

機関番号：14401

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2008～2010

課題番号：20710078

研究課題名 (和文) 第一原理量子輸送計算による高機能界面ナノ構造の設計

研究課題名 (英文) Computational design of functional nanoscale interface using first-principles calculation

研究代表者

小野 倫也 (ONO TOMOYA)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：80335372

研究成果の概要 (和文)：

量子力学の第一原理に基づく電子輸送特性計算手法と、この計算手法に基づく計算コードを開発した。この計算コードを駆使して、シリコン系トランジスタの基本構成要素として広く使われている酸化シリコン/シリコン界面における界面欠陥とリーク電流の相関を調べた。特に、欠陥構造の違いによるリーク電流量の差異や界面欠陥構造とリーク電流経路の相関、水素シンターなど界面欠陥処理方法のリーク電流抑制に対する効果を評価し、絶縁特性の劣化に深刻な影響を与える界面欠陥構造を特定した。

研究成果の概要 (英文)：

The calculation method and code for electron-transport properties through nanostructures based on density functional theory have been developed. The relationship between the presence of defects at the stacking structure of the Si/SiO₂ interface and leakage current is theoretically studied using the newly developed code. I found that the leakage current through the interface with dangling bonds is 530 times larger than that without any defects, which is expected to lead to dielectric breakdown. The direction of the dangling bonds is closely related to the performance of the oxide as an insulator. In addition, it is proved that the termination of the dangling bonds by hydrogen atoms is effective for reducing the leakage current.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2009 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2010 年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：計算物理

科研費の分科・細目：ナノ・マイクロ科学 ナノ構造科学

キーワード：第一原理計算、電子輸送特性、表面・界面

1. 研究開始当初の背景

21 世紀の IT 産業を支える半導体デバイスや光通信デバイスでは、微細化や高機能化にともない、構成する素子がナノメートルのサ

イズに近づきつつある。次世代のナノデバイスの候補として、フラーレンやナノチューブを用いた分子デバイス、現在のシリコン系トランジスタをさらに微細化したデバイス、電

子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おり、デバイスの高性能化にはこれらの開発が重要であることは言うまでもない。ところが、現在のアプローチは実験により経験的に判明している因果関係を頼りに分析を行っており、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。

近年、このようなレベルの現象を「第一原理計算」と呼ばれる方法を用いて、計算機シミュレーションにより解明しようという研究が脚光を浴びている。第一原理計算とは、実験によって得られた経験的パラメータを一切使用せず、原子の種類と電子の数だけを入力パラメータとし、量子力学の第一原理に基づいて最も安定な原子構造と電子状態を求める方法である。近年のコンピュータの急速な発達にもない、第一原理に基づく計算機シミュレーションはめざましい進展を遂げてきた。今日では、単一分子や小クラスターだけでなく、フラーレンやナノチューブ、デバイス用絶縁膜など十数 nm の大きさを持った構造体もシミュレーションの対象になりつつある。

ナノデバイスの開発を加速するには、量子力学の第一原理に基づいてナノスケールの輸送特性を調べ、目的にかなったナノスケール界面を設計する技術の開発が急務である。

2. 研究の目的

本課題は、これまで申請者が独自に開発してきた実空間差分法に基づく第一原理計算コードを改良し、デバイス用のナノ構造としてより実用性の高い電界効果トランジスタの絶縁用薄膜/基板界面の輸送特性を評価・予測する。シリコン系トランジスタにおけるゲート絶縁膜/基板接合界面、スピントロニクスデバイスにおける絶縁体/強磁性金属接合界面での原子・電子レベルでの接合状態の違いが導電性や絶縁性などといった量子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機能な界面ナノ構造を設計する。具体的には、①これまで申請者が独自に開発してきた第一原理量子輸送特性計算手法を改良し数百原子からなるナノ構造の量子輸送特性を評価ができる計算手法及び計算プログラムの開発、②実験結果や理論計算結果に基づいてこれまでに提案されている界面ナノ構造の量子輸送に関する機能評価と、優れた導電性や絶縁性、磁気抵抗比を持つ新たな界面ナノ構造の探索を行う。また、

