

Научная статья

УДК 544.23.022, 544.478.02

DOI: 10.15372/KhUR2025655

EDN: OCBWPK

Компьютерное моделирование процессов диффузии в тетрафтороборатах тетра-*n*-алкиламмония $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 1-4$)

И. И. ГАЙНУТДИНОВ ✉, Н. Ф. УВАРОВ

Институт химии твердого тела и механохимии СО РАН, Новосибирск, Россия

E-mail: ur1742@gmail.com ✉, uvarov@solid.nsc.ru

Аннотация

Разработаны компьютерные модели тетрафтороборатов тетра-*n*-алкиламмония. Проведены исследования транспортных, структурных и термодинамических свойств в широком диапазоне температур. Показано, что в условиях модельного эксперимента кристаллизационные процессы в рассмотренных органических солях кинетически заторможены, модели остаются в стеклообразном состоянии в температурном диапазоне от температуры плавления до 300 К. Коэффициенты диффузии в расплавленном состоянии находятся в соответствии с результатами эксперимента и составляют 10^{-7} – 10^{-8} м²/с.

Ключевые слова: органические ионные соли, ионная проводимость, электролиты, молекулярная динамика, нанокompозиты

Финансирование: работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 20-13-00302-П).

Для цитирования: Гайнутдинов И. И., Уваров Н. Ф. Компьютерное моделирование процессов диффузии в тетрафтороборатах тетра-*n*-алкиламмония $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 1-4$) // Химия в интересах устойчивого развития. 2025. Т. 33, № 3. С. 315–321. DOI: 10.15372/KhUR2025655. EDN: OCBWPK.

Original article

Computer simulation of diffusion in tetra-*n*-alkylammonium tetrafluoroborates $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 1-4$)

I. I. GAINUTDINOV ✉, N. F. UVAROV

Institute of Solid State Chemistry, Siberian Branch of the Russian Academy of Sciences, Novosibirsk, Russia

E-mail: ur1742@gmail.com ✉, uvarov@solid.nsc.ru

Abstract

Computer models of tetra-*n*-alkylammonium tetrafluoroborates have been developed. The transport, structural, and thermodynamic properties were studied over a wide temperature range. It is shown that under the conditions of a model experiment, crystallisation processes in the organic salts under consideration are kinetically

inhibited, and the models remain in a glassy state in the temperature range from the melting point to 300 K. The diffusion coefficients in the molten state are in accordance with the experimental results, and are within 10^{-7} – 10^{-8} m²/s.

Keywords: organic ionic salts, ionic conductivity, electrolytes, molecular dynamics, nanocomposites

ВВЕДЕНИЕ

Для разработки новых, экологически чистых и эффективных способов получения и потребления электроэнергии можно использовать различные электрохимические устройства, такие как топливные элементы, аккумуляторы, суперконденсаторы и т. п. Важным направлением исследований в этой области остается поиск способов увеличения ионной проводимости электролитов, применяемых в этих устройствах, снижения их рабочей температуры и улучшение эксплуатационных характеристик – прочности, электрохимической стабильности и др. В последние годы наметились перспективные тенденции, связанные с возможностью использования в качестве электролитов систем на основе ионных жидкостей и органических солей [1–3].

Тетрафторбораты тетра-*n*-алкиламмония $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ – типичные представители класса органических солей четвертичного аммония с симметричными катионами, отличающимися размером катиона в зависимости от длины алкильной цепи. В этих солях имеются высокотемпературные ориентационно разупорядоченные пластические фазы, обладающие ионной проводимостью [4–8]. Преимуществами данных соединений является высокая электрохимическая стабильность, что позволяет увеличить энергоемкость электрохимических устройств на их основе. Однако эти соли обладают недостаточно высокой ионной проводимостью и относительно низкой механической прочностью. Одним из перспективных путей решения этих проблем является создание нанокомпозитов, содержащих как ионную соль, так и инертный наполнитель. Ранее нами было показано, что при добавлении в матрицу органических солей нанокристаллических оксидов, наноалмазов или при введении солей в поры высокопористых оксидов или металлоорганических каркасов величина проводимости солей замещенного аммония возрастает на несколько порядков. Этот эффект обнаружен в системах $(C_4H_9)_4NBF_4-Al_2O_3$ [9], $(C_4H_9)_4NBF_4-MgO$ [10], $(C_4H_9)_4NBF_4-SiO_2$ [11]. Во всех случаях появление высокой ионной проводимости в указанных нанокомпозитах обусловлено образованием аморфной фазы органической соли на границе контакта ионная соль/оксид. К сожалению, в настоящее время не существует надежных экспериментальных методик изучения локальной структуры и механизма ионного переноса в аморфных фазах, тем более в органических солях замещенного аммония, характеризующихся ориентационным беспорядком ионов и возможностью сильных конформационных изменений структуры катионов.

