

NIMS ナノシミュレーションワークショップ 2025

講演概要集

AM-1 (10:50~11:20)

マルチスケール解析による SiC リモートエピタキシー開発研究

前川 拓滋 (ローム株式会社)

化合物半導体基板上で Graphene を介した結晶成長を行う剥がせるエピの Remote Epitaxy 技術が注目されている。一方で、成長や剥離のメカニズムは不明確であることが産業利用での課題となっている。本講演では、SiC Remote Epitaxy 開発研究における第一原理電子状態計算などを用いた計算駆動による物理理解・初期設計・実験活用の状況を紹介する。

AM-2 (11:20~11:50)

Subtractive Interconnect Metals/SiO₂ 界面熱抵抗の機械学習分子動力学計算

橋本 修一郎¹, 西村 祐亮², 渡邊 孝信^{1,2} (¹早大 SEES、²早大理工)

(別紙参照)

液体の熱力学関数の第一原理計算

白井 光雲 (阪大・日越大)

今日、DFT に基づく固体の電子状態計算は基底状態のみに留まらず、有限温度における熱力学的関数（比熱や自由エネルギー）の計算にも日常的に適用され、その有用性は広く知られているところである。一方液体に対してはどうであろうか？液体に対しても DFT 計算は適用されているが、その大半は拡散のような動力学的性質か RDF に代表される液体構造の研究に限られ、熱力学的性質を計算するものはほとんどない。なぜだろうか？それは液体に対して比熱の公式というものが存在しないからである。Hansen や Egelstaff などの液体の教科書には載っていない。ランダウ・リフシッツの統計力学の教科書でも液体の比熱は計算できないと述べられている。こうして液体の比熱計算は全く手付かずの状態がつい最近まで続いていた。この状況は物質探索の分野では大変な障害となっている。物質合成では液相成長などしばしば液体を利用するが、その反応を第一原理的に予測できず、未だに経験的なものに頼っているのが現状である。筆者らは最近この問題に取り組み、DFT に基づく断熱 MD シミュレーションにより液体の比熱、したがって自由エネルギーが計算できることを示し、この分野のブレークスルーを成した[1-4]。

なぜ液体の熱力学関数を計算することが困難なのか？最大の要因は、液体の励起状態の分布関数が分からないからである。固体の場合は、励起状態はフォノンという準粒子によって記述でき、それに対してボーズ・アインシュタイン (BE) 分布を適用することで比熱・自由エネルギーが計算できる。液体に対してはこの分布関数というものが分からない。そこで半ば強引に、液体でもフォノンという概念を適用しそれに BE 分布関数を適用して比熱を計算するというも行われているが、それを正当化する根拠はない。そしてフォノンモデルには致命的な問題は、液体の定積比熱 C_v の温度依存性が負ということである。フォノンモデルに従う限り、 C_v は温度 T と共に増加するか、高温極限 $3R$ に留まるかで、 T と共に減少する機構はない。そこでモデルではいろいろ人為的なパラメータを導入し実験と合わせることになるが、そのようなパラメータの根拠は薄弱である。我々の理論ではフォノンという概念を使わない。そのような素励起に分解しなくとも、DFT の特徴である全エネルギーが求まるので、その時間平均で比熱が求まるというのが本理論の主旨である。この方法により、液体の C_v の負の温度依存性が再現された。そして液体では BE 統計が成り立たないことも示した。本研究は、相互作用をする粒子間の統計分布関数が何になるかという統計力学の根本問題にも一石を投じるものとなっている。この問題に関するレビューを著したところであるが[5]、本講演ではその核心的なところを説明する。

- [1] K. Shirai, K. Watanabe, and H. Momida, J. Phys.: Condens. Matter **34**, 375902 (2022)
- [2] K. Shirai, K. Watanabe, H. Momida, and S. Hyun, J. Phys.: Condens. Matter **35**, 505401 (2023).
- [3] K. Shirai, H. Momida, K. Sato, and S. Hyun, J. Phys.: Condens. Matter **37**, 135901 (2025)
- [4] K. Shirai, H. Momida, K. Sato, and S. Hyun, J. Phys.: Condens. Matter, **37** 285901 (2025).
- [5] K. Shirai, arXiv:2508.20630, in press in J. Phys.: Condens. Matter.

