モジュール ReaxFF の新バージョンがリリースされました。新バージョンの ReaxFF 2018 では、CVHD (Collective Variable-driven Hyperdynamics) や bond-boost といった燃焼反応やポリマーの架橋反応の MD を加速させるための手法が搭載されたことに加えて、CMA-ES (Covariance Matrix Adaptation Evolution Strategy) 法を用いた反応力場パラメーターの最適化に対応しています。また、非平衡 MD による熱伝導率の計算や、圧力・弾性テンソルと関連のプロパティ計算ができるようになりました。本稿では新機能の一部を紹介します。

■はじめに

ReaxFF は、ペンシルベニア州立大学の van Duin 教授らによって開発された反応分子動力学計算プログラムです。既存の古典分子動力学プログラムとは異なり、結合の生成と開裂を記述することができる反応力場を搭載しています。反応力場は量子化学計算のデータから決められており、化学反応の高精度な記述を可能にします。AMS 製品の ReaxFF は、下記のとおりバージョンアップの度に多くのパラメーターセットが追加されており、新バージョンではホール (Ho) や電子 (EI) を付加的な粒子として取り扱う eReaxFF 法に対応したパラメーターセットが使用できます。

- ADF 2013: 17 sets, 19 elements
- ADF 2014: 38 sets, 29 elements
- ADF 2016: 58 sets, 38 elements
- ADF 2017: 79 sets, 38 elements
- AMS 2018: 81 sets, 40 elements + Ho/EI

■加速 MD 法

ReaxFF を用いることで反応 MD が可能になりますが、現実的な計算時間内で追えるのは数ナノ秒程度の反応となるため、対象とする反応の時間スケール次第では MD を加速させるための何らかの手法が求められます。

■CVHD

反応を加速させるための簡便な方法として高温 MD が挙げられますが、この方法の欠点として、高温にしたことで元々の温度であれば起こらなかった反応も起こり得しまうため、再現したい温度での反応生成物等の情報が正確に得られない可能性があります。実際、ReaxFF によるアルカン等の燃焼反応の MD でも高温 MD (~2000K) がよく用いられています。しかし、Bal と Neyts [*Chem. Sci.*, **7**, 5280 (2016)] による CVHD を用いた ReaxFF のシミュレーション結果から、700K といった現実的な温度での燃焼反応で得られる生成物が高温での結果とは大きく異なることがわかりました。彼らの CVHD 法では、bond-breaking 用の CV 変数を基にしたバイアスポテンシャルを動作中に追加する Hyperdynamics を実行することで、n-ドデカンの熱分解や燃焼反応についてミリ秒を超えるシミュレーション (加速を加味した換算時間で) の実現が可能になっています。

■bond-boost

Vashisth らによって最近提案された bond-boost 法 [*J. Phys. Chem. A*, **122**, 6633 (2018)] が ReaxFF 2018 に実装されました。bond-boost 法では、あらかじめ決めておいた結合距離等の条件が満たされたときに、指定した原子間に結合ポテンシャルを人為的に付け加えることで結合の生成を加速させる手法です。エポキシ樹脂の架橋反応はその反応障壁が高いために通常の MD の時間スケール (数ナノ秒程度) では反応が完了しない典型的な例ですが、bond-boost 法は現実的なシミュレーション時間内で効率的に架橋構造を得る手法として有効です。図1は、主剤として BisF (diglycidyl ether of bisphenol-F)、アミン系硬化剤として DETDA (diethyltoluenediamine) を用いて bond-boost 法を適用して得られた架橋構造を示しています。主剤8個、硬化剤4個からなる小さな系ですが、1構造あたり1時間程度の計算時間で架橋反応が完了し、最大で0.88の結合率を示す架橋構造が得られました。

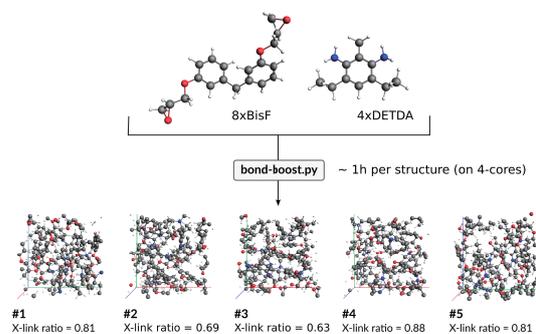


図1. bond-boost法を用いて得られたエポキシ樹脂の架橋構造

■機械特性の計算

ReaxFF 2018 では応力計算が可能になりました。これにより bond-boost 法等で用意したエポキシ樹脂の架橋モデルに対して応力-ひずみ曲線を求めることができ、ヤング率などの機械特性の計算が可能になっています (図2)。

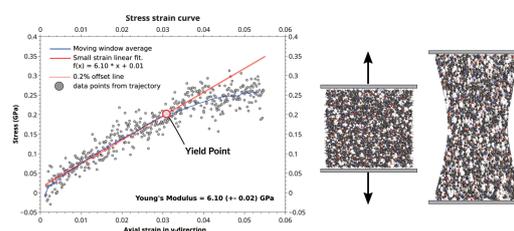


図2. エポキシ樹脂の機械特性の計算