В этой связи для исследования структурных и транспортных свойств органических систем представляется перспективным применение методов компьютерного моделирования, в частности, квантовохимических расчетов и метода молекулярной динамики. Эти методы широко применяются для теоретического исследования органических солей, при этом практически все работы посвящены исследованию методами молекулярной динамики ионных жидкостей [12, 13]. Моделирование и сравнительный анализ свойств органических ионных солей в твердом или аморфном состоянии ниже температуры плавления ранее не проводились.

В недавних работах [14, 15] нами были получены предварительные результаты моделирования чистых солей $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 2, 4$) и нанокомпозитов $(C_4H_9)_4NBF_4-Al_2O_3$. Было показано, что соль $(C_2H_5)_4NBF_4$ кристаллизуется в фазу со структурой CsCl, не типичной для данного соединения, а соль $(C_4H_9)_4NBF_4$ не кристаллизуется, а переходит при охлаждении в аморфное состояние. В контакте с химически инертным оксидом Al_2O_3 ионная соль аморфизуется, но приобретает частичную упорядоченность в направлении, перпендикулярном плоскости контакта фаз, при этом возрастают значения коэффициентов диффузии ионов. Эти результаты качественно согласуются с экспериментальными данными для нанокомпозитных твердых электролитов $(C_4H_9)_4NBF_4-xAl_2O_3$ [6, 11]. Вместе с тем свойства чистых аморфных фаз солей замещенного аммония остались недостаточно подробно изученными.

В настоящей работе впервые проведено сравнительное исследование термодинамических, структурных и транспортных свойств органических солей замещенного аммония – $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 1-4$) – в широком диапазоне

В настоящей работе впервые проведено сравнительное исследование термодинамических, структурных и транспортных свойств органических солей замещенного аммония – $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 1-4$) – в широком диапазоне

температур, включая свойства исходных кристаллических фаз, расплавленных солей и фаз, образующихся при их охлаждении из расплава.

Цель данной работы – проведение квантово-химических расчетов отдельных ионов в системах $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 1-4$) для определения эффективных зарядов атомов; выполнение компьютерных экспериментов по плавлению-охлаждению этих соединений для уточнения параметров потенциалов взаимодействия; оценка применимости выбранного подхода к моделированию.

МЕТОДИКА КОМПЬЮТЕРНОГО МОДЕЛИРОВАНИЯ

На первом этапе были проведены квантово-химические расчеты отдельных ионов в системах $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 1-4$, далее N1–N4) с целью определения эффективных зарядов атомов для дальнейшего использования в молекулярно-динамическом моделировании. Расчеты проводились с помощью программного пакета Quantum Espresso [16, 17] по методу псевдопотенциала и присоединенных плоских волн (PAW).

Использовались псевдопотенциалы типа pbe-n-kjraw_psl.1.0.0.UPF для C, N, B, F и pbe-n-kjraw_psl.1.0.0.UPF для H из базы данных псевдопотенциалов, предоставляемых разработчиками Quantum ESPRESSO: <http://www.quantum-espresso.org/pseudopotentials>. Учитывалось дисперсионное взаимодействие в виде grimmi-3. Заряд атомов определялся методом Бейдера [18].

На втором этапе проводилось моделирование солей как ансамбля ионов с определенными выше эффективными зарядами атомов методом молекулярной динамики с использованием программного пакета LAMMPS [19] в GPU-версии [20–25]. Внутримолекулярные взаимодействия (связи, углы, двугранные углы) описывались в рамках силовых полей OPLS и DREIDING, межмолекулярное взаимодействие – потенциалом Леннарда–Джонса [26, 27] и кулоновским взаимодействием заряженных атомов катиона и аниона (параметры потенциала приведены в табл. 1, используемые в расчетах заряды – в табл. 2). Приведенные в таблице индивидуальные параметры преобразуются в парные по “геометрическим” правилам:

$$\varepsilon_{ij} = \sqrt{\varepsilon_i \varepsilon_j}, \quad \sigma_{ij} = \sqrt{\sigma_i \sigma_j}$$

где ε_i – энергетический параметр потенциала Леннарда–Джонса (глубина потенциальной ямы), σ_i – положение минимума потенциала.

