

令和 3 年 5 月 21 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K04873

研究課題名（和文）原子層状物質における電流誘起によるバレー偏極生成に関する第一原理研究

研究課題名（英文）First-principles study on current-induced valley polarization in atomic-layered materials

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） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究課題では、原子層状物質における電流誘起バレー偏極生成を行い、そのメカニズムと偏極の大きさを決める支配的ファクターを、第一原理計算に基づく数値シミュレーションによって明らかにすることを目的とした。そのために、数十万原子を含むような大規模系における電子輸送シミュレーションを可能とする新たなアルゴリズムの開発を行った。これにより、長距離電子輸送シミュレーションが可能となり、グラフェン上に形成された電流経路における電子輸送特性の解析を行った。

研究成果の学術的意義や社会的意義

第一原理計算と呼ばれる計算手法は、高精度シミュレーションが可能である反面、計算コストがシステムサイズの3乗に比例するため、実験環境を正確に模したモデルを用いることは、「京」や「富岳」のような世界最高性能を持つスパコンをもってしても困難である。本研究では、電流誘起バレー偏極生成に関する数値シミュレーションを目的に、計算精度の劣化なく、かつ計算コストを抑えた第一原理電子輸送計算アルゴリズムを開発した。また、世界でも類を見ない、数十万原子を含む大規模系の電子輸送シミュレーションも可能であることを実証した。

研究成果の概要（英文）：In this subject, the mechanism of current-induced valley polarization in atomically layered materials and the dominant factors determining the magnitude of the polarization were investigated by first-principles simulations based on the density functional theory. For this purpose, a new algorithm is required to simulate electron-transport properties in large-scale systems containing hundreds of thousands of atoms. This enables us to demonstrate long-range electron-transport simulations and analysis of electron-transport properties in current paths formed on graphene.

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 Green関数 グラフェン カーボンナノチューブ

1. 研究開始当初の背景

近年、物質中の電荷、スピンの自由度に加え、第3の電子の性質であるバレー自由度をデバイスに応用するバレートロニクス分野が注目を集めている。例えば、八面体構造を持つ原子層状物質であるグラフェンや単層 MoS_2 では、伝導帯下端の同じエネルギー準位に軌道磁気モーメントの符号が異なる2種類のバレー(谷)が第1ブリルアンゾーンのK点とK'点に存在している。電荷やスピンと同様に、バレーについても大きな偏極を得ることは、デバイス開発において重要な課題のひとつである。これまでに、円偏光が持つ角運動量の転写による択一的なバレーの励起やバレーHall効果によって大きなバレー偏極の生成が可能であることが実験や理論研究によって確認されている。

このバレーHall効果の実験では、各バレーの電子が持つ軌道磁気モーメントの符号や大きさによって電流経路が曲線軌道を描いて曲がる。このことから、意図的に経路を曲線軌道にした電流は、その曲率に応じたバレー状態にあることが示唆されている。このことから、電流が軌道角運動量を持つように経路を曲線軌道にすることで、その角運動量を電子の軌道磁気モーメントに転写することも可能であると考えられるが、具体的なメカニズムや偏極の大きさを決める支配的なファクターについての研究は未踏領域である。

2. 研究の目的

本研究課題では、「電流誘起のバレー偏極の大きさを支配するパラメータを明らかにする」ことを目的とし、第一原理計算を機軸とした理論的側面からのアプローチする研究を行う。そのために、(1)大規模電子輸送シミュレーションが可能な第一原理計算アルゴリズムを開発すること、(2)原子層状物質の幾何的構造変化や、化学的構造変化がバレー偏極の大きさに与える影響を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

電流経路に曲率を持たせるためには大規模なシミュレーション領域を必要とする。一般に第一原理計算は、システムサイズの3乗に比例する計算量を要求するため、高速化アルゴリズムや超並列計算機への実装などが行われてきた。これまでに、電子状態や原子構造計算については、計算コストのオーダーN化など様々な成果が得られているが、電子輸送計算においてはコストの削減は大きな課題として残っている。本研究ではまず、大規模領域における電子輸送特性計算を可能とする新たな第一原理アルゴリズムの開発を行った。2003年に藤本らによって開発されたOverbridging boundary-matching(OBM)法をもとに、計算のボトルネックとなる(a)半無限結晶電極における自己エネルギーの計算と(b)電極間に挟まれたナノ構造体を含む散乱領域におけるGreen関数計算について、新たなアルゴリズムの導入により計算コストの削減、最適化を目指す。また、開発した手法を用いて、原子層状物質におけるバレー偏極生成メカニズムの解明に取り組む。

4. 研究成果

(1) 一般に、第一原理に基づく電子輸送特性計算では、システムサイズの3乗に比例した計算コストがかかるため、大規模系のシミュレーションは困難である。本研究では、電流経路によるバレー偏極の制御を考えているため、長距離の電子輸送シミュレーションが必要である。そこで、大規模系における第一原理電子輸送シミュレーションにおけるコストを効率的に削減し、かつ計算精度の劣化を抑えたアルゴリズムを開発した。OBM法に基づく電子輸送シミュレーションのためには、(a)半無限電極における自己エネルギーと(b)散乱領域におけるGreen関数が必要であり、それぞれについて高速計算アルゴリズムを開発した。

