

令和 4 年 6 月 2 日現在

機関番号：14501

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2019

課題番号：16H03865

研究課題名（和文）大規模第一原理スピン輸送シミュレーターの開発と革新的デバイス用界面構造の設計

研究課題名（英文）Development of large-scale first-principles spin-transport simulator and design of interface for high performance devices

研究代表者

小野 倫也（Ono, Tomoya）

神戸大学・工学研究科・教授

研究者番号：80335372

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 11,100,000円

研究成果の概要（和文）：大規模なモデルで第一原理スピン輸送特性シミュレーションが可能な実空間差分法に基づく計算手法・計算コードRSPACEの開発と、RSPACEを用いたスピン輸送特性シミュレーションを行った。計算コードの開発では、部分的に計算したグリーン関数を連結することにより、第一原理輸送特性計算では世界最大級である19万超の原子からなるカーボンナノチューブの輸送特性計算を実現した。スピン輸送特性シミュレーションでは、グラフェンをスペーサー層に用いた磁気抵抗素子の輸送特性シミュレーションを行い、スペーサー層が磁気抵抗比に与える影響を明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これからの情報化社会では高性能情報処理デバイスが必要であり、次世代デバイスの開発は喫緊の課題である。デバイスはナノサイズに微細化されており、デバイスの高性能化にはデバイス中を流れる電子の挙動を理解し制御する必要がある。量子力学に基づく計算法は電子の動きを正確に予測できるものの膨大な計算が必要である。本課題は、スーパーコンピュータを用いて膨大な計算を処理する計算手法・コードを開発し、その有用性を示したものである。

研究成果の概要（英文）：The large-scale first-principles spin-transport calculation method based on the real-space finite-difference method and the code RSPACE have been developed. We performed spin-transport simulations using RSPACE. In the development of the code, by combining the Green's functions of scattering region, which are calculated in divided subspaces, the transport simulation for the carbon nanotube consisting more than 190,000 atoms has been achieved. This simulation employs one of the largest models among the first-principles transport-property calculation. In addition, using RSPACE, we have investigated the spin-polarized transport property in graphene based magnetic tunnel junctions and found that the graphene plays an important role for spin-transport property.

研究分野：計算物質科学

キーワード：第一原理計算 伝導特性 スピントロニクス

## 1. 研究開始当初の背景

次世代のナノデバイスの候補として、フラレンやナノチューブを用いた分子デバイス、電荷に加えてスピンも制御するスピントロニクスデバイスが注目されている。ところがこれらの開発は、実験により経験的に判明している因果関係を頼りに進める場合が多く、その内部のメカニズムが分かっていない場合が多い。このように実験的研究のみでは明らかにすることが困難な問題に対し、実験的手法に加えて理論計算により各現象がなぜ起こるのかという内部のメカニズムを明らかにすることができれば、その応用、発展の可能性がさらに広がるはずである。例えば、現在のスピントロニクス素子の多くは、バルク状態の材料物性から予想してデバイスが設計されている。しかし、ナノデバイスでは、バルクの性質に加えて界面での電子状態やキャリア輸送特性が重要な役割を果たす。しかし、界面での電子状態とキャリア輸送の実験的直観観察は困難である。このような問題に対し、理論計算により界面電子物性を予測できれば、研究開発の効率化が見込まれる。

国内外の研究機関は、新材料・新デバイス構造開発の一環としてナノデバイスの物性を電子論から明らかにしようとする研究を積極的に推進しており、これらを第一原理計算で明らかにしようとする理論グループも多い。しかし、ほとんどのグループは、非平衡系のキャリア輸送特性を平衡系の電子状態をもとに予測している。これは、市販ソフトウェアの普及により、多くのグループで第一原理に基づいて電子状態を計算することが可能になったが、輸送特性を計算する方法の開発に挑戦している研究グループは限定的だからである。スピン分極を伴った界面での輸送特性の解析・予測には、高い計算精度に加え、界面での原子構造の乱れを取り込んだ大規模な計算モデルが必要であるが、従来法の枠組みではこれを満たすための確立された手段がない。