ТАБЛИЦА 1

Параметры потенциала Леннарда–Джонса для присутствующих в модельных системах атомов

Атом	Глубина потенциальной ямы, ε , ккал/моль	Положение минимума потенциала, σ , Å
B	0.095	3.5814
F	0.06	2.94
N	0.0774	3.2625
C	0.066	3.5
H	0.03	2.5

ТАБЛИЦА 2

Заряды (q) атомов, использованные в расчетах (в единицах элементарного заряда)

N1	q	N2	q	N3	q	N4	q
B	2.335	B	2.322	B	2.344	B	2.46
F	-0.8166	F	-0.8127	F	-0.782	F	-0.75
N	-0.81	N	-0.7758	N	-0.74	N	-0.7
C	0.044	C1	0.0934	C1	0.1	C1	0.19
H	0.13	C2	-0.16	C2	-0.117	C2	-0.12
–	–	H	0.0986	C3	-0.12	C3	-0.12
–	–	–	–	H	0.074	C4	-0.18
–	–	–	–	–	–	H	0.06

Примечания. 1. Углерод нумеруется по порядку следования в алкильной цепи, начиная от ближайшего к азоту атома. 2. Прочерк – в данных соединениях атомов углерода меньше четырех.

К сожалению, мы не можем привести все параметры в табличном виде, поскольку их достаточно много для четырех систем, однако при необходимости мы можем предоставить данные дополнительно.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Проводились компьютерные эксперименты по плавлению и последующему охлаждению соединений $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ ($k = 1-4$). Была поставлена задача – тестирование разработанных моделей, уточнение параметров потенциалов взаимодействия, оценка валидности выбранного подхода к моделированию.

Исходные образцы представляли собой кристаллические упорядоченные системы, находящиеся в периодических граничных условиях. Для соединений $(CH_3)_4NBF_4$ (N1) и $(C_2H_5)_4NBF_4$ (N2) исходными являлись два стартовых варианта – структуры типа NaCl и CsCl, которые создавались путем размещения по позициям NaCl или CsCl анионов и катионов с последующей релаксацией; для солей $(C_3H_7)_4NBF_4$ (N3) и $(C_4H_9)_4NBF_4$ (N4) в

ТАБЛИЦА 3

Температуры плавления модельных систем в сравнении с экспериментальными данными

Система	Рассчитанное значение температуры плавления, К	Экспериментальное значение температуры, К [28]
$(\text{CH}_3)_4\text{NBF}_4$	1000	651 (разложение)
$(\text{C}_2\text{H}_5)_4\text{NBF}_4$	867	606 (разложение)
$(\text{C}_3\text{H}_7)_4\text{NBF}_4$	530	521
$(\text{C}_4\text{H}_9)_4\text{NBF}_4$	430	432

качестве исходных были взяты структуры высокотемпературных фаз этих соединений, приведенные в работе [28].

Моделирование осуществляли в ступенчатом режиме нагревания и охлаждения. Температуру увеличивали от стартового значения в диапазоне 100–200 К до температуры на 10–20 К выше температуры плавления, полученной на этапе нагрева, а затем снижали до исходных значений. Модели содержали 500–800 пар катионов и анионов. Модельную систему выдерживали 50 000 шагов при выбранной температуре в NPT-условиях (при постоянных значениях числа частиц N , давления P и температуры T), затем наблюдали 140 000 шагов в NVT-условиях (при постоянных значениях числа частиц N , объема V , температуры T). Регистрировали смещения атомов, энергию, объем системы и дру-

гие характеристики. Шаг по времени составлял 1 фс, общее время наблюдения – порядка 10 нс.

Исходя из смещений атомов рассчитывался коэффициент диффузии:

$$D = \frac{\sum_{i=1}^N (\vec{r}_i(0) - \vec{r}_i(t))^2}{t} \quad (1)$$

где $\vec{r}_i(t)$ – положение атома i в момент времени t . Отслеживались перемещения атомов бора (как центра аниона) и азота (как центра катиона).