(a) 電子輸送特性計算において半無限結晶中における自己エネルギーやBloch waveの計算コストは電子輸送方向に垂直な断面サイズの3乗に比例した計算コストがかかる。ここでは、断面方向に周期的な構造を持つ結晶電極について、その最小単位であるユニットセル構造などのサブスペースに分割することを考え、各サブスペースについて計算した自己エネルギーやBloch waveから、断面積の大きな電極における必要なデータを構築することを考えた。

デモンストレーションとして、金属、半導体のバルク構造を用いた電子輸送特性シミュレーションを行い、計算コストを断面積の増加に対して線形にまで抑えることが可能であることを示した。また、計算精度も従来法に比べて劣化することなく、十分な精度をもって実行可能であることが確認された。さらに、開発手法の適用研究として、フッ素による表面化学修飾を施したグラフェンを対象とした電子輸送特性シミュレーションを行った。フッ素の修飾によって、炭素原子周りの電子軌道が sp^2 混成軌道から sp^3 混成軌道に変化し、グラフェンの高い伝導性を阻害することから、フッ素配置の周期性を変えることによる輸送特性の変化を調べた。散乱領域での状態密度計算の結果、入射Bloch waveが散乱領域の状態とうまく結合できないため、Fermi準位近傍における電子輸送が大きく阻害されることが分かった。一方で高エネルギー領域においては、2種類の伝導チャンネルが存在し、フッ素配置と入射Bloch waveのパリティの違いによって透過率ピークの大きさ位置が大きく変化することを示した。

- (b) 数万原子以上を含んだ大規模系における電子輸送特性について、第一原理計算による数値シミュレーションを実行するためのアルゴリズムを開発し、適用研究を行った。数百～数十万原子からなる2層カーボンナノチューブを対象として、電子輸送特性、および電子の空間輸送経路の制御可能性について研究を行った。ここでは、ホウ素原子と窒素原子を対とするBNダイマーを外側のナノチューブに共ドーピングすることによって、フェルミ準位近傍での電子輸送における空間輸送経路を制御することを考えた。また、ドーピングするBNダイマーの配置周期と電子透過率の相関関係についても解析を行った。先行研究として、経験的パラメータによる強束縛近似を用いた数値シミュレーションにおいて数万原子以上の計算モデルにおける電子輸送を行った例はあるが、第一原子レベルの高精度シミュレーションにおいて、数十万原子といった巨大な系の電子輸送特性計算を行った例は、代表者の知る限り世界でも例がないものである。
- チューブ軸方向に対しては周期的に、円周方向の配置についてはランダムにBNダイマーをドーピングしたモデルと配置をそろえた周期モデルを考え、電子輸送特性の違いについて解析を行った。DWCNTの長さをサブナノスケールからサブミクロンまで変化させた際に、ランダムモデルと周期モデルにおけるコンダクタンススペクトルの変化の違いを解析した結果、ランダムモデルでは、チューブ長が長くなるにつれコンダクタンスが大きく減少したのに対し、周期モデルでは高いコンダクタンスを保ったままであった。また、周期モデルではスペクトル中にディップ構造が見られ、これはクローニツヒ=ペニーモデルに見られる、周期的な散乱ポテンシャルによって生じるバンドギャップの影響が現れたものと考えられる。このような応答は、大規模系の計算を行うことで初めて観察することができたものである。
- 以上のように、大規模電子輸送シミュレーションを妨げる要因であったシステムサイズの3乗に比例する計算コストの大幅な削減を、計算精度を劣化させることなく達成した。これにより、これまで「京」や「富岳」のような超並列計算機をもってしても取り扱いが困難であった大規模な計算モデルでも効率的かつ精度よく取り入れることができ、長距離電子輸送シミュレーションの実行が可能となった。
- (2) 基礎研究として、原子層状物質における電流の空間経路の制御法について第一原理計算に基づく数値シミュレーションによる解析を行った。グラフェンを対象として、表面の化学修飾によって電子輸送特性、および電子の空間輸送経路の制御可能性について研究を行った。ここでは、前述のように、フッ素をグラフェンの両面に吸着させることで、フェルミ準位近傍での電子輸送に支配的な π 軌道を終端化することで、空間輸送経路を制御することを考えた。また、吸着原子の配置や密度と電子透過率の相関関係についても解析を行った。
- 先行研究として、フッ素吸着によってボトルネック構造を作成することで、物理的に切断することなく、グラフェンナノリボンと同様の電子構造が見られることが知られている。ここでは、まず、ジグザグの原子列を一つだけ残してフッ素を吸着させ、原子鎖構造を作製し、原子鎖部分を選択的に電子が透過できるかを確認した。シミュレーションの結果、フッ素化によって電子輸送が効率的に阻害され、原子鎖部分を選択的に電子が輸送していく様子が観察できた。また、中空に担持した原子鎖構造における数値シミュレーションの結果と比較を行った。その結果、中空担持モデルと同様に、原子鎖の長さによってコンダクタンスの振動現象が観察されることがわかった。このように、化学修飾によって電子状態に変化を加え、電流経路の制御可能性について重要な知見を得ることができた。すなわち、グラフェン表面のフッ素修飾によって、ボトルネック構造を作製することにより、原子鎖の様に、電子が流れることができる領域を制御することが可能であることが分かった。また、原子鎖状の単純な構造を対象とした解析をしたことよって、議論が明快になり、輸送電子の波動関数が持つ波数や対称性が、その輸送特性を議論する上で非常に重要なファクターとなることを明らかにした。
- さらに、未修飾部分の面積を広げることで、グラフェンナノリボン(GNR)構造と酷似したグラフェンナノロード構造を形成し、電子輸送シミュレーションを行ったところ、GNR構造と同様、フッ化領域との境界であるエッジ部分を電子が選択的に輸送することが分かった。グラフェンのフッ化領域は、リソグラフィ技術によるパターンニングが可能であり、表面修飾による電流経路の制御が十分可能であることが示された。
- (3) 開発アルゴリズムを用いて、原子層状物質であるグラフェンやh-BN構造を対象として、化学構造による電子輸送経路の制御を行い、輸送電子における軌道角運動量の変化について解析を行った。h-BNシート中に炭素原子鎖による電子輸送経路を2本作製し、外部電場やアドアトムなどによるポテンシャル差によってK点とK'点近傍における軌道磁気モーメントの制御を試みた。これにより、空間的に局在し、かつ電化やスピンの偏極の大きさを変化させることを可能としたが、十分なバレー偏極を生成するには至らなかった。今後、輸送経路の湾曲の大きさや配置の組み合わせを変えるなどにより、さらに大きなバレー偏極生成を試み、電流誘起のバレー偏極の大きさを制御する支配的なファクターを明らかにすることを目指すが、候補構造が膨大であるため、今後は、機械学習的推定法の構築を検討している。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 2件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Yoshiyuki Egami, Shigeru Tsukamoto, and Tomoya Ono	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 75413
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.07	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 Iijima Tomonori, Egami Yoshiyuki, and Akera Hiroshi	4. 巻 59
2. 論文標題 Suppressing effective magnetic field and spin-relaxation rate by tuning barrier compositions in a (111) quantum well	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 100901 ~ 100901
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.35848/1347-4065/abb3d5	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 Egami Yoshiyuki, Tsukamoto Shigeru, and 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 13038
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

