

研究種目：基盤研究 (C)

研究期間：2007～2010

課題番号：19540411

研究課題名 (和文) 第一原理アプローチによるナノ構造の電子・原子動的過程と励起状態の研究

研究課題名 (英文) First-principles approach to study on electron and atom dynamics and excited states of nanostructures

研究代表者

渡辺 一之 (WATANABE KAZUYUKI)

東京理科大学・理学部・教授

研究者番号：50221685

研究代表者の専門分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・数理物理、物性基礎

キーワード：第一原理非平衡電子状態計算、表面・界面物性、ナノ構造

1. 研究計画の概要

ナノスケール構造の非平衡電子現象、励起状態、原子輸送過程を、時間依存密度汎関数法 (TDDFT)、非平衡グリーン関数法 (NEGF)、非平衡分子動力学法 (NEMD) を併用して明らかにすることを目的とする。本研究期間 (4 年間) で以下のテーマに関する研究を推進する。

- (1) TDDFT-MD 法によるナノ構造光吸収励起状態、
- (2) ナノ架橋構造の交流応答、
- (3) 電界電子放射 (FE) 下の表面原子の挙動
- (4) DFT+NEGF 法によるナノ架橋構造の電子輸送と原子過程の解析。

2. 研究の進捗状況

上記 4 つの研究テーマについてまとめる。

- (1) TDDFT 法を 1 次元原子鎖 (Na と C) の光吸収スペクトル解析に応用することで、構成原子種によるスペクトル形状の違い、プラズマ励起的なスペクトルを見出した。TDDFT-MD 法のプログラム開発を行い、それを高強度超短パルスレーザーによる分子 (H_2 , N_2 , CH_4 , C_6H_6) 解離シミュレーションに応用し、レーザー強度・振動数に関する解離条件とその微視機構を明らかにした。平面波基底 (周期系) を使った TDDFT-MD プログラムも開発し、固体とのイオン散乱のシミュレーションに取りかかる。
- (2) 平成 21 年度に NEGF 法によって金属カーボンナノチューブ (CNT) の交流アドミッタンスを調べた結果、CNT のカイラリティーによってその特性が異なること、ある条件のもと CNT が交流等価回路にモデル化できることを示した。
- (3) 平成 19 年度に FE 下表面原子が放射電流

が原因で真空中に蒸発する現象を散乱波動関数リカーゾン法によって明らかにした。

(4) 窒素ドーピングした CNT に光を照射することで電気伝導が著しく増大するという結果を得た。また、光照射で励起したエキシトン間のオージェ再結合過程で電流が増大することを Bethe-Salpeter 方程式を解くことによって見出した。

3. 現在までの達成度

② おおむね順調に進展している。

理由：研究計画調書で設定した上記 4 つの研究テーマに対し、着実な成果が得られている。テーマ (2) と (3) については、すでに当初の目的を達成し、(1) についても、開発した TDDFT-MD プログラムによって応用課題として超高速光表面反応と固体表面のイオン散乱シミュレーションにとりかかっている。(4) についても、光電流に及ぼす多励起子効果の解析を DFT+Bethe-Salpeter 方程式を使って進める段階にある。さらに、NEMD による温度勾配駆動質量輸送のシミュレーションに関してもデータ蓄積の段階にあり、最終年度には論文に纏める。

4. 今後の研究の推進方策

上記研究テーマ (2) と (3) については達成済みと考えているので、(1) と (4) について述べる。

(1) TDDFT-MD 法への表面電子状態の組み込み、プログラムの並列化、エネルギー散逸効果の導入、Surface-hopping モデルの導入に順次取り組む。

(4) 第一原理励起子解析と温度勾配駆動質量輸送 NEMD 法シミュレーションを進める。

①DFT+Bethe-Salpeter 方程式を解くことによって、欠陥を含むグラフェンリボンの光吸収スペクトルと電子輸送に与える励起子効果を明らかにする。

②NEMD 法によって、ファン・デル・ワールス相互作用がどのような形で温度勾配駆動質量輸送に寄与するかを、明らかにする。

5. 代表的な研究成果

(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 13 件)

- ① T. Yamamoto, K. Sasaoka, S. Watanabe, K. Watanabe, Two chirality classes of ac quantum transport in metallic carbon nanotubes, Phys. Rev. B 81, 115448-1~6 (2010), 査読有.
- ② S. Konabe, T. Yamamoto, K. Watanabe, Auger-Recombination Induced Photocurrents in Single Walled Carbon Nanotubes, Appl. Phys. Exp. 2, 092202-1~3 (2009), 査読有.
- ③ K. Taguchi, J. Haruyama, K. Watanabe, Laser-Driven Molecular Dissociation: Time-Dependent Density Functional Theory and Molecular Dynamics Simulations, J. Phys. Soc. Jpn. 78, 094707-1~6 (2009), 査読有.
- ④ M. Araidai, K. Watanabe, Ab Initio Calculation of Surface Atom Evaporation in Electron Field Emission, e-J. Surf. Sci. Nanotech. 5, 106~109 (2007), 査読有.

[学会発表] (計 53 件)

- ① K. Watanabe, Electronic transport in graphitic nanostructures with structural defects under bias and gate voltages, The 4th Conference of the Asian Consortium on Computational Materials Science, 2007.9.13., KIST, Seoul, Korea.

[図書] (計 1 件)

- ① T. Yamamoto, K. Watanabe, S. Watanabe, Oxford University Press, Thermal transport of small systems in The Oxford Handbook of NANOSCIENCE AND TECHNOLOGY, Vol. I , Basic Aspects (2010) 145-166.

[その他] ホームページ

<http://www.rs.kagu.tus.ac.jp/~watlab/>