ブロック共重合体薄膜における垂直ラメラ相の 粗視化分子動力学シミュレーション(2)

Coarse-grain molecular dynamics simulation of vertical lamellar phase

of diblock copolymer in a thin film (2)

NTT 物性基礎研, ^O山口 徹, 田中弘隆, ニコラ クレメント, 藤原 聡

NTT BRL [°]Toru Yamaguchi, Hirotaka Tanaka, Nicolas Clement, Akira Fujiwara

E-mail: yamaguchi.toru@lab.ntt.co.jp

ブロック共重合体の誘導自己組織化技術は、sub-10 nm リソグラフィ技術の有力候補として、近年 盛んに研究が行われている。我々は、実験的事実として得られる配向秩序形成の理解を目的とし て、粗視化分子動力学(MD)シミュレーションを始めている。前回の報告では、極端に粗視化した、 粒子 A 及び B それぞれ 2 個ずつ直線状に結合したブロック共重合体 A₂B₂のバネ粒子モデルを用 いて、ブロック共重合体薄膜における垂直ラメラ相のシミュレーションが可能であることを報告 した。今回の報告では、ラメラ相の配向秩序相関長の熱処理温度依存性について検討を行ったの で報告する。

粗視化分子動力学シミュレーションは、オープンソースソフトウェア「HOOMD-blue」[1,2]を 用いて行った。前回の報告と同様、ポテンシャルはすべての粒子間で同一とし、粒子 A-B 間のみ、 レナード・ジョーンズ(LJ)(12,6)ポテンシャルの深さ($\epsilon_{AA}=\epsilon_{BB}=1\epsilon$, $\epsilon_{AB}=0.5\epsilon$, ϵ_{ij} は粒子 ij 間の深さ、 ϵ はエネルギーの単位)を浅くして、非相溶性を導入した。基板表面、薄膜表面は、それぞれ中性化 層、自由表面とし、薄膜側面のみ周期境界条件を適用した。定温定体積(NVT)条件にて、全粒子 数 430,944 個の系(大きさ:ラメラ周期の 50 周期角程度、膜厚:ラメラ周期の 1.5 倍程度)について の時間発展を CPU によるシリアル計算により行った。熱処理温度は、秩序無秩序転移温度($kT/\epsilon \sim$ 0.75)以下の $kT/\epsilon = 0.5, 0.6, 0.7$ の 3 種類の温度水準にて、各水準とも 3 つの異なる初期ランダム状 態からのシミュレーションを行い、平均値にて評価した。

Figure 1(a-c)に、垂直ラメラ相の擬似カラー配向マップの温度依存性を示す。2D-FFTの3次ピークの強度が低温ほど増加することから、低温の方が界面の分離が急峻であることがわかる。また低温ほどラメラ周期D_{cc}が長いことがわかった。このことは低温ほどドメイン間の反発が大きくなることを考えると定性的に理解できる。配向秩序相関長気については、今回行った温度範囲では、温度が高いほど相関長気が長くなることがわかった。Fig. 1(d)に、各種温度における相関長気の時間依存性を示す。気は成長指数φのべき乗則に従うことが知られており、φは0.2~0.5の範囲にあると言われている。kT/ε=0.5及び0.6ではべき乗則に従っており、またφの値も妥当な値が得られた。このことは配向秩序相関長の観点から、実験とシミュレーションの整合性をとるという新たなアプローチを提案できることを意味している。今後は、実際のポリマーの配向秩序相関長の評価をあわせて進めていく。

J. A. Anderson, C. D. Lorenz, and A. Travesset. Journal of Computational Physics 227(10): 5342-5359, May 2008.
10.1016/j.jcp.2008.01.047 (http://glotzerlab.engin.umich.edu/hoomd-blue/) [2] J. Glaser, T. D. Nguyen, J. A. Anderson, P. Liu,
F. Spiga, J. A. Millan, D. C. Morse, S. C. Glotzer. Computer Physics Communications 192: 97-107, July 2015.
10.1016/j.cpc.2015.02.028



Figure 1 False color orientation map pf vertical lamellar domains of A_2B_2 film on a neutral layer after 6 x 10⁵ md time steps (τ : md time step) at kT/ ϵ = (a) 0.5, (b) 0.6, and (c) 0.7. The insets are 2D-FFT spectra of the corresponding image. (d) Time evolution of orientational correlation length ξ_2 for various temperatures.