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 工藤聖浩, 江上喜幸
2. 発表標題 強束縛近似を用いたグラフェンナノロードの電気伝導計算
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石川達也, 江上喜幸, 明楽浩史
2. 発表標題 h-BN双晶界面に由来するHelical channels
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 小島佑太, 江上喜幸
2. 発表標題 SiC上のグラフェンにおける界面欠陥とSTM像に関する第一原理研究
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 原島 崇徳, 江上 喜幸, 小野 倫也, 西野 智昭
2. 発表標題 伝導度計測を用いたペプチドのリン酸化の単一分子検出
3. 学会等名 第58回日本生物物理学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takanori Harashima, Yoshiyuki Egami, Tomoya Ono, Tomoaki Nishino
2. 発表標題 Electrical Single-molecule detection of peptide phosphorylation
3. 学会等名 28th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石川達也, 江上喜幸, 明楽浩史
2. 発表標題 歪を持つグラフェンhBN積層構造の電子状態
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 工藤聖浩, 江上喜幸
2. 発表標題 グラフェンナノロードにおける電子輸送特性についての第一原理計算
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 飯島智徳, 江上喜幸, 明楽浩史
2. 発表標題 (111)非対称二重量子井戸におけるスピン緩和とスイッチング
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 江上喜幸, 塚本茂, 小野倫也
2. 発表標題 大規模第一原理電子輸送シミュレーションに向けたグリーン関数計算手法の開発
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大原浩平, 江上喜幸, 明楽浩史
2. 発表標題 第一原理計算に基づく空間反転対称性の破れた 族原子層における電流誘起スピン偏極
3. 学会等名 日本物理学会 第75回年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yoshiyuki Egami and Masahiro Kudo
2. 発表標題 First-Principles Study on Electron Transport Properties of Halogenated Graphene
3. 学会等名 21st Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations (ASIAN-21) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 江上喜幸, 工藤聖浩
2. 発表標題 フッ化グラフェンにおける電子輸送特性制御に関する第一原理研究
3. 学会等名 日本物理学会 第74回年次大会
4. 発表年 2019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
---------------------------	-----------------------	----

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			
ドイツ	Forschungszentrum Juelich			