

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 19 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K17497

研究課題名(和文) 時間に依存した第一原理電子輸送シミュレータの開発と応用

研究課題名(英文) Development and application of first-principles time-dependent electron-transport simulator

研究代表者

江上 喜幸 (Egami, Yoshiyuki)

北海道大学・工学研究院・助教

研究者番号：20397631

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、第一原理に基づく時間に依存した電子輸送特性計算手法である Impulse Response法について、ナノ物質中を伝播する電子の動的散乱過程だけでなく、時間変動する外場に対する応答特性を解析するため、新たなアルゴリズムの開発に取り組んだ。また、次世代電子デバイス材料として有用な物質のデザインに向けた基礎研究として、格子欠陥を含むカーボンナノチューブにおける適用計算を行い、本手法の性能確認を行った。期待される計算結果は得られたが、用いるパラメータに依存して数値誤差が深刻化してしまうケースがあり、さらなる検討が必要であることが分かった。

研究成果の概要(英文)：In this subject, the impulse response (IR) method, which is a first-principles calculation method to treat the time-dependent electron-transport properties of nanoscale materials, has been improved to investigate the response of scattering electrons to an external field varying with time. In order to demonstrate a performance of the improved IR method, it is applied to simulations of electron transport through BN-dimer embedded zigzag carbon nanotubes. By comparing with the results obtained by steady-state simulations using similar computational models, in some cases, it is confirmed that serious numerical errors can be induced depending on parameters employed in the time-dependent simulations. Thus, further works are needed on improving of the IR method.

研究分野：計算物理

キーワード：第一原理計算 電子輸送特性 時間依存密度汎関数法 Impulse Response法

1. 研究開始当初の背景

近年、ポストシリコン材料としてゲルマニウムやハフニウムをベースとした半導体材料、あるいは有機半導体材料やグラフェン、カーボンナノチューブ(CNT)などの炭素系ナノ物質、h-BNシートやシリセン、フォスフォレンなどの層状物質に注目が寄せられ、デバイス素子材料への応用研究に期待が寄せられている。多くの研究者によって、これらの物質における電子物性、特に電気伝導特性を明らかにするための実験研究、理論研究が盛んに行われている。

理論研究においては、第一原理に基づく高精度シミュレーションによる数多くの研究成果が報告されているが、これらのほとんどは定常状態における電気伝導特性を対象としたものである。デバイスにおける交流特性や過渡状態における挙動などの動的な特性の解析は、デバイス開発を進めるうえで避けて通ることはできない問題であり、そのためには時間に依存した電子輸送シミュレーションは必要不可欠である。

一般に第一原理計算手法は古典的な計算手法に比べ計算量が膨大であり、さらに「時間」の次元が増えた系では、実用的なシミュレーションを実行するためにはいくつもの高い障壁がある。しかし、近年では、スーパーコンピュータ「京」に代表されるような超並列計算機の普及により、計算コストの高い計算に対するハードウェア面から見た障壁は下がってきており、電子輸送特性の定量的な評価に向け、できる限り実際の実験環境・条件を再現できる計算手法の研究、開発を行うことは非常に意義深い。

2. 研究の目的

これまでに、時間依存密度汎関数理論に基づいた動的電子輸送特性計算法：Impulse Response(IR)法の開発を行ってきた。このIR法を基軸に、計算精度を向上させ、電場・磁場中における電子輸送シミュレーションが可能な手法へと機能を拡張させる。これにより、定量的な評価を目指した動的電子輸送特性解析を可能とするシミュレータを開発し、本手法を用いて次世代デバイス材料として有用な構造体のデザイン、および物性解明に向けた基礎研究を行うことを目的とした。

3. 研究の方法

まず、ナノ構造体における時間に依存した

電子輸送特性の定量的な評価を目指し、これまでに開発した Impulse Response(IR)法に対し、結晶電極および外場の効果を導入するためのアルゴリズム開発に取り組み、IR法の精度向上および機能拡張を目指した。

次に、本手法を用いて次世代デバイス材料として期待される炭素系ナノ物質や層状物質における時間に依存した電子輸送特性解析に取り組んだ。ここでは、実際のものづくりにおいて問題となる格子欠陥や不純物の物理、化学吸着などによる幾何構造、化学構造の変化と電子輸送特性の相関を明らかにすることに重点を置いた。さらに、時間変動する外部ポテンシャル場をシステムに取り入れ、これらに対する輸送電子の応答特性解析を目指した。

