

計算化学的手法による有機物および無機物の熱物性・輸送特性予測

Investigation of thermal and transport properties of organic and inorganic compounds

京都大学工学研究科 機械理工学専攻 松本 充弘

研究成果概要

本研究は、量子論的效果を考慮した分子モデルに基づき、さまざまな物質の凝縮相の性質（相転移挙動、輸送現象など）を分子シミュレーションにより評価することを目的とする。昨年度来、いくつかの手法を予備的に検討した上で、密度汎関数 density functional 法と強結合 tight binding 近似に基づく DFTB+ パッケージを利用することとし、京都大学化学研究所スーパーコンピュータシステムでの計算を進めている。年度当初は、同システム上の Materials Studio をフロントエンドとして各種ポリマー凝縮相の計算を行った。その後、半導体表面の chemical vapor deposition (CVD) 過程などを主なターゲットとするため、オープンソースである DFTB+ を単独で同システムにインストールし、計算条件に合わせてカスタマイズし、またツール類を作成しながら利用している。さまざまな条件下での計算を進めている途中で、まだ成果をまとめるまでには至っていないが、例えば、シリコン結晶表面へのシランガス由来のラジカルの CVD の例（スナップショット）を図に示す。表面に衝突した SiH_3 が結晶の Si と新たな結合を形成するのと引き換えに、表面終端していた H 原子が H_2 となって離脱する様子がわかる。

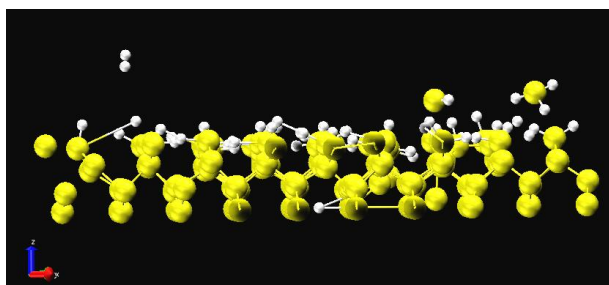


図 シリコン結晶表面への SiH_3 ラジカルの衝突と反応の dftb+による計算結果の例。

Tersoff モデルなどの経験的相互作用モデルを用いる従来の古典分子動力学シミュレーションでは、このような化学反応を伴う過程の解析は相互作用モデルに強く依存するため、各種条件の定量的な比較は困難であったが、DFTB などの手法を用いることでそれが可能となることが見込まれる。ただし、full ab initio 量子化学計算と比較すると、電子相関に経験的な汎関数を必要とするなど、完全に非経験的な手法ではないため、計算精度などの点についてさらに検討を行いながら、引き続き物性予測へのアプローチを進めていく予定である。

発表論文(謝辞あり)

現在執筆中