第一原理計算の結果を実験にフィードバックすることにより、新たなナノデバイスの開発への指針を与えることを目指す。

3. 研究の方法

本研究では、我々のグループで開発した実空間差分法に基づく第一原理電子状態・電気伝導特性計算コードを用いた。この計算手法は、従来の第一原理計算手法である平面波や原子波動関数といった基底関数で波動関数やポテンシャルを展開する手法とは異なり、任意の空間上に散りばめたグリッドポイント上の波動関数やポテンシャルの値を直接求める方法である。そのため、平面波展開法のようにモデルが周期的である必要はなく、また原子波動関数展開法のように基底関数の非完全性による計算精度の劣化といった問題も無い。したがって、本研究のように薄膜を挟んだ電極間をトンネルする電子の振る舞いを正確に計算することが可能である。この計算コードを駆使して、MOS 界面でのリーク電流を低減することのできる界面を探索した。

4. 研究成果

図 1 に計算モデルを示す。原子核からのクーロンポテンシャルはノルム保存型擬ポテンシャルを用い、電子間相互作用は局所密度近似を用いた。Si/SiO₂ 界面は 7.7 Å のシリコン層と約 14 Å の酸化物層からなり、これを半無限に続くアルミニウムの Jellium 電極間に挟んだ。界面に垂直な方向には半無限に Jellium が続く境界条件を課し、平行な方向には周期境界条件を課している。界面領域部分の波動関数は、Overbridging boundary-matching 法を用いて求め、電極間を流れるリーク電流はランダウアーの公式を用いて計算した。そして図 2 に示すように界面部分に様々な原子レベルでの欠陥を作成

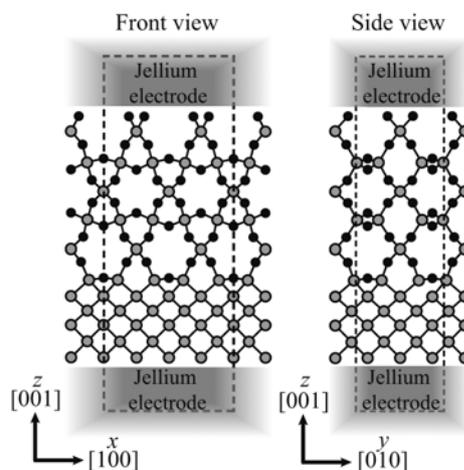


図 1 計算モデル。灰丸がシリコン原子、黒丸が酸素原子。

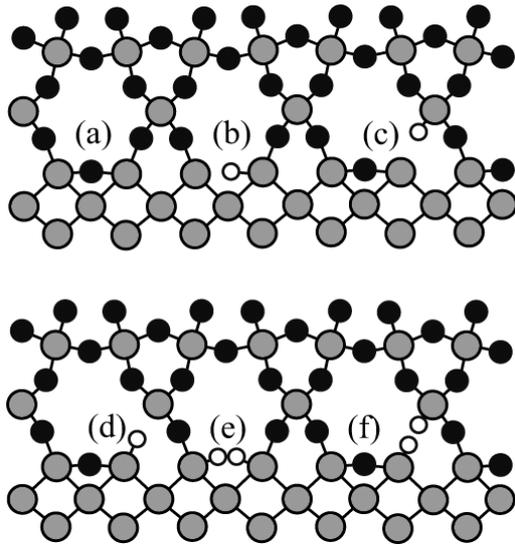


図2 界面欠陥構造。白丸は水素原子。(a)無欠陥モデル。(b)界面第一層酸素原子が脱離し、1つの水素原子でダングリングボンドを終端したモデル。(c)界面第二層酸素原子が脱離し、1つの水素原子で下方のダングリングボンドを終端したモデル。(d)界面第二層酸素原子が脱離し、1つの水素原子で上方のダングリングボンドを終端したモデル。(e)界面第一層酸素原子が脱離し、2つの水素原子でダングリングボンドを終端したモデル。(f)界面第二層酸素原子が脱離し、2つの水素原子でダングリングボンドを終端したモデル。