Температуру плавления определяли по моменту резкого роста коэффициента диффузии от 10^{-11} – 10^{-10} до 10^{-8} м²/с. Одновременно плавление данных систем сопровождалось также и скачком объема (порядка 10 %) и потенциальной энергии системы (5–8 ккал/моль), а также визуально наблюдаемым разупорядочением исходной кристаллически упорядоченной системы. Для системы N1 предпочтительным является структурный тип CsCl, он обладает меньшей по сравнению с NaCl энергией, для N2 предпочтительным структурным типом является NaCl. Температуры плавления исследованных систем приведены в табл. 3. Для систем N1 и N2 мы не наблюдали структурных превращений ниже температуры плавления, сопровождающихся скачком потенциальной энергии и объема в процессе нагрева.

При нагреве N3 наблюдается структурный фазовый переход в кубическую фазу (рис. 1).

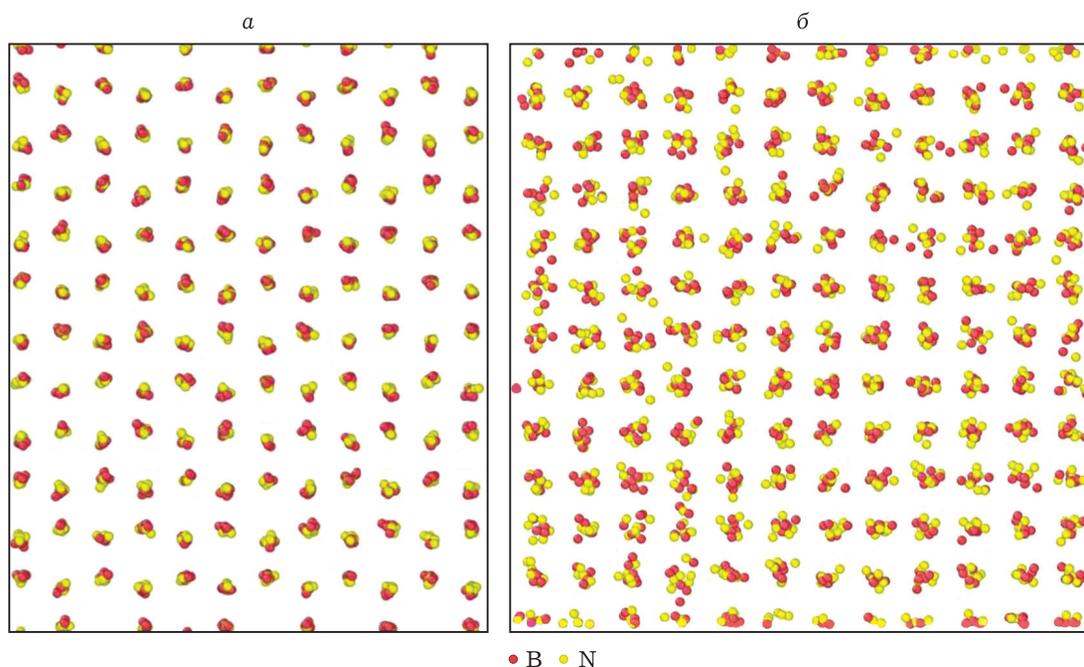


Рис. 1. Система $(\text{C}_3\text{H}_7)_4\text{NBF}_4$ при 300 (а) и 380 К (б). Вид в направлении Z – показаны атомы бора (красный) и азота (желтый) как центры анионов и катионов соответственно.

Для N4, N1 и N2 структурных изменений не обнаружено.

Вероятно, определенные изменения можно обнаружить, анализируя ротационную подвижность катиона и аниона, например, вычисляя автокорреляционные функции ориентации молекул. Но предварительный анализ подобных корреляторов для наших систем не показал каких-либо характерных разрывов в их поведении при изменении температуры: с ростом температуры характерное время потери ориентационной корреляции монотонно уменьшается.