これまで研究代表者は、独自に実空間差分法を用いた第一原理計算法とこの方法に基づく計算コード RSPACE を開発してきた。実空間差分法では、基底関数の展開係数を計算するかわりに、計算領域に配置したグリッド上の波動関数やポテンシャルの値を直接計算する。グリッド幅を細かくすることで計算精度を向上させることができるため、精度の見積りが容易である。また、平面波を基底関数に用いないため、計算モデルに対し周期的でない境界条件を設定できる。特に、輸送特性計算は、電子の流れる方向に対して、進行波と散乱による反射波を考慮した境界条件を課す必要があるため、実空間差分法のような周期的でない境界条件の設定が可能な方法なくして実現しがたい。さらに、実空間差分法を用いた計算方法は、近年の高性能計算機のアーキテクチャーに適した方法であるため超並列計算機を用いた大規模計算が可能である。したがって、代表者らの開発した実空間差分法を用いた計算方法は大規模なモデルで高精度計算が要求されるナノデバイスの機能評価・デザインに最適である。代表者は、これまでの研究で培った実空間差分法に基づく第一原理計算法に関する知見を活用し、スピントロニクスデバイスに用いられる界面の機能予測ができれば、第一原理計算を用いた次世代高性能デバイスの設計・開発において重要な礎となると確信し、本課題を申請するに至った。

## 2. 研究の目的

研究代表者が独自に開発した量子力学に基づく第一原理電子状態・量子輸送特性計算手法とこれに基づく計算コード RSPACE を改良し、従来の電荷輸送特性に加え、スピン輸送特性のシミュレーションを可能にする。開発した計算コードを用いて、磁気接合界面や磁性分子架橋構造などを用いた高効率量子輸送デバイスの機能評価とデザインを行う。チャンネルとなる界面での接合状態の違いやドーパ元素の違いがスピン輸送特性にどのような影響を及ぼすのかを電子素過程から精緻に調べ、得られた知見をもとに高効率トンネル磁気接合などスピントロニクスデバイス用の界面をデザインする。

## 3. 研究の方法

### (1) 計算コード RSPACE の改良

シフト共役勾配法と再帰的グリーン関数法を組み合わせた高速グリーン関数法を RSPACE に組み込んだ。伝導特性を計算するには、散乱領域のグリーン関数行列の一部の要素しか必要としない。一方で伝導計算の精度を向上させるには、多くのエネルギー点でグリーン関数を計算する必要がある。共役勾配法は、グリーン関数行列の必要な要素のみを計算するため、計算コストとメモリ使用量の点で優れている。また、エネルギー項は、実空間差分法に基づく伝導計算法ではハミルトニアン行列の対角成分にしか寄与しないため、シフト共役勾配法を用いれば、計算時間の大幅な増加を伴うことなく多くのエネルギー点を計算できる。しかしながら、シフト共役勾配法を用いたグリーン関数計算アルゴリズムの計算コストが散乱領域長さの 2 乗に比例することが、これまで大規模計算への障害となっていた。本課題では、グリーン関数の計算に再帰的グリーン関数法を援用することにより、計算コストを散乱領域長さに比例させることを試みた。

### (2) 二次元層状物質をスペーサー層に用いたトンネル磁気抵抗素子の伝導特性予測

従来注目されていた磁気抵抗素子で用いられている  $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgO}$  は酸化物であるため実験的に金属と界面を作成するとき、欠陥や不純物ができやすく、理想的な界面を作るのが困難である。

現在、作成するときには不純物や欠陥の少ない磁気抵抗素子として Ni、Co 等の強磁性金属でグラフェン(Gr)を挟んだ系が注目を集めている。この系では強磁性金属間に挿入する Gr の層の数を増加させることで磁気抵抗比を大きくすることができると予測されている。この系では金属電極として Gr と格子定数が近い Ni、Co、Fe などの磁性金属が使用されている。実験的にも Co/Gr/NiFe 接合系に対してトンネル磁気抵抗効果が観測されている。しかしながら理論研究では、同種の金属を両側の電極として用いたものが多く、異なる金属を接合した系に関する理論研究は少ない。本研究では Ni/Ni 間と Ni/Co 間のトンネル現象について調べるために、開発中の RSPACE を用いて、電極間に真空を挿入した系 (Ni/真空(vac)/Ni 系、Co/vac/Ni 系) について伝導特性を理論的に予測した。

