

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 12 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24710113

研究課題名(和文) 第一原理計算による高効率量子輸送デバイスのデザイン

研究課題名(英文) Computational design of high-efficient quantum device using first-principles calculation

研究代表者

小野 倫也 (Ono, Tomoya)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：80335372

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：申請者が開発した量子力学に基づく第一原理電子状態・量子輸送特性計算法を改良し、それを用いてナノデバイスの機能評価とデザインを行うことを目的としている。計算手法の改良においては、実空間差分法と非平衡グリーン関数法を組み合わせた輸送特性計算法を開発した。これを用いて、カーボンナノチューブを用いたデバイスの輸送特性の解明や、Ge(001)表面での表面欠陥による伝導電子の散乱ポテンシャルの計算に成功した。

研究成果の概要(英文)：In this project, the improvement of the first-principles calculation method for the calculation of transport property and electronic structure of nano devices, which is originally developed in my group, has been carried out. The evaluation and design of nano devices have been conducted using the developed methods. I improved the transport calculation scheme combining the real-space finite-difference approach and non-equilibrium Green's function method. I revealed the electron transport property of the devices utilizing carbon nanotubes and the scattering potential of defects on Ge(001) surface for conduction band electrons.

研究分野：複合新領域

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 輸送特性 ナノデバイス

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スケールに近づきつつある。次世代のナノデバイスの候補として、フラレンやナノチューブを用いた分子デバイス、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。たとえば、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を利用したものであり、その材料には少なからずレアメタルが用いられている。これらを代替する材料の候補には、実験的に生成が困難なものも少なくなく、理論計算により材料物性を予測できれば、研究開発の効率化が見込まれる。

申請者はこれまでナノ構造の電子状態と電気伝導特性を予測すべく、実空間差分法と呼ばれる独自の第一原理計算手法を開発するとともに、これを用いて電極間に構築されたナノ構造の量子輸送特性を計算する方法の開発を精力的に進めてきた。そして、この計算手法を用いて原子鎖の電子輸送特性や分子鎖の電子輸送特性、走査型トンネル顕微鏡における表面吸着原子とトンネル電流の相関、MOSデバイスのゲート絶縁膜/基板界面の欠陥とリーク電流の相関などを調べてきた。

本課題は、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手法を駆使してナノ構造体の輸送特性を評価・予測するという点において、これまでの申請者の研究実績に関連している。しかし、これまでの計算対象は小分子のコヒーレントな電子輸送特性であったものに対し、本課題は従来の第一原理計算よりも大規模な計算モデルを用いて、さらなる精度が要求されるスピン輸送および電子励起を伴ったホッピング伝導の解明に挑戦しようというものである。

2. 研究の目的

申請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・量子輸送特性計算法を改良し、これを用いてフラレンやカーボンナノチューブなどカーボン系材料を用いたナノデバイスの機能評価とデザインを行う。従来のコヒーレントな電子輸送に加え、スピン輸送現象や電子励起も伴ったホッピング伝導も研究対象に含む。チャネルとなるナノ構造体と電極界面での接合状態の違いやド

ープ元素の違いが導電性など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ナノデバイスを設計する。さらに、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

本課題では、現在の計算コードをスピン輸送特性の解析・予測と超大規模計算が出来るように改良する項目(i)、(ii)と、開発した計算コードを駆使してフラレンやカーボンナノチューブなどのカーボン系材料による高効率量子輸送ナノ構造の設計を行う項目(iii)を行う。研究項目(iii)から得られた知見に対して、実験的手法により実証できるものについては、申請者が所属する講座内や国内外の実験グループと連携してナノ構造の機能を評価する。

(i) 第一原理量子輸送特性計算コードの改良(高精度化)

現在のコードは電子輸送については高精度な計算ができることが確認されている。しかし、さらに高い精度が要求されるスピン輸送特性計算や電子励起を伴う輸送特性計算に適用可能であるかという問題がある。この問題を解決するために、磁性材料の電子状態計算に用いられているProjector Augmented Wave(PAW)法と呼ばれる計算手法を用いた解決法を探ってきた。そして、密度汎関数理論に基づく第一原理計算方法の中では、最高レベルの精度を実現する計算方法を考案した。この方法は、第一原理計算の分野で権威のあるPhysical Review B誌に掲載された。この方法を現在のコードに組み込み、第一原理スピン輸送特性計算を可能にする。

(ii) 第一原理量子輸送特性計算コードの改良(高速化)