4. 研究成果

本研究課題において、IR法の改良として、結晶電極を用いたシミュレーションを実行できるようにアルゴリズムの開発を行った。また、並列計算用アルゴリズムの改良にも取り組み、「京」と同様の構成をもつ富士通製FX10上でHybrid並列計算を実行した。また、性能確認を兼ねて格子欠陥を導入したカーボンナノチューブにおける適用計算を行った。

一方で、非定常状態における輸送特性との比較のために、定常状態におけるカーボンナノチューブ、および有機金属錯体分子からなる分子接合における電子輸送特性シミュレーションを行なった。

以下に得られた成果の概要を記す。

(1) IR法の改良とそのデモンストレーション

これまでに開発したIR法では、電極をJelliumと呼ばれる連続体モデルで近似した計算を行っていた。本研究課題では、結晶構造を持つ電極中で時間発展する電子波を取り扱うためのアルゴリズム開発を行なった。

結晶電極の奥深くから伝播してくるBloch波の動的な散乱の様子を解析するためのアルゴリズムとして、平面波を基底関数としてBloch波を展開することで、その時間発展解を平面波の時間発展計算によって得ることを考えた。本計算手法を(6,0)ジグザグカーボンナノチューブからなる系に適用し、散乱波の時間発展シミュレーションを行った。しかし、予想とは異なる結果が得られたため、アルゴリズムの見直し、およびパラメータを

連続的に変えながらアウトプットに見られる変化を精査した。その結果、定常状態における計算結果から期待される特性は得られたが、時間の刻み幅や空間の刻み幅などのパラメータに依存して深刻な数値誤差が生じるケースが見られた。したがって、今後さらなるアルゴリズム、プログラムコードの検証研究が必要であると考えられる。

また、時間変動する電場に対する応答計算では、十分な計算精度を得るために、時間刻み幅をアト秒よりも小さくする必要があり、たとえばピコ秒オーダーのシミュレーションであっても数百万回以上の時間発展ステップ数を要する。数百コア以上の並列計算による長時間シミュレーションの実現のために、今後さらなる並列化アルゴリズムの見直しによる並列化効率の向上が必要不可欠である。

(2)有機金属錯体による分子接合の電子輸送特性シミュレーション

$Mn(dmit)_2$ 有機金属錯体を対象として、コンフォメーション変化に対する構造安定性と分子接合構造におけるスピンの依存した電子輸送特性について解析を行った。

まず、Mn 原子を挟んで対向する 2 つの dmit 配位子について、同一平面上にある状態(相対角度 $=0^\circ$)から直交する状態($=90^\circ$)まで変化させ、幾何構造に対するエネルギー安定性を調べた。平面構造から直交構造に遷移するための活性化エネルギーは 100meV 程度であったのに対し、逆方向の遷移においては 10meV 程度と非常に小さいことがわかった。

また、電子輸送シミュレーションでは、入射電子のエネルギーに対するコンダクタンススペクトルを調べた結果、入射電子のスピンの依存して大きく異なるスペクトルを示すスピンフィルタリング特性が見られた。また、down-spin 電子のスペクトルにおいて、

に依存した特異な振る舞いが見られた。平面構造の場合に見られるコンダクタンスピークは、dmit 配位子の軌道が支配的に寄与しており、配位子間の相対角度が大きくなると徐々にピークが小さくなり、やがて消失した。しかし、さらに θ を大きくすると、再びピークが現れた。散乱波動関数の分布を調べたところ、この新たなピークは dmit 配位子の軌道と Mn の d 軌道からなる状態の寄与によるものであることがわかった。このような電子輸送に寄与する分子軌道の切り替わりに伴う非単調なスペクトルの変化は、Mn 原子だけでなく、ほかの遷移金属を含む分子

でも同様に見られると考えられ、この機構を利用した新たな分子接合構造の設計が期待できる。

(3)カーボンナノチューブにおける電子輸送特性シミュレーション

BN ダイマーをドープした(6,0)ジグザグカーボンナノチューブ(CNT)における電子輸送特性についてシミュレーションを行った。

本研究では、CNT を伝播する電子波が CNT 円周上に周期的なノードを持つことに着目し、不純物としてドープした BN ダイマーとノードの相対位置による輸送特性の変化について研究を行った。その結果、BN ダイマーのドープによって空間的に広がった散乱ポテンシャルが存在しているにもかかわらず、ダイマーとノードの位置が一致している場合にはボルン近似で記述できる程度の非常に弱い電子散乱しか起こらないことがわかった。一方で、それ以外の場合には、電子の透過率が著しく低下することもわかった。これにより、CNT における電子輸送をドープする不純物の配置によって制御できることが明らかになった。