#### 4. 研究成果

##### (1) 計算コード RSPACE の改良

開発したコードを用いて、最大で 196,608 原子からなる不純物をドーブした二層カーボンナノチューブの伝導特性シミュレーションを実現した。原子波動関数を基底関数に用いた第一原理伝導特性計算法で、30,000 原子強のモデルを用いた例(W. Y. Rojas *et al.*, Phys. Chem. Chem. Phys. 21, 26027 (2019))が報告されているが、本シミュレーションはこれを大きく超えるものである。

図 1 に散乱領域の長さを変化させた場合のコンダクタンススペクトルを、図 2 に散乱波動関数の電子密度分布を示す。図 1 より、散乱領域の原子構造が周期的な場合、散乱領域が長くなるにつれコンダクタンススペクトルのピークが鋭くなる様子が分かる。これは、周期的な原子構造が作る電子のバンド構造に起因するものと考えられる。一方で、散乱領域の原子構造がランダムな場合、コンダクタンススペクトルに鋭いピークが見られず、全体的に低いコンダクタンスとなった。本研究課題の実施により、このように 10 万原子超の大規模モデルを用いた第一原理伝導特性計算が可能になった。

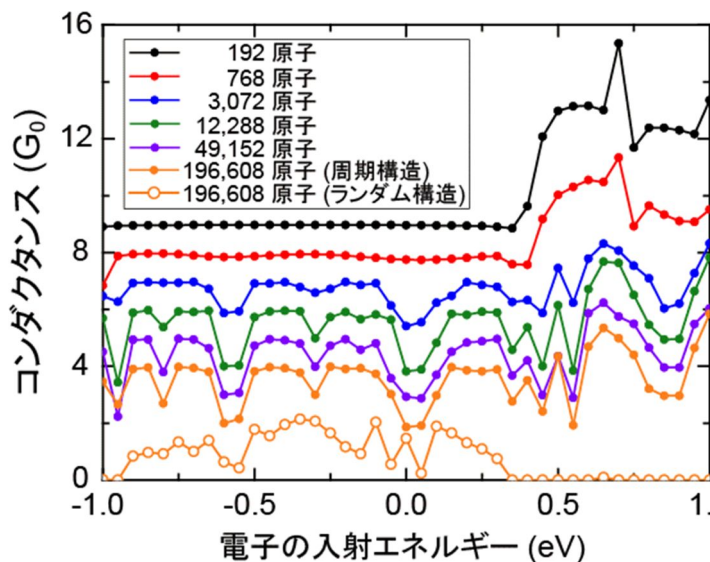


図 1: 二層カーボンナノチューブのコンダクタンススペクトル

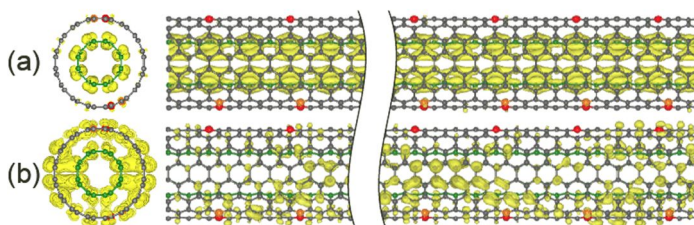


図 2: 散乱波動関数の電子密度分布

##### (2) 二次元層状物質をスペーサー層に用いたトンネル磁気抵抗素子の伝導特性予測

第一原理構造最適化計算により電極/Gr間の層間距離は 2.07 Å であることが分かった。これは実験的得られた層間距離 2.16 ± 0.10 Å と一致し

表 1: 磁気接合のコンダクタンスと磁気抵抗比

接合	G (G <sub>0</sub> )	G (G <sub>0</sub> )	G (G <sub>0</sub> )	磁気抵抗比(%)
Ni/vac/Ni	3.28	5.70	4.35	3.30
Ni/Gr/Ni	17.40	19.30	16.20	13.60
Co/vac/Ni	3.8	4.89	4.02	8.26
Co/Gr/Ni	18.10	15.50	16.70	0.78

ている。先行研究によるとこの層間距離の場合、Ni、Co/Gr 間の結合は van der Waals 結合ではなく化学的な結合であると報告されている。最安定状態である majority スピン磁化の向きが反平行になるように接合した場合の状態密度は図 3 のようになった。