PM1-2 (13:30~14:00)

Cu(111)上 hBN の CVD 成長に関する理論検討

影島 博之、今村 僚、Seo Insung (島根大)

hBN は大変良質な二次元絶縁体であり、グラフェンや TMDC などの二次元半導体を応用したデバイスを作る際には、欠かすことができない。ただ hBN を実際に絶縁体として用いるためには、欠陥のない単結晶が求められるが、hBN を産業利用するには、ウェハスケールで大面積に形成可能な、CVD 成長法の利用が期待される。そこで、hBN の CVD 成長機構について、DFT を用いて理論検討を行った。基板としては単層 hBN が形成されやすく成長実験で広く用いられている Cu(111)面を仮定した。またファンデルワールス力補正として信頼性の高い vdWDF2-b86r を用いた。BN の様々な形状の島やナノリボンを計算し、そこからエッジエネルギー等の構造特性に関する物理量を抽出。それらの結果を外挿して、マクロなサイズになった時のエネルギーを評価し、成長核の臨界サイズと形状を予想した。それらの結果を実験結果と比較したところ、実験方法によって N の実効化学ポテンシャルが変化することで、CVD 成長中の島の形状が変化することが明らかになった。加えて、従来は島のサイズが大きくなっても形状に変化はないのが自然と素朴に考えられていたが、エネルギー論的には大きくなるに従って丸い形状となるはずであることが明らかとなり、実験的に島の形状が変わらなく見えるのはカイネティクスやダイナミクスの効果であることが見出された。これは hBN が Cu 基板上にあるため、島の内部で基板表面との引力相互作用が働いているためである。

PM1-3 (14:00~14:30)

光触媒ルチル TiO_2 の酸素空孔を介した太陽光 2 段階吸収反応

加藤 弘一 (東大生産研)

TiO_2 は光触媒物質としてよく知られているが、光触媒機能を持つ物質はバンドギャップが一般に 3.0 eV 程度とかなり大きい。太陽光でこのギャップ間を直接電子励起するには効率が低い。そこで、欠陥を介して 2 段階で強度の高い可視光で励起することが試みられてきた。今回、酸素空孔を持つルチル TiO_2 で遍歴系と局在系間の 2 段階光励起過程を解析し、そのポーラロン生成率を予測した。さらに、直接遷移との効率も比較した。

PM2-1 (14:50~15:20)

金属有機構造体の放射線劣化機構

齋藤 英碩、木下 健太郎（東京理科大）

金属有機構造体（MOF）は、大きな比表面積、規則的な細孔構造、高いデザイン性を兼ね備えており、ガス吸着・分離、電池、触媒など幅広い応用が進められている。一部では既に実用化が始まっているものの、製造コストが高いことや構造劣化により長期運用が困難であることが課題となっている。特に MOF は大気中の水分を吸着することで加水分解を起こすことが知られており、吸湿による構造劣化は運用コストを押し上げる深刻な問題である。この課題の解決へとつながる糸口を見出すことは、MOF のさらなる実用化を推進する上で重要な課題である。

完全な結晶が水分吸着のみでは即座に破壊しないことは広く知られており、これまでの DFT 計算では水分子の吸着により骨格結合が不安定化する傾向が示されている。一方で、明確な構造破壊経路は依然として解明されていない。

我々は水分を吸着させた MOF に対して放射光測定を行い、放射線照射により構造劣化が加速されることを見出した。この結果は、放射線が水分子のイオン化を促進することで、もともと水分存在下で緩やかに進行している劣化経路を加速する役割を担うことを示唆している。

本研究では、代表的 MOF である Cu_3BTC_2 （HKUST-1）に着目し、第一原理計算コード PHASE/0 を用いて、放射線照射による MOF 劣化機構のモデル化とその理解を試みた。

PM2-2 (15:20~15:40)

層状ケイ酸塩鉱物中の層間イオン伝導度の評価

藪田 莉名、小田 将人（和歌山大）

工業排熱の有効活用に向け、熱電素子材料が注目を集めている。現在主流の熱電材料は低温域向けであり、高温域で安定した材料は限られている。我々は、高温域で熱電性能を発揮することが発見された層状ケイ酸塩鉱物の一種である風化黒雲母に着目した。これまで、層間原子の拡散ポテンシャルを定量的に評価し、イオン伝導の可能性を示した。本研究ではさらに、層間イオンによるイオン伝導度を算出し、その結果と実験との整合性について検討する。

PM2-3 (15:40~16:00)

積層グラフェンの低エネルギー光吸収に関する理論的研究

奈良 純、濱田 智之、大野 隆央（物質・材料研究機構）

2層、3層からなる積層グラフェンの低エネルギー光吸収について PHASE/0 に組み込まれている UVSOR を用いて調べた。PHASE/0 パッケージに同梱されている band_symm プログラムを用いてバンドの対称性解析を行い、光吸収スペクトルとバンド構造の対応について調べた。それらの結果を報告する。

Subtractive Interconnect Metals/SiO₂ 界面熱抵抗の機械学習分子動力学計算

橋本 修一郎¹, 西村 祐亮², 渡邊 孝信^{1,2} (¹早大 SEES、²早大理工)