数値シミュレーションによる時間に依存した電子物性研究には大きな未踏領域が存在しており、本研究課題では電子輸送における散乱電子波の時間変化に注目した研究を行った。これまでに、輸送チャンネルにおける伝播速度の違いなど、定常状態では見えてこない時間応答に着目した新たな切り口からの解析を行い、これまでにない非常に重要な成果を得ることができた。今後、本手法を発展させ、また、本手法による成果を発信していくことで、ナノ物質の物性研究分野のさらなる飛躍に貢献できると考える。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 6 件)

Y. Egami, S. Tsukamoto, and T. Ono:

“First-principles calculation method and its applications for two-dimensional materials”, *Quantum Matter* **6**, 4 (2017). [査読あり]

DOI: 10.1166/qm.2017.1390

H. Akera, H. Suzuura, and Y. Egami:

“Gate-voltage-induced switching of

the Rashba spin-orbit interaction in a composition-adjusted quantum well”, Phys. Rev. B **95**, 045301 (2017). [査読あり]

DOI: 10.1103/PhysRevB.95.045301

Y. Egami and H. Akera: “First-principles study on electron transport through BN-dimer embedded zigzag carbon nanotubes”, Physica E **88**, 212 (2017). [査読あり]

DOI: 10.1016/j.physe.2017.01.002

Y. Egami, S. Iwase, S. Tsukamoto, T. Ono and K. Hirose: “First-principles calculation method for electron transport based on grid Lippmann-Schwinger equation”, Phys. Rev. E **92**, 033301 (2015). [査読あり]

DOI: 10.1103/PhysRevE.92.033301

S. Tsukamoto, T. Ono, and Y. Egami: “Ballistic electron transport through nanostructure junctions from a real-space finite-difference approach”, Quantum Matter **4**, 403 (2015). [査読あり]

DOI: 10.1166/qm.2015.1213

H. Akera, H. Suzuura, and Y. Egami: “Spin relaxation in a quantum well by phonon scatterings”, Phys. Rev. B **92**, 205311 (2015). [査読あり]

DOI: 10.1103/PhysRevB.92.205311

[学会発表](計 8 件)

石川達也, 江上喜幸, 明楽浩史: “BNダイマーをドーピングした半導体型ジグザグカーボンナノチューブにおける電子輸送の第一原理研究”, 日本物理学会第72回年次大会(大阪大学), 20pD41-4 (2017-03-20).

江上喜幸, 明楽浩史: “量子井戸の強束縛モデルにおけるRashbaスピン軌道相互作用のバンドオフセット依存性”, 日本物理学会第72回年次大会(大阪大学), 18aA21-10 (2017-03-17).

江上喜幸, 岩瀬滋, 塚本茂, 小野倫也, 広瀬喜久治: “MOS界面中の欠陥によるリーク電流に関する数値シミュレーション”, 北海道大学イノベーションフォーラム2016(北海道大学), 1 (2016-09-23).

霜田将嗣, 丹田聡, 江上喜幸, 新見佳子, 末永和知: “カーボンナノチューブ内ヨウ素原子鎖のける電子輸送現象”, 日本物理学会2016年秋季大会(金沢大学), 15aBG-1 (2016-09-15).

谷口慎, 江上喜幸, 広瀬喜久治: “遷移金属錯体分子における時間に依存した電子輸送特性の第一原理研究”, 日本物理学会第71回年次大会(東北学院), 20pBD-2 (2016-03-20).

Y. Egami, H. Akera, and K. Hirose: “First-Principles Study on Electron-Transport Properties of Graphene with Substitutional Line Defect”, 18th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations, ISSP, University of Tokyo, Kashiwa, Japan (2015-11-10).

江上喜幸, 明楽浩史, 広瀬喜久治: “第一原理に基づく時間に依存した電子輸送特性計算手法の開発II”, 日本物理学会2015年秋季大会(関西大学), 19pCR-1 (2015-09-19).

石川達也, 江上喜幸: “OPV系分子ワイヤにおけるコンダクタンスの幾何構造依存性に関する第一原理研究”, 日本物理学会2015年秋季大会(関西大学), 18aPS-14 (2015-09-18).

[その他]

ホームページ等

<http://zimg-ap.eng.hokudai.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

江上 喜幸 (EGAMI, Yoshiyuki)

北海道大学・大学院工学研究院・助教

研究者番号: 20379631