広島工業大学紀要研究編
第59巻（2025）31-33
論　　文

Reaxffを用いた高温環境下におけるイソホロンジアミンの安定性に関する分子動力学シミュレーション

岸本　俊介*・大村　訓史*

（令和6年11月6日受付）

Stability of isophoronediamine under high-temperature conditions: molecular-dynamics simulations based on Reaxff.

Shunsuke KISHIMOTO and Satoshi OHMURA

（Received November 6, 2024）

Abstract

Using molecular dynamics simulations, we have investigated the behavior of isophoronediamine under high-temperature conditions. Simulations were performed using two types of Reaxff force fields. At room temperature, stable calculations of isophoronediamine were possible with either force field. Regarding the decomposition mechanism of the molecule under high-temperature conditions, it was observed that C-N bond breaking occurred around 2500 K with one of the force fields. With the other force field, a C-C bond was broken and a branched chain-like structure was observed. The temperature at which these bonds breaking occurred was found to differ depending on the force field used. Additionally, simulations were also performed in the presence of water to observe its influence on the decomposition process.

Key Words: Isophoronediamine, molecular dynamics, CCUS

1．はじめに

地球温暖化の対策が急がれている中、脱炭素化への取り組みの1つとして、火力発電所や工場から排出されたCO_2を回収・利用する技術であるCCUS（Carbon dioxide Capture Utilization and Storage）が注目されている[1)]。近年、東京都立大学の研究グループによって、常温環境においてイソホロンジアミン水溶液が大気中のCO_2を吸収することが判明し、従来の方法と比較してCO_2の吸収と脱離を繰り返しても性能に影響がないという研究結果が報告された[2)]。このような状況のもと、CO_2の吸収メカニズム解明のため、分子の動きを原子レベルで解像できる分子動力学シミュレーションを用いた研究が注目されている。CO_2との反応を想定した場合、力場として反応性力場であるReaxffを用いることになるが、いつくかの異なるパラメータが提案されている。また、イソホロンジアミンのようなアミン化合物を用いて、発電所や工場から排出されるガス内のCO_2を直接吸収する技術に関する研究も進められており、イソホロンジアミンの高温環境下での挙動に関する理解も求められている。そこで本研究では、パラメータの異なる2種類のReaxffを用いて、力場の違いで高温環境下でのイソホロンジアミンの挙動がどのように異なるのかを検証した。

2．計算の詳細

本研究では、分子動力学シミュレーションのソフトフェ

* 広島工業大学工学部環境土木工学科

ア と し て LAMMPS（Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator）を使用した。15Å×15Å×15Åの周期境界条件を適応したスーパーセルを用い、セルの中にイソホロンジアミン分子を１つ配置した場合と、その周りを密度1.0 g/mL になるよう水分子を充填させた場合を用意した。図１にイソホロンジアミンの原子配置を示す。イソホロンジアミンの組成式は $C_{10}H_{22}N_2$で、C-C 結合でできた六角形のリングの周りに CH_3と NH_2、CH_2NH_2が結合した構造である。力場として、LAMMPS の中に標準実装されている Reaxff（ff1）[3]と、有機分子と水の混合系でよく使用される Reaxff（ff2）[4]の２種類の力場を用いた。高温環境下でのシミュレーションを行う前に構造最適化を行い、常温（300 K）にて3000 fs 間計算を行い、その後に対象とする温度での計算を25000 fs 間行った。温度は500 K から500 K 刻みで3000 K の範囲を対象とした。