【研究背景】 半導体ロジックデバイスの微細化を継続して実現するためのテクノロジーブースターの1つとして、多層金属配線構造 (Interconnects) における高融点金属材料の導入が期待されている^[1]。Ru, Mo, W に代表される高融点金属配線材料は、ドライエッチングによる直接加工が容易な Subtractive Metals であり、従来から利用されてきた Cu 金属配線をリプレースすることが期待されている^[1]。微細化に伴い顕在化する Interconnects の技術的課題の1つは、配線幅の縮小や配線密度の増大による排熱設計の難化である。金属配線を介した電源供給や信号伝達に伴い生ずるジュール熱は、EM (Electromigration) を代表例とする配線故障を引き起こす。ジュール熱の排熱経路は、金属配線と周辺の絶縁層で構成される Interconnects において局在化する熱抵抗成分に影響を受ける。特に、金属配線と層間絶縁膜 (ILD) の界面熱抵抗は主要な熱抵抗成分の1つである。

異種材料界面における界面熱抵抗は、DMM (Diffuse Mismatch Model) や AMM (Acoustic Mismatch Model) を例とする材料間の物性パラメータの差異に注目するアプローチにより評価できる。一方で、界面の原子配列による影響を考慮する観点で、各原子の摂動を網羅的に取り扱う原子シミュレーションも界面熱抵抗の評価において有効である。古典的分子動力学計算 (MD) は、10,000 超の原子数を扱うアプローチであるものの、同時に扱う原子種が増える場合に原子間ポテンシャル関数の設計が難化する。これに対し、原子種が多様な系に適用可能な機械学習ポテンシャル (MLIP) が近年、台頭している。MLIP は柔軟な関数設計が可能であるものの、所望の計算精度を実現するためには精緻な学習データセットを高効率に提供可能な第一原理計算が不可欠である。

【計算手法および計算結果】 本講演では、原子種が多様な Subtractive Metals/ILD 積層構造における界面熱抵抗のシミュレーション評価を目的とする機械学習分子動力学計算として、NIMS 提供の第一原理計算ソフトウェアパッケージである PHASE/0^[2] を駆使した事例を報告する。PHASE/0^[2] による Ru-Si-O、Mo-Si-O、W-Si-O 混在系の DFT 計算結果を、Behler-Parrinello Neural Network (BPNN) ベースの MLMD ソフトウェアパッケージである aenet において学習データとして扱い、Ru-Si-O、Mo-Si-O、W-Si-O 混在系用の MLIP を構築した^[3]。図に示すとおり Ru/SiO₂、Mo/SiO₂、W/SiO₂ 界面構造において局所的な温度差を付与する非平衡分子動力学計算を行ったところ、W/SiO₂ 界面において最も低い界面熱抵抗が得られた^[3]。また、これらの界面構造におけるフォノン状態密度 (PDOS) を比較したところ、W における SiO₂ 誘起の格子歪と格子乱れが W/SiO₂ 間の大きな PDOS オーバーラップに寄与し低い界面熱抵抗をもたらしていることが明らかとなった^[3]。機械学習分子動力学計算について、Subtractive Metals/SiO₂ 界面熱輸送の調査における有効性を確認するとともに、同アプローチを支える基盤技術として MLIP を構築する機械学習フレームワークと連携可能な第一原理計算ソフトウェアパッケージの有効性を確認している。

【参考文献】

- [1] T. Nogami, JSAP Rev. **2023**, 230210 (2023).
- [2] T. Yamasaki, A. Kuroda, T. Kato, J. Nara, J. Koga, T. Uda, K. Minami, and T. Ohno, Comput. Phys. Commun. **244**, 264 (2019).
- [3] S. Hashimoto, Y. Nishimura and T. Watanabe, Jpn. J. Appl. Phys., **64** 04SP03 (2025).

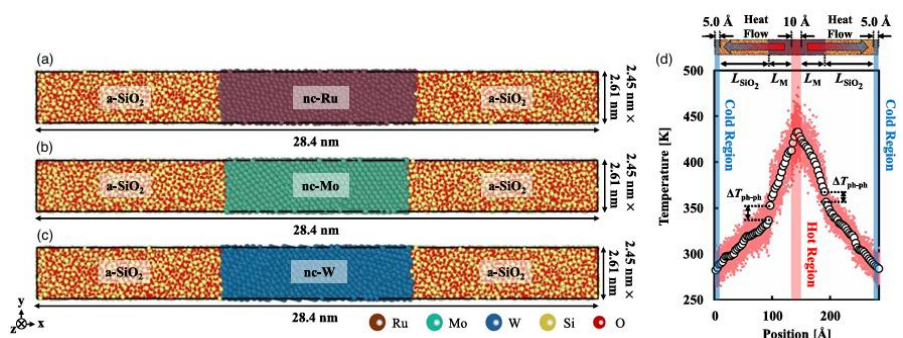


図. Subtractive Metals/SiO₂ 積層構造およびその温度分布^[3]