

モンテカルロシミュレーションによる 固体の自由エネルギー計算

関西学院大理工, 細見有希, 西谷滋人

Monte Carlo simulation for first principles free energy calculation

Kwansei Gakuin Univ., Yuki Hosomi, and Shigeto R. Nishitani,

材料設計において系の自由エネルギー変化は重要である。第一原理計算は原理的に基底状態の計算である。有限温度の計算には、擬調和振動子近似に基づいたphonon計算のパッケージがいくつか開発されている[1]。しかし、半導体や相変態温度近傍での振る舞いには、非調和の影響を取り込むことが不可欠である。だが現在、そのような計算パッケージは提供されていない。

一般的にこのような計算には、有限温度での分子動力学シミュレーションが用いられる。しかし、自由エネルギーの絶対値を分子動力学シミュレーションから得ることは難しい。一方、モンテカルロ (MC) シミュレーションでは自由エネルギーを求める手段としてFrenkel法が存在する [2]。この手法では自由エネルギーは、Einstein結晶の標準状態から、原子間ポテンシャルによって表される現実的な系までの遷移状態を、直接積分することによって得られる。

第一原理計算にFrenkel法を適用するには、いくつかの課題がある。特にシミュレーションの進展に伴う系全体の原子の並進運動や回転運動がある。本研究では複数の原子の中心座標及びモーメントを中和することで並進・回転運動を止めることを試みた。このようにして原子の動きを制限することによって、いくつかの自由度は凍結する。これらがMCシミュレーションに与える影響についてモデルポテンシャルを用いて検証する。

[1]K. Parlinski, Z. Q. Li and Y. Kawazoe, Phys. Rev. Let., 78, 4063-4066 (1997).

[2]D. Frenkel and A. J. C. Ladd, J. Chem. Phys., 81, 3188-3193(1984).