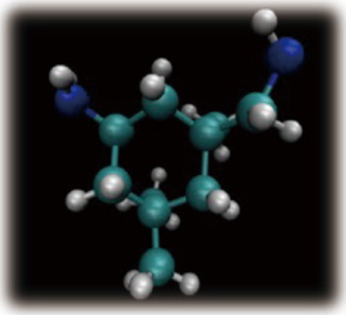

図１　イソホロンジアミンの原子配置
水色が炭素、白が水素、青が窒素を表している

３．結果と考察

シミュレーションから得られた原子配置の時間発展を可視化し、分子が壊れている様子から、分子の安定性を評価した。イソホロンジアミン単体では、ff1を用いた場合、2500 K で N-C 結合が切れ、分子が壊れた。この際、２つの N-C 結合がほぼ同時にきれるが、その後、しばらくリング構造の安定性は保っている（図２(a)）。一方、ff2においては、3000 K で C-C 結合が切れ、分子が壊れた。この様子を図２(b）示す。

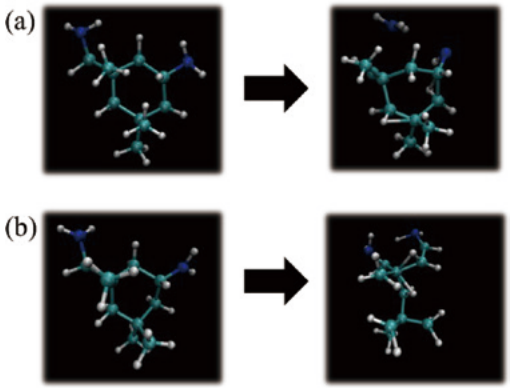

図２　イソホロンジアミンが壊れる様子.（a）ff1を用いた場合（2500 K）（b）ff2を用いた場合（3000 K）

次に、分子の周りに水（H_2O 分子）が存在する場合の高温環境下のシミュレーションを行い、同様の解析を行った。周辺に水がある環境においては、2000 K までは分子が安定しており、2500 K で分子の解離・形状変化が見られた。まず、ff1の場合、分子単体の場合と同様に、C-N 結合が切れ、その後、C-C 結合が切れることでリングが壊れた（図３(a)）。C-N 結合が切れたあとは、NH_3、C-C 結合が切れ、C_3H_3のようなフラグメントが観測された。ff2の場合、単体より低い温度2500 K で分子の形状が変化した。しかし、ff1とは異なり、フラグメントにはならず、N を含む７員環のような形状が観測された（図３(b)）。

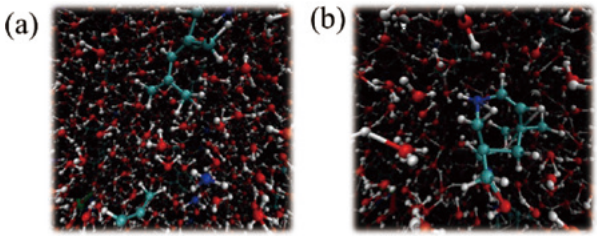

図３　高温環境下における水に囲まれたイソホロンジアミンの様子（2500 K）.（a）ff1を用いた場合（2500 K）、（b）ff2を用いた場合（2500 K）、

４．まとめ

今回、２種類の Reaxff を用いた分子動力学シミュレーションによって高温環境におけるイソホロンジアミンの挙動について検討し、以下の結果が得られた。

25000 fs までの計算の結果、単体のイソホロンジアミンにおいて、ff1では2500 K で、ff2では3000 K で分子が壊れた。その壊れ方に関しては、力場によって異なった現象が見られた。ff1では C-N 結合がきれることで分子が壊れる。ff2では、C-C 結合が切れることで分子が壊れる。また、分子の周囲に水がある場合、2500 K で ff1では分子が解離し、ff2では分子の形状が変化した。これらの結果より ff1

を用いた方がより激しく解離することが分かった。

参考文献

1）環境省 ,“CCUS を活用したカーボンニュートラル社会の実現に向けた取り組み”, https://www.env.go.jp/content/900440703.pdf, (2019)
2）S. Kikkawa et al., ACS Environ.Au 2 354（2022）
3）A. Strachan et al., Phys. Rev. Lett. 91 098301（2003）
4）W. Zhang et al., J. Phys. Chem. B 122 4083（2018）