伝導特性計算の結果、コンダクタンススペクトルは図 4 のようになった。コンダクタンススペクトルから積層構造の違いによるコンダクタンスの差はほぼなく、コンダクタンスから求められるトンネル磁気抵抗比も積層構造の違いに影響を受けないことが分かった。そして、コンダクタンススペクトルをもとにトンネル磁気抵抗比を求めた結果、表 1 のようになった。磁気抵抗比は、

$$MR = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} \quad (1)$$

で求めた。ここで、 $G_P (=G_{\uparrow} + G_{\downarrow})$  は両電極のスピンの向きが平行の場合のコンダクタンス、 $G_{AP} (=2G_{\uparrow\downarrow})$  は反平行の場合のコンダクタンスである。得られたそれぞれの系の磁気抵抗比を比較すると、Ni/Gr/Ni 系と Co/Gr/Ni 系の磁気抵抗比は Ni/Gr/Ni 系の方が高く、Ni/vac/Ni 系と Co/vac/Ni 系の磁気抵抗比は Co/vac/Ni 系の方が高くなっている。

真空を挟んだ系 (Ni/vac/Ni, Co/vac/Ni) に関しては、majority スピンの磁化の向きが平行の場合のコンダクタンスは Ni/vac/Ni 系の方が高くなっており、反平行の場合は Ni/vac/Ni 系のコンダクタンスが高くなっている。このことと(1)式からトンネル磁気抵抗比への寄与が大きいのは反平行のコンダクタンスであることが分かる。反平行の場合に Ni/vac/Ni 系のコンダクタンスが Co/vac/Ni 系に比べて大きくなる原因を探るため、Ni と Co の Fermi 面について議論する。先行研究 V. M. Karpan *et al.*, Phys. Rev. B **78**, 195419 (2008) によると、Ni の majority スピンの Fermi 面に対する Co と Ni の minority スピンの Fermi 面の重なりを比べると、Ni の majority スピンに対して重なりが大きいのは Ni の minority スピンである。そのため majority スピンが反平行になるように接合した場合、Ni/vac/Ni 系の方が Co/vac/Ni 系に比べコンダクタンスが高

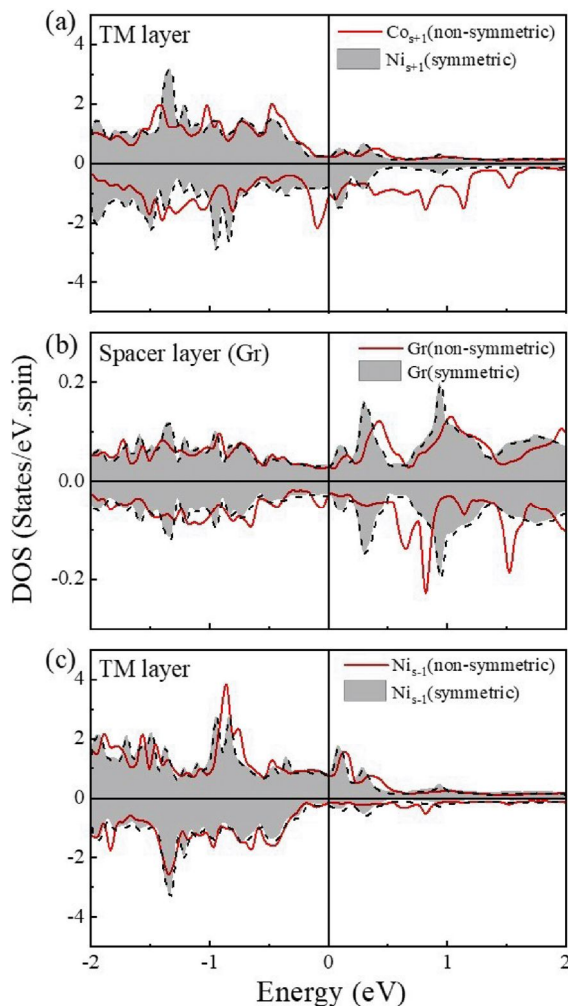


図 3: 反平行接合における Ni/Gr/Ni、Co/Gr/Ni 接合の局所状態密度。Hashmi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 034708 (2020)より転載。

