

電荷自己無撞着 ASED 法によるイオン液体分子の量子分子動力学計算

東京大学 大学総合教育研究センター

西野信也、藤原毅夫

トヨタ自動車

山崎久嗣

東京工科大学 コンピュータサイエンス学部 コンピュータサイエンス学科

山元進

鳥取大学 工学部 応用数理工学科

星健夫

大規模系の電子状態計算法として atom superposition and electron delocalization (ASED) 法¹⁾は有用であり、近年では電荷自己無撞着計算を含めた議論も行われている²⁾。こうした中で我々は、大規模系を対象とした電荷自己無撞着 ASED 法に基づく量子分子動力学計算パッケージの開発を線形計算アルゴリズムの構築と並行して進めている[Extra Large Scale Electronic States Calculation (ELSSES) package³⁾]。

本研究では、近年広範な応用が期待されているイオン液体分子の電子構造計算を、ELSSES パッケージを用いて行い、複雑な分子系に対する ELSSES の有効性を検証した。具体的なイオン液体分子としては PP13-TFSA (図 1)を扱った。Tight Binding (TB) 法に基づく量子計算で常に問題になる点として、TB パラメータの決定手法が確立されていないことがあげられる。この問題に対し、我々は先ず、イオン液体分子を構成する原子を含む小さな分子系に対して Gaussian の計算結果を参照とした TB パラメータの決定を行った。その後、このようにして決定した TB パラメータを用いて PP13-TFSA モノマーの構造最適化計算を行い、状態密度、固有状態の情報をもとに TB パラメータを再調整し、TB ハミルトニアンを構成した。ELSSES と Gaussian で得られた状態密度の比較を図 2 に示す。状態密度の全体像、HOMO-LUMO ギャップが良く一致していることがわかる。

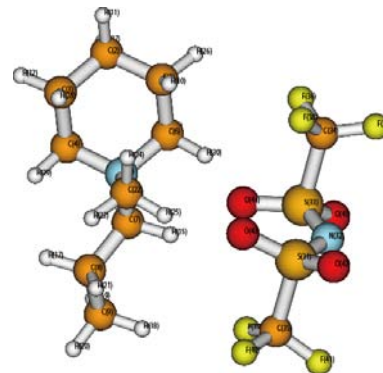


図 1: PP13-TFSA 分子。

さらに、上述したように決定した TB パラメータを用いて、(PP13-TFSA)₄ に対して数十ピコ秒の量子 MD 計算を行い、適切に TB パラメータを設定することにより、イオン液体分子のような複雑な分子系に対しても ELSSES パッケージが有効であることを確認した⁴⁾。

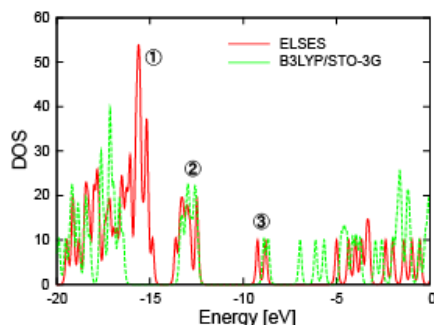


図 2: PP13-TFSA の状態密度。

1) A. B. Anderson, J Chem. Phys. 62 (1975) 1187. K. Nath and A. B. Anderson, Phys. Rev. B41 (1990)5652. A. Bellec, et al., Nano Lett. 9 (2009) 144.

2) M. Elstner, et al., Phys. Rev. B58 (1998) 7260.

3) ELSSES package is opened at <http://www.elses.jp/>

4) 多くの議論をしてくださった山本智 博士(豊田中央研究所)に感謝致します。