実空間差分法に基づく第一原理計算法は、次世代スパコンに代表されるような超並列計算機に適した計算方法である。申請者も次世代スーパーコンピュータ戦略プログラム・計算物質科学イニシアチブの一員として参加している。従来型計算機用のコードから次世代スパコンタイプの計算機用にコードの改良を行うことにより、計算速度を向上させる。

(iii) 高効率量子輸送デバイス用材料の設計

電極間を分子で架橋した計算モデルを用いて、分子デバイス用の材料を設計する。従来の電子状態計算法を用いたフラレンやナノチューブ単体の電子状態解析のみならず、接合部での台座や欠陥形成など電極との接続状態による界面散乱や界面分極に起因するフェルミレベルシフトによる量子輸送特性の変化も評価する。

4. 研究成果

非平衡グリーン関数を用いた輸送特性計算は、タイトバインディング法や局在基底関数を用いた第一原理計算と組み合わせて用いられてきたが、実空間差分法と組み合わせて用いられることはほとんどなかった。これは、 N_x, N_y, N_z をそれぞれ x, y, z 方向のグリッド数としたとき、電極の表面グリーン関数と自己エネルギーを用いる過程で $N_x \times N_y \times N_z$ 次元の逆行列計算が生じるためである。局在基底関数よりも多くのグリッド数を使用する実空間差分法では、逆行列の計算がボトルネックになる。一方、我々が開発した Overbridging boundary-matching(OBM)法では、電極の寄与は、接合部分での波動関数の比を用いた $N_x \times N_y \times N_f$ 次元の比行列で取り込んでいる。ここで、 N_f は実空間差分法で用いる差分のオーダーであり、 N_z よりも十分に小さい。本研究では、OBM 法の比行列と非平衡グリーン関数の表面グリーン関数、自己エネルギーを関連付ける式を発見した。この式を用いることにより、 $N_x \times N_y \times N_z$ 次元の逆行列計算を $N_x \times N_y \times N_f$ 次元に減らすことができる。

この方法の有用性を示すアプリケーションとして、(9,0)ナノチューブに挟まれた BN リング(C/BNNT 構造)の輸送特性計算を行った。図 1 に計算モデルを示す。ここでは、Kohn-Sham 方程式の運動エネルギー項からくる二階微分に、中心差分を用いた。Kohn-Sham 方程式の有効ポテンシャルは、従来の周期的なスーパーセルを用いて求めた。電極領域のスーパーセルのサイズは、 $L_x=13.34 \text{ \AA}$ 、 $L_y=13.34 \text{ \AA}$ 、 $L_z=4.32 \text{ \AA}$ 、散乱領域のスーパーセルのサイズは、 $L_x=13.34 \text{ \AA}$ 、 $L_y=13.34 \text{ \AA}$ 、 $L_z=8.64 \text{ \AA}$ とし、グリッド幅は 0.24 \AA とした。ここで、 L_x, L_y はカーボンナノチューブの軸に垂直な方向、 L_z はカーボンナノチューブの軸に平行な方向のスーパーセルの長さである。この研究で開発された方法を用いることにより、自己エネルギーを表す行列の大きさは、75264 から 3136 まで削減された。その他の詳細な計算条件については、T. Ono *et al.*, Phys. Rev. B 86 195406 (2012) に記す。

C/BNNT 構造のコンダクタンススペクトルを図 2 に示す。OBM 法で計算されたコンダクタンススペクトルと非平衡グリーン関数法で計算されたコンダクタンススペクトルは、丸め誤差を無視すれば一致するため、非平衡グリーン関数法で計算されたもののみを示す。フェルミ準位近傍では、実質的に 2 本のチャンネルが伝導に寄与している。一方、カーボンナノチューブのエッジ準位による共鳴トンネルのスペクトルは観察されない。伝導計算の直観的理解に役立つ波動関数接合を用いて、この BN リングの伝導特性を考えると、伝導準位とエッジ準位の波動関数のナノチューブ軸周りの対称性がエッジ準位の共鳴トンネルが現れないことを説明できる。カーボンナノチューブの伝導準位はナノ

チューブの軸周りに 3 回対称であるが、エッジ準位は 5 回対称である。波動関数接合では、共鳴トンネルを起こす準位は、伝導準位と連続かつ滑らかにつながる必要があるが、対称性の異なるこれらの準位はつながらない。したがって、コンダクタンススペクトルにエッジ準位の共鳴トンネルによるスペクトルは現れない。