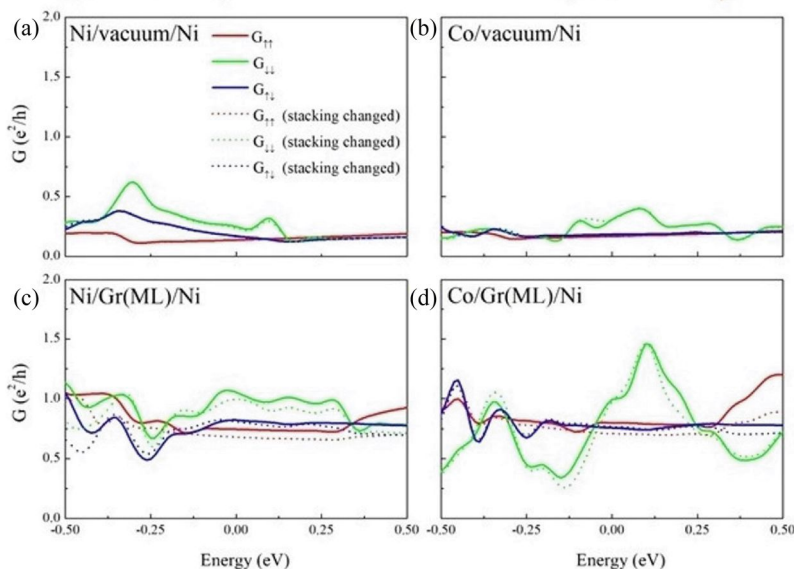


図 4: 両電極のスピンの向きが反平行の場合における Ni/Gr/Ni、Co/Gr/Ni 接合の局所状態密度。点線は積層構造を変化させた場合のスペクトルを表す。Hashmi *et al.*, J. Phys. Soc. Jpn. **89**, 034708 (2020)より転載。