し、欠陥とリーク電流の相関を調べた。一般にシリコン酸化膜作成過程においては、水素雰囲気中で減処理を行いモデル(e)や(f)のようにダングリングボンドを水素原子で終端化する。しかし、シリコン原子と水素原子の結合力は弱く、デバイス動作中に熱電子によって容易に水素原子が脱離し、モデル(b)、(c)、(d)のような状態になる。したがって、図2に示すような原子構造は、実デバイス中で予想される界面欠陥構造である。

表1に、欠陥がないモデル(a)のリーク電流

表1 各モデルのリーク電流の比。モデル(a)の場合を1.0としている。

Model	Current ratio
(a)	1.0
(b)	3.9
(c)	12.6
(d)	534.3
(e)	0.9
(f)	1.6

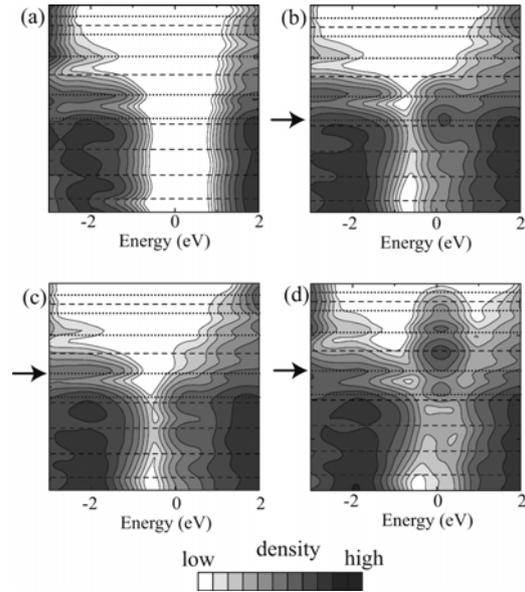


図3 界面の局所状態密度(LDOS)。(a)、(b)、(c)、(d)はそれぞれ図2のモデル(a)、(b)、(c)、(d)に対応する。

量を1とした場合の各モデルのリーク電流の比を示す。ダングリングボンドのあるモデル(b)、(c)、(d)は劇的にリーク電流が増加しているのに対し、ダングリングボンドのないモデル(a)、(e)、(f)はリーク電流が少ない。これは、水素による欠陥の減処理が有効に機能している証拠である。

次に、ダングリングボンドが存在する場合におけるリーク電流の違いについて考察する。図3に界面の局所状態密度(LDOS)を示す。LDOSは下記の式にしたがって界面に平行な面上で積分した。

$$\rho(z, E) = \iint |\psi(r, E)|^2 dx dy.$$

モデル(b)の場合、ダングリングボンドが界面に平行な方向を向いているので、欠陥準位の酸化膜領域への侵入が少ない。また、モデル(c)の場合においても、ダングリングボンドが界面に垂直な方向を向いているにも関わらず、ダングリングボンドを持つシリコン原子がシリコン基板側に沈み込んでいるため、欠陥準位の酸化膜領域への侵入がほとんどない。一方、モデル(d)の場合、ダングリングボンドが界面に垂直な方向を向いており、且つ酸化膜中に存在するため、酸化膜中に欠陥準位を形成する。したがってトンネル障壁が短くなりリーク電流が増大するものと考えられる。このように500倍以上のリーク電流の増加は、絶縁特性の劣化に深刻な影響を与えることが予想される。本研究により、今後の界面原子構造の設計に重要な指針が得られた。

ナノ構造体における第一原理電気伝導特

性計算について研究成果の例を紹介した。第一原理計算の分野では、計算モデルに原子構造を考慮した電気伝導計算がようやく可能になり、これまで実験のみではなかなか見えてこなかったナノ構造体中の電流経路や電子輸送を支配している要因が明らかになりつつある。今日、シリコンを用いたデバイスもナノスケールまで微細化されつつあり、今回示したようなナノ構造体は、ナノデバイス素子開発に利用できるとして注目を集めている。このようなデバイス素子の電気伝導特性も計算機の性能向上に伴い第一原理電気伝導計算を通じて明らかになるものと期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 11 件)