При охлаждении из расплава кристаллизация наблюдается только для соли N1, но при температуре значительно ниже температуры плавления. Все остальные исследованные системы при охлаждении переходят в стеклообразное состояние. По-видимому, процесс кристаллизации в значительной степени затруднен из-за недостаточности доступного времени (менее 1 нс) в силу ограниченности вычислительных ресурсов и необходимые для формирования кристаллического порядка процессы произойти не успевают. Для примера на рис. 2 приведена радиальная функция распределения, построенная для системы N2 при различных температурах. Выбрана парциальная радиальная функция распределения бор-бор, как характеризующая структурное состояние анионной подрешетки. Видно, что охлаждение системы не приводит к кристаллизации анионной подрешетки, а следовательно, и всей системы. Радиальная функция распределения системы

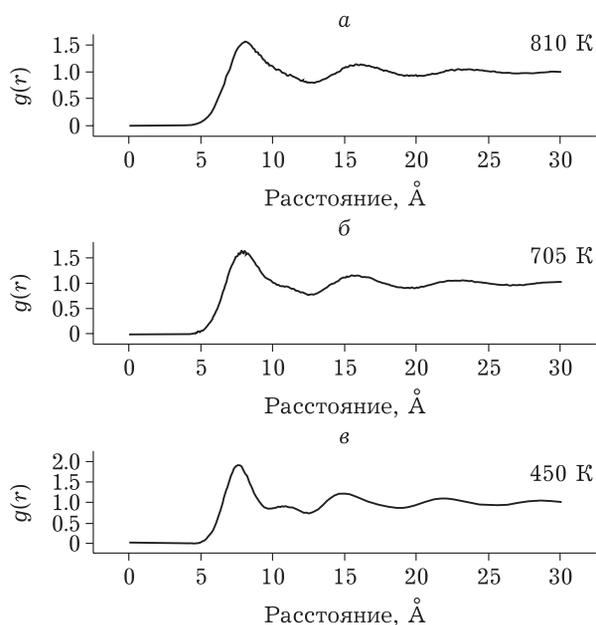


Рис. 2. Парциальная радиальная функция распределения бор-бор ($g(r)$) для системы $(C_2H_5)_4NBF_4$ при различных температурах на этапе охлаждения.

характерна для стеклообразного состояния. Аналогичные результаты получены для систем N3 и N4.

Зависимость логарифма коэффициента диффузии (D) аниона (рассматривалось движение атомов бора, как центра аниона) для исследованных систем от обратной температуры приведена на рис. 3. Вследствие ограниченности времени наблюдения и малых размеров системы нижний предел определения значений D ионов составляет $\sim 10^{-11} \text{ м}^2/\text{с}$.

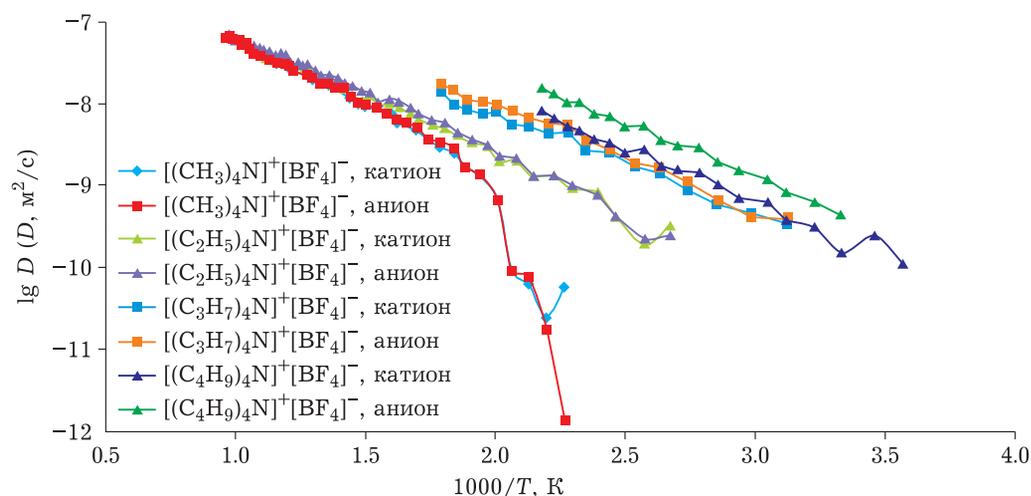


Рис. 3. Логарифм коэффициента диффузии (D) атомов бора (центров аниона) и азота (центров катиона) в зависимости от обратной температуры для исследованных систем на этапе пошагового охлаждения из расплава.