くなる。したがってトンネル磁気抵抗比は Co/vac/Ni 系の方が高くなると考えられる。

一方で、Gr を挟んだ系(Ni/Gr/Ni、Co/Gr/Ni)に関しては、majority スピンの磁化の向きが平行の場合のコンダクタンスは Ni/vac/Ni 系の方が高く、反平行の場合は Co/Gr/Ni 系の方がコンダクタンスが高くなっている。Ni/Gr/Ni 系と Co/Gr/Ni 系の状態密度から、Co、Ni 電極のどちらを接合した場合でも Fermi 準位近傍において、Gr に状態が存在することが分かる。また先行研究との比較から Co(111)/Gr 間および Ni(111)/Gr 間の結合は van der Waals 結合ではなく、化学的な結合である。ポテンシャル障壁が十分高くなる真空を挿入した系と Gr を挿入した系を比較すると、Gr 面平行方向の波数ベクトルが大きい場合に Gr を挿入した系はコンダクタンスが小さくなることが分かった。以上の結果より Gr が絶縁体ではなく非磁性金属と考えられることから、強磁性電極間に Gr を一層挿入した場合に生じているのは巨大磁気抵抗効果であると考えられる。また、トンネル現象が起こる場合は、異なる金属を接合した磁気抵抗素子の方がトンネル磁気抵抗比が高くなっているが、巨大磁気抵抗効果が起こる場合は同じ金属を接合した磁気抵抗素子の方がトンネル磁気抵抗比が高くなることが分かった。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件（うち査読付論文 12件 / うち国際共著 6件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Egami Yoshiyuki, Tsukamoto Shigeru, Ono Tomoya	4. 巻 3
2. 論文標題 Calculation of the Green's function in the scattering region for first-principles electron-transport simulations	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 013038 1-9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.3.013038	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Tsunasaki Mukai, Ono Tomoya, Uemoto Mitsuharu	4. 巻 61
2. 論文標題 Theoretical investigation of vacancy related defects at 4H-SiC(000-1)/SiO <sub>2</sub> interface after wet oxidation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 SH1001 - SH1001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac5a97	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Uemoto Mitsuharu, Komatsu Naoki, Egami Yoshiyuki, Ono Tomoya	4. 巻 90
2. 論文標題 First-Principles Study on Structure and Anisotropy of High N-atom Density Layer in 4H-SiC	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124713 1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.90.124713	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hashmi Arqum, Nakanishi Kenta, Farooq Muhammad Umar, Ono Tomoya	4. 巻 4
2. 論文標題 Ising ferromagnetism and robust half-metallicity in two-dimensional honeycomb-kagome Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub> layer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 npj 2D Materials and Applications	6. 最初と最後の頁 39 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41699-020-00174-0	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Hashmi Arqum, Nakanishi Kenta, Ono Tomoya	4. 巻 89
2. 論文標題 Graphene-based Symmetric and Non-Symmetric Magnetoresistive Junctions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 034708 - 034708
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.034708	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Egami Yoshiyuki, Tsukamoto Shigeru, Ono Tomoya	4. 巻 100
2. 論文標題 Efficient calculation of self-energy matrices for electron-transport simulations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 075413 1-15
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.075413	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 S. Tsukamoto, T. Ono, S. Iwase, and S. Bluegel	4. 巻 98
2. 論文標題 Complex band structure calculations based on the overbridging boundary matching method without using Green's functions	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 195422 1-19
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.98.195422	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Ono Tomoya, Kirkham Christopher James, Saito Shoichiro, Oshima Yoshifumi	4. 巻 96
2. 論文標題 Theoretical and experimental investigation of the atomic and electronic structures at the 4H-SiC(0001)/SiO <sub>2</sub> interface	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 11531 1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.96.115311	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Tsukamoto Shigeru, Ono Tomoya, Bluegel Stefan	4. 巻 97
2. 論文標題 Improvement of accuracy in the wave-function-matching method for transport calculations	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 115450 1-22
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.97.115450	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 S. Iwase, C. J. Kirkham, T. Ono	4. 巻 95
2. 論文標題 Intrinsic origin of electron scattering at the4H-SiC(0001)/SiO2interface	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 041302 1-4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.95.041302	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Ono, C. Kirkham, S. Iwase	4. 巻 75
2. 論文標題 (Invited) First-Principles Study on Electron Conduction at 4H-SiC(0001)/SiO2 Interface	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ECS Transactions	6. 最初と最後の頁 121 ~ 126
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/07505.0121ecst	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件 (うち招待講演 7件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 T. Ono
2. 発表標題 DFT study on carrier transport property at interface
3. 学会等名 32nd International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 T. Ono
2. 発表標題 DFT study on carrier transport in electronic devices
3. 学会等名 5th International Conference from Nanoparticles and Nanomaterials to Nanodevices and Nanosystems (IC4N) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Ono
2. 発表標題 Evolution of ab-initio calculation based on real-space finite-difference method for massively parallel computers
3. 学会等名 International Workshop on Massively Parallel Programming for Quantum Chemistry and Physics 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Tomoya Ono
2. 発表標題 Density functional theory calculation for interface electronic structure of SiC power electronic devices
3. 学会等名 EMN Meeting on Quantum (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Tomoya Ono
2. 発表標題 DFT calculation for electronic structure and carrier scattering property at SiC-MOS interface
3. 学会等名 European Advanced Energy Materials Congress (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tomoya Ono
2. 発表標題 Density functional theory study on transport property of nanomaterials
3. 学会等名 5th International Conference from Nanoparticles and Nanomaterials to Nanodevices and Nanosystems (IC4N) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 T. Ono, C. J. Kirkham, S. Iwase
2. 発表標題 First-Principles Study on Electron Conduction at 4H-SiC(0001)/SiO <sub>2</sub> Interface
3. 学会等名 Pacific Rim Meeting on Electrochemical and Solid-State Science 2016 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 T. Ono, C. J. Kirkham, S. Iwase
2. 発表標題 First-principles study on carrier scattering property at 4H-SiC(0001)/SiO <sub>2</sub>
3. 学会等名 2016 International Conference on Solid State Devices and Materials (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 T. Ono, C. J. Kirkham
2. 発表標題 First-principles study on atomic and electronic structures of 4HSiC(0001)/SiO <sub>2</sub> interface
3. 学会等名 APS March Meeting 2017 (国際学会)
4. 発表年 2017年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	植本 光治  (Uemoto Mitsuharu)  (90748500)	神戸大学・工学研究科・助教   (14501)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------