1. T. Ono, S. Tsukamoto, Y. Egami, and Y. Fujimoto: Real-space calculations for electron transport properties of nanostructures, *J. Phys.: Condens. Matter*, accepted, 査読有.
2. T. Ono and S. Saito: First-Principles Study on Electronic Structure of Dangling Bond at Ge/GeO₂ Interfaces, *Appl. Phys. Exp.* 4(2), 021303 (2011), 査読有.
3. S. Saito and T. Ono: First-Principles Study on Structural Properties of GeO₂ and SiO₂ under Compression and Expansion Pressure, *Jpn. J. Appl. Phys.* 50(2) 021503 (2011), 査読有.
4. T. Ota, K. Hirose, and T. Ono: First-Principles Study on Magnetic Ordering of Al Infinite Single-row Atomic Wire, *J. Phys.: Condens. Matter* 21(6) 064240 1-5 (2009), 査読有.
5. T. Ono: First-principles study on even-odd conductance oscillation of Pt atomic nanowires, *J. Phys. Chem. C* 113(15) 6256-6260 (2009), 査読有.
6. T. Ono: First-principles study of leakage current through a Si/SiO₂ interface, *Phys. Rev. B* 79(19) 195326 1-5 (2009), 査読有.
7. S. Saito, T. Hosoi, H. Watanabe, and T. Ono: First-principles study to obtain evidence of low interface defect density at Ge/GeO₂ interfaces, *Appl. Phys. Lett.* 95(1) 011908 1-3 (2009), 査読有.
8. S. Saito, T. Ota, J. Otsuka, and T. Ono: Electronic Polarization of AlN Nanotubes: A First-Principles Study Using Wannier Functions, *J. Comput. Theor. Nanosci.* 6(12) 2624-2628 (2009), 査読有.
9. T. Ono, K. Hirose and H. Goto: Real-Space Calculation Procedures for Electron Transport Properties of Nanostructures - Overbridging Boundary-Matching Method and Impulse-Response Method -, *J. Comput. Theor. Nanosci.* 6(8) 1789-1807 (2009), 査読有.
10. S. Tsukamoto, Y. Egami and T. Ono: Ballistic Electron Transport through Atomic Nanowires, *J. Comput. Theor. Nanosci.* 6(12) 2521-2544 (2009), 査読有.
11. J. Otsuka, K. Hirose, and T. Ono: First-principles calculation of electronic polarization of III-V nanotubes, *Phys. Rev. B* 78(3) 035426 1-4 (2008), 査読有.

〔学会発表〕(計 25 件)

1. 小野倫也: 第一原理計算による Si および Ge MOS 界面原子構造とリーク電流特性の予測, ゲートスタック研究会-材料・プロセス・評価の物理, (January 21-23, 2011, Tokyo, Japan).
2. T. Ono and T. Ota: First-principles study on transport properties of graphene flakes, *ElecMol'10*, (December 6-10, Grenoble, 2010), T7-PC29.
3. T. Ono: Ab initio Study on Transport Properties of Nanostructures, Third International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology, (November 24-26, Osaka, 2010), 5.4.
4. S. Saito and T. Ono: Interaction between Dangling Bonds and Passivants at Ge/GeO₂ Interfaces: A Theoretical Study, Third International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology, (November 24-26, Osaka, 2010), P23.
5. D.H. Nguyen and T. Ono: First-principles Study on Spin Polarization of Zigzag Border C/BN Nanotubes, Third International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology, (November 24-26, Osaka, 2010), P44.
6. M. Heide and T. Ono: Spin-Orbit Coupling and Noncollinear Magnetism in PAW Density-Functional Calculations, Third International Symposium on Atomically Controlled Fabrication Technology, (November 24-26, Osaka, 2010), P61.
7. M. Heide and T. Ono: Spin-orbit coupling and noncollinear Magnetism in PAW density-functional calculations, Psi-k Conference 2010, (September 12-16, Berlin, Germany), P170.
8. S. Saito and T. Ono: First-principles investigation of defect properties at Ge/GeO₂ interfaces, Psi-k Conference 2010, (September 12-16, Berlin, Germany), P562.
9. T. Ono: First-principles analysis on leakage current through Si/SiO₂ interface, Psi-k Conference 2010, (September 12-16, Berlin,