При нагревании в исходных кристаллических фазах диффузионных процессов обнаружить не удалось, т. е. значения D не превышали 10^{-11} м²/с для всех исследуемых соединений.

Плавление солей сопровождалось резким увеличением диффузионной подвижности. В расплавленном состоянии значения коэффициентов диффузии катионов и анионов для всех солей лежат в диапазоне 10^{-7} – 10^{-8} м²/с, причем катионы обладают более высокой подвижностью по сравнению с анионами, что согласуется с данными по диффузии в ионных жидкостях [12–14]. В соединении N1 значения коэффициентов диффузии катионов и анионов после кристаллизации падают до значений ниже 10^{-11} м²/с, т. е. ионы становятся практически неподвижными. Соединения N2, N3 и N4 при охлаждении аморфизуются и значения коэффициентов диффузии ионов в этих соединениях удовлетворяют аррениусовой зависимости во всем диапазоне коэффициентов диффузии, которые мы можем достоверно определять в условиях наших вычислений. Наклон зависимостей соответствует энергии активации диффузии 33–42 кДж/моль. Энергии активации диффузии катионов и анионов близки, что указывает на коррелированный механизм переноса ионов. Однако следует отметить, что при увеличении длины углеродного радикала k в катионе $C_kH_{2k+1}N^+$ (в ряду N2 → N3 → N4) относительные значения коэффициентов диффузии анионов растут и в соединении N4 наиболее подвижными являются анионы BF_4^- . Этот эффект объясняется увеличением размера катиона, что приводит к стерическим затруднениям для его диффузии.

Полученные расчетные данные находятся в хорошем качественном согласии с результатами исследований ионной проводимости, полученными ранее для композиционных твердых электролитов, в которых ионный перенос осуществляется за счет аморфной фазы, стабилизированной на границе раздела соли с поверхностью оксида [4–11]. Для более надежного сравнения расчетных и экспериментальных данных планируется провести исследования проводимости аморфных фаз чистых соединений N3, N4, полученных закалкой из расплава.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе широко используемых силовых полей OPLS, DREIDING нами разработаны компьютерные модели тетрафторборатов тетра- n -алкиламмония $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ для $k = 1$ –4. По-

лученные в компьютерных экспериментах по нагреву температуры плавления находятся в согласии с экспериментальными данными. Оценены значения коэффициентов диффузии катионов и анионов во всех исследованных фазах. Показано, что в исходных кристаллических фазах значения коэффициентов диффузии малы и не превышают 10^{-11} м²/с. При плавлении значения коэффициентов диффузии резко увеличиваются и достигают значений 10^{-7} – 10^{-8} м²/с. При последующем охлаждении только соль $(CH_3)_4NBF_4$ кристаллизуется в исходную фазу, остальные рассмотренные соединения $(C_kH_{2k+1})_4NBF_4$ (при $k = 2, 3$) переходят в аморфное стеклообразное состояние. Это состояние характеризуется относительно высокими значениями коэффициентов диффузии ионов с энергией активации 33–42 кДж/моль. Высокие значения коэффициентов диффузии ионов в аморфной фазе соединения N4 хорошо согласуются с фактом появления высокой ионной проводимости в нанокompозитах на основе этого соединения, в которых рост проводимости обусловлен образованием аморфной фазы на границе раздела фаз.

СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. Le M.-L.-P., Alloin F., Strobel P., Lepkrtre J.-C., Cointeaux L., del Valle C. P. Electrolyte based on fluorinated cyclic quaternary ammonium ionic liquids // *Ionics*. 2012. Vol. 18, No. 9. P. 817–827.
2. Selvamani V., Suryanarayanan V., Velayutham D., Gopukumar S. Asymmetric tetraalkyl ammonium cation-based ionic liquid as an electrolyte for lithium-ion battery applications // *J. Solid State Electrochem.* 2016. Vol. 20, No. 8. P. 2283–2293.
3. Piatti E., Guglielmero L., Tofani G., Mezzetta A., Guazzelli L., D'Andrea F., Roddaro S., Pomelli C. S. Ionic liquids for electrochemical applications: correlation between molecular structure and electrochemical stability window // *J. Mol. Liq.* 2022. Vol. 364. Art. 120001.
4. Pringle J. M., Adebahr J., MacFarlane D. R., Forsyth M. Unusual phase behaviour of the organic ionic plastic crystal *N,N*-dimethylpyrrolidinium tetrafluoroborate // *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2010. Vol. 12, No. 26. P. 7234–7240.
5. Long S., MacFarlane D. R., Forsyth M. Fast ion conduction in molecular plastic crystals // *Solid State Ionics*. 2003. Vol. 161. P. 105–112.
6. Ishida H., Iwachido T., Ikeda R. Phase transitions in dimethylammonium tetrafluoroborate and molecular motions in its ionic plastic phase studied by ¹H and ¹⁹F NMR, thermal measurements, and X-ray powder diffraction techniques // *Ber. Bunsen Ges. Phys. Chem.* 1992. Vol. 96, No. 10. P. 1468–1470.
7. Iwai S., Hattori M., Nakamura D., Ikeda R. Ionic dynamics in the rotator phase of *n*-alkylammonium chlorides (C₆–C₁₀), studied by ¹H nuclear magnetic resonance, electrical conductivity and thermal measurements // *J. Chem. Soc., Faraday Trans.* 1993. Vol. 89, No. 5. P. 827–831.

