

# GRRM と MD を用いた高分子材料の生成と特性の理論的研究

(東北大院理<sup>1</sup>・東北大流体研<sup>2</sup>) ○岸本直樹<sup>1</sup>, 菊川豪太<sup>2</sup>

kishimoto@tohoku.ac.jp

我々は量子化学計算 (GRRM プログラム) を用いた化学反応経路の自動探索で得られる活性化エネルギーや反応熱を反応分子シミュレーションに組み込むことで、高分子の生成過程を再現することを目指している。以下の2つの計算方法を開発し、複合材料の母材である架橋ネットワーク高分子の生成過程と力学特性を研究している。

① 分子触媒を用いた架橋ネットワーク構造生成過程のための Cat-GRRM/MC/MD 法

② 多段階可逆反応経路を経由する架橋ネットワーク構造生成過程のための Multistep-GRRM/MC/MD 法

①については、熱硬化性樹脂の生成において、近接する分子との相互作用によって活性化エネルギーが下がる反応過程を考慮した反応分子シミュレーション法を開発することで、実験と遜色ない力学特性を得ることが出来た[1]。また②では、中間体を経由するケースで、吸熱反応過程にも対応した反応分子シミュレーション法を開発した[2]。

①に於いて、GRRM プログラムを用いた量子化学計算では、2分子直接反応 (反応1) と、自己触媒分子が遷移状態のエネルギーを安定させるのに関与した3分子反応 (反応2) について、反応の活性化エネルギーを計算した。得られた活性エネルギーと反応熱の情報を用いて、LAMMPS を使った古典分子動力学法によって DREIDING 力場下で2種類の樹脂モデルを作成した。反応1では直接反応経路のみを考慮し、反応2ではGRRM で得られた3つの自己触媒反応経路を考慮した。LAMMPS は樹脂モデルを構造緩和させるために使用し、反応確率に基づいて Python で分子を反応させた (MC/MD 法)。反応確率  $k$  は活性化エネルギーと反応する温度を含んだ Arrhenius 式に比例させて計算し、反応に有効な距離まで官能基が互いに近づいた際に、1以下の乱数よりも  $k$  が大きな場合には共有結合を生成させた。300 K で樹脂モデルを緩和させた後に、密度、体積収縮、ガラス転移温度、ヤング率などの力学的特性を LAMMPS を用いて計算した。②に於いては、GRRM プログラムを用いて3分子直接反応 (反応3) と、2連続2分子反応 (反応4) について、反応の活性化エネルギーを計算した。反応4の中間状態が吸熱的であるために、逆反応過程の確率  $k_{-1}$  を計算して中間体を解離させながら樹脂モデルを作成した。以上の結果については当日報告する。本研究は量子化学探索研究所 (IQCE)、日本学術振興会 (JSPS 科研費)、戦略的イノベーション創造プログラム (SIP) 「統合型材料開発システムによるマテリアル革命」(管理法人: JST) の各研究助成を受けました。深く感謝いたします。

## References

[1] Y. Xi *et al.*, *submitted for publication*. [2] Y. Bai *et al.*, *submitted for publication*.