

1. 諸言

本研究は、密度汎関数理論 (DFT) を基盤とし、その解析結果である吸着エネルギーから、代表的な酸化物材料である酸化マグネシウム (MgO) のシリコン (Si) 基板上における結晶成長方位を理論的に予測することを目的とした。我々が算出した予測結果は、Si基板上に実際にエピタキシャル成長させたMgO薄膜の実験的な成長方位 [1,2] と一致することが分かった。さらに、このエピタキシャルMgO薄膜において、バルクとは異なる格子定数の収縮という興味深い現象を報告した [3]。そこで本研究では、この格子定数収縮の物理的起源を詳細に解析するため、比較的新しい手法であるProjector Augmented-Wave (PAW) 法をMgOの欠陥構造モデルに適用した。また、大規模計算の計算コストを大幅に削減し、成長方位の予測を簡便に行うため、吸着エネルギー評価における新規の簡易計算法を提案する。

2. 実験手法

Si表面上のMgOの超格子を最適化し、結晶学的安定性を評価するため、計算コードDMol3を用いて吸着エネルギーを算出した。計算に用いた分子モデルはMaterial Studioにより構築した (図1)。マグネシウム (Mg) と酸素 (O) の内殻には擬ポテンシャルを使用し、電子密度を得るためにGGA (一般化勾配近似) 法を適用した。

本研究では、吸着エネルギーの評価を簡略化するため、Simple Total of Energy (Simple ToE) 法を提案する。結晶成長方位の予測においては、バンドギャップの推定のような精密な計算は必須ではなく、相対的な比較が重要となる。Simple ToE法は、構造最適化の工程を完全に省略することで計算コストを抑えつつ吸着エネルギーを推定する手法である。

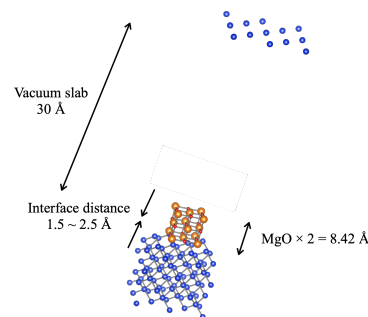


Fig. 1 Supercell of 2x2x2 MgO cells placed on Si(001) surface with cubic on cubic or 45° rotation growth arrangement.

3. 結果と考察

提案したSimple ToE法を用いて吸着エネルギーの評価を行った。図2(a)に、スーパーコンピュータ(SC)を用いた45°回転成長 (45 growth) と立方体積層 (Cubic growth) 成長の吸着エネルギーを示す。一方、図2(b)はSimple ToE法によって推定された吸着エネルギーである。Si(001)表面上では立方体積層成長が安定であることが示され、これはSCを用いた我々の以前の精密計算結果と定性的に一致した。この結果は、提案手法が計算コストを大幅に削減しつつ、成長方位の予測に十分な有効性を持つことを示唆している。

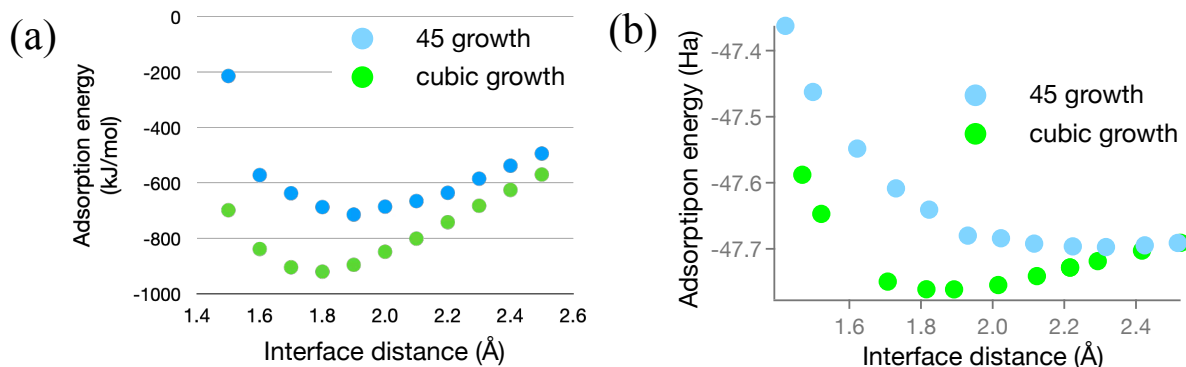


Fig. 2 (a) Adsorption energy estimated by (a) Super computer and (b) Home PC with simple ToE method

References

[1] Appl. Surf. Sci. 586 (2022) 152776 Kaneko et. al.

[3] J. Apple. Phys. 107 (2010) 073523 Kaneko et. al.

[2] Sci. Rep. 14 (2024) 10891 Kaneko et. al.