8. Уваров Н. Ф., Исакакова А. А., Булина Н. В., Герасимов К. Б., Слободок А. Б., Кавун В. Я. Ионная проводимость пластической фазы органической соли $[(C_4H_9)_4N]BF_4$ // *Электрохимия*. 2015. Т. 51, № 5. С. 564–568.
9. Ulihin A. S., Uvarov N. F., Rabadanov K. Sh., Gafurov M. M., Gerasimov K. B. Thermal, structural and transport properties of composite solid electrolytes $(1-x)(C_4H_9)_4NBF_4-xAl_2O_3$ // *Solid State Ionics*. 2022. Vol. 378, No. 38. Art. 115889.
10. Mateyshina Yu., Stebnitskii I., Shvitsov D., Ilyina E., Ulihin A., Bukhtiyarov A., Uvarov N. Hybrid nanocomposite solid electrolytes $(n-C_4H_9)_4NBF_4-MgO$ // *Int. J. Mol. Sci*. 2023. Vol. 24, No. 13. Art. 10949.
11. Stebnitskii I., Mateyshina Yu., Uvarov N. The effect of silicon dioxide on the structural, thermal and transport properties of an organic ionic plastic crystal $(n-C_4H_9)_4NBF_4$ // *Chimica Techno Acta*. 2024. Vol. 11, No. 3. Art. 202411307.
12. Dong D., Hooper J. B., Bedrov D. Structural and dynamical properties of tetraalkylammonium bromide aqueous solutions: a molecular dynamics simulation study using a polarizable force field // *J. Phys. Chem. B*. 2017. Vol. 121, No. 18. P. 4853–4863.
13. Sha M., Liu Y., Dong H., Luo F., Tang Z., Zhud G., Wu G. Origin of heterogeneous dynamics in local molecular structures of ionic liquids // *Soft Matter*. 2016. Vol. 12, No. 43. P. 8942–8949.
14. Гайнутдинов И. И., Уваров Н. Ф., Дун М. Моделирование методом молекулярной динамики особенностей структуры и подвижности ионов органических солей $[N(C_nH_{2n+1})_4]BF_4$ ($n = 2, 4$) // *Журн. структур. химии*. 2023. Т. 64, № 11. Ст. 118463.
15. Gainutdinov I., Uvarov N. Molecular dynamic simulation of the $[N(C_4H_9)_4]BF_4 / (110) \alpha-Al_2O_3$ interface // *Chimica Techno Acta*. 2023. Vol. 10, No. 3. Art. 202310308.
16. Giannozzi P., Baroni S., Bonini N., Calandra M., Car R., Cavazzoni C., Ceresoli D., Chiarotti G. L., Cococcioni M., Dabo I., Dal Corso A., de Gironcoli S., Fabris S., Fratesi G., Gebauer R., Gerstmann U., Gougoussis C., Kokalj A., Lazzeri M., Martin-Samos L., Marzari N., Mauri F., Mazzarello R., Paolini S., Pasquarello A., Paulatto L., Sbraccia C., Scandolo S., Sclauzero G., Seitsonen A. P., Smogunov A., Umari P., Wentzcovitch R. M. Quantum ESPRESSO: a modular and open-source software project for quantum simulations of materials // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2009. Vol. 21, No. 39. Art. 395502.
17. Giannozzi P., Andreussi O., Brumme T., Bunau O., Buongiorno Nardelli M., Calandra M., Car R., Cavazzoni C., Ceresoli D., Cococcioni M., Colonna N., Carnimeo I., Dal Corso A., de Gironcoli S., Delugas P., DiStasio R. A. jr., Ferreretti A., Floris A., Fratesi G., Fugallo G., Gebauer R., Gerstmann U., Giustino F., Gorni T., Jia J., Kawamura M., Ko H.-Y., Kokalj A., Küçükbenli E., Lazzeri M., Marsili M., Marzari N., Mauri F., Nguyen N. L., Nguyen H.-V., Otero-de-la-Roza A., Paulatto L., Poncé S., Rocca D., Sabatini R., Santra B., Schlipf M., Seitsonen A. P., Smogunov A., Timrov I., Thonhauser T., Umari P., Vast N., Wu X., Baroni S. Advanced capabilities for materials modelling with Quantum ESPRESSO // *J. Phys.: Condens. Matter*. 2017. Vol. 29, No. 46. Art. 465901.
18. Henkelman G., Arnaldsson A., Jónsson H. A fast and robust algorithm for Bader decomposition of charge density // *Comput. Mater. Sci*. 2006. Vol. 36, No. 3. P. 354–360.
19. Thompson A. P., Aktulga H. M., Berger R., Bolintineanu D. S., Brown W. M., Crozier P. S., in 't Veld P. J., Kohlmeyer A., Moore S. G., Nguyen T. D., Shan R., Stevens M. J., Tranchida J., Trott C., Plimpton S. J. LAMMPS – a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales // *Comput. Phys. Commun*. 2022. Vol. 271. Art. 108171.
20. Brown W. M., Wang P., Plimpton S. J., Tharrington A. N. Implementing molecular dynamics on hybrid high performance computers – short range forces // *Comput. Phys. Commun*. 2011. Vol. 182, No. 4. P. 898–911.
21. Brown W. M., Kohlmeyer A., Plimpton S. J., Tharrington A. N. Implementing molecular dynamics on hybrid high performance computers – particle-particle particle-mesh // *Comput. Phys. Commun*. 2012. Vol. 183, No. 3. P. 449–459.
22. Brown W. M., Yamada M. Implementing molecular dynamics on hybrid high performance computers – three-body potentials // *Comput. Phys. Commun*. 2013. Vol. 184, No. 12. P. 2785–2793.
23. Nguyen T. D., Plimpton S. J. Accelerating dissipative particle dynamics simulations for soft matter systems // *Comput. Mater. Sci*. 2015. Vol. 100, No. 3. P. 173–180.
24. Nguyen T. D. GPU-accelerated Tersoff potentials for massively parallel Molecular Dynamics simulations // *Comput. Phys. Commun*. 2017. Vol. 212. P. 113–122.
25. Nikolskiy V., Stegailov V. GPU acceleration of four-site water models in LAMMPS // *Adv. Parallel Comput*. 2020. Vol. 36. P. 565–573.
26. Mayo S. L., Olafson B. D., Goddard W. A. DREIDING: a generic force field for molecular simulations // *J. Phys. Chem*. 1990. Vol. 94, No. 26. P. 8897–8909.
27. Jorgensen W. L., Maxwell D. S., Tirado-Rives J. Development and Testing of the OPLS all-atom force field on conformational energetics and properties of organic liquids // *J. Am. Chem. Soc*. 1996. Vol. 118, No. 45. P. 11225–11236.
28. Matsumoto K., Harinaga U., Tanaka R., Koyama A., Hagiwara R., Tsunashima K. The structural classification of the highly disordered crystal phases of $[N_n][BF_4]$, $[N_n][PF_6]$, $[P_n][BF_4]$, and $[P_n][PF_6]$ salts (N_n^+ = tetraalkylammonium and P_n^+ = tetraalkylphosphonium) // *Phys. Chem. Chem. Phys*. 2014. Vol. 16, No. 43. P. 23616–23626.

Поступила в редакцию 25.11.2024

Одобрена после рецензирования 02.12.2024

Принята к публикации 10.12.2024