このように、本研究で開発した方法により、実空間差分法と非平衡グリーン関数法を組み合わせた輸送特性計算が可能になった。また、本研究で開発した公式により、非平衡グリーン関数法を用いた輸送特性計算で、輸送現象の直観的理解に役立つ散乱波動関数を用いた解釈が可能になった。

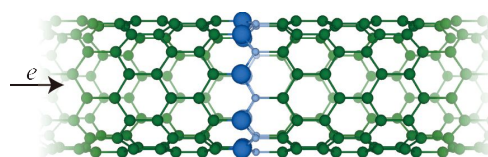


図 1: (9,0)ナノチューブに挟まれた BN リング(C/BNNT 構造)の計算モデル。青大球、緑球、青小球は、それぞれ窒素、炭素、硼素原子である。

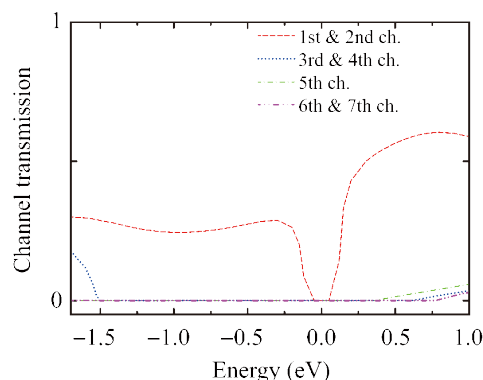


図 2: C/BNNT 構造のコンダクタンススペクトル

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 6 件)

Tomoya Ono, Yoshiyuki Egami, and Kikuji Hirose: First-principles transport calculation method based on real-space finite-difference nonequilibrium Green's function scheme, *Physical Review B* **86**(19) 195406 1-13 (2012) 査読有。

Tomoya Ono: First-principles calculation of scattering potentials of Si-Ge and Sn-Ge dimers on Ge(001) surfaces, *Physical*

Review B **87**(8) 085311 1-6 (2013) 査読有.

Tadashi Ota and Tomoya Ono: First-principles study of spin-dependent transport through graphene/BNC/graphene structure, *Nanoscale Research Letters* **8** 199 (2013) 査読有.

Marcus Heide and Tomoya Ono: Convergence of the Broyden density mixing method in noncollinear magnetic systems, *Journal of the Physical Society of Japan* **82**(11) 114706 1-10 (2013) 査読有.

Huy Duy Nguyen and Tomoya Ono: Doping Effect on Magnetism and Transport Property of Heterojunction between Carbon and Boron Nitride Nanotubes, *The Journal of Physical Chemistry C* **117**(46) 24115-24120 (2013) 査読有.

Tomoya Ono: First-principles electronic-structure and transport calculation formalism using real-space grid based method, *AIP Conference Proceedings*, **1558**, 1524-1527 (2013) 査読有.

〔学会発表〕(計7件)

Tomoya Ono: First-principles study on transport properties of carbon based nano-systems, Material Simulation in Petaflops, (July 12 -13, 2012, Kashiwa, Japan).

Tomoya Ono: First-principles study on electron transport property of nanoscale systems, International Symposium of Computational Science 2013 Special Session [Spintronics: First-Principles Simulation & Measurement] (February 18-19, 2013, Kanazawa, Japan).

Tomoya Ono: First-principles study on scattering properties of nanostructures, International Workshop of Computational Nano-Materials Design on Green Energy,

JSPS Core-to-Core Program Workshop, (June 16-19, 2013, Awaji, Japan).

Tomoya Ono: First-principles electronic-structure and transport calculation formalism using real-space grid based method (Plenary talk), Computational and theoretical analysis of grid-based quantum many-body theory, (September 21-27, 2013, Rhodes, Greece).

Tomoya Ono: Real-space grid-based calculations for electronic structures and transport properties of nanoscale devices, CMSI International Satellite Meeting 2013 “Novel Electronic Structure Method”, (October 17-18, 2013, Tokyo, Japan).

Tomoya Ono: First-principles study on transport property of defects at surface and interface, The 16th Asian Workshop on First-principles Electronic Structure Calculations (October 28-30, 2013, Beijing, China).

Tomoya Ono: First-principles study on electronic structures of defects on surface and interface, International Conference on Small Science, (December 15-18, 2013, Las Vegas, USA).

〔図書〕(計1件)

小野倫也: 第2章 表面界面物性シミュレーション, 超精密加工と表面科学, 大阪大学出版会 pp.19-32, (2014).

〔産業財産権〕

出願状況(計0件)

取得状況(計0件)

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小野 倫也 (ONO, Tomoya)

大阪大学・大学院工学研究科・助教

研究者番号: 80335372