- Germany), P693.
10. P. Baumeister, D. Wortmann, T. Ono, and S. Blügel: Large scale DFT in real-space, Psi-k Conference 2010, (September 12-16, Berlin, Germany), P721.
 11. T. Ono: First-Principles Study on Transport Property of Nanostructures, International Conference on Core Research and Engineering Science of Advanced Materials (Global COE Program) & Third International Conference on Nanospintronics Design and Realization, (May 30- June 4, 2010, Osaka, Japan), 86.
 12. S. Saito, T. Hosoi, H. Watanabe, and T. Ono: Oxidation mechanism at Ge/GeO₂ interfaces: An ab initio study, 2010 MRS Spring Meeting (April 4-9, 2010, San Francisco, USA), I3.8.
 13. T. Ono and Daniel Wortmann: Computational design and evaluation of spintronics materials, JST-DFG Workshop on Nanoelectronics (January 18-19, 2010, Bonn, Germany).
 14. M. Heide and T. Ono: Spin-Orbit Coupling and Noncollinear Magnetism in PAW Density-Functional Calculations, International Conference on Core Research and Engineering Science of Advanced Materials (Global COE Program) & Third International Conference on Nanospintronics Design and Realization, (May 30- June 4, 2010, Osaka, Japan), 292.
 15. S. Saito and T. Ono: First-Principles Study of Defect Properties at Ge/GeO₂ Interfaces, International Conference on Core Research and Engineering Science of Advanced Materials (Global COE Program) & Third International Conference on Nanospintronics Design and Realization, (May 30- June 4, 2010, Osaka, Japan), 293 (2010).
 16. M. Heide and T. Ono: Spin-orbit coupling in density functional theory in a real space PAW framework, The 12th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (October 26-28, 2009, Beijing, China), P17.
 17. T. Ono: Leakage current through Si/SiO₂ interface, The 12th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (October 26-28, 2009, Beijing, China), P42.
 18. S. Saito, T. Hosoi, H. Watanabe, and T. Ono: First-Principles Calculation of Oxidation Mechanism at Ge/GeO₂ Interfaces, The 12th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (October 26-28, 2009, Beijing, China), P49.
 19. T. Ono: First-principles Calculation for leakage Current through Si/SiO₂ Interface, XIV INTERNATIONAL WORKSHOP ON COMPUTATIONAL PHYSICS AND MATERIALS SCIENCE: TOTAL ENERGY AND FORCE METHODS (January 8-10, 2009, Trieste, Italy), P0053.
 20. S. Saito, K. Hirose, and T. Ono: Electronic and structural properties of germanium dioxide, XIV INTERNATIONAL WORKSHOP ON COMPUTATIONAL PHYSICS AND MATERIALS SCIENCE: TOTAL ENERGY AND FORCE METHODS (January 8-10, 2009, Trieste, Italy), P0146.
 21. T. Ota, K. Hirose, and T. Ono: First-Principles Study on Magnetic Ordering of Al Infinite Single-row Atomic Wire, The 11th Asian Workshop On First-Principles Electronic Structure Calculations, (November 3 - 5, 2008, Kaohsiung, Taiwan), P-13.
 22. T. Ono: Oscillatory Behavior of Conductance of 5d Metal Nanowires, The 11th Asian Workshop On First-Principles Electronic Structure Calculations, (November 3 - 5, 2008, Kaohsiung, Taiwan), P-15.
 23. S. Saito, K. Hirose, and T. Ono: Ab Initio Calculation of Atomic and Structures of Germanium Dioxide, The 11th Asian Workshop On First-Principles Electronic Structure Calculations, (November 3 - 5, 2008, Kaohsiung, Taiwan), P-68.
 24. H. Kitajima, K. Hirose, and T. Ono: First-principles electron-transport calculation for fullerene polymers, 4th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, (September 29 - October 1, 2008, Osaka, Japan), P1-32.
 25. S. Saito, K. Hirose, and T. Ono: First-principles study on electronic structure of germanium dioxide, 4th Handai Nanoscience and Nanotechnology International Symposium, (September 29 - October 1, 2008, Osaka, Japan), P1-42.

6. 研究組織

(1)研究代表者

小野 倫也 (ONO TOMOYA)

大阪大学・工学研究科・助教

研究者番号：80335372